

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)

—令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

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

-FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource
Development Project-

福島研究開発部門 福島研究開発拠点
廃炉環境国際共同研究センター
茨城大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Ibaraki University

January 2021

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, 2021

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)

—令和元年度 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
廃炉環境国際共同研究センター

茨城大学

(2020年10月14日受理)

日本原子力研究開発機構(JAEA)廃炉環境国際共同研究センター(CLADS)では、令和元年度 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の廃炉等をはじ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年度に採択された「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」の令和元年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故で環境へ放出された放射性セシウム(Cs)を高濃度に含有する、不溶性の性状を持つシリカ(SiO₂)主材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更に研究を進め、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、熔融燃料等の回収、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している。

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を取りまとめたものである。

廃炉環境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

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

— FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development
Japan Atomic Energy Agency
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

Ibaraki University

(Received October 14, 2020)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to “the Project”) in FY2019.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were 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 moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system 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” conducted in FY2019.

The purpose of this study is to understand the basic properties (size, chemical composition, isotopic composition - including concentration of α -emitters, electrostatic properties, and optical properties, etc.) of fine particles composed of silicate with insoluble properties which contain regions of highly concentrated radioactive cesium (Cs) released to the environment by the accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station of TEPCO in 2011 March. For the purposes, Japanese dedicated and distinguished radiochemists, analytical chemists, and aerosol scientists gather their wisdom and cooperate with the excellent British researchers. Further research will be carried out to elucidate the reactor accident events along with particle generation processes, aiming at contributing to the establishment of better decommissioning procedures, recovery of molten fuel, etc., and achievement of safety assurance of workers, sites and the surrounding environment.

Keywords: Water Insoluble Micro Radioactive Particle, Radiocesium(Cs), Silicate, Size, Chemical Composition, Isotopic Composition, α -emitters, Electrostatic Properties, and Optical Properties

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（継続分）	2
3. 令和元年度 採択課題	5
付録 成果報告書	9

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project.....	1
2. Accepted Proposal in FY2018 ~Continued~	2
3. Accepted Proposal in FY2019	5
Appendix Result Report	9

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。現:廃炉環境国際共同研究センター)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(令和元年度より新設)に再編した。

2. 平成 30 年度 採択課題（継続分）

平成 30 年度採択課題（継続分）については以下のとおりである。

課題数：19 課題

- 共通基盤型原子力研究プログラム 11 課題
(若手研究 6 課題、一般研究 5 課題)
- 課題解決型廃炉研究プログラム 6 課題
- 国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題
(日英共同研究)

平成 30 年度 採択課題一覧

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	山崎 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	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
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

共通基盤型原子力研究プログラム

【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
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	渡邊 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	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

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度は、4つの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 31 年 4 月 24 日～令和元年 6 月 7 日
令和元年 5 月 30 日～令和元年 7 月 18 日 ※日露共同研究のみ
- ・ 課題数：19 課題
 - 共通基盤型原子力研究プログラム 7 課題
(若手研究 2 課題、一般研究 5 課題)
 - 課題解決型廃炉研究プログラム 4 課題
 - 国際協力型廃炉研究プログラム 4 課題
(日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題)
 - 研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 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た。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、採択課題を決定した。

令和元年度 採択課題一覧

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
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一郎	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁	産業技術総合 研究所

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
Multi-Physics モデリングによる福島2・3号機ペDESTAL燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立 GE ニュークリア・ エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

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
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾大学

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

本報告書は、採択課題のうち、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」の令和元年度の研究成果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.

令和元年度

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

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 31I053)

成果報告書

令和2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科学技術・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「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」の令和元年度の成果を取りまとめたものです。

目次

概略	v
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2. 1-1
2.1 全体計画	2. 1-1
2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法	2. 2-1
2.2.1 当該年度における成果の目標及び業務の方法	2. 2-1
3. 令和元年度の実施内容及び成果	3. 1-1
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. 1-6
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. 1-9
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：JAEA)	3. 2-1
3.2.2 放射性微粒子の帯電状態及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. 2-10
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. 2-20
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. 2-26
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. 2-29
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. 2-35
3.3 研究推進	3. 3-1
3.3.1 研究推進に関わ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、論文等学術雑誌での発表	3. 3-1
3.3.3 英国側の研究進捗	3. 3-1
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 3.2.2-1 環境大気中粒子 Sample 1, 2 のサンプリング条件 3.2-12

表 3.2.5-1 本研究で分析した不溶性粒子の ^{134}Cs , ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Pu の定量値
..... 3.2-32

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 大気及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から抜き取ったサンプル（左）とそのイメージングプレート画像（右） 3.1-2

図 3.1.1-2 大気フィルターサンプルから分離された放射性粒子の SEM 画像 3.1-3

図 3.1.1-3 平成 27 年 7 月に捕集された大気サンプルから分離された放射性粒子についての EDX 分析結果 3.1-4

図 3.1.1-4 平成 27 年 7 月に捕集された大気サンプルから分離された放射性粒子に波長 405 nm のレーザー光を照射した際の蛍光スペクトル 3.1-5

図 3.1.2-1 土壌試料のイメージング画像 3.1-7

図 3.1.2-2 不溶性粒子の濃度とインベントリーを分析した土壌採取地点 3.1-8

図 3.1.3-1 筑波大学で取り出すことに成功している放射性粒子の放射能分布 3.1-9

図 3.1.3-2 取り出した放射性粒子のリストの例 3.1-10

図 3.2.1-1 EDX 付き日本電子製走査型電子顕微鏡 (SEM) 3.2-2

図 3.2.1-2 観察した粒子の例 3.2-3

図 3.2.1-3 lab. CT の結果 3.2-4

図 3.2.1-4 試験に使用した二次イオン質量分析装置 3.2-5

図 3.2.1-5 SIMS を用いた元素分析の例 3.2-6

図 3.2.1-6 放射性セシウム同位体の質量ごとのカウント数 3.2-7

図 3.2.1-7 英国側で実施した FIB で加工しウランの塊を露出させ SIMS で質量測定した例
..... 3.2-8

図 3.2.1-8 データベースソフトウェア (International Particle Analyse Database:iPAD) のスクリーンショット 3.2-9

図 3.2.2-1 (左) 大気粒子の捕集方法 (右) 大気粒子の KPFM 測定系の概略図 3.2-11

図 3. 2. 2-2	環境大気中粒子 Sample 1 の KPFM 測定結果	3. 2-11
図 3. 2. 2-3	環境大気中粒子 Sample 2 の KPFM 測定結果	3. 2-12
図 3. 2. 2-4	環境大気中粒子 Sample 3 の KPFM 測定結果	3. 2-13
図 3. 2. 2-5	Sample 3 の SEM 観察結果	3. 2-14
図 3. 2. 2-6	(左) 放射性 Cs 粒子の KPFM 測定実験系概略図 (右) 放射性 Cs 粒子 サンプル	3. 2-14
図 3. 2. 2-7	放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定結果	3. 2-15
図 3. 2. 2-8	プローブによるエッジ効果の発生概略図	3. 2-16
図 3. 2. 2-9	薄片化された放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定系概略図	3. 2-17
図 3. 2. 2-10	薄片化されたタイプ B 粒子の KPFM 測定結果 (1)	3. 2-17
図 3. 2. 2-11	図 3. 2. 2-10 に示す測定実施時の粒子とプローブの位置	3. 2-17
図 3. 2. 2-12	薄片化されたタイプ B 粒子の KPFM 測定結果 (2)	3. 2-18
図 3. 2. 2-13	図 3. 2. 2-12 に示す測定実施時の粒子とプローブの位置	3. 2-18
図 3. 2. 3-1	放射光実験を実施した SPring-8 BL37XU の光学系模式図	3. 2-22
図 3. 2. 3-2	放射性微粒子 (粒子 X, Y) の放射光 X 線分析の結果	3. 2-23
図 3. 2. 3-3	合成ガラス 6 点 (Syn-A~F) の SR- μ -XRF スペクトルの比較	3. 2-24
図 3. 2. 3-4	蛍光発光スペクトルの比較	3. 2-25
図 3. 2. 4-1	1 MV タンデトロン の PIXE スペクトルと放射性粒子の分析位置	3. 2-27
図 3. 2. 4-2	6 MV タンデムのマイクロ走査による元素マッピングと X 線スペクトル	3. 2-27
図 3. 2. 4-3	放射性粒子中の各元素の濃度	3. 2-28
図 3. 2. 5-1	本研究で分析を行った不溶性粒子の SEM 像	3. 2-31
図 3. 2. 5-2	Pu 分析法のスキーム	3. 2-32
図 3. 2. 5-3	本研究で得られた不溶性粒子の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ とグローバルフォールアウト、 他の環境試料、計算値との比較	3. 1-33
図 3. 2. 5-4	本研究で得られた不溶性粒子の $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ とグローバルフォールアウト、 他の環境試料、計算値との比較	3. 2-33
図 3. 2. 6-1	環境中から採取された放射性微粒子の一部	3. 2-36
図 3. 2. 6-2	生成した模擬微粒子の SEM 像を拡大した SEM 像	3. 2-36
図 3. 2. 6-3	NaBr 溶液エアロゾル粒子に対する ^{131}I , ^{103}Ru , ^{95}Zr の付着率とエアロ ゾル粒子の全表面積との相関	3. 2-37

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)
- NIST SRM : 米国国立標準技術研究所 (NIST) が供給している標準物質 (Standard Reference Materials®)
- PIXE : 荷電粒子励起エックス線放出分析法
- PTFE : Polytetrafluoroethylene (ポリテトラフルオロエチレン)
- SDD : シリコンドリフト検出器
- SE : Secondary Electron (二次電子)
- 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)
- XRF : 蛍光 X 線分析
- XRD : 粉末 X 線分析

概略

東京電力株式会社福島第一原子力発電所（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（CsI や CsOH）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⁾、重要性が一層深まっている。これまでに、イメージングプレート（IP）やγ線測定での粒子単離と、走査型電子顕微鏡-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（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・記録していることが明らかにされてきた⁽⁴⁾。この高比放射能の Cs（ $\sim 10^{11}$ Bq/g）を含むシリカ（SiO₂）主材の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（熔融燃料の回収、炉内除染、作業員や周辺的安全確保等）に関しても重要である。更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、廃炉作業に関わるリスク評価には 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更に研究を進め、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-熔融燃料等の回収、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している。

当然ながら、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と予想され、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、熔融燃料-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って、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。したがって、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、熔融燃料の回収作業等における作業員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、更に万が一拡散・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。更に、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 (University of Bristol) 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、日本原子力研究開発機構 廃炉国際共同研究センター (JAEA/CLADS) や京都大学との協力で放射性微粒子の 3 次元トモグラフィを明らかにするなど、先駆的な研究を推進してきた。 α 放射体の分析が日英ともに可能であり、この情報は、廃炉作業にとって重要な情報となる。

本課題提案の更に見据えるゴールとしては、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している。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実施しており、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事が可能となる。

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 (SPM) 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、福島第一原発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更に解明して、「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、慶應義塾大学、東京理科大学、大阪大学、京都大学、JAEA/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、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、本年度は下記の進捗をみた。(1) については、サイト及び周辺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)。平成 27、28、30、

令和元年に 1F 近隣で捕集した大気サンプルを用い、オートラジオグラフィーと顕微鏡観測により 15 個の放射微粒子の検出及び単離に成功した。また、それらについて電子顕微鏡により性状を観察し、また蛍光スペクトルを測定することができた。

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）。サイトより北から西及び南にかけ距離 5 km の地点で採取した土壌の分析を行ったところ、土壌中の全 Cs 放射能に占める放射性微粒子の Cs 放射能の割合は一律ではなく、北側、南側では、西側に比べ比較的割合が高い地点が存在することが分かった。

