JAEA-Review
2019-041
DOI:10.11484/jaea-review-2019-041

放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献（委託研究）

ー平成 30 年度　英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業ー

Contribution to Risk Reduction in Decommissioning Works by the Elucidation of Basic Property of Radioactive Microparticles (Contract Research)

-FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development-

廃炉国際共同研究センター
茨城大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science
Ibaraki University

福島研究開発部門
福島研究開発拠点

Fukushima Research Institute
Sector of Fukushima Research and Development

March 2020

Japan Atomic Energy Agency　日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ（https://www.jaea.go.jp）
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方 2 番地4
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to
Institutional Repository Section,
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,
Japan Atomic Energy Agency.
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2020

JAEA-Review 2019-041

放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献（委託研究）
－ 平成 30 年度　英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業 －

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

廃炉国際共同研究センター

茨城大学

（2019 年 11 月 29 日受理）

日本原子力研究開発機構（JAEA）廃炉国際共同研究センター（CLADS）では、平成 30 年度　英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業（以下、「本事業」という）を実施している。本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（1F）の廃炉等を始めとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、平成 30 年度「放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献」について取りまとめたものである。

1F 事故にて放出された放射性微粒子が廃炉手順の確立（溶融燃料等の回収、炉内除染、作業員の安全確保等）に関し重要な炉内事故事象解明のための情報源ともなっている。本研究は、これら粒子の基礎的な物性（粒径、組成、電気的性質、光学的性質など）につき詳細な知見を得るとともに、日英のシナジー研究により α 放射体の量的評価を含む放射性微粒子の諸特性をさらに解明して、「廃炉」計画のリスク低減にむけた作業全般に寄与する研究・開発を行う。

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、茨城大学が実施した成果に関するものである。
廃炉国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字王塚 790-1

JAEA-Review 2019-041

Contribution to Risk Reduction in Decommissioning Works by the Elucidation of Basic Property of Radioactive Microparticles (Contract Research)
－ FY2018 Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development －

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science

Ibaraki University

Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Japan Atomic Energy Agency
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

(Received November 29, 2019)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), has been conducting the Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development (hereafter referred to "the Project") since FY2018. The Project aims at solving problems in nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. For this purpose, intelligence has been collected from all over the world, and basic research and human resource development have been promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields. The sponsor of the Project was changed from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA established a new research scheme where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2018, this report summarizes the research results of the "Contribution to Risk Reduction in Decommissioning Works by the Elucidation of Basic Property of Radioactive Microparticles".

In order to establish the decommissioning procedures (recovery of the melted fuels, decontamination inside the reactors, ensuring the safety of the workers, etc.) of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, radioactive microparticles released by the accident are an important information source for clarifying what had happened inside the reactors in the course of the accident. The purpose of the present study is to obtain detailed knowledge on the basic properties (particle size, composition, electrical/optical properties, etc.) of the radioactive microparticles, as well as to further elucidate the various properties of the radioactive microparticles including the quantitative evaluation of alpha-ray-emitters, through the Japan-UK synergetic research. Thus, we are conducting research and development that will contribute to the comprehensive works towards the risk reduction in the "decommissioning" plan.

Keywords: Radiocesium, Radioactive Microparticles, Cs Isotopes, Trace Analysis, ^{90}Sr, Pu, Optical and Electrostatic Characteristics

---

This work was performed by Ibaraki University under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1　英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要 1

2　平成 30 年度採択課題 2

付録　成果報告書 5

Contents

1. Outline of Center of World Intelligence Project for Nuclear Science/Technology and Human Resource Development 1

2. Accepted Proposal in FY2018 2

Appendix　Result Report 5

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン（平成 26 年 6 月文部科学省）」等を踏まえ、平成 27 年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」（以下、「本事業」という。）を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」という。）では、平成 27 年に廃炉国際共同研究センター（以下、「CLADS」という。）を組織し、「東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所廃炉（以下、「1F 廃炉」という。）に係る研究開発を進めている。

また、平成 29 年 4 月に CLADS の中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後は CLADS を中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成 30 年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省から JAEA に移行することで、JAEA とアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来のプログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム（平成 31 年度より新設）に再編した。

2. 平成 30 年度採択課題

平成 30 年度は「共通基盤型原子力研究プログラム」、「課題解決型廃炉研究プログラム」、「国際協力型廃炉研究プログラム」において、研究課題の採択を決定した。公募の概要は以下のとおりである。

- 公募期間：平成 30 年 5 月 22 日（火）～6 月 22 日（金）
  平成 30 年 5 月 22 日（火）～7 月 12 日（木）※日英共同研究のみ
- 提案数：
  共通基盤型原子力研究プログラム　49 課題（若手研究 14 課題、一般研究 35 課題）
  課題解決型廃炉研究プログラム　28 課題
  国際協力型廃炉研究プログラム　5 課題

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定し、その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、表 2-1 に掲げる 19 の採択課題を決定した。

表 2-1　平成 30 年度採択課題一覧（1/3）

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野　仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山﨑　信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響評価	片岡　隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石　佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田　幹男	東京工業大学

表 2-1　平成 30 年度採択課題一覧（2/3）

課題名	研究代表者	所属機関
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田　圭弘	東京大学

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発	新井　剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発	牟田　浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤　拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本　保	木更津工業高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島　陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森　達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木　俊一	東京大学

表 2-1　平成 30 年度採択課題一覧（3/3）

課題名	研究代表者	所属機関
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤　俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邉　隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原　雅之	大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤　毅	京都大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日仏共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
採択なし	－	－

本報告書は上記のうち、国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）「放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献」について記したものである。

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録

成果報告書

This is a blank page.

平成 30 年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

国際協力型廃炉研究プログラム
（日英共同研究）
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献
（契約番号　30I125）

成果報告書

平成 31 年 3 月

国立大学法人茨城大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人茨城大学が実施した平成 30 年度「放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献」の成果を取りまとめたものです。

目次

概略 ・・・ iv

1. はじめに ・・・ 1-1

2. 業務計画
2.1 全体計画 ・・・ 2.1-1
2.2 平成 30 年度の成果の目標、業務の実施方法および成果の概要 ・・・ 2.2-1

3. 平成 30 年度の実施内容及び成果
3.1 効果的な放射性微粒子の分離方法の開発 ・・・ 3.1-1
3.1.1 大気捕集フィルターからの放射性微粒子の効果的分離に関する研究 ・・・ 3.1-1
3.1.2 オートラジオグラフィーを用いた放射性微粒子特定法の検討
（再委託先：大阪大学） ・・・ 3.1-5
3.1.3 放射性微粒子分離のためのガンマカウンター併用法の検討
（再委託先：筑波大学） ・・・ 3.1-8
3.2 放射性微粒子の性状把握 ・・・ 3.2-1
3.2.1 放射性微粒子の電顕観察と元素分析による分類評価に関する研究
（連携先：日本原子力研究開発機構） ・・・ 3.2-1
3.2.2 放射性微粒子の帯電状態および表面状態の分析に関する研究
（再委託先：慶應義塾大学） ・・・ 3.2-4
3.2.3 放射性微粒子の物理・化学的性状に関する研究
（再委託先：東京理科大学） ・・・ 3.2-9
3.2.4 荷電粒子励起エックス線放出分析法と誘導結合プラズマ質量分析法による
微量元素検出に関する研究（再委託先：筑波大学） ・・・ 3.2-15
3.2.5 α放射体等の難測定核種の分析に関する研究
（再委託先：大阪大学） ・・・ 3.2-17
3.2.6 放射性エアロゾルの成長・輸送機構の解明に関する実験研究
（再委託先：京都大学） ・・・ 3.2-23
3.3 研究推進 ・・・ 3.3-1
3.3.1 研究推進に係る会合やイベントの開催 ・・・ 3.3-1
3.3.2 学会・協会等での発表 ・・・ 3.3-1
3.3.3 サンプルアーカイブ予備調査 ・・・ 3.3-1
3.3.4 英国側の研究進捗 ・・・ 3.3-11

4. 結言 ・・・ 4-1

表一覧

表 1-1　不溶性放射性微粒子の性状まとめ ･･･ 1-4
表 3.3.3-1　レンタルサーバの費用（S 社の場合） ･････････････････････････････ 3.3-9

図一覧

図 1-1　初めて大気試料より単離された不溶性放射性 Cs 微粒子 ･････････････････ 1-3
図 1-2　事故サイト近傍の表土試料より単離された不溶性放射性 Cs 微粒子 ････････ 1-3
図 1-3　大気および表土から単離された不溶性放射性 Cs 微粒子の体積と Cs 放射能との相関の様子 ･･･ 1-3
図 1-4　事故サイトから 30km 圏内の表土から単離された不溶性放射性 Cs 微粒子の Cs 放射能と同位体比との分布の様子 ･･･ 1-3
図 2.1-1 全体計画図 ･･･ 2.1-1
図 3.1.1-1　津島地区で捕集した大気粒子フィルター試料（左）とそのイメージングプレート画像（右） ･･･ 3.1-1
図 3.1.1-2　津島地区で捕集した大気粒子フィルター試料の蛍光顕微鏡画像の例 ････ 3.1-3
図 3.1.1-3　各種粒子の蛍光スペクトルを測定する装置 ･････････････････････････ 3.1-3
図 3.1.2-1　土壌サンプリングの様子 ･･･ 3.1-6
図 3.1.2-2　オートラジオグラフィーによる分析例 ･････････････････････････････ 3.1-7
図 3.1.2-3　閾値上位 1%で自動判定した放射性粒子のスポットと、その放射能分布 ･･･ 3.1-7
図 3.1.3-1　土壌および塵埃試料から粒子を取出すまでの作業手順 ･････････････････ 3.1-8
図 3.2.1-1　分析に使用した走査型電子顕微鏡 ･････････････････････････････････ 3.2-2
図 3.2.1-2　観察した粒子の画像一覧 特記のないものは BSE 像 ･････････････････ 3.2-3
図 3.2.2-1　KPFM 測定部の写真 ･･･ 3.2-5
図 3.2.2-2　KPFM 測定系画像 ･･･ 3.2-6
図 3.2.2-3　放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定系イメージ ･････････････････････････ 3.2-7
図 3.2.2-4　放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定結果 ･････････････････････････････ 3.2-7
図 3.2.2-5　放射性 Cs 微粒子の SEM 測定結果 ･････････････････････････････････ 3.2-7
図 3.2.3-1　認証標準物質 SRM612 に対する SDD および Ge-SSD の XRF スペクトルの違い ･･･ 3.2-11
図 3.2.3-2　ウランガラス破片の蛍光イメージング ･････････････････････････････ 3.2-13
図 3.2.3-3　ペルチェ霧箱で観察された放射線の飛跡の例（試料：粒子 B） ･････ 3.2-14
図 3.2.4-1　各元素の回収率 ･･･ 3.2-16
図 3.2.5-1　Sr 分析法のスキーム ･･･ 3.2-20
図 3.2.5-2　Pu 分析法のスキーム ･･･ 3.2-21
図 3.2.6-1　採取した放射性微粒子の SEM 画像 ･････････････････････････････････ 3.2-24
図 3.2.6-2　中性子照射したウラン試料を用いたエアロゾル生成装置の概要 ･････ 3.2-25
図 3.3.3-1　JAXA システムの作業管理システム概要画面 ･････････････････････････ 3.3-5
図 3.3.3-2　サンプルデータ表示画面のイメージ ･････････････････････････････････ 3.3-8

略語一覧

AFM　：Atomic Force Microscopy（原子間力顕微鏡）
BSE　：Back Scatter Electron（反射電子）
EDX　：Elemental Dispersive X-ray Spectroscopy
（エネルギー分散型X線分析）
FE-SEM：Field Emission Scanning Electron Microscope（電界放出型走査型電子顕微鏡）
Ge-SSD：ゲルマニウム半導体検出器
ICP-MS：誘導結合プラズマ質量分析
KPFM　：Kelvin Probe Force Microscopy（ケルビンプローブ力顕微鏡）
PTFE　：Polytetrafluoroethylene（ポリテトラフルオロエチレン）
PIXE　：荷電粒子励起エックス線放出分析法
SDD　：シリコンドリフト検出器
SEM　：Scanning Electron Microscopy（走査型電子顕微鏡）
SEM-EDX：Scanning Electron Microscopy-Energy Dispersive X-ray Spectroscopy
（走査型電子顕微鏡－エネルギー分散型X線分光法）
SPM　：Scanning Probe Microscopy（走査型プローブ顕微鏡）
SE　：Secondary Electron（二次電子）
XRF　：蛍光X線分析
XRD　：粉末X線分析

This is a blank page.

概略

福島第一原発事故ではさまざまな放射性核種が環境へ放出されたが、従来、サブミクロンの大きさで水溶性という物理・化学性状が主体と考えられていた放射性セシウム（Cs）に、不溶性の性状を持つ微粒子があることが明らかになっている。当初発見された不溶性の微粒子は、2 μm 程度の真球形態でケイ素、鉄、亜鉛、Cs を主体とする特徴的な元素組成を有するガラス状物質であり [(1)] [(2)] [(3)]、そのため、「Cs ボール」とも呼称されたが、より粗大で形状も不定形の粒子が事故サイト近傍で発見され [(4)]、重要性が深まった。放出インベントリ評価は現状でも困難だが、平成 23 年 3 月 15 日放出のプルームでは 8～9 割が本形態で、Cs の主要な形状だったことが判明しており、10^{15}（ペタ）Bq に達する量が放出されたとみなせる。

本課題提案者、研究分担者らはいち早く、イメージングプレート（IP）やγ線測定での粒子単離と、走査型電顕-エネルギー分散形 X 線分光（SEM）[(1)]、大型放射光施設 SPring-8 での X 線分析など先端手法を適用した高精度の分析により [(5)]、不溶性放射性微粒子には、数μmの微小な粒子で高 Cs 濃度（タイプ A）、数十～数百 μm と粗大な粒子で低 Cs 濃度（タイプ B）の少なくとも二つのタイプがあり、異なる原子炉（2 号及び 1 号機）から由来し、それぞれの原子炉での事故事象を反映・記録していることを明らかにしてきた [(4)]。

この高比放射能の Cs（～10^{11} Bq/g）を含む微小粒子は環境や人体中で長期に安定に存在できるだけでなく、原子炉内部から適切な試料を得られない現状において炉内事故事象の解明に関し極めて重要な証拠試料であり、廃炉手法や安全の確立（溶融燃料の回収、炉内除染、作業員や周辺の安全確保等）に関しても重要である。さらにこれらの微小粒子にはα放射体も含まれる可能性が高く、廃炉作業に係るリスク評価には Cs だけでなくα放射体も含めることが求められるが、いまだそれに関する情報は少ない。

本事業では、依然不明点が多い不溶性の放射性微粒子の基礎的な物性（粒径、組成、同位体組成、静電特性、光学特性）やα放射体の濃度等について、一定の成果をもつ我が国の放射化学、分析化学、エアロゾル科学者らが英知を集め英国側と協力してさらに研究を進め、炉内事故事象の解明、生成要因の解明を行い、廃炉手順の確立-溶融燃料等の回収、作業員、現場・周辺環境の安全確保-等の達成に寄与することをねらいとする。

あまりに当然のことながら、環境中よりも発生源である炉内にこれら粒子は大量に残留しているはずで、廃炉作業に従事する労働者の放射線安全に重大な影響を及ぼす可能性とともに、炉内で事故当時発生した事象の優れた証拠物ともなっている。しかし、発生材料のケイ素の由来についてすら、溶融燃料-コンクリート反応、断熱材（シリカ材等）との反応、原子炉鋼材からの不純物の 3 つの議論が依然としてあり [(5)] [(6)] [(7)]、生成要因が定まらない。もちろん、号炉ごとに生成機序や要因が異なる可能性もあるかもしれず、機序・生成要因の解明は重要な目標となる。その解明によって、各号炉内部でのこの種のデブリの分布の推定等に貢献できる可能性が高い。

不溶性放射性微粒子の特性のさらなる解明によって、生成要因を明らかにし、かつ物性を巧みに利用できれば、放射性粒子の検出や選択的な回収手法の確立につなげることが可能となる。また、その物性は、万一環境中に漏洩した際の飛散、沈着プロセスに影響するため、それによるリスク評価・管理上も重要である。

こうしたことから、炉内の高線量領域の除染、溶融燃料の回収作業等における作業者の放射線安全の確保と確実な回収法の確立に寄与し、かつ作業現場や周辺環境への飛散・拡散の効率的な

防止、さらに万が一拡散・汚染が発生した場合の対策確立に貢献でき、リスク軽減につながる。特にα放射体の情報は有用である。

本課題代表者、分担者らは、福島第一原発事故発生後間もない時期に熱濃硝酸処理に残留するCs成分を見出した[8]ことから先見的に放射性微粒子の研究を開始し、粒子を探索・単離する手法を確立し、粒子の存在を発見した。さらに、その一部の物性を先端的な研究手法で調査研究してきた。加えて、その単離、分析に経験や知見を有するだけでなく、常に革新性、独創性、新規性を発揮し先端的な研究に従事してきた。一方、英国側代表者のProf. Tom Scott（Bristol大）は放射性粒子のリスクについて事故初期から着目し、ウランを担う微粒子を発見し報告を行っている。また、JAEA廃炉国際共同研究センターや京都大学との協力で放射性微粒子の3次元トモグラフィーを明らかにする（投稿準備中）など、先駆的な研究を推進してきた。α放射体の分析が日英共に可能であり、この情報は、廃炉作業にとって重要な情報となる。

本課題提案のさらに先に見据えるゴールとして、放射性微粒子の選択的な回収分離を想定しているが、いまだに達成されていない革新的な手法が必要となるため、本研究課題では、その基礎となる研究調査を実施する予定である。すなわち、ベータ線放出による自家帯電性状の測定調査、特殊なガラス組成と放射性物質自体の性状に基づく蛍光特性の調査などを想定しており、達成されれば極めて画期的で世界最初の事例となる。上記の研究の進捗・成否に依存するが、成功裏に進捗した場合はいずれかの物性を巧みに利用し、飛散が生じ得る乾式手法にくらべ、安全性が高いと想定される湿式の粒子分別手法により回収分離を試みることが可能となる。

放射性微粒子の自家帯電に関する知見[9]は、1990 年代までに我が国の現役研究者からは失われてしまった。そのため、この問題は古くて新規性の高い研究内容であり、本課題研究分担者がエアロゾルの表面電位計測技術として新規に提案した走査型プローブ顕微鏡の一種で、探針－試料間の微小な静電気力を検出する方法であるKelvin Probe Force Microscopy（KPFM）法を用いる。本法では、微小粒子の帯電状況を nm レベルで可視化することができ、放射性微粒子へも効果的な手法と考えられる。こうした測定は前例がなく世界に先駆けた成果となる。

放射性微粒子の再現実験はいくつかの方法で試みられ、本研究分担者の実験により坩堝で水酸化 Cs とシリカファイバーを低温アルカリ溶融させ、液相状態で飛散させると球状微粒子が生成されることが示され、ごく単純な条件下でも発生し得ることが分かっている。これらの再現実験を放射性微粒子の詳細な性状データをもとに検証し、思考実験とさらなる再現実験によって機序解明に繋げることを目指す。

本課題ではこのように、福島第一原子力発電所（1F）事故の廃炉手順の確立（溶融燃料等の回収、炉内除染、作業員の安全確保等）に関して、重要な炉内事故事象解明のための情報源ともなっている放射性微粒子の基礎的な物性（粒径、組成、電気的性質、光学的性質など）につき、詳細な知見を得るとともに、日英のシナジー研究によりα放射体の量的評価を含む放射性微粒子の諸特性をさらに解明して、「廃炉」計画のリスク低減に向けた作業全般に寄与する研究・開発を行う。そのため、本研究では（1）効果的な放射性微粒子の分離方法の開発と（2）放射性微粒子の性状把握の二つにテーマを分け、茨城大学、筑波大学、慶應大学、東京理科大学、大阪大学、京都大学、日本原子力研究開発機構（廃炉国際共同研究センター（CLADS））の計 7 者によって研究業務の分担を行っている。

上記を背景・骨子として、本年度は、研究代表者の下で各研究項目間ならびに諸機関との連携を密にして研究を進め、下記の進捗をみた。（1）については、サイトおよび周辺の環境監視に効果的な手段の１つである大気捕集フィルターから、IP を利用したオートラジオグラフィーと顕微鏡観測により、放射性微粒子を分離する手法の基礎条件の検討を行った（茨城大学）。系統的に事故サイト周辺で採取した土壌を用い、放射能強度とオートラジオグラフィーの感受性を評価することで、短時間で放射性微粒子を判別するためのプロトコル原案を構築した（大阪大学）。放射性微粒子が水に簡単に溶けない特徴を利用し、非放射性粒子とともに水中に分散させ、ガンマカウンターとオートラジオグラフィーを併用した放射性微粒子のみを単離する手法につき検討を行った（筑波大学）。（2）については、放射性粒子の規格化のため、単離された放射性粒子の性状に基づきそれらの分類評価を開始し、サンプルアーカイブの基礎構築を開始した（原子力機構）。電気的特性の解明のため、Kelvin Probe Force Microscopy（KPFM）法による放射性粒子の自家帯電状況の測定最適条件を検討した（慶應大学）。粒子の蛍光特性の把握を調べるとともに、各粒子について、大型放射光施設 SPring-8 において、複合的な X 線分析を実施した（東京理科大学）。荷電粒子励起エックス線放出分析法（PIXE）と誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）で極微量元素の情報を取得した（筑波大学）。^{90}Sr および Pu 同位体を分析し、その分析手法を検討した（大阪大学）。さらに、成長・輸送機構の解明のため、人工放射性エアロゾルの発生実験を実施した（京都大学）。このほか研究推進のため、日英メンバーの相互訪問による意見・情報の交換を行い、炉内事故事象の進展に係り、専門家から、放射性微粒子の生成メカニズムや生成量に関する情報収集につとめた。このように、本年度はおおむね予想通りの進捗が得られた。また、PO コメントにあるように、日英の共通の研究資産として放射性微粒子のサンプルアーカイブの構築が望ましいが、近隣分野におけるデータや試料のアーカイブについて予備調査業務を実施した。二年度目においては、上記（1）および（2）の事項に関し研究の進捗を図るとともに、先端分析において日英のシナジーを生み出すことを狙いとして、微粒子分析データの収集を行い、共有化を図っていく。

参考文献

(1) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 12–15 (2013).
(2) Y. Satou et al., Anthropocene 14, 71–76 (2016).
(3) N. Yamaguchi et al., Sci. Rep. 6, 20 (2016).
(4) Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 137–143 (2018).
(5) Y. Abe et al., Anal. Chem. 86, 8521–8525 (2014).
(6) P.G. Martin et al., Front. Energy Res. 5, 25 (2017).
(7) J. Imoto et al., Sci. Rep. 7, 5409 (2017).
(8) Y. Igarashi et al., Prog. Earth Planet. Sci. 2, 44 (2015).
(9) 高橋幹二, 原子力とエアロゾル, エアロゾル研究, 4, 4-10 (1989).