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）。放射性微粒子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を用いて、実試料から放射性微粒子の分離を行い、数百 mm の大きさで数十 Bq 以上の粒子を数十個取り出すことに成功し、いくつかの業務分担者に試料の提供を行った。10 Bq 以下の放射性微粒子の効率良い分離法の開発については、ガンマカウンターによる測定では限界があり、ゲルマニウム半導体検出器（Ge-SSD）などの併用が必要であることが分かったため、最終的な試料分離に関してはもう少し工夫する必要があるという結論が得られた。

(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（JAEA）。JAEA で分離した放射性粒子に加え大阪大学から受領した粒子の SEM 分析を行い、既存の分類に当てはまらない第 3 の種類であるタイプ C の存在を認識した。また、タイプ B の粒子を対象にウラン等の長半減期核種について、2 次イオン質量分析装置を用いた分析で着手した。しかし、セシウムの同位体は検出できたもののウランの検知には至らなかった。これは、すべての放射性粒子にウランが含まれているわけではないことを示唆しており、ウラン分析の重要性について再検討する必要があると示された。放射性粒子情報を共有化するデータ整理の基盤として英国側と共同でデータベースソフトウェアの開発に着手した。

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（慶應義塾大学）。今年度は、まず比較的採取が容易である環境大気中粒子について KPFM 測定条件の検討を行い、そこで得られた最適条件を基に、放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定を行うこととした。複数回の試行を繰り返すことで一定の測定条件最適化に成功し、同一の粒子について KPFM 及び SEM 測定を可能とするサンプリング条件及び測定手法を確立した。得られた最適条件を用いて、放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定を行ったところ、粒子表面上に大きな電位の偏りが見られ、その原因は測定時のエッジ効果でなく、放射性 Cs 微粒子表面上での成分の不均一性であると考えられた。更に、薄片化した放射性 Cs を含む試料の KPFM 及び SEM 測定を行い、顕微鏡像と表面電位像を得ることができた。

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）。これまでに SPring-8 で分析された粒子のデータを整理し、蛍光 X 線分析（XRF）によって有意な強度でウランのピークが検出されているものを選出した。その一部について、SPring-8 において U-L₃ 吸収端の X 線吸収端近傍構造分析を行い、ガラス相中に UO₂²⁺ イオンの形態で存在することを明らかにした。これらの粒子について、レーザー

顕微鏡を用いた蛍光分析を実施し、特徴的な緑色蛍光を観察した。組成既知の参照試料と比較した結果、主に UO_2^{2+} イオン由来の蛍光であると同定された。また、複数の重元素を含むガラス製認証標準物質、及び放射性微粒子の組成に似せて合成したガラスを SPring-8 で分析し、重元素濃度の定量に向けた基礎データを得た。

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)。筑波大学の 1MV タンデトロンによる PIXE 分析では Pb を含めた重元素の分析に成功した。更に 6 MV タンデム加速器のマイクロ走査装置に設置している PIXE 装置を用いて粒子内の内部構造について、Fe、Zn までの元素をマッピングすることができた。ICP-MS を用いて、実試料について、構成する極微量元素の情報を取得し、SEM と XRF との結果を合わせることで構成する元素についての情報を得ることに成功した。更にその分析結果から ^{133}Cs のほとんどが核分裂由来であることを明らかにする成果が得られた。

^{90}Sr 及び Pu 同位体を分析し、その分析手法を検討した (大阪大学)。4 つの放射性微粒子について分析を行ったところ、 $^{90}Sr/^{137}Cs$ は 10^{-4} のオーダーの放射能比であり、 $^{239}Pu/^{137}Cs$ の放射能比は最大でも 10^{-8} であることが明らかになった。

更に、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)。エアロゾル付着実験では、中性子照射したウラン試料を加熱することで放出される ^{95}Zr 、 ^{131}I 等の核分裂生成核種のエアロゾル粒子への付着率の測定を行い、核種間の付着挙動の比較を行った。また、珪藻土の加熱による放射性微粒子の生成を模擬した合成実験を行い、合成された微粒子の形状観察により生成過程における加熱温度依存性について検討を行った。

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、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、JAEA の連携箇所でも述べたように本年度はサンプルの詳細を記録するためのデータベース構築を日英合同で検討した。3 年度目においては、上記(1)及び(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更に生み出して、計画の進捗を図るとともにまとめを行っていく。

参考文献

- (1) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013).
- (2) Y. Satou et al., Anthropocene 14, 71–76 (2016).
- (3) N. Yamaguchi et al., Sci. Rep. 6, 20548(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（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（CsI または CsOH）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。放出インベントリー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 割がこのようなシリカ（SiO₂）が主材のガラス状形態で、Cs の主要な形状だったことが判明しており、10¹⁵（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、走査型電子顕微鏡-エネルギー分散形 X 線分光法（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 及び 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（~10¹¹ 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（熔融燃料の回収、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 放射体に関する情報が少なく、廃炉作業に関わ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更に研究を進め、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-熔融燃料等の回収、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。福島第一原発事故にて放出された放射性微粒子は、廃炉手順の確立（熔融燃料等の回収、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更に解明して、「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できる。(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NDFが指定する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でき、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、この議論を更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（性質と発生源の差異による便宜的な分類）ことが判明しており、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 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=熔融燃料-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ない、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。

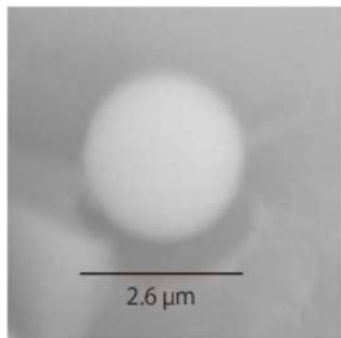


図 1-1 初めて大気試料より単離された不溶性放射性 Cs 微粒子⁽¹⁾

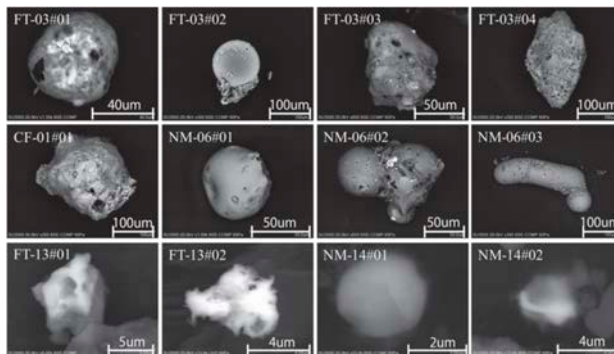


図 1-2 事故サイト近傍の表土試料より単離された不溶性放射性 Cs 微粒子⁽²⁾

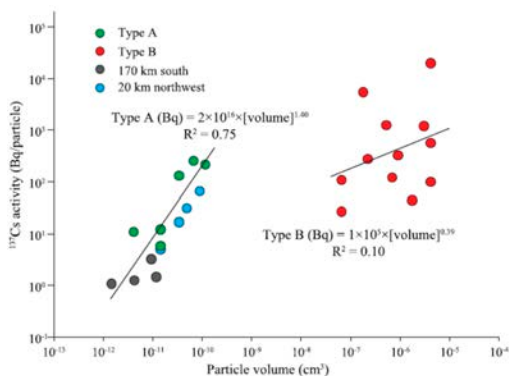


図 1-3 大気及び表土から単離された不溶性放射性 Cs 微粒子の体積と Cs 放射能との相関の様子
2つの異なるタイプが想定できる。⁽⁴⁾

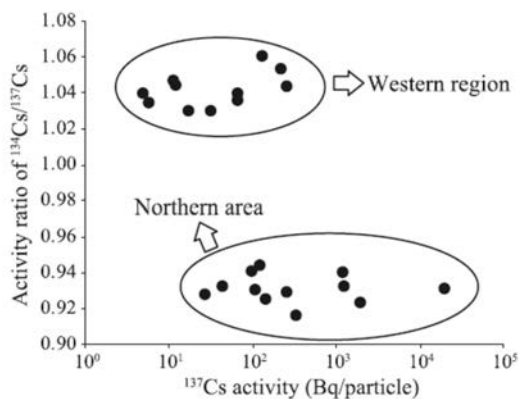


図 1-4 事故サイトから 30km 圏内の表土から単離された不溶性放射性 Cs 微粒子の Cs 放射能と同位体比との分布の様子
発生源に違いのあることがわかる。⁽⁴⁾

表 1-1 不溶性放射性微粒子の性状まとめ⁽⁴⁾

Characteristic	Particle type	
	A	B
Size distribution (observed)	1–10 μm	70–400 μm
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ (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, 2554 (2013).
- (2) Y. Satou et al., Anthropocene 14, 71-76 (2016).
- (3) N. Yamaguchi et al., Sci. Rep. 6, 20548 (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> (参照日: 2019年12月20日).

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。

項目	年度	平成30年度	平成31年度	平成32年度
(1) 効果的な放射性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	試験実施	試験実施	試験実施・評価
	②オートラジオグラフィを用いた放射性微粒子特定法の検討 (大阪大)	試験実施	試験実施	
	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 (筑波大)	試験実施	試験実施	
(2) 放射性微粒子の性状把握	①放射性微粒子の顕微鏡観察と元素分析による分類評価に関する研究 (原子力機構)	試験実施	試験実施	試験実施・評価
	②放射性微粒子の帯電状態及び表面状態の分析に関する研究 (慶應大)	試験実施	試験実施	試験実施・評価
	③放射性微粒子の物理・化学的性状に関する研究 (東京理科大)	試験実施	試験実施	試験実施・評価
	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 (筑波大)	試験実施	試験実施	試験実施・評価
	⑤α放射体等の難測定核種の分析に関する研究 (大阪大)	試験実施	試験実施	試験実施・評価
	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 (京都大)	試験実施	試験実施	試験実施・評価
(3) 研究推進	(茨城大・原子力機構)	研究会等の開催 △ △ △	研究会等の開催 △ △ △	研究会等の開催 △ △ △
		まとめ・評価	まとめ・評価	まとめ・評価

図 2.1-1 全体計画図

2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法

令和元年度の計画の概要は下記に記載するとおりである。福島第一原発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、光学的性質等）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更に解明して、「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。

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

大気捕集フィルターからの放射性微粒子分離に向け、まず、放射性微粒子の検出手法について、1F 近隣等で捕集したサンプル等を用いて、実用化に向けた検討を行った。また、その検出方法について、オートラジオグラフィーと顕微鏡観測により、実効性を確認した。

平成 27、28、30、令和元年に 1F 近隣で捕集した大気サンプルを用い、オートラジオグラフィーと顕微鏡観測により 15 個の放射微粒子の検出及び単離に成功した。また、それらについて電子顕微鏡により性状を観察し、また蛍光スペクトルを測定することができた。

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）

平成 30 年度に試作した、放射能強度とオートラジオグラフィーを用いた放射性微粒子判別のためのプロトコル案について、実試料に対する分析結果をフィードバックすることにより改善した。また、系統的にサイト周辺で採取した Cs 放射能定量済みの土壌について、分析を開始した。

サイトより北から西及び南にかけ距離 5 km の地点で採取した土壌の分析を行ったところ、土壌中の全 Cs 放射能に占める放射性微粒子の Cs 放射能の割合は一様ではなく、北側、南側では、西側に比べ比較的割合が高い地点が存在することが分かった。

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）

平成 30 年度に確立した放射性微粒子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を用いて、実試料から放射性微粒子の分離を行った。更に、10 Bq 以下の放射性微粒子の効率の良い分離法の開発を進め、結果をまとめた。

放射性微粒子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を用いて、実試料から放射性微粒子の分離を行い、数百 μm の大きさで数十 Bq 以上の粒子を数十個取り出すことに成功し、いくつかの業務分担者に試料の提供を行った。10 Bq 以下の放