1. はじめに

1F 事故ではさまざまな放射性核種が環境へ放出されたが、従来、サブミクロンの大きさで水溶性という物理・化学性状が主体と考えられていた放射性セシウム（Cs）に、不溶性の性状を持つ微粒子があることが明らかになっている。当初発見された不溶性の微粒子は、2 μm 程度の真球形態でケイ素、鉄、亜鉛、Cs を主体とする特徴的な元素組成を有するガラス状物質であり（図 1-1 [(1)] [(2)] [(3)]）、そのため、「Cs ボール」とも呼称されたが、より粗大で形状も不定形の粒子が事故サイト近傍で発見され（図 1-2 [(4)]）、重要性が深まった。放出インベントリ評価は現状でも困難だが、平成 23 年 3 月 15 日放出のプルームでは 8～9 割がこのようなガラス状形態で、Cs の主要な形状だったことが判明しており、10^{15}（ペタ）Bq に達する量が放出されたとみなせる。

本事業に参加する研究者はいち早く、イメージングプレート（IP）やγ線測定での粒子単離と、走査型電顕-エネルギー分散形 X 線分光（SEM-EDX）[(1)]、大型放射光施設 SPring-8 での X 線分析など先端手法を適用した高精度の分析により[(5)]、不溶性放射性微粒子には、数 μm の微小な粒子で高 Cs 濃度、数十～数百 μm と粗大な粒子で低 Cs 濃度の少なくとも二つのタイプがあり（タイプ A および B）、異なる原子炉（2 号及び 1 号機）から由来し、それぞれの原子炉での事故事象を反映・記録していることを明らかにしてきた（図 1-3、1-4、表 1-1 [(4)]）。

この高比放射能の Cs（～10^{11} Bq/g）を含む微小粒子は環境や人体中で長期に安定に存在できるだけでなく、原子炉内部から適切な試料を得られない現状から、炉内事故事象の解明に関し極めて重要な証拠試料であり、廃炉手法や安全の確立（溶融燃料の回収、炉内除染、作業員や周辺の安全確保等）に関しても重要である。しかし、α放射体に関した情報が少なく、廃炉作業に係るリスク評価が求められる。

そこで本事業では、依然不明点が多い不溶性の放射性微粒子の基礎的な物性（粒径、組成、同位体組成、静電特性、光学特性）やα放射体の濃度等について、一定の成果をもつ我が国の放射化学、分析化学、エアロゾル科学者らが英知を集め英国側と協力してさらに研究を進め、炉内事故事象の解明、生成要因の解明を行い、廃炉手順の確立-溶融燃料等の回収、作業員、現場・周辺環境の安全確保-等の達成に寄与することをねらいとする。1F 事故にて放出された放射性微粒子は、廃炉手順の確立（溶融燃料等の回収、炉内除染、作業員の安全確保等）に関して、重要な炉内事故事象解明のための情報源ともなっている。本事業では、これら粒子の基礎的な物性（粒径、組成、電気的性質、光学的性質など）につき、詳細な知見を得るとともに、日英のシナジー研究によりα放射体の量的評価を含む放射性微粒子の諸特性をさらに解明して、「廃炉」計画のリスク低減に向けた作業全般に寄与する研究・開発を行うことを狙いとした。

廃炉作業においては如何なる手法によってしても、固体状放射性微粒子の発生は不可避であり、その封じ込めと作業員の被ばくを防ぐ必要がある。「NDF 技術戦略プラン 2017」[(6)] で示される 5 つの基本的考え方の第一は「安全」であり、「放射性物質に起因するリスク（注：環境への影響及び作業員の被ばく）の低減及び労働安全の確保」とされている。放射性微粒子の基礎物性の解明は、第一にこのことに寄与する。例えば、本事業が目指す（1）放射性微粒子の電気的特性の解明は、静電気による作業着等への付着リスクを明らかにし付着防止技術の開発も可能とする帯電を利用した放射性微粒子の飛散防止・作業環境からの効率的回収を可能とすることが期待さ

れ、安全な作業環境の確保に、延いては廃炉作業の安全に役立てることが出来る。（2）放射性微粒子の蛍光特性の解明は、その効率的で選択的な検出・分離・回収手法の開発につながり、確実な除染手法や廃棄物圧縮法の確立に寄与できる。炉内の高線量率領域はこのような放射性 Cs を高濃度に含むガラス状デブリに由来する可能性もあり、その除染手法開発にも有益と考えている。これは原子力損害賠償・廃炉等支援機構（NDF）が措定する 6 つの重要研究開発課題（NDF6 課題）のうち、⑤「放射性物質による汚染機構の原理的解明」に該当する。結果として汚染の拡散防止に寄与出来、廃炉作業全般の安全確保に寄与できると考えている。

このように、放射性微粒子の物性データは、燃料デブリ等の取り出しや炉内除染作業で発生が予想されるα核種を含む微粒子の性質を類推するための基礎データとなり得、NDF6 課題のうち④「廃炉工程で発生する放射性飛散微粒子挙動の解明（αダスト対策を含む）」にも寄与する。それをもとに、作業環境・一般環境への放出防止技術にも寄与し得るから、廃炉作業全般の安全性担保につながる。

上記に加え放射性微粒子の物性は、万一環境中に漏洩した際の飛散・沈着プロセスにも影響するため、そのリスク評価・管理上も重要な情報となり得る。「NDF 技術戦略プラン 2017」は社会との適正な関係を維持すべきことを謳い、トラブル発生の防止が述べられている。放射性微粒子による環境汚染は、平成 25 年南相馬での汚染米発生との関連がすでに議論されており、類似の事例発生を防止するためにも、その防止技術の開発に寄与し得る放射性微粒子の物性解明の研究が必要である。これは、NDF6 課題の最後⑥「廃炉工程で発生する放射性物質の環境中動態評価」に関わる。

Cs 含有放射性微粒子は、原子炉内部からの試料が乏しい中で、事故当時発生した事象の優れた証拠物となっていることが指摘できる。福島第一原発事故以前にはこうした微粒子の生成や環境への放出は想定されておらず、事故進展のシナリオもその生成という事実に合わせて修整されつつある。本課題提案グループの複数のメンバーは、日本学術会議 総合工学委員会 原子力事故対応分科会 原発事故による環境汚染調査に関する検討小委員会 事故と環境情報の交流ワーキンググループに属して議論を進めており、エネルギー総合工学研究所の SAMPSON コード計算結果や、JAEA（現 CLADS メンバー）等の実験結果等を踏まえた議論との突き合わせによって、事故進展シナリオの高度化に寄与してきた。したがって、本研究を進めることにより、この議論をさらに深めることが可能となる。

これまでに放射性微粒子にはタイプ A と B があることが判明しており、$^{134}Cs/^{137}Cs$ 同位体比と ORIGEN コード計算の結果比較から、それぞれ 2 または 3 号炉（タイプ A）、1 号炉由来（タイプ B）と推定されている。また、タイプ B は Sb（アンチモン）を含むことから、生成した際の温度推定が行われている。放射性微粒子の由来については議論が続いており、以下の 3 つが主要な仮説となっている。（1）粒子の微細構造に基づく推定=溶融燃料-コンクリート反応（MCCI）による気相での反応・生成、（2）電顕観察等に基づく推定=断熱材シリカ、鋼材と Cs との反応・生成、（3）高温環境下での実験に基づく推定=炉心鋼材不純物シリカ、鋼材と Cs との反応・生成が議論されてきた。もちろん、号炉ごとに生成機序や要因が異なる可能性もあるかもしれず、機序・生成要因の解明は重要な目標である。

その実現のためには、より効率的で選択的な手法によって多数の微粒子を抽出・分析することで、同位体比や構成元素、α核種濃度等につき、統計分布の明らかな信頼性の高いデータを得て、

模擬実験、理論的推論の結果を加味し、生成雰囲気や温度などの生成条件をより精度よく推定することが必要となる。それらの結果として、各号炉内部で、どのタイミングで微粒子が生成し、外部への漏出が発生したかの議論が深まり、事故シナリオのより詳細な理解に寄与できる。また、この事故シナリオの精密化は、炉内状況の推定と解釈に必要で、廃炉作業上での想定作成に寄与できると考えられる。

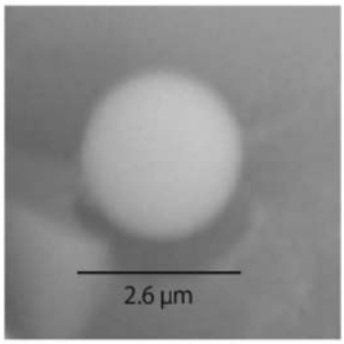


図 1-1　初めて大気試料より単離された不溶性放射性 Cs 微粒子 (1)

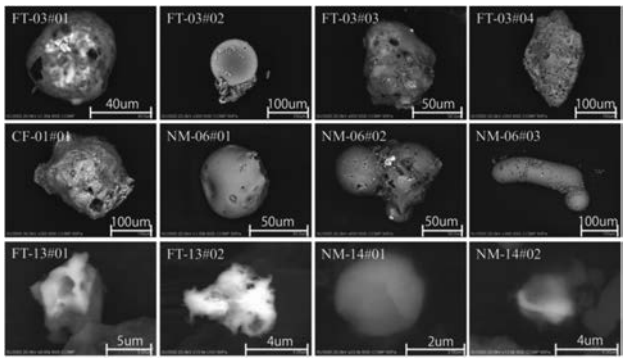


図 1-2　事故サイト近傍の表土試料より単離された不溶性放射性 Cs 微粒子 (2)

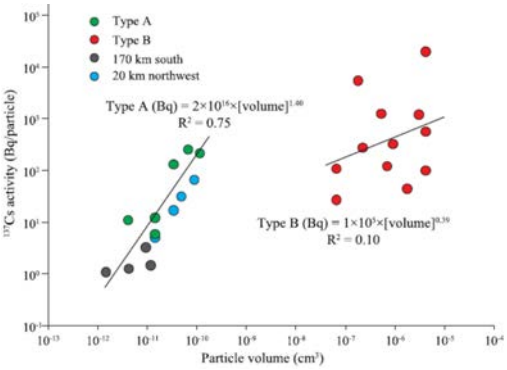


図 1-3　大気および表土から単離された不溶性放射性 Cs 微粒子の体積と Cs 放射能との相関の様子　2 つの異なるタイプが想定できる (4)

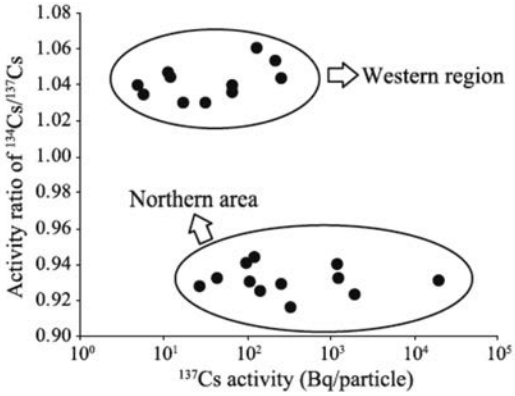


図 1-4　事故サイトから 30km 圏内の表土から単離された不溶性放射性 Cs 微粒子の Cs 放射能と同位体比との分布の様子
発生源に違いのあることがわかる (4)

表 1-1　不溶性放射性微粒子の性状まとめ [4]

Characteristic	Particle type A	Particle type B
Size distribution (observed)	1–10 μm	70–400 μm
$^{134}Cs/^{137}Cs$ (mean)	1.04	0.93
Other radionuclides	N/A	Antimony-125 (^{125}Sb)
Distribution	wide	limited (North)
Suspected emission date	March 15, 2011	March 12, 2011
Source reactor(s)	Unit 2 or 3	Unit 1
Specific radioactivity	high	Low
Cs detection method of	SEM-EDS	synchrotron X-ray
Elements contained	Fe, Sn, Cl	Na, Mg, Ca, Ba
Elements in common	Si, O, Zn	

参考文献

(1) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 12–15 (2013).

(2) Y. Satou et al., Anthropocene 14, 71–76 (2016).

(3) N. Yamaguchi et al., Sci. Rep. 6, 20 (2016).

(4) Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 137–143 (2018).

(5) Y. Abe et al., Anal. Chem. 86, 8521–8525 (2014).

(6) NDF 戦略プラン 2017（「東京電力ホールディングス（株）福島第一原子力発電所の廃炉のための技術戦略プラン 2017」） http://www.dd.ndf.go.jp/jp/strategic-plan/index2017.html

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。

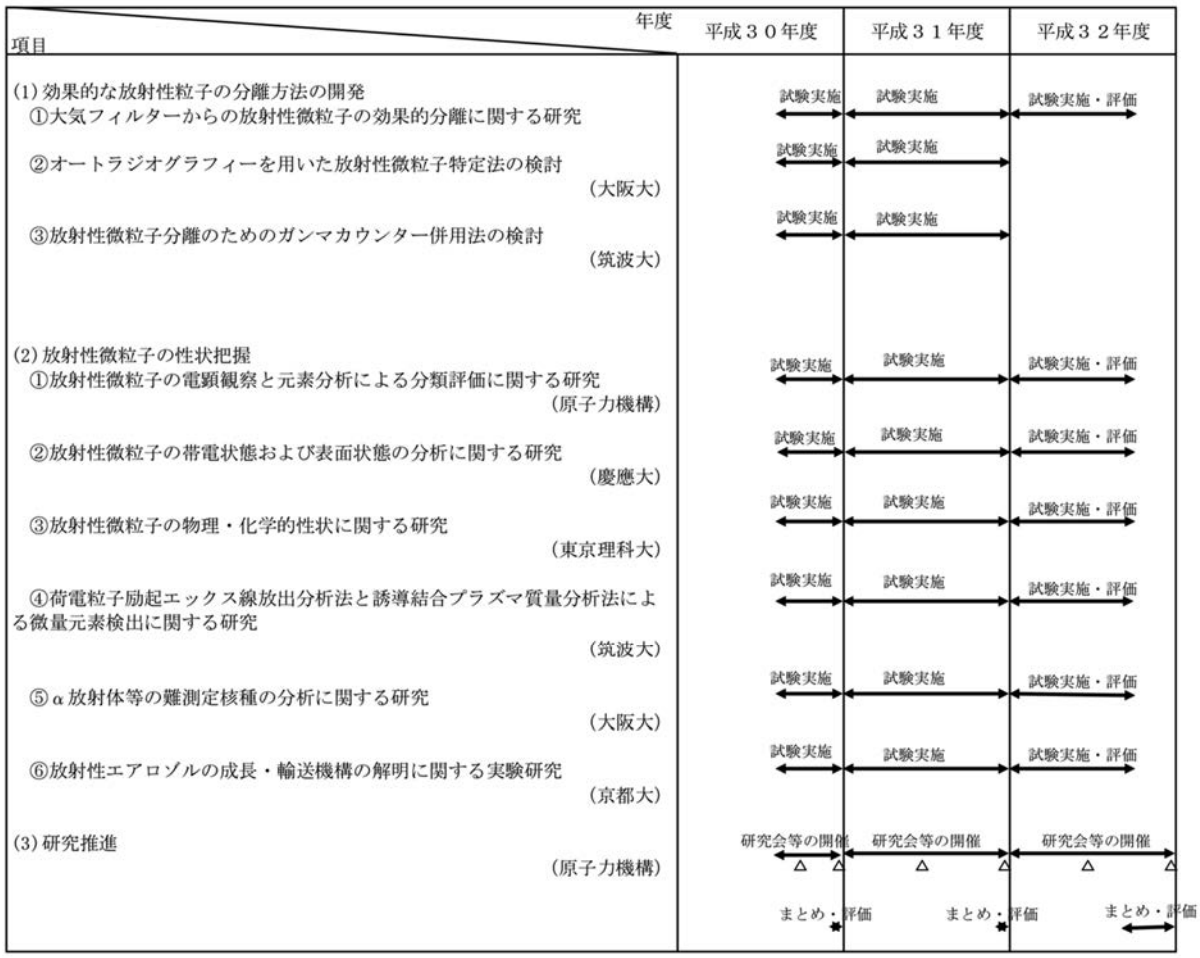


図 2.1-1　全体計画図

2.2 平成 30 年度の成果の目標、業務の実施方法および成果の概要

平成 30 年度の計画の概要は以下に述べるとおりである。1F 事故にて放出された放射性微粒子は、廃炉手順の確立（溶融燃料等の回収、炉内除染、作業員の安全確保等）に関して、重要な炉内事故事象解明のための情報源ともなっている。これら粒子の基礎的な物性（粒径、組成、電気的性質、光学的性質など）につき、詳細な知見を得るとともに、日英のシナジー研究によりα放射体の量的評価を含む放射性微粒子の諸特性をさらに解明して、「廃炉」計画のリスク低減に向けた作業全般に寄与する研究・開発を行う。

以下に個別の成果についてその概略を記述する。

2.2.1 当該年度における成果の目標及び業務の方法

（1）効果的な放射性微粒子の分離方法の開発

①大気捕集フィルターからの放射性微粒子の効果的分離に関する研究（茨城大学）

サイトおよび周辺の環境監視に効果的な手段の 1 つである大気捕集フィルターから、オートラジオグラフィーと顕微鏡観測により、放射性微粒子を分離する手法の基礎条件の検討を行った。

1F 近隣で大気粒子の捕集を行うとともに、以前より茨城大にて捕集を行った大気捕集フィルター試料を用い、本年度は放射性微粒子を分離するためにまず必要となる粒子検出についての検討に着手した。オートラジオグラフィーにより 45 試料から 14 個の放射性粒子を検出した。また、高分解能の蛍光顕微鏡観察により、バックグラウンド粒子の蛍光特性を測定した。

②オートラジオグラフィーを用いた放射性微粒子特定法の検討（再委託先：大阪大学）

系統的にサイト周辺で採取した土壌を用い、放射能強度とオートラジオグラフィーの感受性を評価することで、短時間で対象とする放射性微粒子であることを判断するためのプロトコル原案を構築した。また、ゲルマニウム半導体検出器によるγ線測定により、Cs 放射能を定量した。

全土壌試料についてゲルマニウム検出器による ^{134}Cs と ^{137}Cs の定量は完了し、オートラジオグラフィーを使う放射性粒子の判定プログラムは完成した。

③放射性微粒子分離のためのガンマカウンター併用法の検討（再委託先：筑波大学）

放射性微粒子が水に対し溶けない特徴を利用し、非放射性の粒子とともに水中に分散させ、放射性微粒子のみを単離するため、ガンマカウンターとオートラジオグラフィーを併用した分離法について検討を開始した。

イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィーで放射性粒子の存在が確認できた土壌または塵埃試料から試料の一部を蒸留水中に懸濁させ、サンプル管 30 本の試料に分割しガンマカウンターで放射線計測を行った。この方法を繰り返すことで、目で確認できる大きさの放射性粒子を分取し、また小さい粒子はカプトンテープ上に溶液を移して乾固させることで分取し、放射線計測で ^{137}Cs を確認できた放射性粒子を数十個単離することに成功した。

(2) 放射性微粒子の性状把握

①放射性微粒子の電顕観察と元素分析による分類評価に関する研究

（連携先：日本原子力研究開発機構）

放射性微粒子表面の情報や元素組成を高分解能の走査型電子顕微鏡（SEM）により取得した。また、分析で得られた放射性粒子の性状に基づき、それらの分類評価を開始し、サンプルアーカイブ構築の基礎とした。

本年度は JAEA/CLADS（富岡）に設置されている高分解能 SEM を使用し、放射性微粒子の観察を行なった。特に形状が従来と異なる粒子を優先して観察することで、サンプルアーカイブで取り上げるべき情報の検討に着手することができた。

②放射性微粒子の帯電状態および表面状態の分析に関する研究

（再委託先：慶應義塾大学）

放射性微粒子の電気的特性を解明するため、Kelvin Probe Force Microscopy（KPFM）法による放射性 Cs 微粒子の自家帯電状況の測定最適条件を検討した。また、AFM 法による粒子の幾何形状の解析、および SEM/EDX 観察による粒子解析をあわせて行った。

ガラス基板上の一部分にイオンスパッタを用いて蒸着した Au に電圧を印加して KPFM 法により表面電位の測定を行ったところ、0.5 V および 0.1 V の分解能で印可電圧を測定することができた。得られた測定条件で、放射性 Cs 微粒子の表面電位を測定したところ、他の非放射性と思われる粒子とは異なる値が観測された。また、ガラス基板上のカプトンテープ上に放射性微粒子を固定した試料の解析を行い、KPFM 像、AFM 像および SEM 像において、同一視野における放射性微粒子および他の粒子群の観察を行うことに成功した。

③放射性微粒子の物理・化学的性状に関する研究（再委託先：東京理科大学）

レーザー顕微鏡、デジタル光学顕微鏡、分光光度計などを活用して、放射性微粒子の蛍光特性の把握を行い、その性状を調べた。並行して、各粒子について、兵庫県佐用郡佐用町にある大型放射光施設 SPring-8 において、1 粒子レベルでの複合的な X 線分析を非破壊で実施した。蛍光 X 線分析により粒子の化学組成を、X 線吸収端近傍構造分析により含有元素の化学状態を、X 線回折分析により粒子自体の結晶構造を明らかにした。また、適切な実験条件に関する検討を行った。

放射光マイクロビーム複合 X 線分析の結果、化学組成や化学状態を指標として放射性微粒子が複数のタイプに分類できることが示された。また高エネルギーX 線に対する感度が優れたゲルマニウム半導体検出器を用いることで、放射性微粒子に含まれる微量重元素を高感度で検出することが可能となった。多光子励起顕微鏡を用いた放射性微粒子の蛍光特性の観察を行い、粒子の一部が紫～青色光による励起で特徴的な緑色蛍光を示す可能性が示された。

④荷電粒子励起エックス線放出分析法と誘導結合プラズマ質量分析法による微量元素検出に関する研究（再委託先：筑波大学）

荷電粒子励起エックス線放出分析法（PIXE）と誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）

を用い、通常の方法では確認できない粒子を構成する極微量元素の情報を取得し、放射性微粒子の生成過程を解明するための基礎的知見収集を開始し、測定最適条件の検討を行った。

PIXE で放射性微粒子内部の元素組成を測定するために、タイプ B の放射性微粒子 2 個を石英ガラス上に高分子樹脂で固定し、粒子の表面を研磨した試料を作製した。その研磨状態を SEM で観察し、この手法で PIXE 測定が十分可能であることを確認した。これと同時に ICP-MS 分析用にタイプ B の放射性微粒子をフッ化水素酸と硝酸との混酸を用いることで全分解する方法を確立した。

⑤α放射体等の難測定核種の分析に関する研究（再委託先：大阪大学）

化学的分離により Sr と Pu フラクションを単離後、^{90}Sr は液体シンチレーション検出器、Pu 同位体はα線検出器と ICP-MS 装置により分析し、分析手法等の検討を行った。

Sr と Pu の化学分離法と各測定法の検討を行い、代表的な試料について Sr を単離後液体シンチレーション検出器で ^{90}Sr の定量に成功した。

⑥放射性エアロゾルの成長・輸送機構の解明に関する実験研究（再委託先：京都大学）

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、テルル（Te）等の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。

（3）研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を、英国側実施機関との会合も含め、開催した。日英の共通の研究資産として放射性微粒子のサンプルアーカイブが望まれるため、近隣分野におけるサンプルアーカイブ例を知る目的で、その予備調査業務を実施した。

3. 平成 30 年度の実施内容及び成果

3.1 効果的な放射性微粒子の分離方法の開発

3.1.1 大気捕集フィルターからの放射性微粒子の効果的分離に関する研究

(1) 開発の目的

平成 23 年に発生した 1F 事故によって、多量の放射性物質が大気中に飛散し土壌や植生上に沈着したが、その中に不溶性の放射性 Cs 微粒子が相次いで発見された[(1) (2)]。それらが生体内に沈着した場合、溶けずに粒子として留まり続け、放射線を発し続けることから、健康影響が懸念されている。このような放射性粒子が 1F の炉内や建屋内に多量に残留していることが危惧されており、それらが廃炉作業時に空気中に飛散すると、作業員が呼吸により体内に取り込むことで内部被ばくを起こしたり、さらに放射性粒子が風に乗り長距離を移動して汚染を拡散したりする恐れがある。そこで、こうした放射性 Cs 微粒子のうち、飛散しやすい粒子の性質を理解し、さらに空気中に浮遊しているものの存在をいち早く検出する手法を開発することが、リスク軽減に重要であると考えられる。今年度は、分離の前段階として、まず大気捕集試料からの放射性粒子検出のため、オートラジオグラフィーによる検出を行った。さらに蛍光による検出のためバックグラウンド粒子の蛍光特性を測定した。

(2) オートラジオグラフィーによる環境中での大気飛散粒子の検出

平成 23 年に発生した 1F 事故によって放出された不溶性の放射性 Cs 微粒子は、いまなおしばしば大気中に再飛散し浮遊している可能性がある。このような粒子は、比較的空気中を浮遊しやすい性状を有している可能性がある。そこで、1F 周辺で大気粒子を捕集し、その中に存在する放射性 Cs 微粒子を検出・分離することで、より効率的に検出する手法を検討し、また検出された粒子の性状を明確にすることでリスク評価の材料とすることにした。

大気粒子の捕集は、福島県浪江町津島地区で実施している。そこにハイボリュームエアサンプラー（柴田科学 HV-RW）を 2 台設置し、また既に設置済みのハイボリュームエアサンプラー（柴田科学 HV-1000R）も利用して、大気粒子を石英繊維フィルター上に捕集した。捕集したフィルターサンプルから、イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィーにより放射性 Cs 微粒子を検出した。具体的には、図 3.1.1-1（左）のように 2 つ折りにした

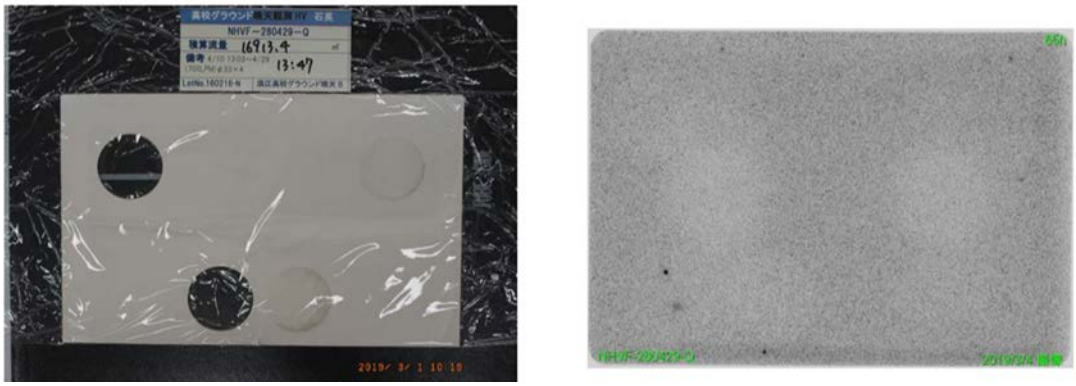


図 3.1.1-1　津島地区で捕集した大気粒子フィルター試料（左）と
そのイメージングプレート画像（右）　放射性粒子を示す明確な黒点が 2 か所ある

捕集フィルターをイメージングプレートに密着させ、数時間～数十時間露光することで、図3.1.1-1（右）の黒点のように検出した。今後これらの放射性粒子を単離して顕微鏡観察することで、同定と性状の明確化を行っていく予定である。

（3）大気バックグラウンド粒子のUV蛍光スペクトルの測定

大気捕集試料から放射性微粒子を分離するため、その検出を行う手法として、オートラジオグラフィーのほかに、粒子の蛍光を利用する手法も有望である。本研究では、東京大学医科学研究所（東京都白金台）および日本電子昭島製作所（東京都昭島市）にあるニコンイメージングラボにおける立ち合い分析により、茨城大学・東京理科大学・筑波大学が連携して、福島第一原発事故由来の放射性微粒子の蛍光特性の研究を進めている。

本報告書3.2.3項において放射性微粒子が紫色（405 nm）での励起光に対し特有の緑色の蛍光を発する例が示されているが、このような蛍光特性を利用して効率よく大気捕集試料から放射性微粒子を検出するためには、対象とする放射性微粒子以外のバックグラウンド粒子が異なる蛍光特性を持つことが必要である。東京理科大学によりエアロゾル由来の放射性微粒子の蛍光特性が測定されるので、茨城大学ではまず大気バックグラウンド粒子の蛍光特性を測定した。

上記（2）に示したように環境中での放射性微粒子の大気飛散が多いと考えられる春季の大気バックグラウンド粒子試料として、平成30年4～6月に福島県浪江町津島地区で採取された大気捕集フィルター20試料の蛍光画像を、日本電子昭島事業所の高分解能の共焦点レーザー蛍光顕微鏡（ニコン、A1R）を用い撮影した。励起波長は405 nm（紫）、488 nm（青）、561 nm（緑）の3波長である。図3.1.1-2はその顕微鏡画像の例で、透過光画像（左上）では不明瞭な長径10 μm程度の大気粒子（主に真菌胞子など生物粒子と思われる）が、各波長の励起光の照射により、蛍光で明瞭に検出されることがわかる。どの励起波長でもあまり画像の見え方に違いがなく、バックグラウンド粒子はブロードなスペクトルの蛍光を発するものが多いことを示している。それに対し、放射性微粒子が3.2.3節で示されたような特徴的な波長分布の蛍光スペクトルを持つ場合、検出・分離が容易になると考えられる。

ウラニルイオンUO_2^{2+}を含むガラスは、405 nm以外に、327 nm前後の紫外光でも520 nm前後の特徴的な緑色蛍光を発する。そこで可視光励起による顕微レーザー蛍光測定と並行して、大気中にバックグラウンドとして存在すると思われる各種粒子について、紫外光励起による蛍光スペクトルを測定した。図3.1.1-3に、作成した蛍光スペクトル測定装置を示す。装置底面に各種粒子を捕集したPTFEフィルターをセットし、入射角45度でLEDからの紫外光を照射して、各種粒子からの蛍光を上方から光ファイバーで分光器（Ocean Optics MAYA 2000PRO）に導入してそのスペクトルを測定した。その結果、大気中のバックグラウンド粒子となる鉱物粒子や生物粒子の蛍光スペクトルは、かなり互いに似たブロードな分布であることがわかった。これらの蛍光を発している分子等については未だ同定できていない。これらの蛍光スペクトルと放射性粒子の蛍光スペクトルが大きく異なっていれば（p.3.2-12～3.2-13参照）紫外光励起によっても比較的容易に検出・分離が可能となると考えられる。

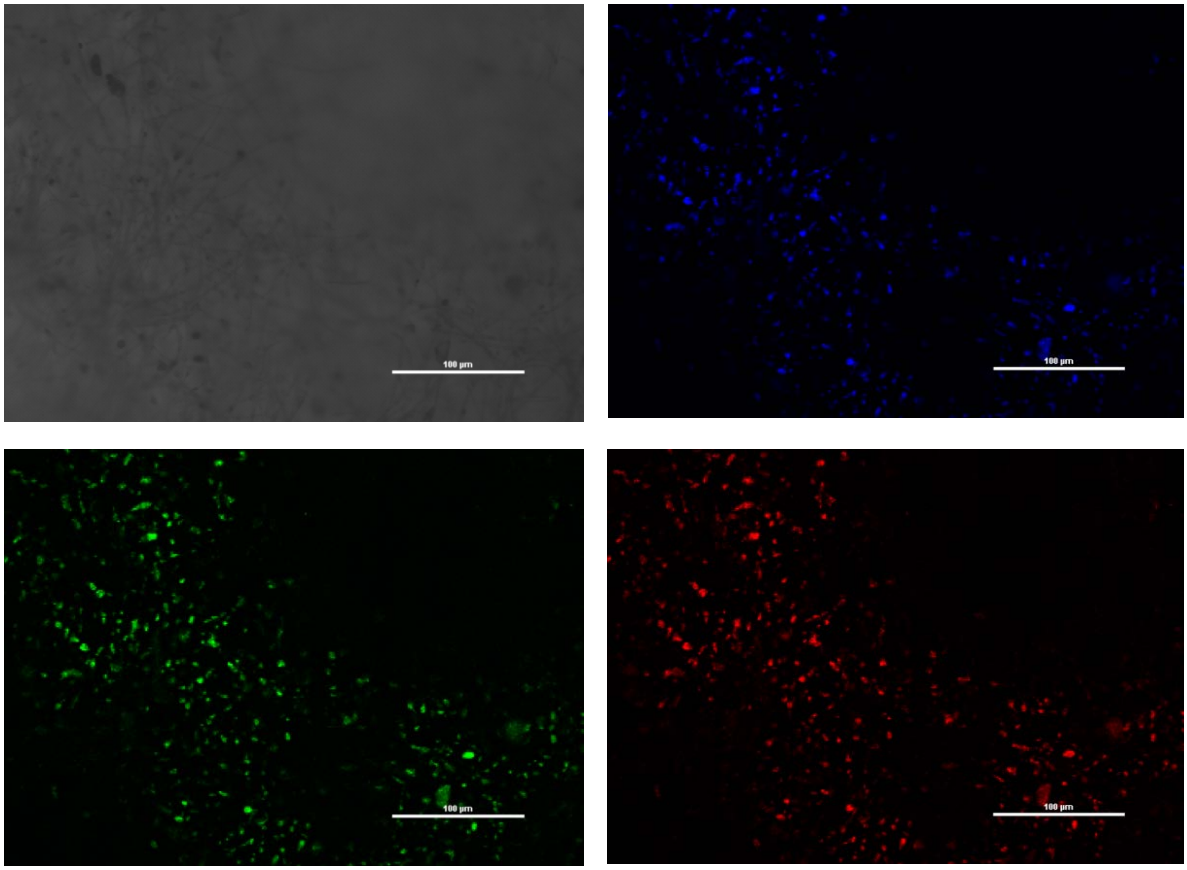


図 3.1.1-2　津島地区で捕集した大気粒子フィルター試料の蛍光顕微鏡画像の例　（左上）透過光画像（蛍光ではない）、（右上）紫色光励起による蛍光画像、（左下）青色光励起による蛍光画像、（右下）緑色光励起による蛍光画像

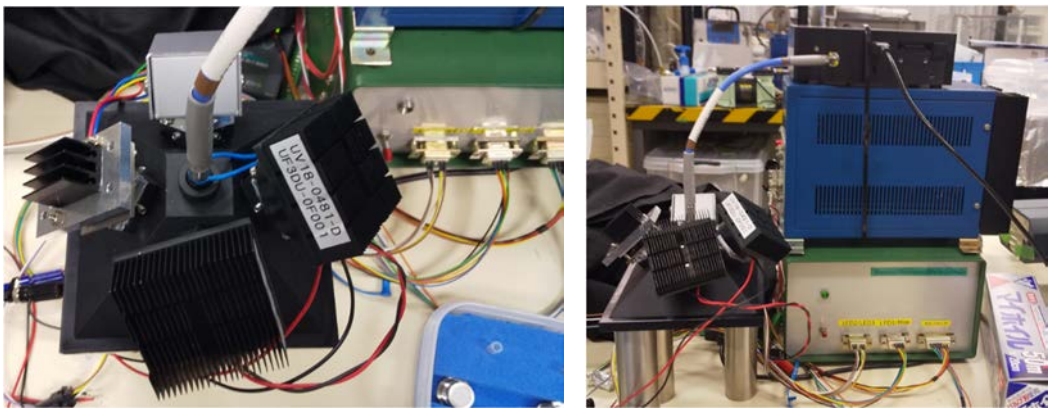


図 3.1.1-3　各種粒子の蛍光スペクトルを測定する装置　（左）蛍光チャンバー上面から見た写真、（右）全体を側面から見た写真、蛍光チャンバー青い光ファイバーで接続された装置が分光器

参考文献

(1) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013).
(2) Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 137-143 (2018).

3.1.2 オートラジオグラフィーを用いた放射性微粒子特定法の検討（再委託先：大阪大学）

（1） 研究の目的

平成 23 年に発生した東京電力福島第一原子力発電所の事故により、環境中に大量の放射性物質が放出された。このうち一部は、過去の過酷事故試験やスリーマイル、チェルノブイリの原子力事故では予想されていなかった形態、SiO_2 を母材とする水や酸に不溶な粒子で放出されたことが知られている[(1)]。この不溶性粒子は環境中で安定であると考えられ、環境中においてそのままとどまり続けることによる影響だけでなく、人体へ取り込まれた時の影響、さらに除染作業による再飛散の過程が存在することが懸念されている。これら不溶性粒子の形状、元素分布などについては、これまで多くの研究が行われている（例えば[(1)－(3)]）。

一方でこれらの粒子が、どこにどれだけ存在しているかについては、その知見は極めて限られている。放射性粒子の放出量からは、放射性粒子の生成過程について重要な知見が得られると期待される。またその空間分布からは、放射性物質の放出イベントの研究とリンクさせることによって、いつ不溶性粒子が放出されたのかについて明らかにすることができると期待される。これまでの研究では、不溶性粒子が集まりやすいと考えられる吹き溜まりのダスト試料の分析により、全体の放射能に占める放射性粒子由来の放射能が 30%にも達するとの報告がある[(4)]が、土壌を分析した結果との整合性が取れておらず、環境全体の影響を評価するためには、採取面積などの採取方法について明確にしたうえで採取した環境試料を、多くの地点で採取し、これらを系統的に分析することが必要である。

このような分析を進めるためには、多くの地点で土壌試料の採取を行うフィールド実験と、得られた土壌から放射性粒子を簡便に同定する方法論の開発が必要である。本研究では、土壌中に含まれる不溶性粒子を弁別するために、オートラジオグラフィーによる方法を採用した。オートラジオグラフィーは、X 線写真と同じように特殊なフィルムを放射線により感光し、これを現像することで放射能の濃淡を可視化する方法である。オートラジオグラフィーは非常に簡便に取り扱うことができる一方で、放射能の定量性や粒子の判別には問題がある。本研究では、福島県の各地で採取された、いくつかの土壌試料に対してオートラジオグラフィーを行い、放射能の分布の可視化を行い、これから粒子を判別するとともに、実際に取り出した粒子を分析し方法論の評価を行った。

（2） 粒子判定方法の戦略

土壌中に含まれる不溶性粒子の評価のためには、土壌の放射能が全体でどの程度あり、その中に不溶性粒子がどれぐらいの数、それぞれがどれぐらいの放射能を持っているかを調べることが必要となる。

不溶性粒子の数は、ある一定の閾値以上のシグナルが得られた点を数えることにより決定することができる。放射能については、イメージングプレートは定量性（特に測定ごとの絶対値の評価）にばらつきがあるために、標準試料を用いて内挿、もしくは外挿法により定量する必要がある。粒子の計数において、不溶性粒子として判断する閾値の決定の観点からも、同時に放射能が既知の標準試料の測定を行う必要がある。また、大量の試料についてこれらの判定を行うために、測定データをプログラムで処理をし、自動的に粒子の数、放射能を決定するプロトコルの作成が必要である。

以上の観点から、本研究では（1）福島県で採取された土壌の放射能測定、（2）標準試料と同時測定による自動粒子数判定および放射能定量プログラムの開発、の 2 つのテーマについて推進した。

（3）土壌の放射能測定

本研究では、過去に福島県の帰還困難区域を中心として採取した土壌試料を利用することにした。土壌中の採取は、図 3.1.2-1 に示すように直径 85 mm の円筒管を土壌に打ち込むことにより行った。採取地点で表層土壌（深さ 0.0-2.5 cm）と深部土壌（深さ 2.5-5.0 cm）の 2 つの深さの試料に分割して採取した。それぞれの試料量はおよそ 150g 程度であった。この土壌を室温で乾燥させ、よく攪拌したのちに U8 容器に 5 cm 高さで充てんした。このとき、石や植物片は取り除いた。土壌の重量を測定し、高純度ゲルマニウム半導体検出器で放射能測定を実施した。放射能は ^{134}Cs は 604 keV のガンマ線から、^{137}Cs は 661 keV のガンマ線から定量した。放射能定量における定量における標準試料には、放射能分析用土壌認証標準物質（JSAC 0471, JSAC 0472, JSAC 0473：日本分析化学会）を使用した。この測定により、土壌の放射能の方向依存性を明らかにした。

（4） オートラジオグラフィーによる放射性粒子判定プログラムの開発

放射性粒子判定プログラム開発をめざし、本研究では Python3 を用いた開発を行った。本課題で作成したプログラムは、分析した土壌領域の自動判定、土壌領域における高放射能点の自動抽出、標準試料からの検量線自動作成システム、検量線を用いたそれぞれの高放射能点の自動放射能定量の 4 つのシステムからなっている。

オートラジオグラフィーによる分析結果を図 3.1.2-2 に示す。このうち左側は標準試料を設置しており、右側には分析対象の土壌を設置している。土壌が存在する領域を判定し、このなかで全体のシグナルの強さの上位 1%を閾値として粒子解析を行った。すると図 3.1.2-3 に示すように高放射能点、すなわち不溶性粒子と考えられる部分について検出することができた。標準試料の放射能は既知であるため、ここから検量線を作成し、検出した粒子について、図 3.1.2-3 右に示すようにそれぞれの放射能を定量した。

図 3.1.2-1　土壌サンプリングの様子

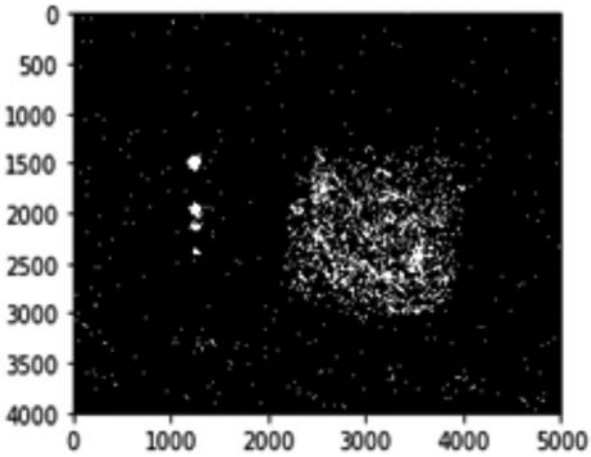


図 3.1.2-2　オートラジオグラフィーによる分析例　左側が 4 つの標準試料、
右側が採取した分析対象の土壌（四角形に薄く広げている）

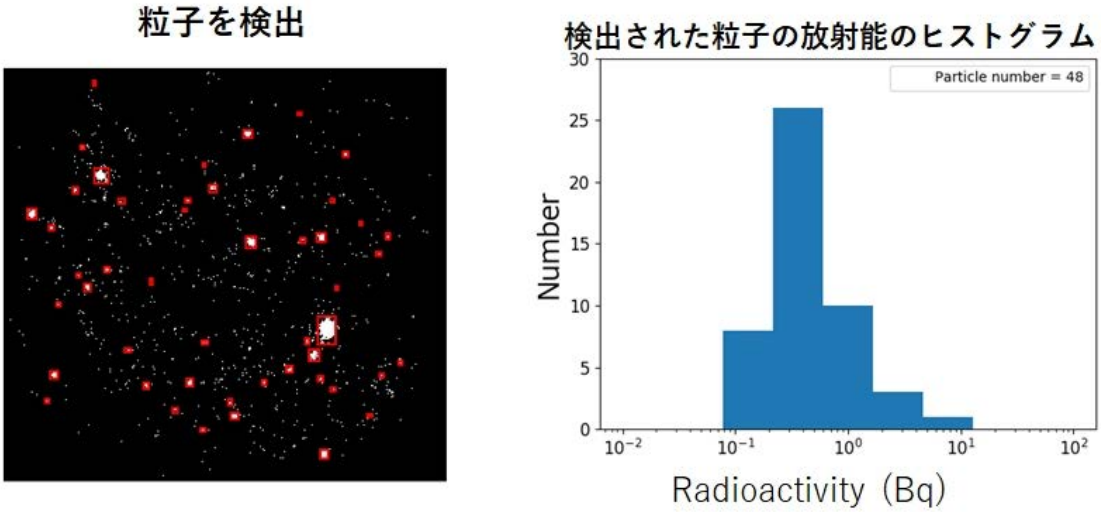


図 3.1.2-3　閾値上位 1%で自動判定した放射性粒子のスポットと、その放射能分布

参考文献

(1) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013).
(2) Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 137-143 (2018).
(3) N. Yamaguchi et al., Sci. Rep. 6, 20548 (2016).
(4) R. Ikehara et al., Environ. Sci. Tech. 52 (11), 6390-6398 (2018).

3.1.3 放射性微粒子分離のためのガンマカウンター併用法の検討（再委託先：筑波大学）

（1）試験の目的

放射性微粒子が水に対し溶けない特徴を利用し、非放射性の粒子とともに水中に分散させ、放射性微粒子のみを単離するため、ガンマカウンターとオートラジオグラフィーを併用した分離法について検討を開始した。

（2）試験の方法

筑波大学で有している 1F 敷地外に存在していた環境試料から不溶性放射性微粒子を取出す作業をガンマカウンターとオートラジオグラフィーを併用した分離法で行った。

図 3.1.3-1 に全体の流れをポンチ絵で示した。試料 CF-01 をユニパックに入れ、超純水を加えた。それをサンプルチューブに入れ、30 等分して、ガンマカウンターで ^{137}Cs の計数率（CPM）を測定した（RUN1 とした）。RUN1 の中から計数率が高い 3 つのサンプルを選び、それぞれを 10 等分し、再びガンマカウンターで ^{137}Cs の計数率を測定した（RUN2 とした）。RUN3 以降も同様の分離操作を行い、サンプルチューブ内の粒子数を減らしていった。そして、サンプルチューブ内に粒子がほとんどない状態にした。

サンプルチューブ内の粒子を少量の超純水ごとパスツールピペットで吸い上げ、一つ穴のスライドガラスの上に乗せた。超純水が乾いた後、スライドガラス上の粒子が放射性粒子であることを、ゲルマニウム半導体検出器で測定することで確かめた。^{137}Cs のピークがあれば放射性粒子と判断し、ピークがなければ放射性粒子でないと判断した。

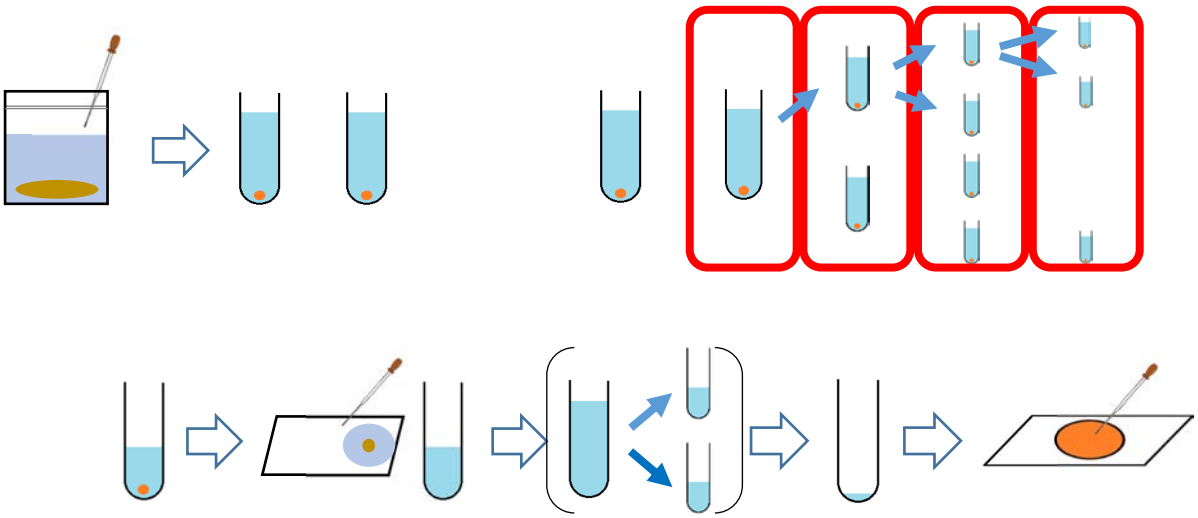


図 3.1.3-1　土壌および塵埃試料から粒子を取出すまでの作業手順

サンプルチューブ内の目視できる粒子を取り出したが、それが放射性粒子でなく、残りのサンプルチューブをゲルマニウム半導体検出器で測定して ^{137}Cs のピークが見えたとき、サンプルチューブ内に目視できない放射性粒子があると考えられた。その場合、次のようにして放射性粒子を取り出した。サンプルチューブに超純水を加えて二分し、ゲルマニウム半導体検出器で測定した。^{137}Cs がより強く検出されたサンプルチューブに再び、超純水を加え二分する作業を繰り返し、不純物を除いた。不純物を除いた後、超純水を加えず二分し、^{137}Cs

を測定した。^{137}Cs がより強く検出されたサンプルチューブを再び二分し ^{137}Cs の定量をする作業を繰り返し、水量を減らした。その後、パスツールピペットで目視できない放射性粒子を含む少量の水を吸い上げ、カプトン®テープの上に落とし、放射性粒子を取り出した。

取り出した放射性粒子はゲルマニウム半導体検出器（CANBERRA, GC401B）で ^{134}Cs と ^{137}Cs を定量し、走査型電子顕微鏡（SEM）（Hitachi High-Technologies, SU3500）で反射電子像や二次電子像を取得した。また、エネルギー分散型 X 線分光器（EDX）（HORIBA, EMAXEvolution X-Max）で、スペクトル分析を行った。

（3）試験の結果

今回の一連の操作で得られた粒子は数十個になった。大きさは 100-1000 μm でその形状は球形に近いものから繊維状物質が絡まったようなものまで様々であった。放射能に関して ^{137}Cs で 4 - 1300 Bq とかなり広い範囲の粒子を見出した。^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能比は平成 23 年 3 月の基準でどの粒子も 0.91-0.94 の範囲に収まり、すべて 1 号機に由来するタイプ B（1）であると位置づけられた。

参考文献

（1）Y. Satou et al., Geochem. J. 52（2）, 137-143（2018）.