放射性微粒子の効率の良い分離法の開発については、ガンマカウンターによる測定では限界があり、Ge-SSDなどの併用が必要であることが分かったため、最終的な試料分離に関してはもう少し工夫する必要があるという結論が得られた。

(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：JAEA)

平成30年度に引き続いて、高分解能走査型電子顕微鏡（SEM）分析により得られた放射性微粒子表面の情報や元素組成に基づき、放射性微粒子の分類評価を行い、2次イオン質量分析装置による、ウラン等の同位体比分析の検討を行った。また、放射性微粒子情報の共有化を目的としたデータ整理の基盤について検討した。

JAEAで分離した放射性粒子に加え大阪大学から受領した粒子のSEM分析を行い、既存の分類に当てはまらない第3の種類であるタイプCの存在を認識した。また、タイプBの粒子を対象にウラン等の長半減期核種について、2次イオン質量分析装置を用いた分析に着手した。しかし、セシウム同位体は検出できたもののウランの検知には至らなかった。これは、すべての放射性粒子にウランが含まれているわけではないことを示唆しており、ウラン分析の重要性について再検討する必要があると示された。

放射性粒子情報を共有化するデータ整理の基盤として英国側と共同でデータベースソフトウェアの開発に着手した。

② 放射性微粒子の帯電状態及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、確立した条件を用いて粒子の解析を行った。また、平成30年度に引き続き、粒子の帯電状態と粒子形状及び化学組成の関係を明らかにするため、Atomic Force Microscopy（AFM）法による粒子の幾何形状の解析、及びSEM観察による粒子解析を併せて行った。更に、筑波大学と連携し、薄片化した放射性微粒子の分析を試みた。

まずは、比較的採取が容易である環境大気中粒子についてKPFM測定条件の検討を行い、そこで得られた最適条件を基に、放射性Cs微粒子のKPFM測定を行うこととした。複数回の試行を繰り返すことで一定の測定条件最適化に成功し、同一の粒子についてKPFM及びSEM測定を可能とするサンプリング条件及び測定手法を確立した。得られた最適条件を用いて、放射性Cs微粒子のKPFM測定を行ったところ、粒子表面上に大きな電位の偏りが見られ、その原因は測定時のエッジ効果でなく、放射性Cs微粒子表面上での成分の不均一性であると考えられた。更に、薄片化した放射性Csを含む試料のKPFM及びSEM測定を行い、顕微鏡像と表面電位像を得ることができた。

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）

レーザー顕微鏡を用いた 1 粒子単位での蛍光分析について、放射性微粒子と実験試薬を用いて電気炉にて合成した組成既知の参照試料とで比較し、粒子の持つ蛍光の原因を特定した。併せて、大型放射光施設 SPring-8 で行われた蛍光 X 線分析 (XRF) について、重元素濃度を定量的に評価するための手法を検討した。また、過去に分析した粒子の分を含めて、化学・物理性状に関するデータを整理した。

これまでに SPring-8 で分析された粒子のデータを整理し、XRF によって有意な強度でウランのピークが検出されているものを選出した。その一部について、SPring-8 において U-L₃ 吸収端の X 線吸収端近傍構造分析を行い、ガラス相中に UO₂²⁺ イオンの形態で存在することを明らかにした。これらの粒子について、レーザー顕微鏡を用いた蛍光分析を実施し、特徴的な緑色蛍光を観察した。組成既知の参照試料と比較した結果、主に UO₂²⁺ イオン由来の蛍光であると同定された。また、複数の重元素を含むガラス製認証標準物質、及び放射性微粒子の組成に似せて合成したガラスを SPring-8 で分析し、重元素濃度の定量に向けた基礎データを得た。

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）

薄片化した放射性微粒子（タイプ B）の荷電粒子励起エックス線放出分析法 (PIXE) を進め、微量元素の元素分布等を明らかにすることで、粒子の内部構造を明らかにする方法を確立した。誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) を用いて、実試料について、構成する極微量元素の情報を取得した。

筑波大学の 1 MV タンデトロンによる PIXE 分析では鉛を含めた重元素の分析に成功した。更に 6 MV タンデム加速器のマイクロ走査装置に設置している PIXE 装置を用いて粒子の内部構造について、鉄、亜鉛までの元素をマッピングすることができた。ICP-MS を用いて、実試料について、構成する極微量元素の情報を取得し、SEM と XRF との結果を合わせることで構成する元素についての情報を得ることに成功した。更にその分析結果から ¹³³Cs のほとんどが核分裂由来であることを明らかにする成果が得られた。

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）

¹³⁷Cs 含有量から ⁹⁰Sr や Pu が検出される可能性がある粒子を選別し、化学的分離により Sr と Pu フラクションを単離後、⁹⁰Sr については、平成 30 年度確立した方法で液体シンチレーション検出器を用いて分析を進めた。Pu 同位体については、²⁴²Pu 同位体をトレーサーとした α 線測定に基づき、分離分析手法を確立した。また、ICP-MS による Pu 同位体分析も開始した。

4 つの放射性微粒子について分析を行ったところ、⁹⁰Sr/¹³⁷Cs 放射能比は 10⁻⁴ のオーダーであり、²³⁹Pu/¹³⁷Cs 放射能比は最大でも 10⁻⁸ であることが明らかになった。

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）

人工エアロゾル発生装置の改良を行い、ウラン試料を用いた核分裂生成核種のエアロゾル付着実験を行った。また、Cs 等を含む放射性微粒子の生成過程を考察するために、微粒子合成の温度依存性等の検討を行った。

エアロゾル付着実験では、中性子照射したウラン試料を加熱することで放出される⁹⁵Zr、¹³¹I 等の核分裂生成核種のエアロゾル粒子への付着率の測定を行い、核種間の付着挙動の比較を行った。また、珪藻土の加熱による放射性微粒子の生成を模擬した合成実験を行い、合成された微粒子の形状観察により生成過程における加熱温度依存性について検討を行った。

(3) 研究推進

研究代表者の下で、各研究項目間ならびに JAEA/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。

3. 令和元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

福島第一原発の事故に伴い形成され炉内や建屋内に多量に残留していることが危惧されている不溶性の放射性 Cs 微粒子⁽¹⁾⁽²⁾が、廃炉作業時に空気中に飛散することによる作業員の内部被ばく等を引き起こすリスク、及び風に乗り長距離を移動して汚染を拡散するリスクについて検討していく必要がある。それらリスク検討の基礎となる科学的知見として、こうした放射性微粒子のうち、空気中に飛散しやすい粒子の性質を理解することが重要である。更に空気中に浮遊した放射性粒子の存在をいち早く検出する手法を開発することも、リスク軽減のため重要な貢献であると考えられる。昨年度は、分離の前段階としてオートラジオグラフィによる大気捕集試料からの放射性粒子検出を行い、更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。オートラジオグラフィは、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。今年度は、引き続きイメージングプレート（IP）を用いたオートラジオグラフィにより大気捕集試料からの放射性粒子の検出を行うとともに、それを分離し電子顕微鏡観察により性状を確認した。また、単離した粒子の蛍光観察を試みた。

(2) オートラジオグラフィによる環境中での大気飛散した放射性粒子の検出

不溶性の放射性 Cs 微粒子は、汚染度の高い地域では、いまなおしばしば土壌などから再飛散し大気中を浮遊している可能性がある。このような粒子は、とりわけ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、福島第一原発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、福島県内の帰還困難区域で実施している。昨年度にハイボリュームエアサンプラー（柴田科学製 HV-1000RW）を2台設置し、以前より設置済みのハイボリュームエアサンプラー（柴田科学製 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により放射性 Cs 微粒子を検出した。昨年度同様に、まずフィルターサンプル2つ折りにし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、放射性粒子と思われるものの位置を黒点として検出した。その位置のフィルターを直径 12 mm のポンチで抜き出し（2枚となる）、図 3.1.1-1（左）のようにスライドガラス上に並べて、再度イメージングプレートに密着させ、1時間露光して、図 3.1.1-1（右）に示すように更に詳細な位置を検出した。露光時間を1時間に設定したのは、放射能が弱く検出に長い時間を要するものは、本事業での対象とする放射性粒子か疑わしいこと、また以下に説明する分離（単離）作業に非常に長い時間を要して、実際的でないと判断したためである。

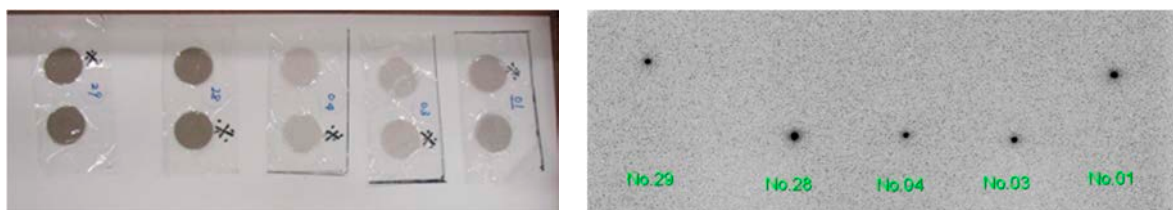


図 3.1.1-1 津島地区で捕集した大気粒子フィルターから抜き取ったサンプル（左）とそのイメージングプレート画像（右）
放射性粒子を示す明確な黒点が見られる。

(3) オートラジオグラフィーで検出された大気放射性粒子の分離と性状観察

上記(2)で大気捕集フィルター上に検出された放射性粒子と思われるものを分離し、電子顕微鏡により性状観察を行い実際に本研究で対象としている放射性粒子であるのか確認を行った。図 3.1.1-1 (右) に示すようにイメージングプレートを用い黒点が検出された位置を画像上で測定し、図 3.1.1-1 (左) に示すようなサンプルの対応する部分をメスで切り分けし、別の洗浄済みスライドガラス上に、両面粘着のカーボンテープを用いて固定した。それを更に分割し、どの分画に対象の粒子があるかを、各分画の放射能を Ge 検出器により測定し、放射能が高いかどうかで判定し、対象粒子を含む分画を更に分割するというように、サンプルの分割及び各分画の放射能測定と判定の作業を繰り返した。分画が小さくなりメスでの切り分けが難しくなると、光学顕微鏡下でマニピレーターを使用して分割作業を行った。この分割作業は、対象の粒子を含む分画が約 100 μm 以下に小さくなるまで繰り返した。

平成 27、28、30、令和元年に捕集された計**の大気フィルターサンプルを対象としたが、上記(2)のようにイメージングプレートを用い 1 時間露光で黒点が検出されたサンプルは**個であった。それらについて上記の分離作業を実施したが、その最中に粒子を見失ったケースや粒子が破損した事例があり、最終的に分離に成功した粒子は**個である。それらについて、SEM による形態の観察と EDX による構成元素の分析を行った。使用した SEM は、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) 及び走査型電子顕微鏡 (SEM; 日立ハイテクノロジーズ製 SU3500) である。まず SEM 画像による形状観察を行ったが、放射性粒子は図 3.1.1-2 (左) のように他の鉱物粒子に付着していたケースと図 3.1.1-2 (右) のように単独で存在しているケースがあった。前者の鉱物粒子に付着していた事例は、黄砂など風送塵現象での鉱物微小粒子の大気への飛散メカニズム⁽³⁾⁽⁴⁾と同様に、数十 μm ～数 mm のより粗大な粒子の方が、数 μm の微小な粒子に比べ突風などで直接飛散しやすいことに関係している可能性を示唆している。しかし、**個中**個が単独で存在しているケースであったことから、放射性微粒子は十分単独で飛散しうると考えられる。

** : 知的財産保護のため非公開

知的財産保護のため非公開

図 3.1.1-2 大気フィルターサンプルから分離された放射性粒子の SEM 画像
 (左)放射性粒子(赤丸の中央の明るい点)が大きさ数十 μm の鉱物粒子に付着しているケースの例。
 (右)放射性粒子が単独で存在しているケースの例。