3.2 放射性微粒子の性状把握

3.2.1 放射性微粒子の電顕観察と元素分析による分類評価に関する研究

（連携先：日本原子力研究開発機構）

（1）試験の目的

1F 事故で放出された放射性微粒子は、少なくとも 2 つの原子炉から異なる時期に放出されたことが明らかになっている。しかしその後の研究でこれまでの分類では認識されていない粒子も複数認められており、本事業の中で各機関が実験で使用する放射性粒子が、既知のものであるか、あるいは全く異なるものであるかの判断をしなければ、新規に得られた結果を検証することができず、知見を整理することが困難である。また本事業内で分離した放射性粒子を系統的に管理できれば、参画機関内で共有を図る際の基礎情報を統合的に取りまとめることも可能になる。

そのため本協力先では放射性微粒子表面の情報や元素組成を高分解能走査型電顕（SEM）により取得することで放射性微粒子の特性評価を行なった。また分析で得られた放射性粒子の性状に基づき、それらの分類評価を開始し、サンプルアーカイブ構築の基礎とした。

（2）試験装置

粒子の外観および表面付近の元素特定をするため、JAEA/CLADS 保有のショットキーフィールドエミッション走査型電子顕微鏡（FE-SEM 日本電子製 JSM-7800F）を用いた（図 3.2.1-1）。同装置は上部に最大加速電圧 30kV の電子銃を搭載し、極めて安定した電子線を用いて試料を観察することが可能である。画像モードも反射電子と二次電子の 2 種類に対応しており、特に反射電子（BSE）像でセシウムを含む重元素を視覚的に捉えることが可能であり、さらに二次電子（SE）像では 5 kV という低加速電圧でも像の取得ができ、一般的な汎用走査型電子顕微鏡では困難なミクロレベルのイメージングに対応している。加えて試料室内に窒素ガスを入れた低真空モードでの観察も利用可能で、ケイ酸化合物のような絶縁物は本来であればカーボン等による帯電防止コーティングが必要だが、今回、用いた試験装置では前処理が不要であり、JAEA/CLADS の SEM で観察すれば続く参画機関において異なる分析を行う場合でも、表面が未処理（未加工）の放射性粒子を供与することも可能である。

図 3.2.1-1　分析に使用した走査型電子顕微鏡

（3）試験結果

本実施項目では基礎情報の整理を目的に再委託先の 1 つである大阪大学が 1F 周辺で採取し、分離までを行った粒子を試験装置で観察した。

（4）試験結果の分析と考察

図 3.2.1-2 に示す粒子 A-D は原発南部および西部で採取した環境試料から分離したにも関わらず、粒径が 100 ミクロンメートルを上回っていた。1F 事故で放出した放射性粒子のうち、これまで大きい粒子として確認されていたのは 3 月 12 日に 1 号機水素爆発で放出したタイプ B と呼ばれる粒子である [(1)]。しかし観察した粒子の Cs 同位体比は 1.00-1.02 の値を示している。1 号機由来の粒子の場合 0.92-0.94 の値を示すことが判明しており [(1)]、明らかに 1 号機以外からの放出である。また粒子 E-G は粒径および Cs 同位体比はタイプ A の基準を満たしておりタイプ A と認められるが、形状等からタイプ A の亜種と推定される。

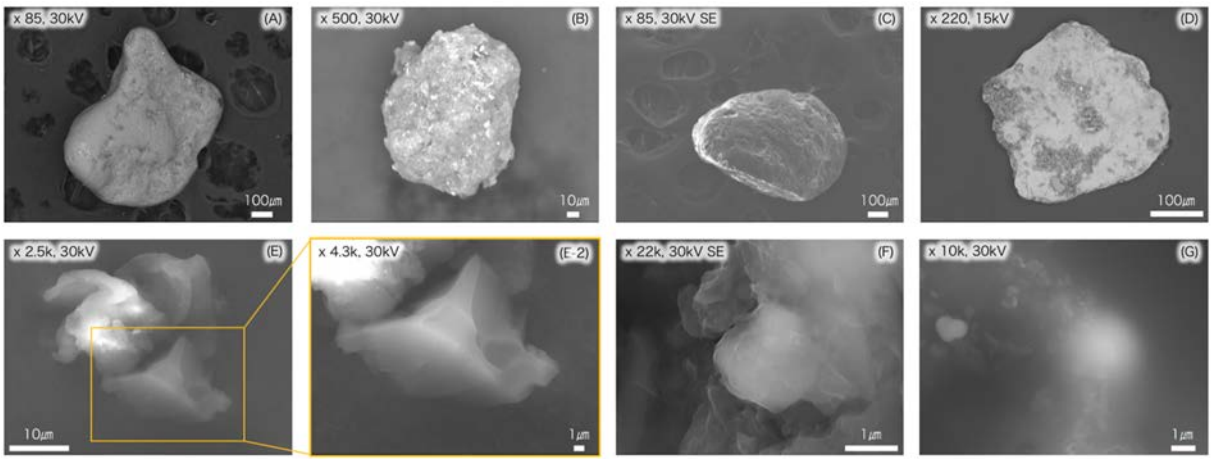


図 3.2.1-2　観察した粒子の画像一覧 特記のないものは BSE 像

(5) まとめ

本実施項目ではサンプルアーカイブの基礎となること、および各参画機関の放射性粒子の基礎情報を共有することを目的に、再委託先である大阪大学の分離した放射性粒子の観察を行った。その結果、従来から認識されている粒子に分類できないもの、およびチリに埋没し容易に同定できない粒子が確認された。一方、前処理や試料準備の段階で見直せる改善点も見出された。本実施項目で得られた観察結果は、本事業の実施項目 1 を担当する機関（茨城大学、大阪大学、筑波大学）に対しフィードバックを行い、SEM 観察の結果がそのままサンプルアーカイブに載せる情報になるよう改善の一助にしたとともに、試料管理手法の検討に反映させることとした。

参考文献

(1) Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 137-134 (2018).

3.2.2 放射性微粒子の帯電状態および表面状態の分析に関する研究

（再委託先：慶應義塾大学）

（1）試験の目的

平成 23 年に発生した福島第一原子力発電所事故によって、放射性物質が大気中に飛散し各地に降り注ぐ結果となった。その後数年が経過し、事故によって発生したとされる不溶性の放射性 Cs 微粒子が相次いで発見された[(1) (2)]。この粒子は不溶性であることから、生体内に沈着した際に溶けずに粒子として留まり続け、放射線を発し続けることから健康影響が懸念されている。さらに、土壌に沈着した際には溶出しないため、粒子として再飛散してさらに長距離を移動する恐れもある。こうした放射性 Cs 微粒子は、汚染された原子炉内や原発の周辺地域では現在も多く存在していると考えられており、その危険を取り除くための技術開発が必要とされている。そのためには、未知な部分の多い放射性 Cs 微粒子の物性を理解し、これを利用することが有効であると考えられる。ここで、放射性Cs はβ 崩壊により電子線を放出しているが、これにより粒子自身はプラスに自家帯電している可能性が示唆されており、これを放射性 Cs 微粒子の物性解明に適用することが可能であると考えられる。本研究では、KPFM 法を用いて、放射性Cs 微粒子の電気的特性を解明する事を目的とした。KPFM は SPM の測定モードの 1 種である。プローブ（探針）を振動させながら走査して、プローブが試料から受ける電気力によって振動周期を変化させることを検出し、試料の高さ像と表面電位像のマッピングを同時に行うことができる方法である。また、並行して SEM による粒子の形状分析も行った。

（2）試験装置

KPFM 測定には島津製作所製 SPM-9700 の KPFM モードを使用した。カンチレバーには n 型ドープシリコン（Nanoworld、EFM）を使用した。カンチレバーの特性値は以下の通りである。カンチレバー長さ／幅／厚さ： 225 μm／28 μm／3 μm、探針高さ：10～15 μm、探針先端曲率半径：15 nm、バネ定数：2.8 N/m、共振周波数：75 kHz。本装置では静電気力 （KPFM 像）と原子間力（AFM 像）を同時に検出・取得しており、検出原理は非接触振幅変化検出方式である。画素数は 256×256 ピクセル、スキャンスピードは 0.1～0.3 Hz で、本報告に示した画像は全て 1 回のスキャンで得られたものである。KPFM による表面電位測定は、温度 25 ℃、湿度 35～40%の条件下で、試料台である接地されたステンレス板を電位 0 V として、その上に試料を載せて行われた。測定基板と試料台の間は、導電性ペイント（日新 EM、ドータイト）を用いて接点を設けた。試料には、KPFM 測定までの間、湿度 50%以下のデシケーター内でポリエチレン製ペトリスライド（Millipore、PDMA04700）に保管されたものを用いた。SEM は FEI Inspect F50 FE-SEM を用いた。

使用する KPFM の測定部の写真を図 3.2.2-1 に示す。ただし、図 3.2.2-1 の左側にはスケールを示すための定規を映し込んでいる。KPFM 測定中は①レーザー光源から発せられたレーザー光が②ミラー1 で垂直下方向に反射され、③プローブに照射される。このプローブは上述の固有振動数で振動しているが、④ステンレス試料台上のサンプルとの原子間力および静電気力によってその周波数が変動する。周波数の変動はプローブから反射したレーザー光が⑤ミラー2 で反射されたのち⑥検出部で検出され、サンプルの高さおよび表面電位として測

定される。なお、この測定部は測定中には全体をカバーで覆われるが、測定は大気圧条件下で行われる。

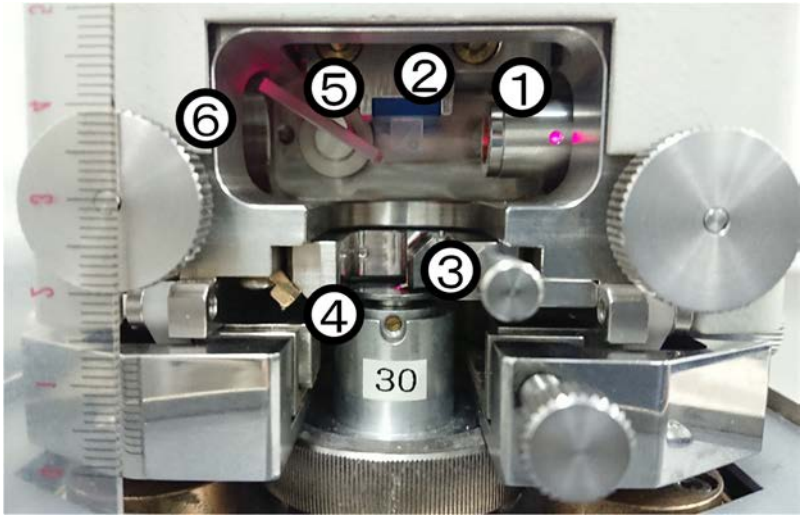


図 3.2.2-1　KPFM 測定部の写真　①～⑥の部品番号は本文と対応している

(3) 試験結果

① KPFM 測定における基板の検討

粒子を乗せていない状態における測定基板として、PTFE フィルター（Whatman、7592-104）、ポリカーボネートフィルター（Merc Millipore、GTTP01300）、グリッド付きカバーガラス（松波硝子工業、GC1300）を用意し、それぞれの表面を SEM および KPFM により測定した。PTFE フィルターは繊維状であり、測定表面において大きな凹凸が存在するため、微小な探針を試料と接触しないよう走査する KPFM 測定には不向きであり、表面電位像をうまく取得できなかった。ポリカーボネートフィルターは、PTFE フィルターとは異なりフィルター表面が平滑であるため表面電位像を得ることはできたが、フィルター表面の場所ごとに表面電位にむらがあり、像が不鮮明であった。グリッド付きガラス基板は表面電位が安定してばらつきも小さく、鮮明な像が得られた。さらに、高さ像、KPFM 像、共にグリッドが明確に判別できた。今後、粒子の KPFM 測定のための基板には、可能な限り平滑面を有するグリッド付きガラス基板もしくはそれに準ずるものを利用するとよいことが確認できた。

②任意の電圧を印可した基板を用いた KPFM 測定値の校正

エアロゾル個別粒子の KPFM 測定の実験系を図 3.2.2-2（左）に示す。この場合、ガラス基板に対して大気粒子のインパクション（慣性衝突）を行うことで捕集し、そのガラス基板に対して KPFM 測定を行うことを想定している。この KPFM 測定系において試料上部のプローブと下部のステンレス試料台は電気的に接続されているが、試料と試料台の間に絶縁体であるガラス基板が存在している。そのため、ガラス基板上の試料について KPFM により測定される表面電位が確からしいものであることを確認する必要がある。そこで、任意の電圧を印可した基板に対して KPFM 測定を行い、KPFM 測定値と印可電圧

値が一致するかを調べた。具体的には、ガラス基板上の一部分にイオンスパッタを用いて Au を蒸着し、この Au 部分に安定化電源を用いて電圧を印加して、Au 部分に行った KPFM 測定で印加した電圧が表面電位として正しく測定されるかどうかを調べた。実験系を図 3.2.2-2（右）に示す。

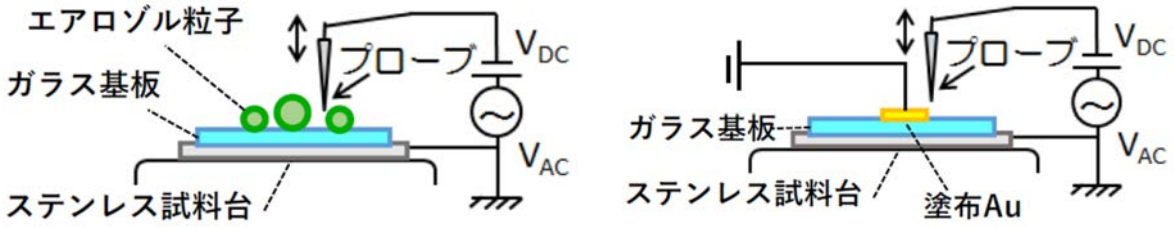


図 3.2.2-2　KPFM 測定系画像
（左）ガラス基板上の粒子、（右）　任意の電圧を印可した基板

走査途中で都度印加電圧を変化させることで測定表面電位の違いを見た。塗布 Au への印加電圧を 0 V から 2 V まで 0.5 V ずつ変化させた時、および 0 V から 0.4 V まで 0.1 V ずつ変化させた時、どちらの場合においても、印加した電圧に相当する値が表面電位として測定されていた。また、後者の実験では前者に比べて印加電圧の変化量を小さくしているが、印可電圧 0.1 V の差でも KPFM による表面電位測定値の差異に反映されており、実試料の測定を行う際でも表面電位については 0.1 V 程度の分解能があることが期待される。

③放射性 Cs 微粒子（タイプ A）の KPFM 測定

上述の通り、ガラス基板上の試料の表面電位を KPFM で測定することが出来ることが確かめられたので、実際に放射性 Cs 微粒子（タイプ A）の KPFM 測定を行った。この試料では、ガラス基板上に放射性 Cs 微粒子を固定するためにカプトンテープ （Teraoka 製）が用いられており、KPFM 測定は図 3.2.2-3 に示す実験系で行った。測定結果を図 3.2.2-4 に示す。さらに、図 3.2.2-4 と同一視野について FE-SEM により二次電子像を取得した。その結果を図 3.2.2-5 に示す。SEM 像と KPFM 像では同一の粒子群を観察しており、視野中央下寄りの粒子が放射性 Cs 微粒子であることが確認できた。また、EDX スペクトルより、画像中央下寄りの粒子と左端の粒子群は異なる組成を有していると考えられた。図 3.2.2-4 の電位像より、今回の測定ではバックグラウンドのカプトンテープの表面電位が最も高く測定されていた。また、放射性 Cs 微粒子の表面電位は、他の粒子と比較して高く測定されていた。

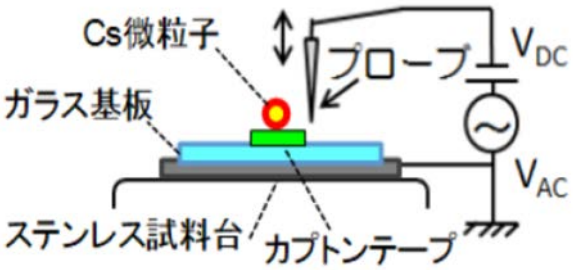


図 3.2.2-3　放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定系イメージ

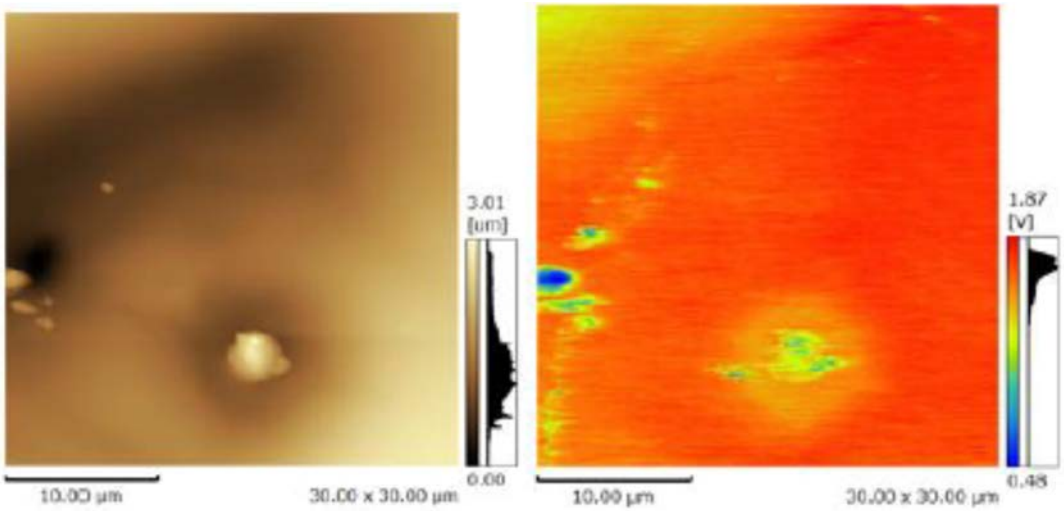


図 3.2.2-4　放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定結果　（左）　高さ像　（右）　電位像

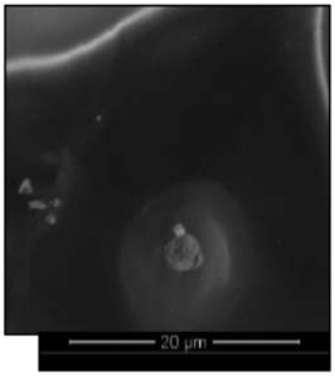


図 3.2.2-5　放射性 Cs 微粒子の SEM 測定結果

今回の結果より、まず、KPFM 測定による対象物の持つ表面電位の測定値の妥当性を示すことができた。また、実際に放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定を行い、その表面電位が、他の粒子とは異なっている可能性を示すことができた。

参考文献

(1) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013).
(2) Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 137-143 (2018).
(3) M. Nonnenmacher et al., App. Phys.Lett., 58 (25), 2921-2923 (1991).