放射性微粒子の形状は、すべて直径が約** μm の球状あるいは楕球状であり、タイプ Aであることを示唆している。次いで EDX 分析により構成元素を確認した。図 3.1.1-3 (上)は、平成 27 年 7 月に捕集されたサンプルから分離された粒子の EDX で、測定された特性 X 線スペクトルを示す。また、図 3.1.1-3 (下)は、同じ粒子の SEM 画像及び EDX による各種元素のマッピング画像である。

図 3.1.1-3 (上)の粒子は直径約** μm の球状で、 ^{137}Cs 放射能は**Bqであった。構成元素を見ると表 1-1 に挙げる Si、O、Zn 及び Fe、Sn、Cl に富むことからタイプ A であると考えて良い。ただし、タイプ B の指標とされる Na も多く含まれている。この粒子の特徴として、ウラン (U) が明確に検出されていることと、粒子画像の中央よりやや左上のところに S、K、Cr、Fe、U が多い部分が存在し、均一ではないことがあげられる。他の粒子もすべてタイプ A と判定されるが、ウランが明確に検出されたのはこの粒子 1 個のみであった。今回、大気サンプルから検出された粒子が、すべてタイプ A であったことは、粒径が小さく飛散後に浮遊しやすいことと、サンプリング地点が 1F から距離約 25 km 程度の位置にあり、そこまで飛散・沈着した粒子がほとんどタイプ A であったためであると考えられる。リスク評価に役立つ知見を得るため、今後、サンプリング地点の表土に含まれる不溶性放射性粒子を分離しその性状を調べ、大気から検出されたものと比較することで、大気飛散しやすい粒子のもつ特徴について更に調べていく予定である。



図 3.1.1-3 平成 27 年 7 月に捕集された大気サンプルから分離された放射性粒子についての EDX 分析結果

(上) 粒子からの X 線スペクトル

特にエネルギー 3-19 keV の範囲について、SEM 像が明るい部分(黒線)、他の部分(赤線)及びバックグラウンド(青線)のスペクトルを比較している。

(下) 粒子全体の SEM 画像(左上)及び各元素の分布マップ画像

(4) 大気不溶性放射性粒子の蛍光スペクトルの測定

大気中から効率的に不溶性放射性微粒子を検出・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（東京都港区白金台）にあるニコ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た。

昨年度タイプ A 放射性微粒子が紫色（波長 405 nm）での励起光に対し特有の緑色（中心波長 520 nm）の蛍光を発する例が示されており、上記（3）で分離されたタイプ A 放射性微粒子のうち 5 個について、この励起光についての蛍光スペクトルを測定した。そのスペクトル代表例を図 3.1.1-4 に示すが、同じ 405 nm の励起光に対し、明瞭な蛍光は検出できなかった。520 nm 付近の緑色の蛍光はウラニルイオン UO_2^{2+} に起因すると考えられ、今回大気サンプルから検出されたタイプ A 粒子には図 3.1.1-3 に示す 1 個を除き、ウランが検出されておらず、粒子が小さいことも相まって蛍光が検出されなかったと考えている。この 405 nm 励起の緑色蛍光は、ウランを多く含む粒子の検出に役立つと考えられるが、他の放射性粒子を蛍光により検出する手法の検討のため、今後、より波長の短い紫外光での蛍光を探索していく予定である。

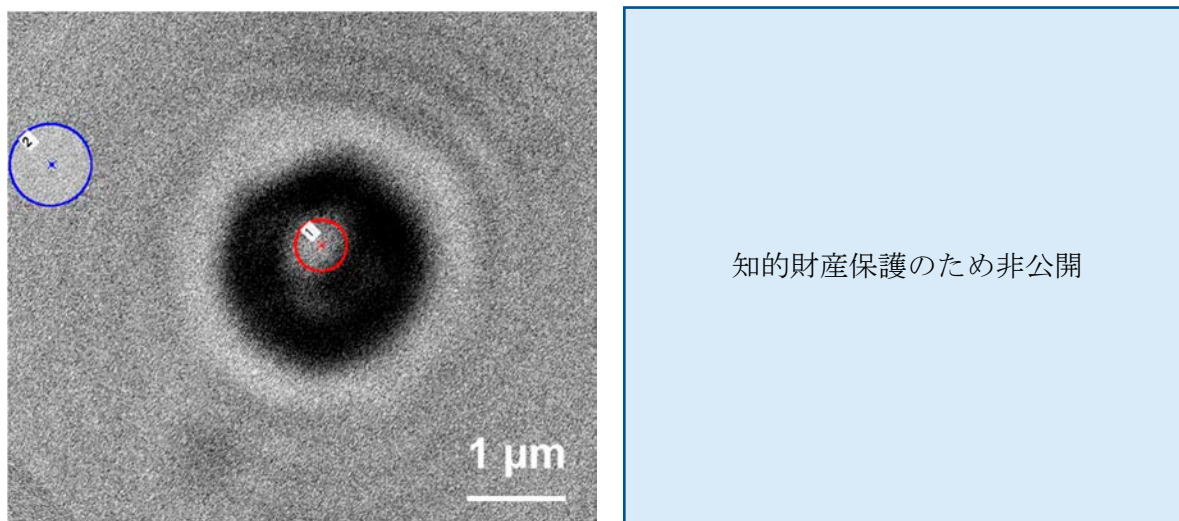


図 3.1.1-4 平成 27 年 7 月に捕集された大気サンプルから分離された放射性粒子に波長 405 nm のレーザー光を照射した際の蛍光スペクトル
粒子中央部(赤線)と粒子が存在しないガラス基板(青線)での有意な差は認められず、明確な蛍光は検出できなかった。

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) 名古屋大学水圏科学研究所編, 黄砂—大気水圏の科学, 古今書院 (1991).
- (4) 藤田慎一他, 越境大気汚染の物理と化学, 成山堂書店 (2014).

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

過酷事故において一般には放射性物質の放出は、原子炉燃料から揮発した放射性元素が大気中のエアロゾルに付着するため、エアロゾルの形態で環境中の移動を起こすと考えられている。しかしながら、福島第一原発事故において放出された放射性物質の一部は、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の経験から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性粒子（以下不溶性粒子）で放出された⁽¹⁾。この不溶性粒子の形状、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⁾）。しかし、不溶性粒子のミクロな観点での研究が進む一方で、不溶性粒子がどこにどれだけ存在しているかという、マクロな視点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、その空間分布からは、放射性物質の放出イベント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、事故シーケンスの解析にも寄与できる。また、万が一将来的に廃炉過程での放出があった場合、どの程度の範囲での汚染が生ずるか推定する材料ともなる。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が中心に行われていて、それらの分析により、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⁾。しかし、面積あたりの放射能、すなわちインベントリーは求められていない。環境全体の影響を評価するためには、系統的に多くの地点における決められた面積の環境試料の採取を行い、それを分析する研究が必要とされている。

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簡便に同定するための方法論の開発を行った。そのために、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る方法を採用した。

本研究課題では、昨年度（平成30年度）オートラジオグラフィーによる粒子弁別のプロトコルの作成を行った。今年度（令和元年度）は実試料への適用を行った。適用の中でプロトコルに軽微な改訂を行ったものの、福島県の各地で採取された土壌試料に対してオートラジオグラフィーを行い、不溶性粒子の同定を行うことができた。そして開発したプロトコルに基づいた土壌試料の分析から、実際に福島原発近傍の10地点で不溶性粒子の分布を明らかにした。

(2) 不溶性粒子分析プロトコルの開発、評価

土壌中に含まれる不溶性粒子の評価のためには、土壌全体の放射能の測定、土壌中に含まれる不溶性粒子数の調査、そしてそれぞれの不溶性粒子の持つ放射能を調べる必要がある。これにより土壌全体の放射能に占める粒子の放射能の割合（以下、粒子濃度）と不溶性粒子の土壌中のインベントリー（ kBq/m^2 ）を求めることが可能になる。

土壌中に含まれる不溶性粒子の検出のために、土壌およそ4gを15cm四方の薬包紙上に均等にばらまいた。これを3時間イメージングプレートに曝露し、富士フィルムのFLA-7000を用いて画像化することで、放射能の二次元分布の取得を行った（図3.1.2-1）。このとき、

土壌試料の脇に環境中より分離した6つの不溶性粒子（それぞれの放射能は1.02 Bq, 2.67 Bq, 3.32 Bq, 5.57 Bq, 9.32 Bq, 21.4 Bq）を標準試料として並べ、これを用いて検量線の作成を行った。オートラジオグラフィーでは、放射能に対応するQL値の二次元マップが得られる。画像の各ピクセルのQL値（画素値）を、標準試料のデータを用いて放射能（Bq）へと変換した。イメージングプレートによるオートラジオグラフィーでは、同じ放射能の試料を分析した場合でも、得られるQL値はわずかに変化する、つまり定量性が良くないことが知られている。本研究ではその問題点を毎回標準試料の測定を行い、検量線をその都度作成することで解決した。

土壌中の不溶性粒子の分析については、高いQL値を持つピクセルの検出を行い、多くのピクセルが集合している点を粒子の候補とみなし、不溶性粒子を同定した。そして不溶性粒子を土壌ごとに数え上げ、それぞれの粒子のQL値を、検量線を用いて放射能に換算することで、それぞれの不溶性粒子の放射能を決定し、土壌中に含まれる不溶性粒子の総放射能を求めた。これに別にガンマ線測定から得た土壌全体の放射能の情報をあわせることで、粒子濃度と粒子のインベントリーの計算を行った。

(3) 土壌中の不溶性粒子濃度と不溶性粒子インベントリー

本研究では、平成28年に福島県の帰還困難区域を中心として採取した10か所の土壌試料について、不溶性粒子の分析を行うことにした(図3.1.2-3)。土壌中の採取は、直径85 mmの円筒管を土壌に打ち込むことにより行い、採取地点で表層土壌(深さ0.0-2.5 cm)を選定して保管した。土壌の重量はおよそ150 gである。これを室温で乾燥、攪拌したのちU8容器に高さ5 cmで充填した。このときの土壌重量は30-80 gであった。Ge-SSDで放射能の測定を行った後、円錐四分法を用いて土壌試料を16分の1まで分画した。それぞれのフラクションについては、ガンマカウンターをもちいてガンマ線測定を行い、Ge-SSDによる土壌全体の測定との整合性を確認した。土壌全体の放射能測定については、イメージングプレートによるオートラジオグラフィーよりも、Ge-SSDやガンマカウンターによるガンマ線測定の方が高い精度が得られるため、ガンマ線測定による値を採用した。

本研究では、決められた面積で採取した土壌試料を分析することで、不溶性粒子のインベントリーを初めて決定することができた。

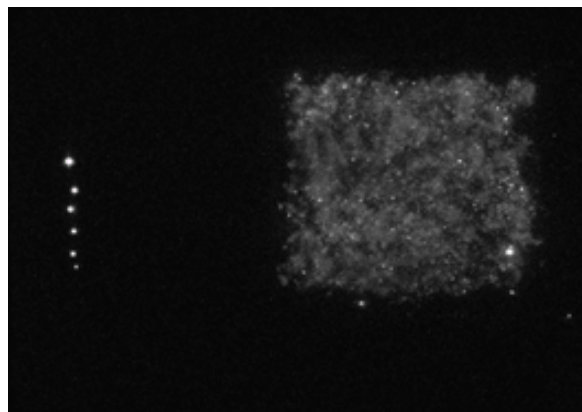


図3.1.2-1 土壌試料のイメージング画像

左側の6点は標準試料を、右側の四角の領域は土壌試料を示している。

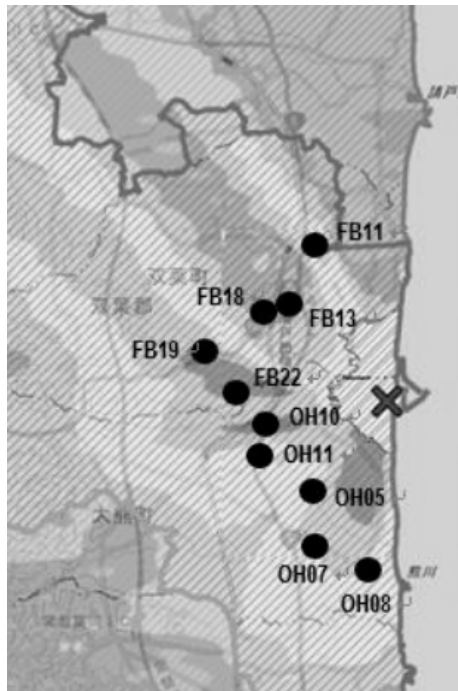


図 3.1.2-2 不溶性粒子の濃度とインベントリーを分析した土壌採取地点
 図中の×印は福島第一原発を示している。

参考文献

- (1) K. Adachi et al., Scientific Reports, 3, 2554 (2013).
- (2) Y. Satou et al., Geochemical Journal, 52, 137-143 (2018).
- (3) N. Yamaguchi et al., Sci. Rep. 6, 20548 (2016).
- (4) R. Ikehara et al., Environmental Science & Technology 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

昨年度に引き続き、効率的に放射性微粒子を検出する方法の一つとして、それら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、ガンマカウンターとオートラジオグラフィを併用した分離法について検討した。

(2) 試験の方法

筑波大学で有している福島第一原発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を併用した分離法で行った。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、Ge-SSD で測定することで確かめた。¹³⁷Cs 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。

(3) 試験結果

この方法で実試料から放射性微粒子の分離を行い、数百 μm の大きさで数十 Bq 以上の粒子を数十個取り出すことに成功し、いくつかの業務分担者に一部の試料の提供を行った。図 3.1.3-1 には、一か所の塵埃試料から今までに取り出すことに成功している 150 個余りの放射性粒子の Cs 放射能分布を示す。10 Bq 以下は全体に対する割合が 4 %以下で、50 Bq 以下でも 7 %程度と、その占める割合が小さくなっている。10 Bq 以下の放射性微粒子の効率の良い分離法の開発については、ガンマカウンターによる測定では限界があり、Ge-SSD などの併用が必要であることが分かったため、最終的な試料作成に関してはもう少し工夫する必要があるという結論が得られた。

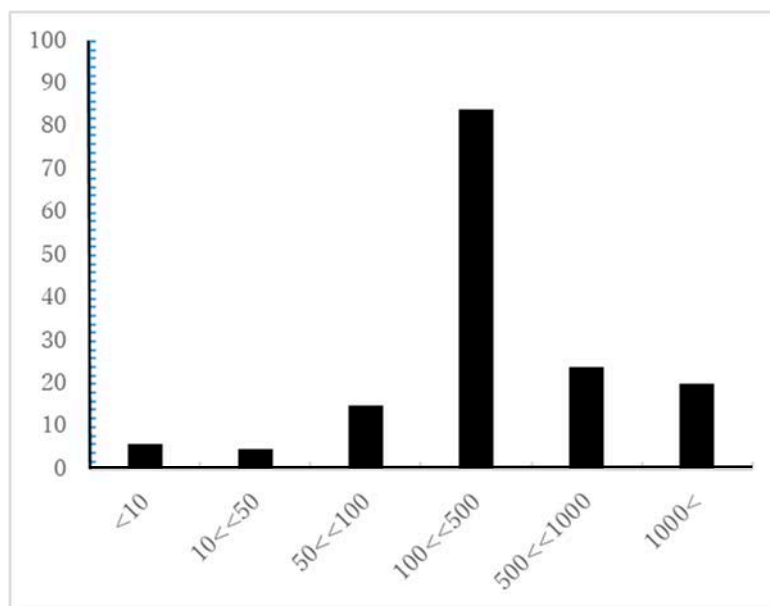


図 3.1.3-1 筑波大学で取り出すことに成功している放射性粒子の放射能分布
(横軸は ¹³⁷Cs 放射能 ; Bq)

今までに筑波大学で取り出した放射性粒子について、粒子 1 個 1 個について放射能強度 (^{134}Cs と ^{137}Cs) 及び SEM 像をまとめたリストを作成した。図 3.1.3-2 に作成したワードファイルの一部を掲載する。これらは 3.2.1(3) で述べるデータアーカイブへ将来的に寄与できる資料となる。

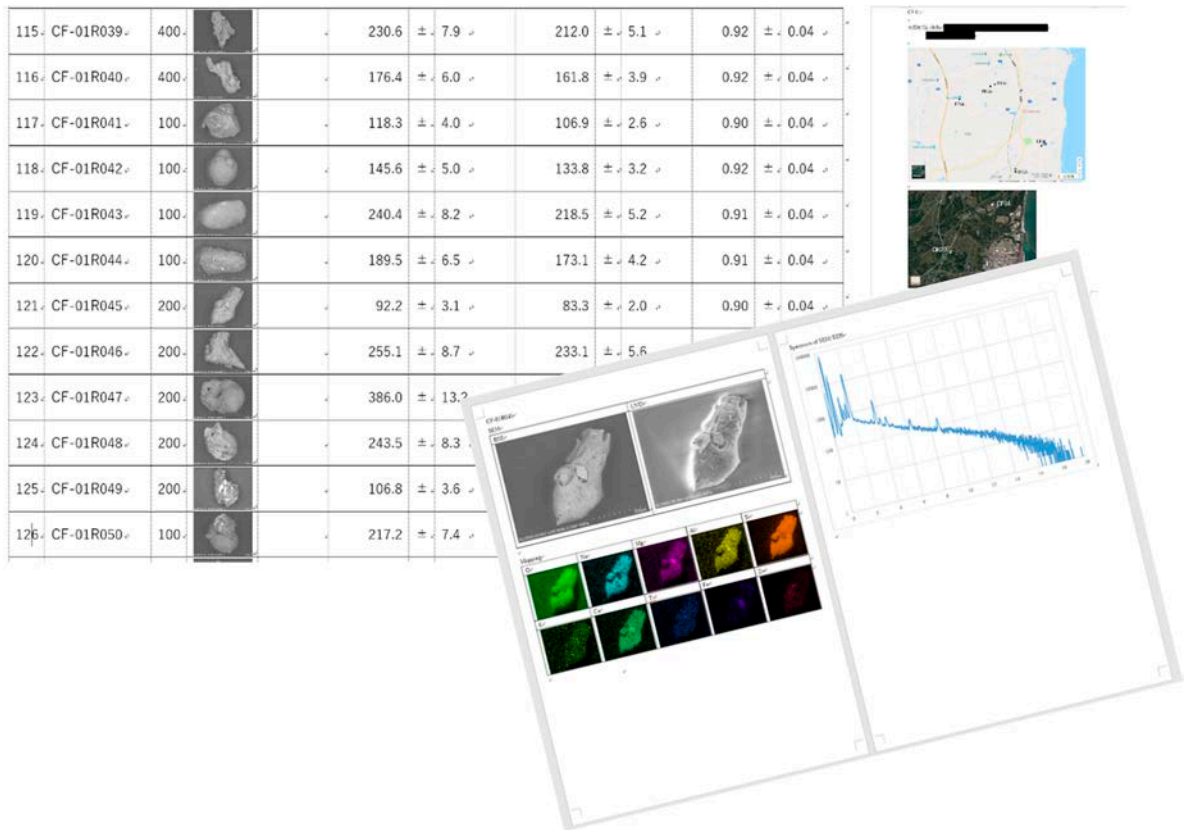


図 3.1.3-2 取り出した放射性粒子のリストの例

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：JAEA)

(1) 放射性微粒子の電顕観察

① 試験の目的

福島第一原発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には必ずしも該当しないと認識される粒子が複数発見されている。そのため、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。また参画機関内で共有を図る際に基礎情報を統合的に取りまとめる必要がある。本年度は、前年度の報告書で課題として示した小石状粒子試料がこれまでに見つかった放射性粒子の亜種であるのか評価すべく、西側地域に注目し放射性微粒子の観察を行った。

② 試験装置

放射性微粒子の外観及び表面付近の元素を特定するため、前年同様、図 3.2.1-1 に示す 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。同装置は上部に最大加速電圧 30 kV 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 (BSE) 像と二次電子 (SE) 像の2種類に対応しており、特に 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、更に 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 SEM では困難なマイ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、前処理が不要とすることができるため、JAEA/CLADS の SEM で観察すれば、その後、他の参画機関においてカーボンコーティングが邪魔をするような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 EDX 付き日本電子製走査型電子顕微鏡 (SEM)

③試験結果

基礎情報の整理を目的に JAEA で分離した粒子に加え、再委託先の 1 つである大阪大学が福島第一原発周辺で採取し、分離を行った粒子も観察した。うち代表的な粒子の SEM 像を図 3.2.1-2 に示す。すべて原発西部の帰還困難区域で採取した土壌から分離した放射性粒子である。外見上、A、B、D は球状ではなかったり、C のように複数の球がまとまったような形態を示したりするものも認められた。また E や F のように土壌鉱物と強く結合している粒子も認められた。

知的財産保護のため非公開

図 3.2.1-2 観察した粒子の例 (D 以外は BSE 像)

④試験結果の分析と考察

本年度分析した西側で採取した放射性微粒子は E を除き、数ミクロンから数十 μm の大きさを有し、EDX で Cs のピークも確認された。また放射能もセシウム 137 で最大 200 Bq 程度 (平成 23 年 3 月 11 日時点に壊変補正) であり、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 同位体比も 1.02-1.06 の値を示したことから、既報のタイプ A⁽¹⁾ の亜種と分類した。また E は土壤鉱物に水溶性のセシウムが多量に吸着されたものと推定していたが、SEM-EDX により、図中矢印の箇所にタイプ A の放射性粒子が埋没していたことが判明した。

一方、前年度に確認された小石状の放射性微粒子 (平成 30 年度成果報告書⁽²⁾ 図 3.2.1-2 (A)-(D) 便宜上、放射性粒子 X とする) は、今年度の西側試料からは確認されず、加えて JAEA で実施している他の試験でも同じ結果であった。したがって放射性粒子 X は福島第一原発南西から南側の限られた地域にのみ分布している可能性が高く、粒子は環境中で特定の土壤鉱物が Cs を吸着して二次的に生成したのではなく、何らかのイベントで微粒子として直接福島第一原発から放出した可能性が高まった。

そこで福島第一原発南側で採取した放射性粒子 X について、英国に輸出し Lab. CT による断層撮影、及び英国放射光施設である Diamond Light Source (DLS) において X 線蛍光分析を行い、セシウムの濃集箇所の特定、ならびに粒子の内部構造分析といった、追加の特性評価を行った。英国で実施した Lab. CT の一例を図 3.2.1-3 に示す。図 3.2.1-3 中の A、B どちらの粒子も部分的にクラックが認められるものの、基本的に内部は密に詰まっており、タイプ B に普遍的に見られるような気泡は認められなかった。また、どちらも主成分はケイ素、アルミニウム、及び鉄であり、A のように赤-黄色を示す部分的に X 線吸収が強い箇所は鉄が分布していた。この結果を踏まえ、新たな図 3.2.1-2(E) のように非放射性の土壤鉱物のようなものにタイプ A のような数ミクロン程度の放射性微粒子が付着し、見かけ上、新たな放射性微粒子を形成している可能性を検証するため、DLS の I18 ビームラインにおいて、マイクロ集光 X 線ビームによる三次元 X 線蛍光分析を行ったが、セシウムの濃集点は認められなかった。したがって放射性微粒子 X は、セシウム同位体比が大変近いタイプ