3.2.3 放射性微粒子の物理・化学的性状に関する研究（再委託先：東京理科大学）

（1）目的

1F 事故により環境中へと放出された放射性核種の一部は、水に対して不溶（または難溶）な微粒子の形態で存在し、事故直後に採取されたエアロゾル [(1)] [(2)] の他、帰還困難区域で採取された土壌 [(3)，(4)] 等、環境試料中からの発見が相次いでいる。1F から一次放出されたと考えられるこれらの粒子には、事故当時の炉内状況に関する情報が内包されていると考えられ、その物理・化学的性状の解明は事故事象の解明、さらには今後の廃炉計画における被ばくリスクの定量的な評価を行う上で、きわめて重要である。同時に、環境中で長期的な影響力を持つと考えられるこれらの微粒子について、物理・化学的性状を利用した効率的な分離・回収方法を提案できれば、サンプル数を増やすというという点で研究上の高い需要があるだけなく、新規の除染技術の開発へも貢献できると期待される。そこで本研究では、1F 事故由来の放射性微粒子について、詳細な物理・化学的性状を解明することを目指し、放射光 X 線を活用した複合的な分析を実施した。さらに、粒子の持つ性状、特に蛍光特性に着目して、環境中からの効率的な分離・回収のための基礎研究を行った。

（2）実験内容

①分析試料

SPM 計によりテープ濾紙上に捕集されたエアロゾルと、平成 28 年 7 月に帰還困難区域内で採取した土壌から、先行研究 [(1)] [(2)] と同様の方法により、放射性微粒子を単離した。これらの粒子について、低真空対応型の SEM により、表面蒸着等の前処理なしで形態観察を行い、さらにエネルギー分散型特性 X 線分析（EDX）による主成分組成の分析を行った。また、1 粒子単位でゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトル測定を行い、^{134}Cs および ^{137}Cs の放射能を調べた。

②放射光マイクロビーム複合 X 線分析

厚さ 1 mm のアクリル板を縦横 4 cm の正方形型に切り出し、これに径 3 cm の穴をあけ、試料ホルダとした。穴全面を覆うようにカプトン製粘着テープを貼り、マイクロマニュピレータを用いた操作によって、テープ粘着面の中央付近に先述した放射性微粒子 1 点を貼り付け、これを放射光実験用の測定試料とした。放射光実験は、大型放射光施設 SPring-8（兵庫県佐用郡）の分光分析ビームライン BL37XU にて実施した。ビームタイムは、平成 30 年 11 月 22 日 10:00 から 26 日 10:00 までの計 96 時間である。このビームラインでは、アンジュレータより放出されたきわめて高輝度な準単色光を 2 結晶モノクロメータによって任意のエネルギーに単色化した後、KB ミラー集光素子によって縦横 1 μm 以下の集光し、この放射光マイクロビームをプローブとする様々な X 線分析を複合的に実施することができる。本研究では蛍光 X 線（XRF）分析により粒子の化学組成および粒子内での元素分布を、X 線吸収端近傍構造（XANES）分析により粒子に含まれる一部の金属元素の存在状態を、粉末 X 線（XRD）分析により粒子の結晶構造を調べた。分析方法の詳細については先行研究 [(2)] を参照のこと。今回のビームタイム内で、エアロゾル由来の粒子 6 点、土壌由来の粒子 1 点について分析した。

③1 粒子レベルでの蛍光特性の測定

東京大学医科学研究所（東京都白金台）にあるニコンイメージングラボにおいて、多光子励起顕微鏡 NikonA1RMP を用いた顕微レーザー蛍光測定を行った。この装置は、4 種類の共焦点用レーザー（405 nm,488 nm,561 nm,640 nm）を励起源として搭載し、最大倍率 40 倍の対物レンズを用いて、1 μm 以下の空間分解能で蛍光測定が可能である。蛍光発光の 2 次元または 3 次元分布を波長別に可視化できる他、任意の点において蛍光発光スペクトルの計測も可能である。本研究ではこの装置を用いた立ち合い分析により、茨城大学、筑波大学、東京理科大学が連携して、1F 事故由来の放射性微粒子の研究を進めた。東京理科大学では、主にエアロゾル由来の放射性微粒子を主な対象とした。平成 30 年度では、エアロゾル由来のもの 1 点と、比較のために土壌由来のもの 1 点について分析した。また比較試料として、紫外線の照射により緑色の蛍光を示す「ウランガラス」を粉砕した破片についても、同様に分析した。

④霧箱による放射線の直接観測

放射性微粒子より放出される放射線の直接観測を目的として、（株）ナリカ製のペルチェ霧箱 SML-02 を用いた実験を行った。本装置は空冷型ペルチェ冷却装置を搭載しており、溶媒の使用は不要である。透明プラスチック製の円筒型観察槽の中央に試料を置き、観察槽上部のエタノール槽に満たしたエタノールをヒーター線で気化させ、観察槽内部をエタノール蒸気で満した。さらに観察槽の蓋に高電圧をかけ、観察槽の後方から白色 LED 照明で照らすことで、エタノール蒸気中を通過した放射線の飛跡を観測した。今回は、帰還困難区域の土壌中から分離された放射性微微粒子について実験を行った。

(3) 結果と考察

①放射光 X 線分析における新検出器の導入

今回分析する 1F 事故由来の放射性微粒子には、Fe（Kα：6.4 keV）や Zn（8.6 keV）の他に、ウラン燃料の核分裂生成物（FP）由来と考えられる Sn（Kα：25.3 keV）、Cs（Kα：31.0 keV）、Ba（Kα：32.2 keV）などの重元素が多く含まれていることが明らかとなっている[(2)]。こうした高エネルギー領域に特性 X 線を持つ重元素は、微小試料の組成分析において一般的に利用される SEM-EDX では K 線の励起が困難であり、より低エネルギー側に検出される L 線を用いた分析が行われる。しかしながら、これらの元素の L 線が検出されるエネルギー領域には Ca や Ti の K 線が検出され、ピークが複雑に重複してしまう。本研究では SPring-8 において 37.5 keV という高エネルギーの単色 X 線を励起光とした XRF 分析を行うことで、こうした重元素の高感度な分析を可能としている。BL37XU には、XRF 分析用の検出器として 8 素子のシリコンドリフト検出器（SDD）が標準搭載されている。エネルギー分解能に優れ、信号の計数率が高く、また液体窒素などの冷媒を必要としない SDD は、今日の XRF 分析において多用されている検出器である。このビームラインでは、この SDD を分析試料の周りに 8 素子配置し、得られた信号を積算することで、より計数効率を高めている。しかしながら、SDD はその他の半導体検出器に比べて素子厚が薄く、透過力が強い高エネルギーX 線の検出には不向きである。そのため、SDD は 20 keV を超え

る高エネルギーの X 線の分析にはあまり適していないとされる。

そこで今回、BL37XU で標準搭載されている SDD に加えて、高エネルギーX 線の検出に優れたゲルマニウム半導体検出器（Ge-SSD）をビームラインに導入して、同一の試料を分析した場合の感度の違いを比較した。分析試料は、様々な元素を約 50 ppm ずつ含有するソーダ石灰ガラス製の認証標準物質、米国 NIST 製の SRM612 である。ディスク状の SRM612 を粉砕し、10 μm 程度の大きさの破片を選び出して、放射性微粒子と同様の方法でカプトンテープ上に固定し、XRF 分析（積算時間 100 秒）を行った。SDD および Ge-SSD により得られた XRF スペクトルを比較したものを図 3.2.3-1 に示す。SDD は低エネルギー側、Ge-SSD は高エネルギー側の X 線の検出に優れていること明瞭に読み取れる。特に Cs や Ba といった、30 keV を超える高エネルギーX 線の検出においては、SDD に比べて Ge-SSD が圧倒的に優れた感度を示している。よって、これらの重元素の検出に重きを置く場合には、検出器として SDD ではなく Ge-SSD を用いることが望ましい。その一方で、図 3.2.3-1 に示したスペクトルは、SDD（青線）と Ge-SSD（赤線）で縦軸が異なっており、スケールとして 3 倍近い差があることに注意されたい。すなわち、両検出器の感度は Cd（23.2 keV）あたりで同程度となり、それよりエネルギーの低い X 線の検出については、8 素子の信号を積算している SDD の方が圧倒的に有利である。本研究では、ごく微量に存在する U（Lα：13.6 keV）を含めた幅広い元素について分析することを目的とし、今回のビームタイムでは放射性微粒子は SDD による分析を行った。

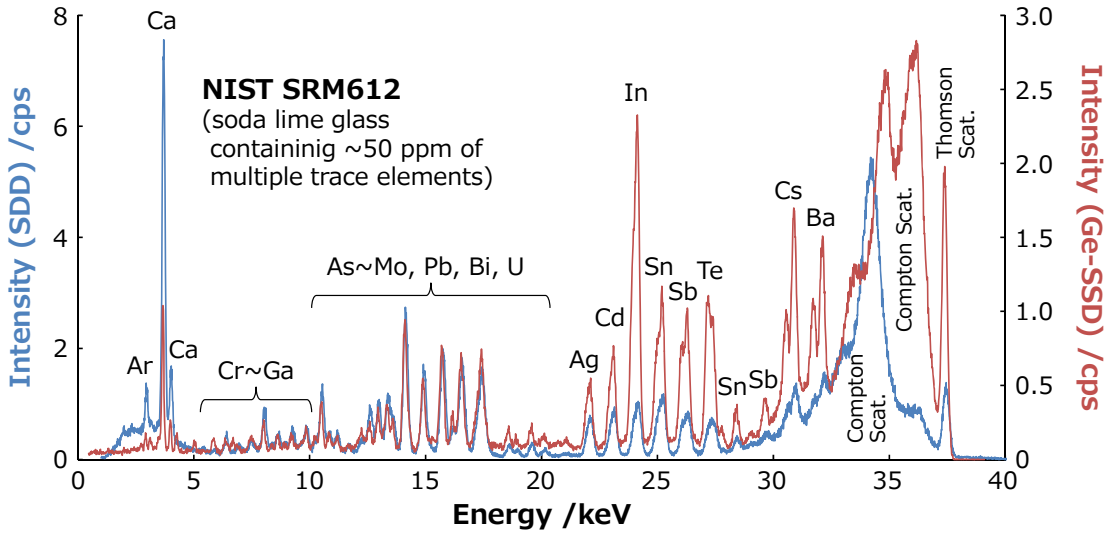


図 3.2.3-1　認証標準物質 SRM612 に対する SDD および Ge-SSD の XRF スペクトルの違い
青線：8 素子分の SDD の信号を合計したもの、赤線：Ge-SSD により得られたもの

②東日本で事故直後に採取された放射性エアロゾルの放射光 X 線分析

ここでは、事故直後である平成 23 年 3 月 15 日に、東日本のある地点で採取されたエアロゾルに関する成果を報告する。東日本に設置されている SPM 計のうち、事故当時も稼働していたものを対象として、イメージングプレートを用いたオートラジオグラフィーによって粒子状の放射性物質の存在を検証し、一部について実際に放射性微粒子を分離した。

ここに示すのは、そのうちの1点の分析結果である。以下この粒子を「粒子A」とする。

SEMによる観察の結果、直径約4 μmの球状粒子であった。ガンマ線スペクトル測定の結果、平成23年3月当時に減衰補正した ^{134}Cs および ^{137}Cs の放射能は約2 Bqであり、^{134}Cs/^{137}Cs の放射能比は約1となった。この値は、福島第一原発2号機（または3号機）の燃料について計算されている値とよく一致する[(5)]。

粒子Aについて37.5 keVの高エネルギー放射光X線を励起源としたXRF分析を行った結果、得られたXRFスペクトルには先行研究[(2)]と同様の様々な重元素が検出された。続いて、XRF分析によって検出された一部の金属元素についてXANES分析を実施した結果、先行研究[(2)]と同様に高酸化数のカチオンとしてガラス相中に存在していることが明らかとなった。なお、XRD分析により粒子の結晶性についても検証したが、結晶性物質に由来する回折ピークが検出されず、粒子がガラスであるとするXAENS分析の結果が支持された。以上の物理・化学的性状は、その直径を除いて、一般に「Csボール」や「CsMP」[(3)]、あるいはタイプA[(4)]と称される種類の放射性微粒子のものときわめてよく類似していた。今回、直径が4 μmを上回る粒子が事故直後に捕集されたエアロゾル中から発見されたことは、一般的に直径2 μmあるいはそれ以下であると考えられていたこの種類の粒子について、その環境・人体への影響を考える上で重要な知見になると考えられる。

③福島第一原発事故由来の放射性微粒子の蛍光特性

放射光X線分析を行ったエアロゾル由来の放射性微粒子である「粒子A」について、1粒子レベルでの蛍光特性の評価を行った結果を以下に報告する。先行研究[(2)，(4)]により、タイプAと呼ばれる種類の放射性微粒子は主成分がケイ酸塩ガラスであり、多くの元素がイオンの形でガラス相中に溶けていることが明らかになっている。ガラス相中の金属イオンの中には、紫外光や可視光に対して特徴的な蛍光を示すものがあり、その最たる例がウラニルイオン UO_2^{2+}である。UO_2^{2+}を含むガラスは「ウランガラス」と呼ばれ、327 nm前後の紫外光、または420 nm前後の紫～青色光を照射することで、520 nm前後の特徴的な緑色蛍光を発する。タイプAの放射性微粒子はしばしば核燃料由来と思われるUを含有しており[(2)]、今回分析した粒子Aにおいても、図3.2.3-2aに示したようにUのL線が検出されている。よって、このUが UO_2^{2+}の形で存在していた場合、この粒子もウランガラスと同様の蛍光特性を持つものと期待される。

大きさ100 μm程度のウランガラスの破片について、405 nm、488 nm、561 nmの3種類の励起波長に対する蛍光を調べたところ、405 nmおよび488 nmにおいて特徴的な緑色の蛍光が観測された。405 nmおよび488 nmの励起に対して得られた蛍光イメージング像を図3.2.3-2に示す。どちらも波長500～560 nmに対応する緑色の発光が検出されており、これら2種類のレーザーはどちらもウランガラスの励起に有効であると考えられるが、488 nmのレーザーは検出しようとしている緑色光と波長が近く、励起光の散乱の成分が検出される可能性を考慮して、以降は405 nmのレーザーを用いることとした。

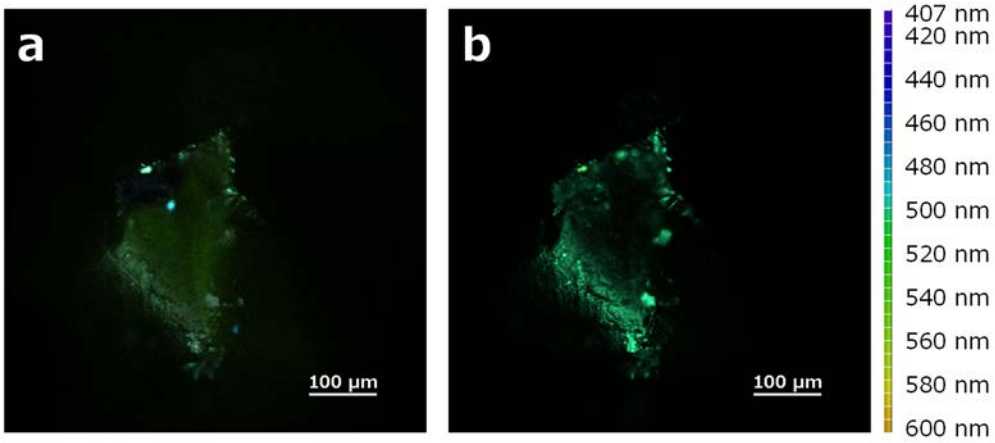


図 3.2.3-2　ウランガラス破片の蛍光イメージング
(a)　405 nm 励起、(b)　488 nm 励起

粒子 A について 405 nm 励起の蛍光を測定したところ，粒子全体から緑色の蛍光発光が検出された。この結果は、1F 事故由来の放射性微粒子が可視光領域の光に対して特徴的な蛍光を生じることを示した初の成果である。また先述したように、この粒子には U が含まれること、405 nm の励起によりウランガラスが 520 nm 前後に緑色の蛍光を示すことを考慮すると、今回の実験で粒子 A より観測された緑色蛍光もまた、粒子中に含まれるウラニルイオン UO_2^{2+}に起因するものである可能性が高い。また、本装置は共焦点レーザーを用いているため、試料の高さ方向を変化させながら蛍光イメージを取得していくことで、蛍光分布を 3 次元データとして示すことも可能である。本研究で対象としたエアロゾル由来の粒子に限らず、粒子内で元素分布の不均一性が示されている土壌由来の放射性微粒子も含めて、蛍光物質の 3 次元分布の可視化にも挑戦していく。

本研究と同様の放射光施設を用いた XRF を行った先行研究 (2) では、一般にタイプ A と称される放射性微粒子について、U の含有量にはばらつきが示されている。今回検出された蛍光が U によるものであった場合、その含有量に応じて、放射性微粒子の蛍光強度にも差が生じるということになる。蛍光特性の定量的な評価のためにも、XRF スペクトルから濃度データへの定量法の開発が不可欠であり、本研究における今後の課題でもある。また、紫外光照射により緑色の蛍光を示すガラス中のカチオンとして、Mn^{2+}イオンが知られている。今回検出された蛍光が Mn^{2+}のものであった可能性を検証するためには、実際に Mn^{2+}イオンを含むガラスを分析し、蛍光スペクトルの比較を行う必要がある。また、405 nm 励起で 520 nm 前後の蛍光を示すという蛍光特性について、放射性微粒子を環境中から分離・回収するために活用することを想定すると、環境中に同様の蛍光特性を持つ物質がどの程度存在するか把握しておく必要があるだろう。他の再委託先とも連携しながら、適切な参照試料を選定し、必要に応じて環境中から採取あるいは電気炉等を用いた合成実験を行い、1F 事故由来の放射性物質について、蛍光特性によるキャラクタリゼーションの有用性を検証していく。

④放射性微粒子より放出された放射線の直接観測

帰還困難区域で採取された土壌より放射性微粒子（以下、「粒子 B」とする）を分離し、ペルチェ霧箱による放射線の直接観測を試みた。粒子 B は直径約 50 μm で、ガンマ線スペクトル測定の結果、平成 23 年 3 月当時に減衰補正した値で、^{137}Cs として 27.2±0.9 Bq の放射能を有していた。一般にタイプ B [(4)] と呼ばれる粒子であると考えられる。

ペルチェ霧箱に粒子 B を入れたところ、図 3.2.3-3 に示すような放射線の飛跡が、1 秒間に 10 個以上観測された。さらに、観測された放射線の飛跡は、ジグサグに曲がった特徴的な形状を示し、これはベータ線のよるものであると考えられる。ガンマ線による二次的なベータ線の成分も含まれると考えられるものの、事故由来の放射性物質について目視できる程度のベータ線が放出され続けていることを容易に観測できた点は、粒子の単離を考える上で重要である。あるいは先述した蛍光特性のように、霧箱の原理を応用して放射性微粒子の場所を直接的に特定できるような技術の開発も可能かもしれない。

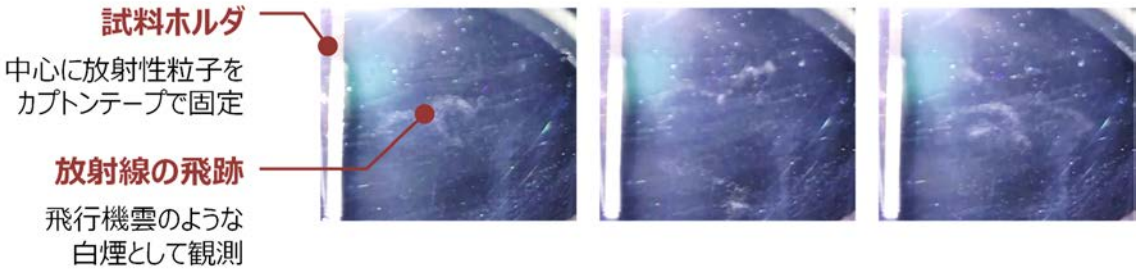


図 3.2.3-3　ペルチェ霧箱で観察された放射線の飛跡の例（試料：粒子 B）

参考文献

(1) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013).
(2) Y. Abe et al., Anal. Chem., 86, 8521-8525 (2014).
(3) G. Furuki et al., Sci. Rep. 7, 42731 (2017).
(4) Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 137-143 (2018).
(5) 西原 健司 他, JAEA-Data/Code 2012-018 (2012).

3.2.4 荷電粒子励起エックス線放出分析法と誘導結合プラズマ質量分析法による微量元素検出に関する研究（再委託先：筑波大学）

（1）試験の目的

放射性粒子がどのような成分で構成されているのかは、粒子がどのように生成したかなどの重要な情報を与えるはずである。荷電粒子励起エックス線放出分析法（PIXE）と誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）を用い、通常の方法では確認できない粒子を構成する極微量元素の情報を取得し、放射性微粒子の生成過程を解明するための基礎的知見収集を開始し、測定最適条件の検討を行った。

（2）試験の方法

①荷電粒子励起エックス線放出分析（PIXE）

【試料調整】粒子が乗ったカプトンテープの上に粒子を包むように高分子樹脂で固める。これを裏返して高純度の石英ガラスの上に乗せてからカプトンテープをはがし、ガラス上に残った樹脂で固めた粒子を、研磨剤を使用して研磨する。実体顕微鏡で観察をしながら分析に適した面が出るところまで粒子の研磨を繰り返す。

【測定】作製した研磨片は走査線型電子顕微鏡（SEM）で観察したのち、PIXE を用いていくつかのポジションについて測定を行った。測定の標準試料は NIST SRM 1412 である。

②誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）

【試料調整】カプトンテープ上に乗った試料をピンセットでスライドガラス上に移したのち、さらに粒子をマイクロウェーブ加熱容器に入れた。（ブランク試料に関しては何も加えず次の操作へ移った。）その後、加熱容器に 70 %硝酸（関東化学、 EL グレード）3 mL とフッ化水素酸（Wako、 特級または Tamapure-AA-100）2 mL を加えふたを閉めた。これを 130℃で 10 分、175℃で 30 分または 60 分間マイクロ波による加熱を行った。容器を放冷した後、分解後の溶液を PTFE 0.45 μm シリンジフィルター（Sartorius）にてろ過した。ろ液を密閉可能な U-8 容器（キョウリツ電子）に移して、Ge 半導体検出器によってγ線を測定し、^{137}Cs の収率を求めた。この溶液を加熱容器（OD-LAB、 OD-98-100）に加え、ホットプレート（OD-LAB、 OD-98-001）によって 90～95℃で完全に乾燥させた。これを 2 %硝酸（Tamapure-AA-100）10 mL に溶解し、ICP-QQQ-MS（Agilent Technologies、 ICP-MS 8800）で、多元素測定を行う試料とした。

【放射性粒子分解時の元素の回収率検証】上記分解操作における各元素の回収率を検証するために、5 ppm の XSTC-622、 XSTC-331 標準溶液（SPEX 社）の混合溶液をマイクロウェーブ加熱容器に入れた。その後、加熱容器に 70% 硝酸（関東化学、EL グレード）3 mL とフッ化水素酸（Wako、特級または Tamapure-AA-100）2 mL を加えふたを閉めた。これを 130℃で 10 分、175℃で 60 分間加熱を行った。容器を放冷した後、分解後の溶液を PTFE 0.45 μm シリンジフィルター（Sartorius）にてろ過した。ろ液を加熱容器（OD-LAB、 OD-98-100）に加え、ホットプレートにて（OD-LAB、OD-98-001）90～95℃で完全に乾燥させた。これを 2% 硝酸（Tamapure-AA-100）5 mL に溶解して 10 倍希釈したのち、ICP-QQQ-MS での測定を行い、はじめに加えた量との比から回収率を決定した。

(3) 試験の結果

①荷電粒子励起エックス線放出分析（PIXE）

【研磨片試料】2 個の粒子について、研磨片試料を作製し SEM/EDX を用いた観察を行った。

【PIXE 測定】筑波大学の研究基盤総合センター応用加速器部門に設置されている 1MV タンデトロン加速器に常設されている PIXE 装置を用いて X 線分析を行った[(1)]。測定は標準試料として NIST SRM 1412 を用いて検出効率などの較正を行う準備をし、実試料については SEM 観察で成分が異なると期待される場所を中心に測定を行った。まだ解析の途中である。元素の定性結果からは主要成分の軽元素から Sn までの K-X 線が観測できているが、期待した重元素の L-X 線の強度は弱く、Pb 以外の元素の定量はできそうもない結果が得られた。今後は筑波大学の応用加速器部門の 6MV タンデム型加速器に設置されているマイクロビームラインにおける PIXE 測定の準備及び測定を行う予定である。

②誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）

【粒子の酸分解による回収率】ICP-MS 測定試料用に硝酸とフッ化水素酸の混酸系を選んで分解を行った。^{137}Cs の放射能を用いて粒子から溶液状態に分解操作における回収率を求めた。

【放射性粒子分解時の各元素の回収率】図 3.2.4-1 に元素ごとの回収率を示す。多くの元素に対して回収率はほぼ 100 %となった。また、6 属元素に対しては回収率が低く、重い元素ほど回収率が低下する傾向にある。ケイ素はフッ化物が揮発性のために検出限界以下まで減少している。

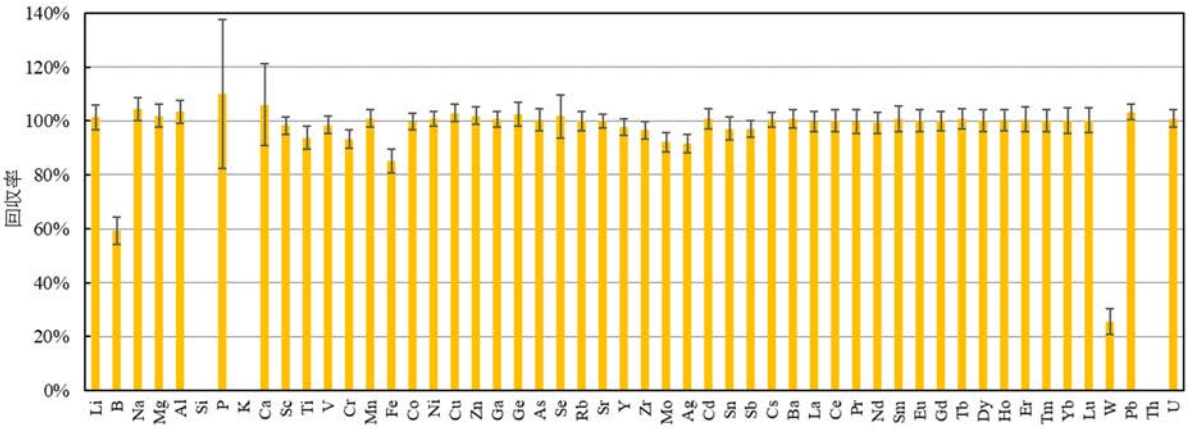


図 3.2.4-1　各元素の回収率

ICP-MS 分析用にタイプ B の放射性微粒子をフッ化水素酸と硝酸との混酸を用いることで全分解する方法を確立した。酸分解法の操作による測定可能な元素が明確になった。今後は実際の放射性粒子の分析を試みる予定である。

参考文献

(1) M. Kurosawa et al., Geochim. Cosmochim. Acta, 67, 4337-4352 (2003).

3.2.5 α放射体等の難測定核種の分析に関する研究（再委託先：大阪大学）

（1）研究の目的

1F 事故では、放射性 Cs が高濃度に濃集した水に不溶な放射性微粒子（不溶性粒子）が放出されたことがわかっている[(1)]。この粒子は原子炉から直接放出されたと考えられており、さらに水に不溶である性質から環境中で安定に存在し、放出時の状態を保持していると考えられる。すなわち、その性質を調べることによって原子炉事故時の炉内環境についての情報を得ることができると期待される。これまでの研究から、不溶性粒子は SiO_2 を母材としていることが分かっており、タイプ A 及びタイプ B の少なくとも 2 種類に分類されるように、大きさや形状、Cs 濃度、$^{134}Cs/^{137}Cs$ の放射能比にバリエーションがあることが知られている[(2)]。主成分が SiO_2 であることに注目すると、不溶性粒子の生成過程にはいくつかの制約を与えることができる。具体的には、SiO_2 源としてコンクリート、断熱材、さらに原子炉鋼材に3%程度含まれているものが考えられ、これが溶融燃料と反応することによって生成したと考えられている[(3)-(5)]。不溶性粒子は、様々なタイプが存在していることから、事故を起こした複数の原子炉でそれぞれ生成したと考えられる。これによりそれぞれの原子炉で SiO_2 源だけでなく、生成過程自体が大きく異なっていることが予想されるが、各原子炉の事故時の炉内事象はわかっておらず、不溶性粒子の生成過程についても詳細は不明である。

1F 事故では、冷却機能の喪失により原子炉燃料の核燃料生成物の壊変熱の除熱が行われなくなり、核燃料の温度が上昇して最終的には溶融・破損し、放射性物質の一部が揮発することで放出されたと考えられている。この過程（事故進展）の違いにより、放出される放射性物質の量や種類が大きく変化する。このことから、異なる元素間で放出量を比較することで、事故進展について情報が得られる。本研究では、不溶性粒子中に含まれる微量元素、Sr や Pu に着目して研究を行った。核燃料内に存在する元素の中で Sr や Pu は、Cs よりも揮発性の低い元素としてグループ分けされている[(6)]。このことから、Sr/Cs 比もしくは Pu/Cs 比を明らかにすることができれば、不溶性粒子生成時の温度条件に大きな制約を与えることができるようになる。また、Sr は事故進展の違いがもたらす炉内の酸化還元雰囲気により揮発性が変化し、事故進展後期における還元雰囲気において揮発性が大きくなる性質を持つ[(7)]。したがって、不溶性粒子中に含まれる Sr や Pu の量を調べることで、不溶性粒子生成時における炉内温度だけでなく酸化還元雰囲気などを推測することができると期待される。

今年度はまず不溶性粒子に含まれる Sr の分析実験を行い、さらに Pu の分析実験のための分析法の検討を行った。

（2）Sr 分析実験

不溶性粒子中の Sr 定量のために、本研究ではまず環境試料からの不溶性粒子の分離を行い、分離した不溶性粒子について固相抽出法をベースにした Sr 分離実験を実施した。

1F からそれぞれ北側、西側、南側に位置する地域から採取した環境試料から不溶性粒子を単離した。不溶性粒子は、まずオートラジオグラフィーで土壌全体の放射能分布を可視化し、いくつかの放射能の濃集点について同定した。濃集点を含む土壌のフラクションを全体から分離し、これをバイアル瓶に移し 4 mL の水を加えた。これをよく攪拌し、懸濁した土壌ごと 2 つのフラクションに分離した。NaI ガンマカウンターを用いて放射能の定量を行い、放

射能が大きいフラクションについては水を加えて同様の操作を繰り返した。およそ 30 回同様の操作を繰り返すことにより、放射性粒子ではない土壌のマトリクス成分は完全に取り除かれ、バイアル瓶中には放射性粒子のみを分離することができる。こうして得た溶液を乾燥させ、再度オートラジオグラフィーで放射性粒子の位置を大まかに確認した。最後に放射性粒子を電子顕微鏡により見つけ出し、形状観察を行い、高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いたガンマ線測定によって放射性 Cs（^{134}Cs、^{137}Cs）を定量した。形状や比放射能、放射能比（^{134}Cs/^{137}Cs）などの性質を調べた。本研究では、おおよそ 30 個程度の不溶性粒子を単離することができた。原発から北側に位置する地域で発見された不溶性粒子は、粒径が数百 μm 程度であり、エネルギー分散型蛍光エックス線分析（EDX 分析）からは Cs のピークが検出できないほど放射性 Cs 濃度が低いということがわかった。ガンマ線測定から放射性 Cs の放射能が数百から数千 Bq 程度であることが分かった。また ^{134}Cs/^{137}Cs の値は平成 23 年 3 月時点の換算で 0.9 程度であり、これらの不溶性粒子は 1F 1 号機から放出されたものであると考えられる。電子顕微鏡像から得られた形状などの性質とあわせて、この地域で発見された不溶性粒子は、過去に報告されているタイプ B として分類した [(2)]。つぎに原発から西側に位置する地域で発見された不溶性粒子は、粒径が数 μm 程度で EDX 分析からは Cs のピークが顕著に検出できるほど放射性 Cs 濃度が高いということがわかった。ガンマ線測定から放射性 Cs の放射能が数から数十 Bq 程度含まれていることがわかった。また ^{134}Cs/^{137}Cs は平成 23 年 3 月換算で 1.0 程度であり、これらの不溶性粒子は 1F 2 号機もしくは 3 号機から放出されたと考えられる。電子顕微鏡からの形状などの性質の類似性より、この地域で発見された不溶性粒子はタイプ A であると考えられる [(2)]。原発から南側に位置する地域で発見された不溶性粒子は、粒径が数十から数百 μm であり、EDX 分析からは Cs が検出できないほど放射性 Cs 濃度が低いことが分かった。これらの性質は、北西方向で見つかったタイプ B と類似した性質である。一方でガンマ線測定から 、放射性 Cs の放射能は数十から数百 Bq であることが分かり、さらに ^{134}Cs/^{137}Cs を調べたところ、平成 23 年 3 月換算で 1.0 であることが分かった。これはこの不溶性粒子が 2 号機または 3 号機由来であることを示しており、タイプ B とは異なる粒子であることが分かった。これらの不溶性粒子は 2 号機または 3 号機由来であると推測されるタイプ A との相違点も多く、この地域で発見された不溶性粒子はタイプ A、B に分類されない新しいタイプの粒子である可能性が示唆された。

不溶性粒子中の Sr 分析については、採取した不溶性粒子のうち北西方向および南西方向で採取された 10 検体ほどの分析を行った。不溶性粒子中の Sr 分離は、図 3.2.5-1 に示す実験スキームに基づいて行った [(8)]。大まかな手順としては、アルカリ溶融により不溶性粒子を溶液化した後、Sr-Rad disk により不溶性粒子中に含まれる Sr（^{90}Sr）を固相抽出した。これを EDTA 溶液により溶離し、さらに放射性 Pb を陽イオン交換により分離した。得られた ^{90}Sr フラクションについて、低バックグラウンド液体シンチレーション検出器により 2 週間連続したチェレンコフ光測定を行うことにより、娘核種 ^{90}Y の成長を観察することで ^{90}Sr の定量を行った。不溶性粒子中に含まれる ^{90}Sr の放射能は、 0.04～1.3 Bq という結果が得られた。放射能の絶対値については粒子ごとにばらつきがあったが、^{90}Sr/^{137}Cs 放射能比に直すと、全ての粒子で 10^{-4} のオーダーとなり粒子の種類による差は見られなかった。北西方向で発見された粒子は 1 号機、南西方向で見つかった粒子は 2 号機もしくは 3 号機由来である

ことが分かっており、このことは不溶性粒子に含まれる Sr/Cs 比が原子炉による違いがないことを意味している。粒子中に存在する ^{137}Cs に対する ^{90}Sr の割合は極僅かであり、これは土壌中の典型的な値 10^{-4}～10^{-3} [9] と類似していることがわかった。一方で土壌には多くの放射性物質の放出イベントに伴う複数の原子炉からの汚染が蓄積していると考えられるため、粒子と異なり汚染源を特定することは困難である。そこで原子炉建屋内の空気中の ^{90}Sr/^{137}Cs 比の値との比較を行うことにした。すると不溶性粒子中の ^{90}Sr/^{137}Cs 比の値は原子炉建屋内の空気中の最大値である 10^{-3}～10^{-2} [10] よりも小さいことがわかった。事故進展後期での炉内では還元雰囲気が支配的となり、Sr の揮発性が増すと考えられるため、原子炉建屋の空気中における ^{90}Sr/^{137}Cs 比の最大値には、事故進展後期における還元雰囲気での影響が反映されていると考えられる。したがって不溶性粒子中の ^{90}Sr/^{137}Cs 比の値が 10^{-4} と極めて低いことは、不溶性粒子が事故進展初期の酸化雰囲気が支配的な炉内環境において生成したことを示唆しており、また生成時の温度条件についても原子炉による違いがほとんどないことが分かった。

(3) Pu 分析法の検討

不溶性粒子中の Pu 分析を行うために、いくつかの標準試料について分析を行うことによって、分析条件の探索を行った。本研究では、TEVA レジンなどを用いた固相抽出法による分析法の検討を行っており、図 3.2.5-2 に示す実験スキームでの分離を検討している [9]。本研究では、同じ粒子の分析を行うために、Sr 分析で固相抽出により抽出されなかったフラクションをそのまま分析することを考えた。大まかな分析法として、沈殿法により不純物を取り除いた後、TEVA、 U-TEVA、 DGA の 3 種類の樹脂を用いて Pu フラクションの濃縮を行うことを考えた。現時点では Pu 収率トレーサーがないために、化学収率が出せないが、環境試料の分析から、微量に含まれる Pu を定量することに成功しており、Pu 分析のための手法については検討できた。平成 31 年度は、Pu 収率トレーサーを調達することにより、同様の実験を行い化学収率の確認を行った後、Sr 分析後に保管している溶液を用いて Pu 分析を進めていく。

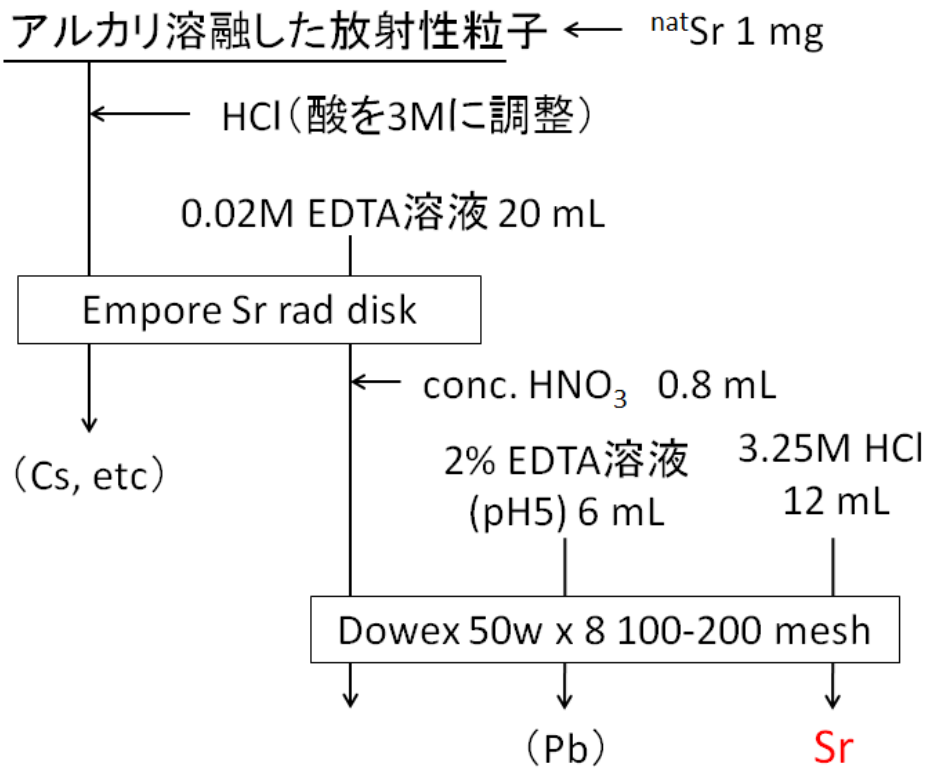


図 3.2.5-1　Sr 分析法のスキーム

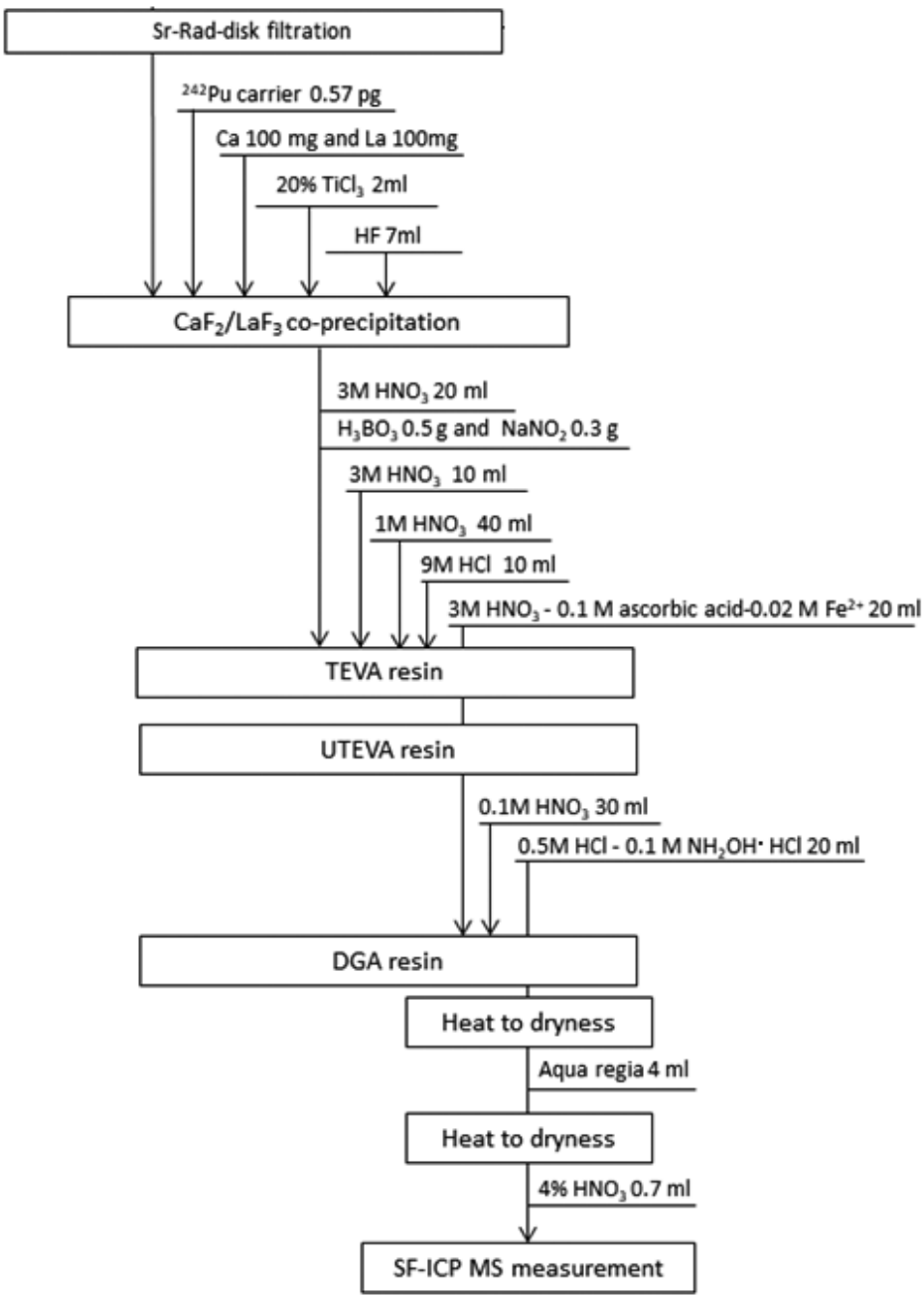


図 3.2.5-2　Pu 分析法のスキーム　Sr 分析後の Cs, etc. フラクションを用いて Pu を分析する。Pu 収率トレーサー（図中ではキャリヤー）は本事業で平成 31 年度に調達予定である。

参考文献

(1)　K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554　(2013).
(2)　Y. Satou et al., Geochem. J. 52, 0514　(2018).
(3)　Y. Abe et al., Anal. Chem. 86, 8521-8525　(2014).
(4)　J. Imoto et al., Sci. Rep. 7, 5409　(2017).
(5)　P. Martin et al., Front. Energy Res. 5, 1-9　(2017).
(6)　Y. Pontillon et al., Nucl. Eng. Des. 249, 1853-1866　(2010).

(7) L. Soffer et al., Report JAERI-M92-012 p35-48 (1992).
(8) Z. Zhang et.al., J. Nucl. Radiochem. Sci. 16, 15 (2016).
(9) S. Sarata et al., Sci. Rep. 6, 23925 (2016).
(10) TEPCO, 事故収束に向けた道筋の完了 (2011).
(11) Z. Wang et al., Anal. Chem. 89, 2221-2226 (2017).

3.2.6 放射性エアロゾルの成長・輸送機構の解明に関する実験研究（再委託先：京都大学）

(1) 概要

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。

(2) 土壌の観察・分析

①目的

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 1F 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。

②実験

環境中に放出された放射性微粒子の性状を調べるため、イメージングプレートを用いて土壌中の微粒子探索を行い、採取されたタイプ B と推測される放射性微粒子に対し、SEM/EDX (Thermo Fisher Scientific 社製 Phenom ProX Desktop SEM) を用いた外観観察と粒子表面の元素分析を行った。

③結果

図 3.2.6-1 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 μm 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デスタル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デスタル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。

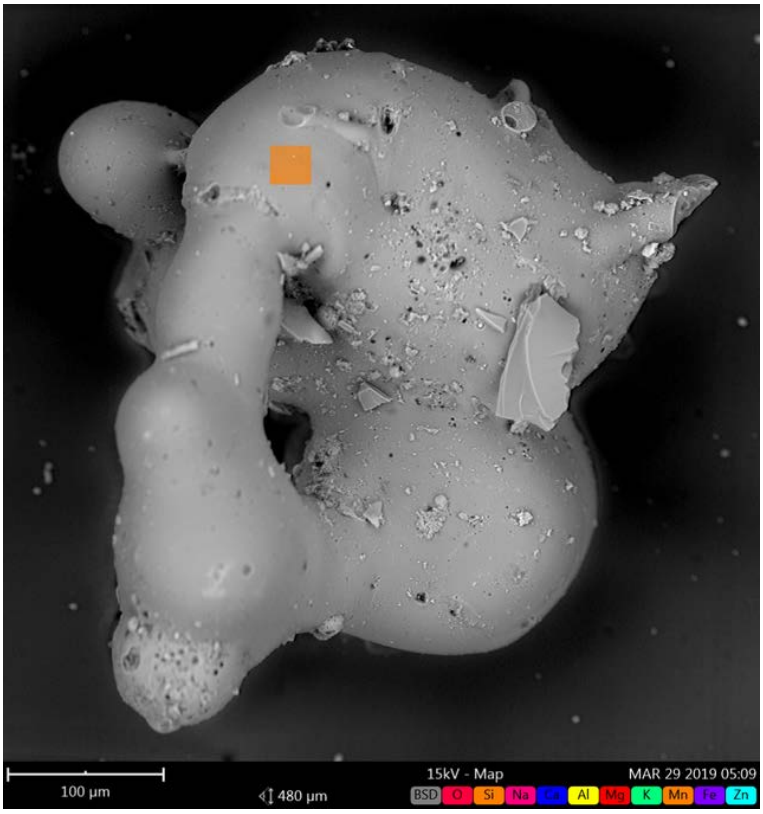


図 3.2.6-1　採取した放射性微粒子の SEM 画像

(3) 人工放射性エアロゾルの発生実験

①目的

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。このうち、燃料デブリから FP が放出され、周囲の空気中に存在すると予想される溶液状エアロゾルと反応し、放射性エアロゾルとして成長する過程を解明するために、これらの状況を模擬するための装置を用いて人工放射性エアロゾルの生成実験を行った。

②実験

燃料デブリから放出される FP を模擬して人工放射性エアロゾルを生成するために、中性子照射したウラン試料を用いたエアロゾル生成装置 [1] を用いて実験を行った。実験装置の概要を図 3.2.6-2 に示す。燃料デブリを模擬するために、ウラン試料に対し中性子照射を行った。ウラン試料には石英管内に減圧封入した約 10 mg の二酸化ウラン粉末を用い、これを中性子照射用のポリエチレン製カプセルに封入し、京都大学研究用原子炉（KUR、Kyoto University Research Reactor）の圧気輸送管照射設備（Pn-2）を用いて、30 分間

の中性子照射を行なった。照射後に試料を一定時間冷却した後、ウラン試料の一部をエアロゾル生成装置の石英管に分取し、管状炉内で 1000 ℃に加熱して FP を放出させた。一方、アトマイザーを用いて0.01 Mの塩化ナトリウム溶液から溶液状エアロゾルを生成し、FPとともにステンレス製のチャンバー内に導入して混合することで、エアロゾル粒子の表面に FP を付着させて溶液状放射性エアロゾルを生成した。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捕集し、Ge半導体検出器を用いてガンマ線スペクトロメトリを行った。

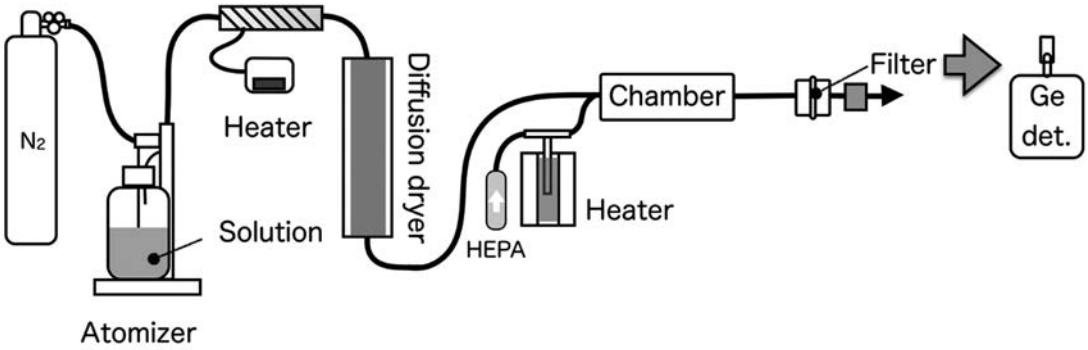


図 3.2.6-2　中性子照射したウラン試料を用いたエアロゾル生成装置の概要

③結果

ガンマ線スペクトロメトリの結果、中性子照射したウラン試料から放出された FP のうち、^{131}I、 ^{132}Te、 ^{140}Ba（^{140}La）等を含んだ放射性エアロゾルが生成し、ポリカーボネート製フィルターまで輸送されて捕集されたことがわかった。この結果から、人工の放射性エアロゾルを用いて、放射性微粒子を形成する模擬実験が可能であることが示唆された。

参考文献

(1) 竹内裕弥　他，第 20 回「環境放射能」研究会 ポスター発表，つくば，（平成 31 年 3 月 12-14 日）.