A が鉍物に付着したものではないと確認された。ゆえに放射性微粒子 X は、これまでに確認されてきた放射性粒子 2 種に新たに加わるタイプ C (仮称) と認められた。

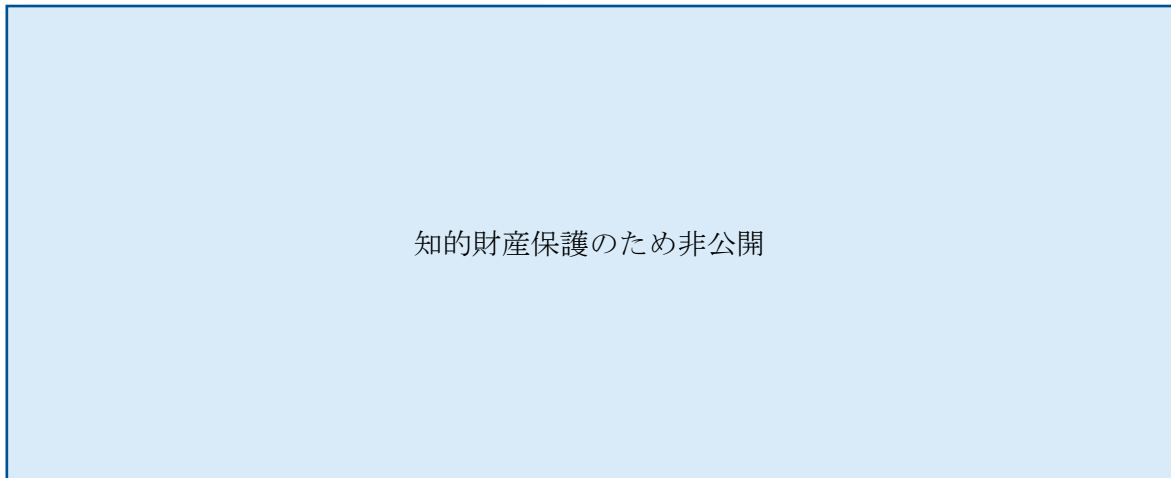


図 3.2.1-3 lab. CT の結果

⑤まとめ

本実施項目では前年度に続き、サンプルアーカイブに収載する放射性微粒子の基礎データを取得すること、及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、放射性粒子を SEM-EDX で観察を行った。結果、前年に報告した放射性微粒子 X は、英国との共同試験の結果も踏まえ、新たな種類である (暫定的にタイプ C) と認めた。

(2) 二次イオン質量分析装置を使用した元素分析

①試験の目的

放射性粒子はセシウム 137 のような数十年単位の半減期を有する核種に加え、数万年の半減期かつ α 放出核種であるウラン及びその子孫核種が含まれている可能性があり、それらは健康影響を含め廃炉作業中のリスクとなり得る。また本受託研究では放射性微粒子の出所特定にセシウム 134 (半減期 2.04 年) とセシウム 137 (半減期 30.07 年) を用いているが、セシウム 134 は事故から 9 年余りが経過し、減衰が進んだことで徐々に γ 線スペクトル測定での評価が難しくなっており、セシウム 134 に代わる評価手段が必要である。セシウムの同位体であるセシウム 135 は半減期が約 230 万年で、他のセシウム同位体同様に福島第一原発事故でも生成・放出されており、原子数でセシウム 137 の 1/3 程度の量が生成したことがモデル計算により判明している⁽²⁾。したがって理論上はセシウムに関しては容易に捉えることが可能であると期待される。そこで本受託研究では質量分析装置を用い、これらの長半減期核種の測定について基礎的な検討を実施した。

②試験装置

JAEA/CLADS 保有の二重収束型二次イオン質量分析装置 (Dyanmic SIMS) を用い、長半減期セシウム及びウラン同位体の分析を試みた (図 3.2.1-4)。本装置は加速した酸素イオン

を試料に衝突させ、試料の表面から放出される 2 次イオンを静電分析器 (ESA) と分析磁石 (SF) を通すことで目的の質量数のイオンを検出器でカウントする装置である。JAEA/CLADS ではフランス CAMECA 社製の高分解能 Dynamic SIMS を保有しており、質量分解能は通常の使用において (m/z) 10000 である。

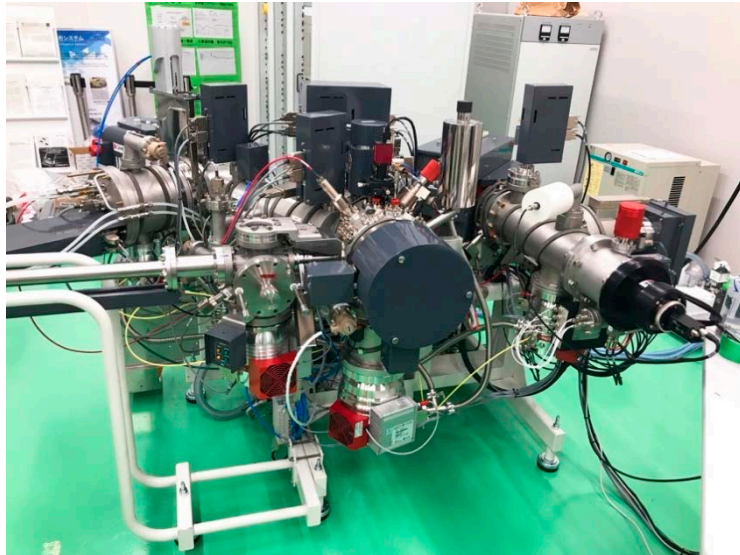
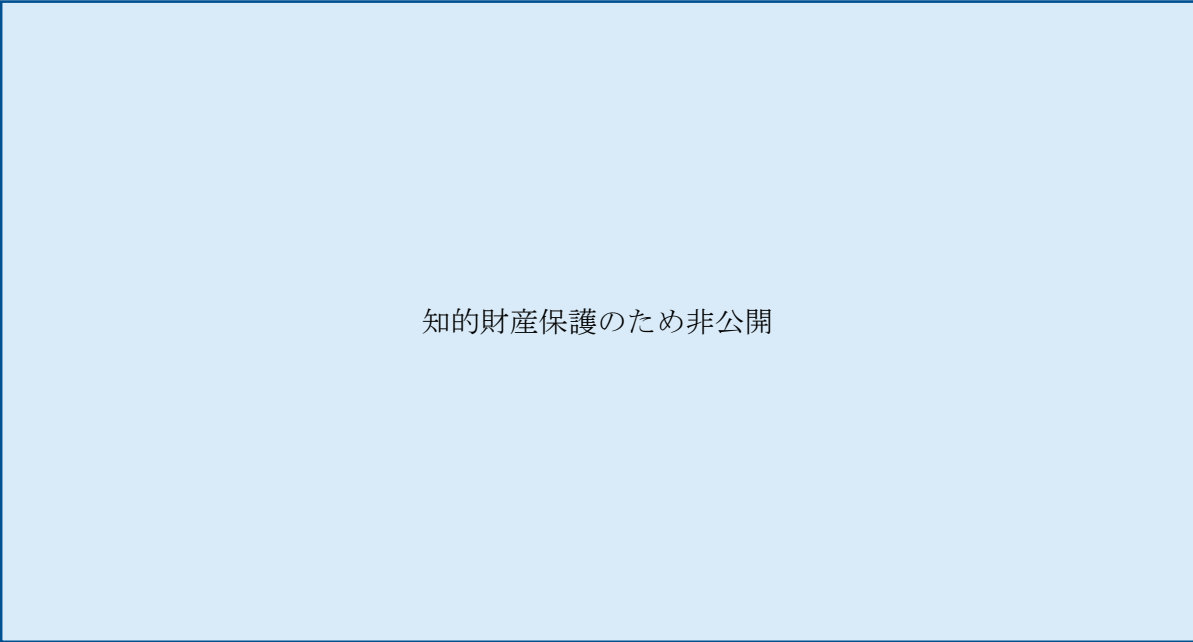


図 3.2.1-4 試験に使用した二次イオン質量分析装置

③試験結果

1号機由来であるタイプB粒子を対象にSIMSを用いた長半減期核種の検出のための予備的試験を実施した。代表的な粒子の主要構成元素とCs同位体のマッピング結果を図3.2.1-5に示す。放射性微粒子を構成する主要元素であるSi、Fe、Zn、Alが検出された。これらの元素はサンプルステージ上の放射性微粒子を発見する上で指標となる元素であるため、準備した放射性粒子を確実に捉えていたことが確認された。次にCsの主要同位体である質量数 (m) 134、135、137も検出された。一方、ウランを含む鉛よりも重い元素を検出することはできなかった。



知的財産保護のため非公開

図 3.2.1-5 SIMS を用いた元素分析の例

④試験結果の分析と考察

まず本試験において、試料をそのまま SIMS に装荷するだけでは測定困難であった。これは、放射性微粒子は主成分がケイ素のため、通常の方法ではチャージアップしてしまい分析が困難となるためである。その対策として本試験では試料以外の導電性を高めるため、サンプルステージにカーボンナノチューブでできたヤモリテープを使用した。また 10 nm 程度となる分厚いカーボンコーディングを実施した。そして測定中は試料に対し中和電子銃から電子 (e^-) を照射し、試料の帯電防止を行った。そうすることで結果に得られたようなケイ素を含む不導体であってもマッピングを取得することが可能になった。

次にセシウムの同位体比について図 3.2.1-6 に示した。本試験は予備試験として行っており精度は期待できないが、セシウム 135 とセシウム 137 の比はおおよそ 1:2 とされた。当然ながらこの値は ICP-MS で取得したセシウム同位体比の結果に比べ不確さも大きく、装置の調整を含む改善の余地は大きいものの、現状では試料を溶液化させるような前処理を不要として、セシウム同位体比を検出できるレベルであることが確かめられた。

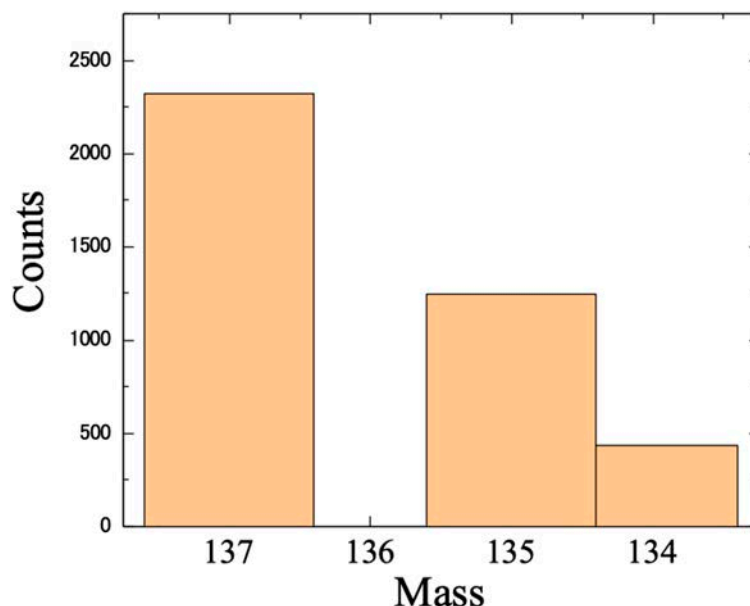


図 3.2.1-6 放射性セシウム同位体の質量ごとのカウント数

一方、ウランの検出は今回取り扱った試料では確認が困難であった。その理由として、再委託先の東京理科大学で行った放射光による試験でも明らかとなっているが、福島第一原発由来のすべての放射性微粒子にウランが含まれているということではなく、むしろ含まれている例の方が少ないということが挙げられる。また放射性微粒子中のウランは、粒子全体というよりは更に小さな数ミクロン程度の微粒子として包含されており、その領域を、FIB を用い露出させ、ピンポイントで 1 次イオンビームを照射しないと検出が難しいことが英国側の試験でも判明している (図 3.2.1-7)。一方、放射性微粒子自体に材料由来のバックグラウンドとして天然ウラン (^{238}U) が含まれており、溶液化してしまうと福島第一原発由来と元々存在した天然ウランが混じってしまい、ICP-MS のような質量分析法で同位体比評価するのはほぼ不可能である。したがって、ウランの由来として福島第一原発事故であるか疑義があるものに対しては SIMS を用いた評価は大いに意義があるが、ルーティン的にウランの同位体比評価のために破壊分析になってしまう ICP-MS を用いた評価の実施には、疑念が持たれる結果となった。