3.3 研究推進

3.3.1 研究推進に係る会合やイベントの開催

本研究を推進するにあたり、本課題メンバーは下記の会合や打合せ等の機会を設けた。

(0) 契約開始前の期間ではあったが、本課題の契約開始を見越して平成 30 年 10 月 18 日、筑波大学アイソトープ環境動態研究センターにおいて、福島地域でのサンプリングのために来日した英国ブリストル大のメンバーと交歓し、英国訪問や日本訪問の日程調整、研究の進め方等について、率直な意見交換を行った。

(1) 平成 30 年 12 月 21-22 日、京都大学複合原子力科学研究所において、同研究所専門研究会と合同開催として、キックオフ会合を開催した。この場において東京電力 HD の溝上伸也氏による放射性微粒子生成メカニズム解明に関する調査研究概要の講演を実施し、研究推進を図った。

(2) 平成 31 年 1 月 21-25 日には五十嵐康人、北和之、佐藤志彦の 3 名が英国ブリストル大学を訪問し、先方の実施項目・研究リソースの確認、およびサンプルデータ共有化（サンプルアーカイブ構築）に関する意見交換を実施した。

(3) 平成 31 年 3 月 18・19 日、国際シンポジウムを茨城大学水戸キャンパスにて開催した。同シンポジウムにはブリストル大から Peter Martin 博士と David Richards 博士が参加し、英国側での分析可能性、進捗状況の報告を行った。また、日本側参加者とサンプルアーカイブに関する意見交換を行った。

3.3.2 学会・協会等での発表

本課題では平成 30 年度に実施された本課題分担者が主体となって開催した研究会や国際ワークショップを含めると全部で 28 件の発表があった。本課題分担者が主体ではない、学会・協会等での発表は、13 件であり、非常に活発かつ積極的に発表を行った。

3.3.3 サンプルアーカイブ予備調査

日英の共通の研究資産として、放射性微粒子のサンプルアーカイブの構築を模索するため、その予備調査業務を実施した。宇宙航空研究開発機構などですでに運用されているサンプルアーカイブやサンプルアーカイブに使用可能な既成の管理ソフトについて調査し、本事業における放射性微粒子アーカイブシステムに必要なシステム要件等について検討を行った。以下にその報告概要を示す。

放射性微粒子のサンプルアーカイブ予備調査報告概要

A. サンプルアーカイブシステムの構築に利用可能な知見の整理

これまでに収集されたサンプルは複数の大学や研究機関で保管され、どこに何のサンプルがあるのか、どのような分析が行われたのかは、残念なことに、お互いにほぼ不明な状況にある。ラベルの付け方を統一してデータベース化しオンラインで繋げば、必要なサンプルが今どこにあるか、どのような解析が行われてどのような結果が出ているのか等を、どこからでも瞬時にわかるような利便性の高いシステムを構築できると考えられる。また、学生が実験で得たデータや試料

なども、学生の卒業に伴い不明な事項が増え、たとえ論文化されても時間経過とともに失われてしまう。そうした埋没データや試料の管理、査読論文に掲載されたデータの管理も含め、関連データ保管用のファイルサーバとしても活用が望まれる。したがって、複数機関でサンプル情報の検索や閲覧、登録ができ、さらに登録サンプルに関係するデータの保管もできることが望ましい。その他、利用者がコンピュータに詳しくなくても使えることや、研究課題終了後も継続して利用するため、保守費用が少なく同時に保守のための特別な要員も必要としないこと等が希望される。

加えて、近年における情報セキュリティーの厳格化を受けて大学や研究機関においても、特定研究のためのサーバ設置が困難な状況になっている。そのため、当該システムで使用するサーバは、クラウドサーバとするのが妥当であると考えられた。そこで、本研究では以下のような予備調査を実施し、合理的で経費的にも妥当なシステムを模索した。

A-1　既成の管理ソフトに関する調査

サンプル管理に利用可能なソフトとしては、サンプル管理を謳う商用ソフトの他に、図書管理ソフトや、集計ソフト、ソフトウェア管理ソフト等が考えられるが、既成のソフトで本研究での要望がすべて満たされることは稀であり、少なからず製品をカスタマイズする必要がある。その際、プログラムコードに変更を加えるような作業は、費用面での大きな負担となるばかりか追加開発のための時間も必要となるため、その製品が有する機能の範囲内で対応できることが望ましい。また、今回検討する放射性微粒子アーカイブシステム（以降、当該システムとする）は、複数の大学や研究機関で利用することから、そのソフトがインターネット等の外部からのアクセスに問題なく対応できることも条件となる。既成の商用管理ソフトは汎用性を重視しているが、本目的に適合することはなかなか期待できないため、最低限必要とする機能があらかじめそのソフトに備わっているかどうかを基準に、販売された状態でどの程度以下の必要条件を実現でき、運用等によって不足を賄うことができるかを検討した。今回、①Sample Conductor Pro （ワケンビーテック株式会社）、 ②Mosaic （Titian 社）、③Freezer-Manager System（日本ブレイディ株式会社）、④ライブマックス®（株式会社ソフテック）の 4 つの管理ソフトについて検討した。

サンプルアーカイブに必要とされる要件

a. 複数研究機関からのアクセスが可能である
b. 複数研究機関が有するデータを一元管理できる
c. 機関内でのサーバ設置が困難なためクラウドシステムとする
d. 利用者にコンピュータの専門知識を要求しない
e. プロジェクト終了後も使うため、保守費が少ないこと
f. 登録したデータにアクセス権（ユーザ、グループ）を設定できる
g. 下記項目について、登録、検索、閲覧ができる
    - サンプル ID
    - サンプル名
    - 採集者
    - 採集日時

・採集場所
・重量
・体積
・保管場所（機関、部屋、保管庫）
・貸出し情報
・処理段階
・分析者
・同位体比
・画像と説明
・スペクトルデータと説明
・その他分析データと説明
・備考欄（テキスト文字）
・関連データ（データの保管のみ、複数登録可能）

h. 1サンプルあたりの情報量は画像を含めて数ギガバイト存在する
i. 様々なフォーマットを扱う（docx、xlsx、jpg、raw、dat、bin他）

①～③は本来的にサンプル管理を目的としたソフトであり、④は図書管理用のソフトであった。いずれも、サンプル管理そのものは、運用の工夫やカスタマイズで、利用は可能と考えられた。しかしながら、②は費用が極めて高額な上、ソースコードを変更するようなカスタマイズが必要であること、③と④はサンプル情報の一元管理ができないこと等から、いずれも候補の対象外とした。一方、①については、カスタマイズの必要がなく、標準仕様における拡張フィールドの設定のみで、本研究での目的に沿うようなシステムの構築が可能であるとともに、費用的にも納得のいく額であると考えられた。

したがって、当該システムにおいて、既成のソフトを利用した構築を考える場合には、Sample Conductor Pro （ワケンビーテック株式会社）[(1) (2) (3)]のみを、候補に挙げることが可能と考えられた。

B. 運用中のサンプルアーカイブシステムに関する調査

当該システムを構築する際の参考とするため、現在国内で運用中のサンプルアーカイブシステムについて実態調査と文献調査[(4) (5) (6)]を行い、有用と思える知見について収集した。

B-1 JAXA キュレーションセンター

B-1-1 キュレーションセンターの概要

1）設立の目的

地球外試料キュレーションセンターは、サンプルリターン探査計画によって惑星表面で採取し、地球に持ち帰ってきた宇宙帰還試料を受け入れるための設備として設立された。現在は探査機「はやぶさ」が持ち帰った小惑星イトカワの試料を中心に受け入れている。受け入れた試料を最先端科学研究に供すべく非汚染のまま処理し、一次的特徴を記載してカタログ化し、さ

らに世界トップレベルの研究者や研究機関に分配している。対象天体についての科学研究成果を最大限に創出するとともに、太陽系科学の研究推進拠点として国際公募研究や国際シンポジウム開催を通して研究を促進している。

2) キュレーションセンターの経緯

地球外試料キュレーションセンターは、探査機「はやぶさ」（平成 15 年に打ち上げられ、平成 17 年に小惑星にタッチダウンを行った）による帰還試料の受け入れと非汚染大気環境下での試料処理を行うための惑星物質試料受け入れ設備として、JAXA 相模原キャンパス内に設立された。平成 22 年 6 月地球に帰還した「はやぶさ」のカプセル中の試料コンテナ内キャッチャ部から微小な試料の取り出しに成功した。試料は宇宙物質であることが確認され、普通コンドライト隕石と一致する特徴を示すことがわかった。平成 23 年以降、試料は初期分析や国際公募研究に供され、小惑星表層での物質進化過程や宇宙風化現象、母天体（微惑星）に関する理解に大きく貢献している。「はやぶさ」の国際協力協定（MOU）に従って、約 10%の試料が NASA/JSC に順次配布され、平成 25 年以降研究成果報告会として、「はやぶさ」国際シンポジウムが開催されている。現在、平成 26 年末に打上げた「はやぶさ 2」、さらに国際協力で米国の「OSIRIS-REx」による帰還試料の受け入れ準備が始まっている。

3) クリーンルーム等の施設

キュレーションセンターでの試料取扱作業は主にクリーンルームで行なわれる。クリーンルームのうち、クリーンチェンバーの設置される試料処理室、試料の一次分析・記載や分析用の加工処理を行う電子顕微鏡室、試料準備室は清浄度クラス 1000 に保持されている。治工具の洗浄や加工等を行う加工洗浄室は清浄度クラス 10000 に保持されている。クリーンルーム内は常に適切な温湿度となるよう管理されている。

B-1-2　キュレーションセンターのサンプルデータ管理システム

システムは大きく、作業管理システムとサンプルデータベースシステムから構成されており、そのすべてが第三者を介さず、キュレーションの作業員によって開発された。サンプル数は、現時点で約 700 程度ということである。

1) 作業管理システム

クリーンルームの各部屋にはデータ保存用のネットワーク PC（Microsoft® Windows®）が設置されている。作業者は作業終了時ネットワークストレージのルートディレクトリに作業日時/作業内容/の階層でフォルダを作成し、その中に作業に応じたデータを保存する。この ″作業内容″ にあたるフォルダの名前には、特に「はやぶさ」帰還試料に関する作業については、簡単なルール付けがされており、作業者はそのルールに則った名前でフォルダを作成する。データ保存後、作業者はクリーンルーム外のデータ管理用 PC で、WEB ブラウザを介して保存したデータにアクセスする。クリーンルーム内は常に全身を覆うクリーンスーツを着用しており、さらにクリーンルームの外気をコントロールするフィルターファンユニットによる轟音が響いているため、作業者には恒常的に極めて高い負荷がかかっている。このため、滞在時間は必要最小限とし、時間がかかるデータ入力作業はクリーンルーム外で行う方針になっている。この時間差によって発生する入力ミスなどは、後述の管理者によるチェックで対処している。サー

バープログラムはネットワークストレージの階層構造を参照し、″作業内容″ のフォルダ名を解析して作業内容をグループ分けし、表示する。

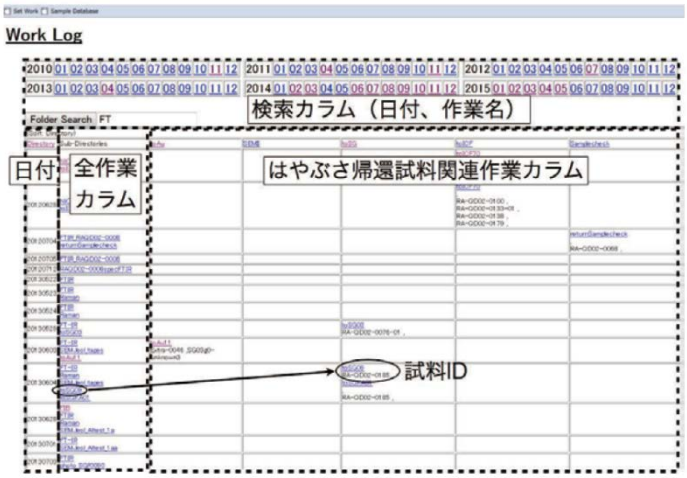


図 3.3.3-1　JAXA システムの作業管理システム概要画面
（出典：（5））

各 ″作業内容″ フォルダの項目にはリンクが張られており、作業内容の詳細ページを表示することができる。作業内容詳細ページでは、作業者は作業情報を登録、閲覧することができる（図 3.3.3-1）。

作業情報の一部として試料 ID を登録すると、図 3.3.3-1 の作業一覧の各カラムにその試料 ID が表示され、各試料に対する作業日時と作業内容が一覧で確認できる。作業情報閲覧画面では、保存された分析データを閲覧しやすい形にフォーマットし直すプラグインシステムが採用されている。これにより、本来ブラウザでの閲覧には適さない Microsoft® Word® フォーマットなどで保存される装置のレポートなどを、必要な情報だけ適切な形で表示することが可能になる。

2) サンプルデータベース

サンプルデータベースシステムは、作業管理システムのデータを検索し、新しい試料 ID を見つけると、この試料のレコードを自動で作成し、その作業記録データの階層情報をフィールドに追加する。この新しい試料 ID の付与は粒子が電子顕微鏡による記載を終え、保管先のスライドガラス上に移動した時点で行われ、それまでは粒子は仮 ID で管理される。この仮 ID はサンプルデータベースには反映されない。従って、粒子のスライドガラス移動後、電子顕微鏡による記載前の拾い出しの時点まで遡って、仮 ID を正式な試料 ID へ置き換える作業が発生する。管理者はこの ID の置き換え作業時に、日々の登録・記載情報に誤りが無いか、粒子の入れ違い等のチェックを実施する。実際にはこの時点でかなりの登録ミス・記載の混乱が発見され、訂正されている。このため、この仮 ID と正式な粒子 ID の置き換え作業は自動化も可能だが、現在は月 1 回手作業で、この新規レコードの追加を行っている。サンプルデータベースには、この作業情報の他に、現在の保存場所、試料状態、移動履歴、サイズ、カテゴリ、鉱物組成、分析履歴、コメントなどのフィールドが存在する。データベースの検索で試料レコードを抽出した後は、作業管理システムで保存された分析データや、サンプルデータベースシステムから入力された試料情報などを閲覧できる。

3) システム全般

【サンプルの ID 管理について】　各サンプルには ID が付けられており、まだ処理中で電子顕微鏡による記載が終っていないものには仮 ID が付けられ、スライドグラスまで移動できたものに本 ID が割り当てられる。本 ID には簡単な命名基準があり、先頭に 2 桁の英字があり、中央には 4 桁の英数字、最後に 4 桁の数字（連番）がハイフンで隔てて付けられており、これによってそのサンプルが、「はやぶさ」コンテナのどの区画から、何の上に落とされたか（石英板等）がわかる仕組みである。また、試料を分割した場合には、ハイフンでつながれた 2 桁の数字が追加されて新 ID が作成されるが、システム上で親試料の ID を検索することで、子の系統や全体の履歴を一覧することが可能となっている。

【開発費と保守費】　当該システムは、すべて作業員によって開発されたため、開発費は 0 円もしくは作業員の固定費のみである。開発期間は実質、2～3 か月程度であった。保守は、派遣社員が行っているが、他の作業の合間にする程度である。派遣社員の当該業務に要する年間費用は 200 万円～300 万円程度と思われる。

【サンプルデータベース】　仮 ID はサンプルデータベースに反映されず、本 ID が発行された際にサンプルデータベースに登録される。本 ID は、月 1 回のペースで管理者によって、それまでの記載情報に誤りがないかのチェックや訂正が行われた後、正式に発行される。サンプルデータベースには、作業情報のほかに複数のフィールドが存在し、1 試料当たりのデータ量は 5MB 程度である。管理者による本 ID 発行作業には約 1 日を要する。データベースのバックアップは、以前は上記の作業に合わせて月 1 回のタイミングで行われていたが、現在はテラステーションを 1 台増設して、うち 1 台をバックアップ機として、毎日、両者内容の整合がとられている。

【JAXA システムの特徴】　従前運用されていたデータベースを基に、作業員自身によって当該システムが開発されたため、開発費用はほとんどかかっていない。しかも、作業内容を熟知する人達によって開発されたため、システムの出来栄えに影響する要件定義や詳細仕様を、短期間かつ的確に行えたため、開発開始から極めて短い期間で運用に至っている。一方、上記の場合ありがちなことだが、システム開発に際し作成されるはずの詳細仕様書やシステム構成図等のドキュメント類が整備されておらず、運用マニュアルのみが存在する。

B-2　適用可能な技術や知見

訪問してヒアリング調査した JAXA のシステムは、キュレーションセンターの作業員が自ら開発したシステムであることから、その機関で扱うサンプルの特徴やキュレーション業務に極めてよく適合しているという印象を受けた。システムに過不足は感じられず、作業管理システムからのデータ入力、サンプルデータベースシステムへのデータの取込み、WEB サーバに引き渡すためのデータ出力といった一連のデータの流れが、人為的な手法によるチェックも上手に取り入れながら、構築されていた。

キュレーションセンターの作業員は、実際の作業を誰よりもよく理解しており、どのタイミン

グでどのようなデータが発生し、いつまでにどういった加工を施して、データベースに反映させるかなどを熟知している。そのため、要件定義や詳細仕様も自分たちで設定したと考えられ、通常、外部のシステム開発業者に委託する際には時間のかかる部分を大幅に短縮できただけでなく、自分たちの必要とする機能を漏れなく適切に盛り込むのに役立っている。さらに、システム構築のできる人材がいたことも、成功に結びついた大きな要因であろう。JAXA のシステムと当該システムは、サンプルの特徴が似ていること、総数がそれほど多くないこと、扱う情報の項目やフォーマットが類似していることなどから、参考になる部分が多かった。特に、サンプル情報の表示画面を設計する際には有用であった。また、収集された情報のうち特定のデータについては、後に WEB で公開することも両者で共通の仕様であり、サンプルのアーカイブシステムから、当該データを出力するための機能が要件定義に盛り込まれていることが必要であることを確認できた。

なお、感心した点として、サンプルのアーカイブシステムと WEB システムが別なことが挙げられる。これは研究で利用するサンプルデータを、そのまま不特定多数のユーザに向けて公開するのではなく（セキュリティー上、危険なため）、データベースを研究用と公開用とで完全に分離させ、WEB サーバには必要最小限のデータを保持させるという仕様である。これによって、万が一、第三者からの攻撃を受けてデータが漏洩もしくは破壊されても、研究業務や論文作成への影響を最小限にとどめることが可能となる。

JAXA のサンプルデータ管理システムでは、後に、WEB 公開データの自動生成モジュールが組み込まれたが、当該システムにおいても、将来、WEB を通じて一般公開することが予想されるため、JAXA のシステムと同様に、必要な情報を自動的に抽出、加工し WEB サーバに登録できる形で出力できるような仕組みが望まれる。一方、JAXA のシステムが本検討システムと異なった点は、前者が作業管理を重点にして構築されていたのに対して、後者は研究者間でのサンプル情報の共有が狙いであったところである。また、ファイル容量の面でも両者には大きな違いがある。JAXA のシステムは、1 サンプル当たりのデータ容量を 5MB 程度に制限しているのに対し、当該システムでは、1 サンプル当たり 1GB～数 GB の容量が必要とされるため、JAXA のシステムに比べて実に 200 倍～1000 倍の容量となる。データ管理システムでありながら、ファイルサーバに近い機能も要求されるためである。

C. 放射性微粒子アーカイブシステムに関する検討

新システムの検討においては、定義した内容を現実のシステムとして構築するための方法として、既製品を利用する場合と独自開発を行う場合との 2 つに分けて検討した。

C-1　システムのデータシートイメージ

サンプルデータ表示画面のイメージを図 3.3.3-2 に示す。この画面で、当該システムで必要となるほぼ全ての項目を確認することができる。

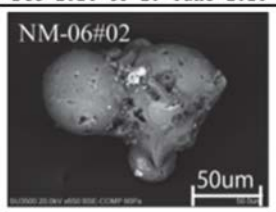
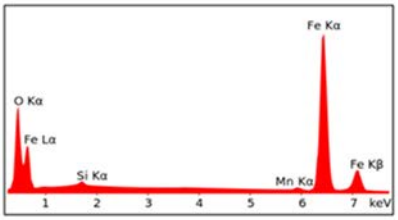
Items	Details	Access permission
Sample id	FK-TKY-0231	On the web
Sample name	Radioactive particulate 477	On the web
Date	19-Aug-2018	On the web
Sampling location	Namiemachi, Fukushima	On the web
Collector	YAMADA Taro, Tokyo Univ.	On the web
Size	14 um	On the web
Weight	5 ng	On the web
Shape	Sphere	On the web
Home storage	Building S8, 202, Tokyo Univ.	On the web
Status	On loan to Osaka Univ.	On the web
Lending period	From 20-Dec-2018 to 20-June-2019	On the web
SEM images		On the web
EDX spectrum		Collaborators
Isotope ratio	<90%	Collaborators
Operator	YAMADA Taro, Tokyo Univ.	Collaborators
Process	EDS	Collaborators
Related data	spectrum_A.bin 300.5MB spectrum_B.raw 256.4MB appearance.jpg 3.6MB X-ray.jpg 5.3MB Annual_report.doc 15.2MB	Private
Comments		Private

図 3.3.3-2　サンプルデータ表示画面のイメージ

C-2　新システムの概要検討

C-2-1　既製品を利用する場合

今回の調査において、4 種類の既製の管理ソフトを検討した結果、ワケンビーテック株式会社の Sample Conductor Pro のみが、当該システムに適用可能であることがわかった。そのため、当該ソフトを用いて構築する場合の、費用や運用開始までの期間、メリット、デメリットについて以下に記す。