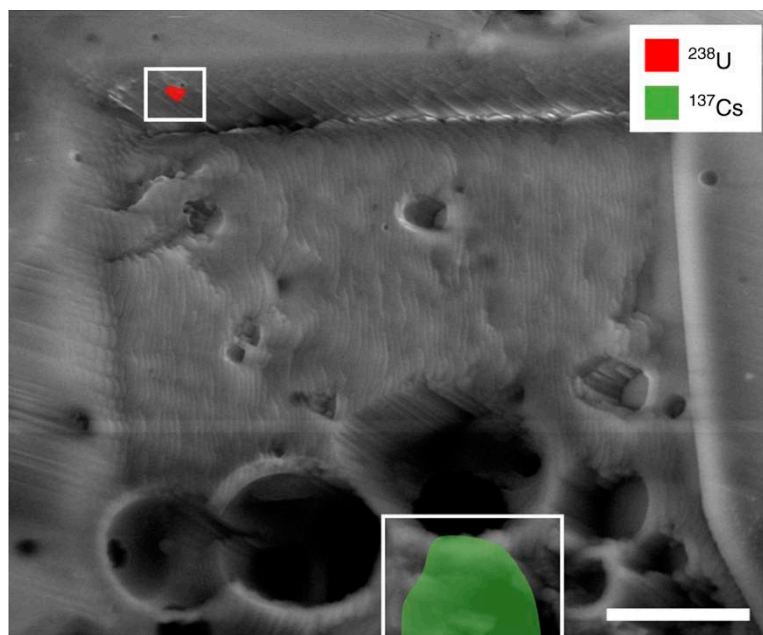


図 3.2.1-7 英国側で実施した FIB で加工しウランの塊を露出させ SIMS で質量測定した例⁽³⁾
スケールバーは 10 ミクロンを表す。

⑤まとめ

本実施項目では放射性微粒子タイプ B に含まれる長半減期のセシウムやウランが SIMS で測定できるか評価を実施した。結果、日英合同での試験結果も踏まえ性能的には十分可能であることが確認された。しかしその一方でウランの混入割合に加え、放射性微粒子の資料としての重要性を鑑みると、むやみやたらに破壊分析をすることは躊躇われることから、最終年度に向けた試験についてはその必要性を熟慮することとした。

(3) 放射性微粒子を管理し系統的に分類評価するためのサンプルアーカイブの検討

①サンプルアーカイブの概要

サンプルアーカイブは物理的に放射性微粒子を管理する保管庫の設置と、放射性微粒子がどこで発見され、どのような分析を行い、現在の保管状況を一元管理できるデータベースの 2 つの要素から構成される。本年度は英国側と協力しデータベースの要件の決定を行い、英国側で試験的なプログラミングを実施した。なお本件については英国側の報告書にも情報を記している。

②データベースの要件

データベースは、個々の放射性微粒子の出所、ガンマ線スペクトルや SEM 観察、EDX による元素分析といった放射性微粒子を共有、保管する上での必要最低限の情報に加え、その後、実施される可能性のある破壊を含む微粒子の分析結果も一元的に集約し、将来的に放射性微粒子の履歴を利用する必要性が生じた時に応えられるよう、備えることが重要である。データベースにはこれまでの日本側の経験から、1 つの試料（たとえば環境中で採取した土壌）から複数個の放射性微粒子が分離されることを前提にした情報整理が求められる。

また本課題の固有の問題でもある複数の研究機関が参画することで、放射性微粒子の所在や分析（破壊）状況を把握することも必要で、そのため、試料の操作履歴が記録できるよう設定した。なお当面は日英で独立した運用を実施するため、オフライン環境で使用することを前提に SQL サーバーベースのシステムとした（図 3.2.1-8）。

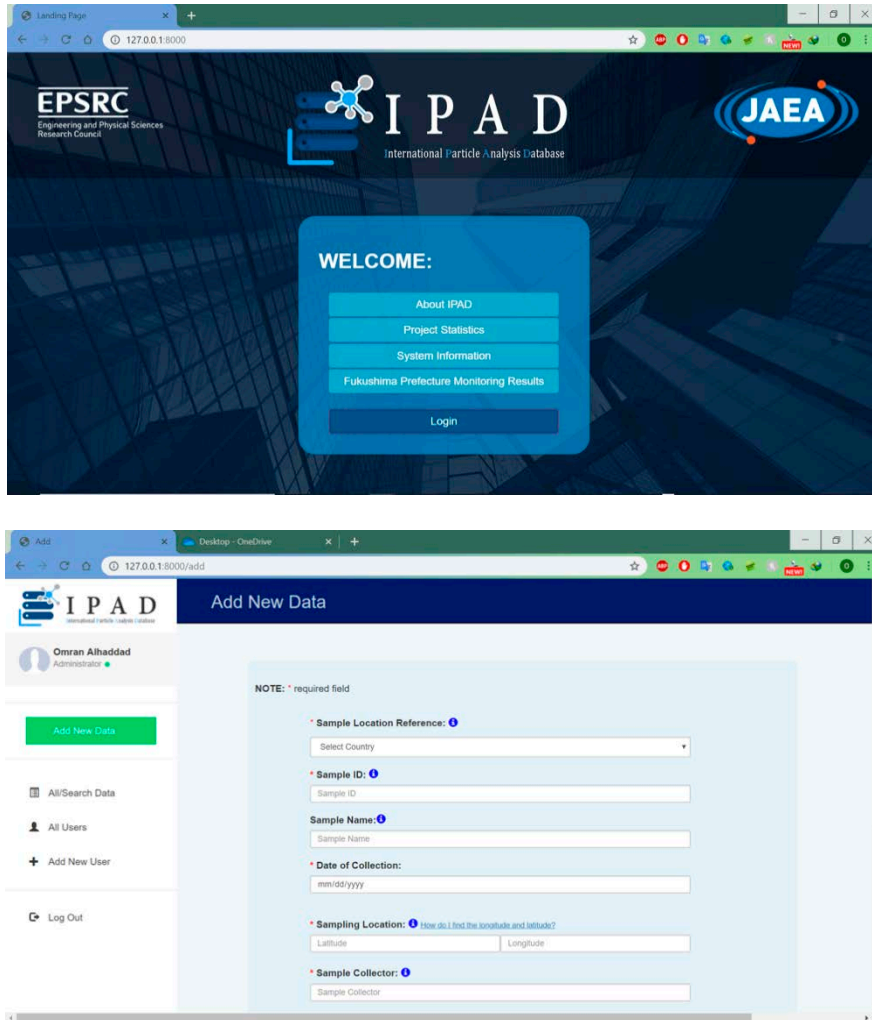


図 3.2.1-8 データベースソフトウェア（International Particle Analyse Database:iPAD）のスクリーンショット

参考文献

- (1) Y. Satou et al., *Geochem. J.* 52, 137-134 (2018).
- (2) 廃炉国際共同研究センター，茨城大学，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 年度成果報告書英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業，JAEA-Review 2019-041, (2020).
- (3) P.G. Martin et al., *Nature Communications*, 10, 2801 (2019).

3.2.2 放射性微粒子の帯電状態及び表面状態の分析に関する研究(再委託先:慶応義塾大学)

(1) 試験の目的

福島第一原発事故によって発生した不溶性の放射性 Cs 微粒子は β 崩壊により電子線を放出しているため粒子自身は自家帯電している可能性が示唆されている。本研究では、放射性 Cs 微粒子の物性のうち特徴的である帯電状態を解明し、放射性 Cs 微粒子の回収などの除染技術に資することを目的としている。具体的には、KPFM法を用いて、放射性 Cs 微粒子の電気的特性を明らかにする事を目指して実験を行っている。KPFMはSPMの測定モードの一種であり、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。前年度までに、基板上の任意の面の電位を任意に設定し、それを測定することで、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。

ここで前年度までの段階では、放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定条件が最適化されてはいなかったため、本年度はその最適化を試みた。しかし、放射性 Cs 微粒子のサンプル数は非常に限られており、条件の最適化にあたって様々な検討を繰り返すことは困難である。そこで、まず比較的採取が容易である環境大気中粒子について検討を行い、そこで得られた測定最適条件を基に、放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定を行うこととした。

(2) 試験装置

基本的な試験装置及び測定条件は前年度と同様であるが、ここに再掲する。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 型ドーピングシリコン(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すべて 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 $^{\circ}\text{C}$ 、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。なお、毎回の測定条件は測定ごとに微調整しており、測定時の条件は各図の脚注に示してある。

(3) 試験結果

① 大気粒子の KPFM 測定の検討

大気粒子の表面電位測定を行う際には、グリッド付きガラス基板上に自作のインパクター(図 3.2.2-1(左))を用いて粒子の捕集を行い、これを図 3.2.2-1(右)に示す

実験系を用いて KPFM 測定を行った。ここで、導電性カーボンテープには日新 EM 製の SEM 用両面カーボンテープを、またグリッド付きガラス基板には松浪硝子工業製の GC1300 グリッド付 13 φ カバーガラスを使用した。

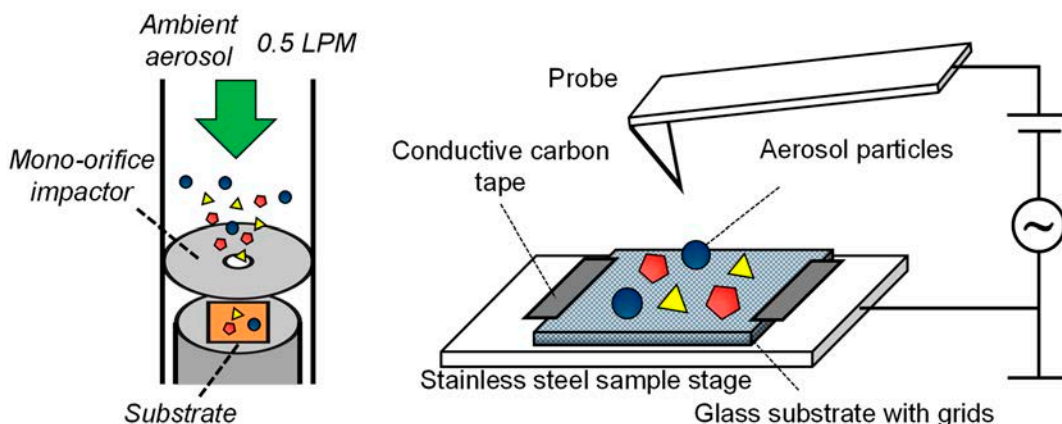


図 3.2.2-1 (左) 大気粒子の捕集方法 (右) 大気粒子の KPFM 測定系の概略図

以上の実験系により、令和元年 5 月に環境大気中粒子を捕集し、その後 KPFM 測定した結果の例を図 3.2.2-2、3 に示す。また、この Sample 1 及び 2 のサンプリング条件をまとめたものを表 3.2.2-1 に示す。これらの結果は、30 視野の環境大気中粒子を測定したうちから 2 つの視野を選んだものである。また、環境大気中粒子のサンプリングは各日に行っており、KPFM 測定はその日に捕集された粒子について実施した。この測定条件パラメータは測定日やサンプルによって同一ではなく、実際に Sample 1 と 2 の測定条件パラメータも若干異なるが、複数回の試行を繰り返すことで一定の最適化を図ることに成功した。