1）費用

レンタルサーバにデータベースを置き、各機関（6 箇所）からアクセスすることを想定した場合の費用を示す。レンタルサーバの仕様は表 3.3.3-1 の通り。

システム構築費用（バーコード関連機器を含む、業者旅費は別）	3,652,000 円
レンタルサーバ費用　82,650 円 ＊ 12 ヶ月	991,800 円
合計費用（税抜き）	4,643,800 円

表 3.3.3-1　レンタルサーバの費用（S 社の場合）

項　目	仕　様	月額
レンタルサーバ	4コア　12GB	10,800
レンタルディスク	1TB	20,000
WINDOWS　Server OS	WINDOWS　Server　for リモートデスクトップ	1,850
リモートデスクトップ SAL	￥540×18人（6機関×3人）	9,000
SQL Server Standard Edition	1-4コア	41,000
合　計		82,650

2）運用開始までの期間

初めに、開発業者を含めて研究機関どうしでの種々の取り決め（id 命名基準や表記基準、1サンプル当たりのデータ容量、貸出し規定など）が必要であり、それをもとに必要な項目設定やレイアウトの設計、クラウド業者とのサービス条件などの詳細を詰めていく必要がある。その後、システムの設置を行う。これらに要する期間は、トータルで 1～2 ヶ月程度である。

3）メリット

Sample Conductor Pro を利用する場合のメリットは以下の通りである

・すでに製品化されているため、運用開始までの期間が短い
・費用を大きく抑えることができる
・すでに、基本的なバグが取り除かれている
・多くのユーザによって、使いやすさが洗練されている

4）デメリット

・レイアウトは、ソフトの設定範囲内での変更となる
・登録できる項目数に制限がある
・人がソフトに合わせるといった、運用上の対応が必要な場合がある
・現状では、まだ英語に対応していない

C-2-2　独自開発を行う場合

今回整理した要件定義とサンプルデータ表示画面のイメージをベースに、開発業者と共同で概要設計、詳細設計、プログラム開発、テスト、本番リリースといった工程で進めることを想定する。既製品を利用する場合に比べ、多くの時間と費用を必要とするが、一方で自らの思い通りの仕様にすることが可能であり、ユーザに対し気配りの利いたシステムの構築ができる。

1）費用

レンタルサーバにデータベースとアプリケーションサーバを置き、各機関（6 箇所）からアクセスすることを想定した場合の費用を示す。なお、システム構築費用は請負業者によって大きく異なり、上下 30%程度の幅が考えられる。そのため、複数業者から見積もりを入手する必要があるが、レンタルサーバの仕様は A 案と同じとした。

システム構築費用平均　（業者旅費は別）	8,100,000 円
バーコード関連機器（A 案と同等　6 機関分）	2,292,000 円
レンタルサーバ費用　82,650 円 ＊ 12 ヶ月	991,800 円
合計費用（税抜き）	11,383,800 円

2）運用開始までの期間

業者を含めた、研究機関どうしでの種々の取り決めは、独自開発の場合にも必要であり、その後、概要設計、詳細設計、プログラム開発、テスト、本番リリースといった工程で進む。そのため、委託する業者や最終的に決まった仕様にもよるが、8 ヶ月から 1 ヶ年程度の期間が必要となろう。

結論

既存のデータやサンプルのアーカイブシステムに関し詳細な予備調査を実施した。実際に構築可能かつ経費的に高額となる選択肢を除外したにも関わらず、残念なことに、複数の機関からインターネット等を通じてアクセス可能なサンプル・データアーカイブの構築は、いずれにおいても 5,000 千円ないしはそれ以上の経費を要することが明らかとなった。サンプルアーカイブ・データアーカイブに必要となる機能や実際的な選択肢についての検討を充分に行ったが、今次の英知事業の予算枠内においては、ネット検索可能なシステムを構築することは実質的に困難なことが示された。次年度以降は、データやサンプルの共有や供与が実態として可能となるようにデータ収集に努め、今次の英知事業終了後、あるいは別途競争的資金などを確保し、今回の予備調査を踏まえた形態のアーカイブ構築を可能とし、そうした活用に資することが最善と判断することとなった。

参考資料

(1)　検体管理関連総合カタログ VOL 3.1、2018.7.1
(2)　ブレディバイオ・研究用ラベリングシステムカタログ　2019 FEB
(3)　ワケンビーテック株式会社 HP　https://www.wakenbtech.co.jp/
(4)　JAXA キュレーションセンター HP
https://curation.isas.jaxa.jp/curation/escuc/index-j.html
(5)　上椙真之　他，宇宙科学情報解析論文誌　第五号　(2015)
(6)　矢田達　他，日本惑星科学会誌 Vol. 22, No. 2　(2013)

3.3.4 英国側の研究進捗

英国側の研究進捗についても、本研究報告書にて概論することを求められており、以下に英国側から提示された本年度の報告概要について、その和訳を掲載することとした。なお、以下の報告概要には JAEA・CLADS がブリストル大学と一対一国際協力研究で行なっている内容も含むことに注意されたい。

ウラン含有燃料デブリ粒子の環境挙動とその管理
更新レポート-平成 31 年 4 月

P.G.・Martin and T.B.Scott

本報告は、平成 23 年の福島第一原子力発電所 (FDNPP) 事故で環境中に放出されたサブ μm の放射性微粒子の存在・分布・組成・環境挙動のさらなる理解を追求する日英合同の研究プロジェクトの進捗状況を詳しく説明するため、提供される。この研究で期待される成果は次のとおり。

1. FDNPP サイト近傍のサンプリング領域から収集された環境中の放射性降下物粒子の確実なキャラクタリゼーション。
2. U 含有粒子の物理化学的特性評価のための確実なサンプリング、および分析手法の開発。これらは最適な廃棄物管理と除染の戦略の選択を支える。これまでの研究は、サブ mm の事故放出物内部に含有されるα放射体の存在には、ほとんど着目してこなかった。従って本研究は、α放射体の分布や濃度レベルなどを初めて与える。
3. 核分裂生成物の分配、二次相および浸出挙動の評価を含む環境中での燃料デブリ粒子の分解の程度の理解-これらは全て、廃炉にとって適切な選択肢を考慮する際の重要事項である。
4. 先端的な同位体および元素イメージングの方法論の開発、ならびにそれらによる福島第一原発の各原子炉ユニットの特定を可能とする燃料デブリの「指紋」分析。
5. 粒子タイプ別「指紋」ライブラリーの開発と、それに由来する材料の異なる原子炉ユニット弁別のための特性の記録。このデータベース（現在すでに数百個の微粒子が単離されており、これに加えて、このプロジェクト中に分離される放射性微粒子からなる）の製作は、下記の事項のより完全な理解に貢献する。（i）事故炉内部に依然として含まれる燃料デブリの状態 および、（ii） 複数の原子炉の冷却材喪失事故において発生した事象。前者は将来の廃止措置の現場ですぐにでも開始される取るべき措置を直接与える。
6. 各原子炉ユニットの爆発に起因する放射性降下物の環境分布をマップ化出来る統計モデリング手法の開発。

提案書に記載された業務とその議論、現在までの進捗状況を以下に示す。

業務 1.1.共同野外サンプリング

二回の野外サンプリングを平成 31 年 5 月、9 月に実施を想定している。この研究用試料のサンプリングに加えて、UAV (Unmanned Aerial Vehicle；いわゆるドローン) を利用した放射線のマップ調査を行う予定である。プロジェクトの開始にあたり、平成 31 年 3 月中旬に茨城大学で会合がもたれ、日英の当事者が出席し、各課題分担者の範囲と関与が正式に了解されている。

業務 1.2.試料ダウンサイジング

野外サンプリングで収集した試料は、富岡のCLADS 施設へ処理のために輸送する。CLADS は新規な施設で、特別なサンプル処理を可能とする設備-オートラジオグラフィー、半導体検出器によるガンマ線分光、電子顕微鏡を有し、さらに最先端の二次イオン質量分析 (SIMS) が近々に整備予定である。この業務は、野外サンプリング調査による新しい試料の収集が行われていないため、開始されていない。しかし、原子力機構の佐藤博士は、以前に事故サイトに隣接した地域で収集したバルク試料から、サブミリメートルの大きさの粒子を多数単離してきている。これらの粒子のうちのいくつかはすでにブリストル大学に移送され、その化学組成、さらに重要なことに、それぞれの粒子の構造解析が開始されている。

業務 2.1.単一粒子の同位体分析の高度化

上記に加え、この 9 か月の作業要素の内容を挙げると、現在の英国側の単一粒子の鑑識分析の機能強化がある。進展があった/応用可能性が検討された単一粒子分析技術が二つあり、 (i) 3 次元原子プローブトモグラフィー (3D APT) 、(ii) レーザーアブレーション-誘導結合プラズマ質量分析 (LA ICP-MS) である。これらの応用はまだ完全には着手されてはいないが、この業務に関し、Thomas Martin 博士と David Richards 博士が、(i) 貴重な粒子試料の不必要な破壊を避ける、(ii) 予備的な作業であり、かつ潜在的には失敗の可能性もある作業のため、放射性物質を扱わずにすむよう、非放射性のプロキシ材料を用いた実験方法を模索している。

業務 2.2.事故からの時間の関数としての二次相の分析 (Bristol 大、Sheffield 大)

Scott 教授と Corkhill 博士ら、Diamond Light Source のビームライン科学者との最近の研究協力を基に、Sheffield 大では、I11 の長時間照射用ビームラインおよび I13 コヒーレンス回折/トモグラフィービームラインにおいてマシンタイムを割り振っており、U-燃料デブリ粒子を環境試料より抽出して XRD を用いてその表面化学を調べ、二次相の存在と進化につき評価を行う。この業務は、他の業務同様にまだ着手されていないが、Diamond Light Source のマシンタイムが準備されている。Sheffield 大のチームではキックオフ会合が計画され、該当する領域の文献レビューに着手している。

業務 2.3.粒子組成と形態の解析 (茨城大学、原子力機構および Bristol 大)

五十嵐特任研究員と佐藤博士のパートナーシップに基づき、茨城大学と CLADS では、高精度の走査型電子顕微鏡 (SEM) が利用可能で、粒子の大きさ、形態および組成を記述し、U を含有する環境中の放射性微粒子の広範なベースラインを提供する予定である。茨城大学は他の業務で英国の活動を補完し、多数の粒子によるデータセットを確立するため、実質的に高いスループットで粒子分析を行う。本課題開始前に抽出された粒子は、すでに日本チームによって分析を受けており、様々な日本の機関により広範なサンプルデータがすでに収集・保持されている。これら試料のサブセットは、その後の 3 次元画像分析のために Bristol 大学に送られており、追加の粒子が日本側から今後数ヶ月にわたって英国に発送される予定である。

業務 2.4.使用済燃料デブリ粒子腐食挙動 (Sheffield 大学)

ろ過した天水を用いてバッチ実験を行い、 抽出した燃料マイクロ粒子試料の腐食挙動について検討する。この業務は、すでに進行中の他の業務の進捗に依存するため、まだ開始されていない。この業務の一部として実施される実験の内容は文書化されており、正式な文献レビュー期間に従前の研究課題に倣い内容を補強する。

業務 3. 放射性微粒子の指紋とロケーションライブラリの生成

すでに概説したように、1-3 号炉からのフォールアウトの空間的範囲はそれぞれ異なり、2 号炉からの放出が北西方向に広範な汚染地帯を形成する一方、1 号炉と 3 号炉から（それぞれの同位体比と原子比率が異なるため各号炉からの寄与と推定可能） の汚染は空間的な範囲が限られ、事故サイトに近接した地域分布になっている。そこで本業務では、粒子ライブラリーの構築にむけ、既存のパーティクル分析データと同様に新たな分析データを追加・編集することを目的としている。粒子「リスト」 （ユーザーアクセスが可能な、機能する「データベース」とすべく進化予定）を収集し、平成 31 年の終わりまでにデータ入力に利用できることを目指す。このような重要な研究ツールの裏書/支援を得るために、IAEA に働きかけを行う。本課題の外側に居る研究者からも保有するデータの入力可能とすべく、IAEA からは、支援/奨励を近い将来に得ることとしたい。

このデータベースの構築により、各原子炉内部に残留するデブリの状態や、複数の原子炉の冷却材損失事故の間に発生した事象のより完全な理解に貢献する。これらの理解の組み合わせにより、まもなく開始される廃炉オプションが自ずから明らかとなろう。

業務 4. 地理統計モデルによる粒子型分布図の作成

この業務は、10 km の範囲に限定された近距離フィールドの大気汚染のリスクの地理統計モデルを提供し、リスクアセスメントを実施し、レジリアンス構築を促進するために、管理者と一般市民に詳細なツールを提供する。この業務はまだ開始されていないが、サブタスクの作業計画が策定され、この複合的なプロジェクト内で進行する他の業務からの入力を待機している。

進行中の論文出版：

1. 福島第一原発周辺地域から分離したマイクロスケール粒子断片の解析 （Atmospheric Environment 誌 査読中）。
2. FDNPP 1 号機由来の粒子内に含まれるウランの状態、組成及び分布の評価 （Nature Communication 誌 査読中）。
3. 高分解能シンクロトロン放射光技術を用いて明らかにされた福島事故由来の放射性粒子内部の分析 （ACS オメガ誌 査読中）。

4. 結言

本研究では、1F 事故にて放出された不溶性の放射性微粒子を研究対象として設定している。廃炉手順の確立（溶融燃料等の回収、炉内除染、作業員の安全確保等）に関して、これら放射性粒子の基礎的な物性（粒径、組成、電気的性質、光学的性質など）につき詳細な知見を得るとともに、日英のシナジー研究によりα放射体の量的評価を含む放射性微粒子の諸特性をさらに解明して、「廃炉」計画のリスク低減に向けた作業全般に寄与する研究・開発を行う。また、これらの放射性微粒子は、重要な炉内事故事象解明のための情報源ともなっていることから、炉内事故事象進展を対象とした研究者とも意見交換を進め、微粒子からの事故進展解析への寄与を展望している。本研究は大きくは、（1）効果的な放射性微粒子の分離方法の開発と（2）放射性微粒子の性状把握によって構成されている。

本年度は、研究代表者の下で各研究項目間ならびに CLADS 等との連携を密にして研究を進め、（1）については、下記の進捗をみた。サイトおよび周辺の環境監視に効果的な手段の 1 つである大気捕集フィルターから、オートラジオグラフィーと顕微鏡観測により、放射性微粒子を分離する手法の基礎条件の検討を行った（茨城大学）。系統的にサイト周辺で採取した土壌を用い、放射能強度とオートラジオグラフィーの感度特性を評価することで、短時間で対象とする放射性微粒子であることを判断するためのプロトコル原案を構築した（再委託先：大阪大学）。放射性微粒子が水に対し溶けない特徴を利用し、非放射性の粒子とともに水中に分散させ、放射性微粒子のみを単離するため、ガンマカウンターとオートラジオグラフィーを併用した分離法について検討を行った（再委託先：筑波大学）。

このほか（2）については、放射性粒子の規格化のため、分析で得られた放射性粒子の性状に基づきそれらの分類評価を開始し、サンプルアーカイブの基礎となる情報を収集した（連携先：原子力機構）。電気的特性の解明のため、Kelvin Probe Force Microscopy（KPFM）法による放射性粒子の自家帯電状況の測定最適条件を検討した（再委託先：慶應大学）。粒子の物理・化学特性把握のため、粒子の蛍光特性の把握を調べた。並行して、各粒子について、大型放射光施設 SPring-8 において、複合的な X 線分析を実施した（再委託先：東京理科大学）。荷電粒子励起エックス線放出分析法（PIXE）と誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）で極微量元素の情報を取得した（再委託先：筑波大学）。^{90}Sr および Pu 同位体を分析するとともに、分析手法の検討を行った（再委託先：大阪大学）。さらに、放射性エアロゾルの成長・輸送機構を解明するため人工放射性エアロゾルの発生実験を実施した（再委託先：京都大学）。

加えて、研究推進のため、複数回にわたり日英メンバーの相互訪問による意見・情報の交換を行い、炉内事故事象の進展に関し専門家の講演も聴講して放射性微粒子の生成メカニズムや生成量に関する情報収集につとめた。このように、（1）効果的な放射性微粒子の分離方法の開発と（2）放射性微粒子の性状把握に努め、本年度はおおむね予想通りの進捗が得られた。また、日英の共通の研究データや試料の共有化を図るため、近隣分野におけるサンプルアーカイブの実態を把握し、どのような仕組みが可能なのか、予備調査業務を実施した。

以上、3 カ年計画の 1 年目である本年度の業務項目を実施し、所期の目標を達成した。2 年度目においては、上記（1）および（2）の事項に関し研究の進捗を図るとともに、特に先端分析で日英のシナジーを生み出すことを狙い、微粒子分析データの収集を行い、リスト化を達成予定である。

This is a blank page.

国際単位系（SI）

表１．SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表２．基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m^2
体積	立方メートル	m^3
速さ，速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s^2
波数	毎メートル	m^{-1}
密度，質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m^3
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m^2
比体積	立方メートル毎キログラム	m^3/kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m^2
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度[a]，濃度	モル毎立方メートル	mol/m^3
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m^3
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m^2
屈折率[b]	（数字の）　1	1
比透磁率[b]	（数字の）　1	1

(a) 量濃度（amount concentration）は臨床化学の分野では物質濃度（substance concentration）ともよばれる。
(b) これらは無次元量あるいは次元１をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の１は通常は表記しない。

表３．固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン[b]	rad	1 [b]	m/m
立体角	ステラジアン[b]	sr[c]	1 [b]	m^2/m^2
周波数	ヘルツ[d]	Hz		s^{-1}
力	ニュートン	N		$m\ kg\ s^{-2}$
圧力，応力	パスカル	Pa	N/m^2	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
エネルギー，仕事，熱量	ジュール	J	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
仕事率，工率，放射束	ワット	W	J/s	$m^2\ kg\ s^{-3}$
電荷，電気量	クーロン	C		s A
電位差（電圧），起電力	ボルト	V	W/A	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
静電容量	ファラド	F	C/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	$m^2\ kg\ s^{-3}\ A^{-2}$
コンダクタンス	ジーメンス	S	A/V	$m^{-2}\ kg^{-1}\ s^3\ A^2$
磁束	ウエーバ	Wb	Vs	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
磁束密度	テスラ	T	Wb/m^2	$kg\ s^{-2}\ A^{-1}$
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	$m^2\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
セルシウス温度	セルシウス度[e]	℃		K
光束	ルーメン	lm	cd sr[c]	cd
照度	ルクス	lx	lm/m^2	$m^{-2}\ cd$
放射性核種の放射能[f]	ベクレル[d]	Bq		s^{-1}
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト[g]	Sv	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
酸素活性	カタール	kat		$s^{-1}\ mol$

(a)SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。
(b)ラジアンとステラジアンは数字の１に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の１は明示されない。
(c)測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。
(d)ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。
(e)セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の大きさは同一である。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。
(f)放射性核種の放射能（activity referred to a radionuclide）は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。
(g)単位シーベルト（PV,2002,70,205）についてはCIPM勧告2（CI-2002）を参照。

表４．単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI 基本単位による表し方
粘度	パスカル秒	Pa s	$m^{-1}\ kg\ s^{-1}$
力のモーメント	ニュートンメートル	N m	$m^2\ kg\ s^{-2}$
表面張力	ニュートン毎メートル	N/m	$kg\ s^{-2}$
角速度	ラジアン毎秒	rad/s	$m\ m^{-1}\ s^{-1}=s^{-1}$
角加速度	ラジアン毎秒毎秒	rad/s^2	$m\ m^{-1}\ s^{-2}=s^{-2}$
熱流密度，放射照度	ワット毎平方メートル	W/m^2	$kg\ s^{-3}$
熱容量，エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}$
比熱容量，比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	$m^2\ s^{-2}\ K^{-1}$
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	$m^2\ s^{-2}$
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	$m\ kg\ s^{-3}\ K^{-1}$
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m^3	$m^{-1}\ kg\ s^{-2}$
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	$m\ kg\ s^{-3}\ A^{-1}$
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m^3	$m^{-3}\ s\ A$
表面電荷	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ s\ A$
電束密度，電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m^2	$m^{-2}\ s\ A$
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	$m^{-3}\ kg^{-1}\ s^4\ A^2$
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	$m\ kg\ s^{-2}\ A^{-2}$
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	$m^2\ kg\ s^{-2}\ mol^{-1}$
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	$m^2\ kg\ s^{-2}\ K^{-1}\ mol^{-1}$
照射線量（X 線及びγ線）	クーロン毎キログラム	C/kg	$kg^{-1}\ s\ A$
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	$m^2\ s^{-3}$
放射強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	$m^4\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=m^2\ kg\ s^{-3}$
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	$W/(m^2\ sr)$	$m^2\ m^{-2}\ kg\ s^{-3}=kg\ s^{-3}$
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m^3	$m^{-3}\ s^{-1}\ mol$

表５．SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10^{24}	ヨタ	Y	10^{-1}	デシ	d
10^{21}	ゼタ	Z	10^{-2}	センチ	c
10^{18}	エクサ	E	10^{-3}	ミリ	m
10^{15}	ペタ	P	10^{-6}	マイクロ	μ
10^{12}	テラ	T	10^{-9}	ナノ	n
10^{9}	ギガ	G	10^{-12}	ピコ	p
10^{6}	メガ	M	10^{-15}	フェムト	f
10^{3}	キロ	k	10^{-18}	アト	a
10^{2}	ヘクト	h	10^{-21}	ゼプト	z
10^{1}	デカ	da	10^{-24}	ヨクト	y

表６．SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI 単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h =60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	’	1’=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	”	1”=(1/60)’=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 $hm^2=10^4m^2$
リットル	L, l	1 L=1 l=1 $dm^3=10^3cm^3=10^{-3}m^3$
トン	t	1 t=10^3 kg

表７．SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI 単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10^{-19}J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10^{-27}kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10^{11}m

表８．SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10^5Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg≈133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10^{-10}m
海里	M	1 M=1852m
バーン	b	1 b=100fm^2=$(10^{-12}cm)^2$=$10^{-28}m^2$
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的な関係は、対数量の定義に依存。
ベル	B	
デシベル	dB	

表９．固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI 単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10^{-7} J
ダイン	dyn	1 dyn=10^{-5}N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm^{-2}=0.1Pa s
ストークス	St	1 St =$1cm^2\ s^{-1}$=$10^{-4}m^2\ s^{-1}$
スチルブ	sb	1 sb =1cd cm^{-2}=10^4cd m^{-2}
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm^{-2} =10^4lx
ガル	Gal	1 Gal =1cm s^{-2}=$10^{-2}ms^{-2}$
マクスウエル	Mx	1 Mx = 1G cm^2=10^{-8}Wb
ガウス	G	1 G =1Mx cm^{-2} =10^{-4}T
エルステッド[a]	Oe	1 Oe ≙ $(10^3/4\pi)$A m^{-1}

(a) ３元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「 ≙ 」は対応関係を示すものである。

表10．SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI 単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10^{10}Bq
レントゲン	R	1 R = 2.58×10^{-4}C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10^{-2}Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10^{-2}Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10^{-9}T
フェルミ		1 フェルミ=1 fm=10^{-15}m
メートル系カラット		1 メートル系カラット= 0.2 g = 2×10^{-4}kg
トル	Torr	1 Torr = (101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm = 101 325 Pa
カロリー	cal	1 cal=4.1858J（「15℃」カロリー），4.1868J（「IT」カロリー），4.184J（「熱化学」カロリー）
ミクロン	μ	1 μ =1μm=10^{-6}m

（第8版，2006年）