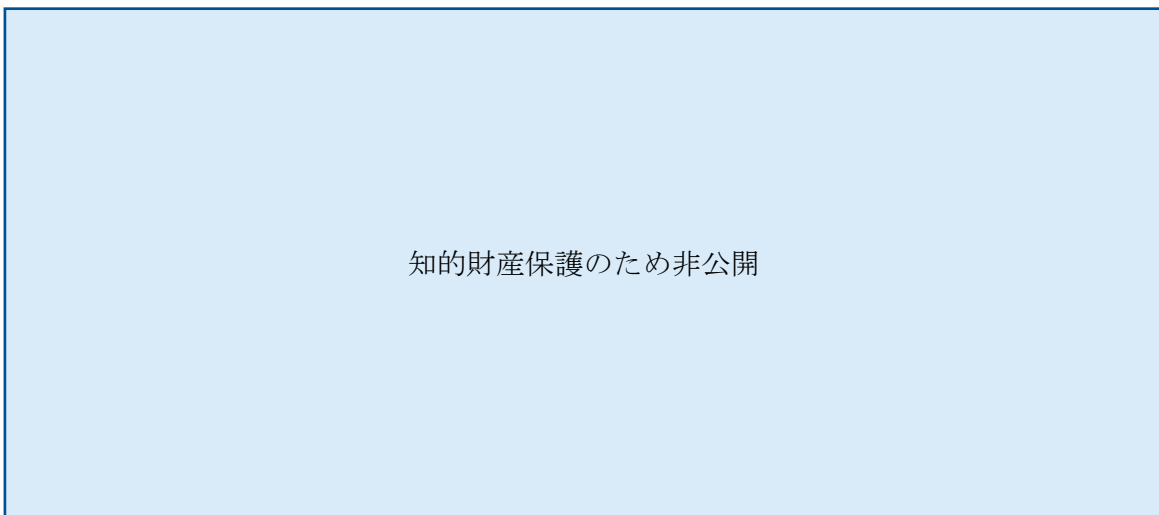


図 3.2.2-2 環境大気中粒子 Sample 1 の KPFM 測定結果 (左：高さ像 右：表面電位像)

Cantilever: EFM (Nano World), Lever Rate: 75.055 kHz, Lever Gain: 0.0350
 Cantilever Bias Gain: 0.7000, Cantilever Bias Rate: 65.573 kHz, Calibration: 0.25 V
 Scanning Size: 10 μm × 10 μm, Scanning Rate: 0.10 Hz
 Operating Point: 0.215 V, Internal Gain: 1200, Proportional Gain: 0.001

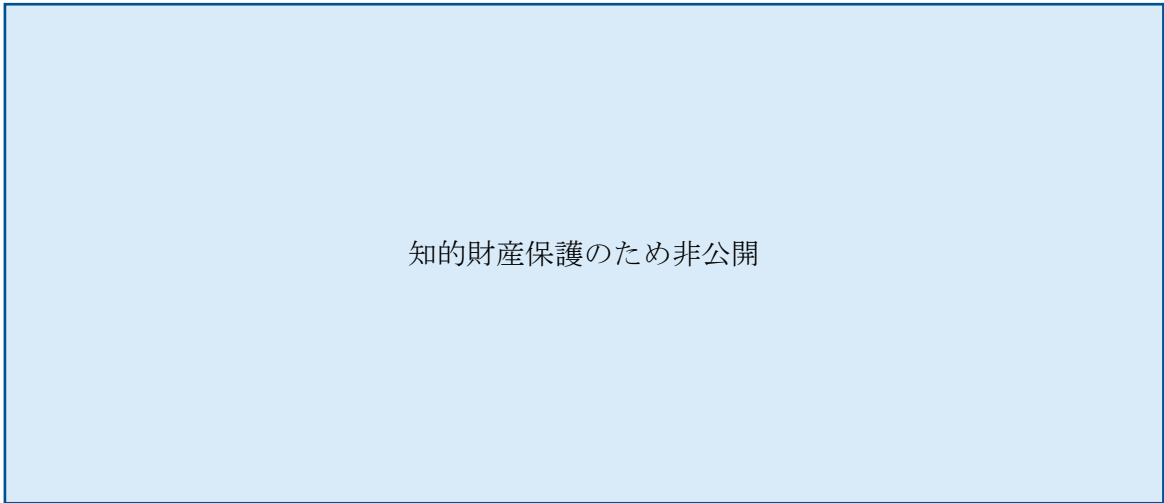


図 3.2.2-3 環境大気中粒子 Sample 2 の KPFM 測定結果 (左 : 高さ像 右 : 表面電位像)

Cantilever: EFM (Nano World), Lever Rate: 74.163 kHz, Lever Gain: 0.0300
 Cantilever Bias Gain: 0.5000, Cantilever Bias Rate: 64.573 kHz, Calibration: 0.00 V
 Scanning Size: 10 μm × 10 μm, Scanning Rate: 0.10 Hz
 Operating Point: 0.180 V, Internal Gain: 1000, Proportional Gain: 0.001

表 3.2.2-1 環境大気中粒子 Sample 1, 2 のサンプリング条件

Sample No.	Sampling Date	Sampling Flow	Particle Size	Sampling Time
1	2019/5/17	0.5 LPM	0.3-0.5 μm	10 min
2	2019/5/15	0.5 LPM	0.3-0.5 μm	30 min

測定結果について述べる。まず Sample 1 について、多くの粒子が基板と等しい表面電位であった。基板の電位が通電されているために 0 V であると仮定すれば、粒子の表面電位が 0 V であると判断できる。ここで、基板に対して正及び負それぞれの表面電位を持った粒子もいくつか確認された。粒子の表面電位の値は、高いもので +0.2 V、低いもので -0.3 V の範囲であった。また、図 3.2.2-2 の高さ像と表面電位像を見比べると、比較的大きな粒径を持つ粒子が大きな表面電位を持つとは限らず、かなり小さい粒子が絶対値の大きい表面電位を持っている傾向があった。

次に図 3.2.2-3 では、Sample 2 のほぼすべての粒子の基板との表面電位の差は 0 V として測定された。ただし 1 箇所のみ、画面中央下部に赤色に示される特異的に大きな表面電位を持つ粒子が見出された。この粒子の表面電位は約 +0.5 V であった。このように、環境大気中粒子の中には、特異的に大きな表面電位を持っている粒子が見出されることがあった。

本項で得られた環境大気粒子の帯電状態は、今後得られる放射性 Cs 粒子の帯電状態と比較する上で貴重な情報であると考えられる。

②KPFM 及び SEM の同一サンプルについての測定の試み

前項で示した環境大気中粒子の高さ像及び表面電位像より、高さ像では大きな特徴の見受けられない粒子が、正及び負の特徴的な表面電位を持っている場合があることがわ

かった。つまり環境大気中粒子においては、KPFM による表面電位の測定によって初めてその特徴が明らかとなるような粒子が存在すると言える。したがって、同一視野において KPFM と SEM 測定を実施し、粒子の帯電状態と化学成分を同時に明らかにすることで、従来法では達成できなかった粒子の詳細な物性情報を得ることができるようになると考えられる。

KPFM 測定と SEM 分析を同一のサンプルで達成するためには、KPFM の際のプロープの位置を明確にすることと、粒子の基板への捕集量を多くしすぎないこと、の 2 つの条件が求められるものと考えた。そして、これらの条件を考慮した上で新しく環境大気中粒子のサンプリングを行い、このサンプルを Sample 3 とした。サンプリング日時は令和元年 6 月 14 日で、サンプリング時間は 10 分とし、残りのサンプリング条件は表 3.2.2-1 と同様とした。このサンプルについてある狭域の KPFM 測定を行った結果を図 3.2.2-4 に、ほぼ同一視野の SEM 観察写真を図 3.2.2-5 に示す。KPFM による高さ像と SEM 像を比較すると、両者は、粒子の形状や分布状態がほぼ一致していた。これより、測定前のサンプリング及び KPFM 直上の光学顕微鏡での撮影に注意を払うことで、同一の粒子について KPFM 及び SEM 測定を行えることが分かった。

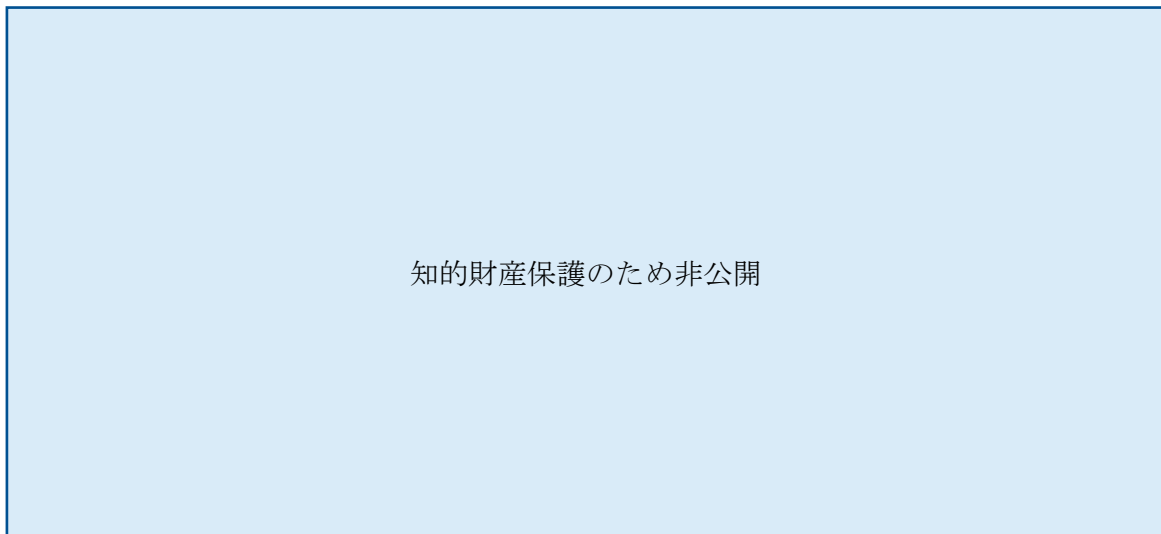


図 3.2.2-4 環境大気中粒子 Sample 3 の KPFM 測定結果 (左 : 高さ像 右 : 表面電位像)

Cantilever: EFM (Nano World), Lever Rate: 73.416 kHz, Lever Gain: 0.0500

Cantilever Bias Gain: 0.5000, Cantilever Bias Rate: 64.000 kHz, Calibration: -0.10 V

Scanning Size: 10 μm \times 10 μm , Scanning Rate: 0.10 Hz

Operating Point: 0.220 V, Internal Gain: 800, Proportional Gain: 0.001

知的財産保護のため非公開

図 3.2.2-5 Sample 3 の SEM 観察結果 (図 3.2.2-4 と同一視野の粒子群)

③ 放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定

平成 26 年 4 月に福島県内の帰還困難区域にある屋外プールより採取された堆積物より乾式分離⁽¹⁾された放射性 Cs 微粒子 (CsMP) をサンプルとした。この放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定を行った際の実験系概略図を図 3.2.2-6 (左) に示す。放射性 Cs 微粒子のガラス基板上への固定には TERAOKA 製カプトンテープ及び導電性カーボンテープを使用した。また、実際のサンプルの写真を図 3.2.2-6 (右) に示す。KPFM 測定結果を図 3.2.2-7 に示す。

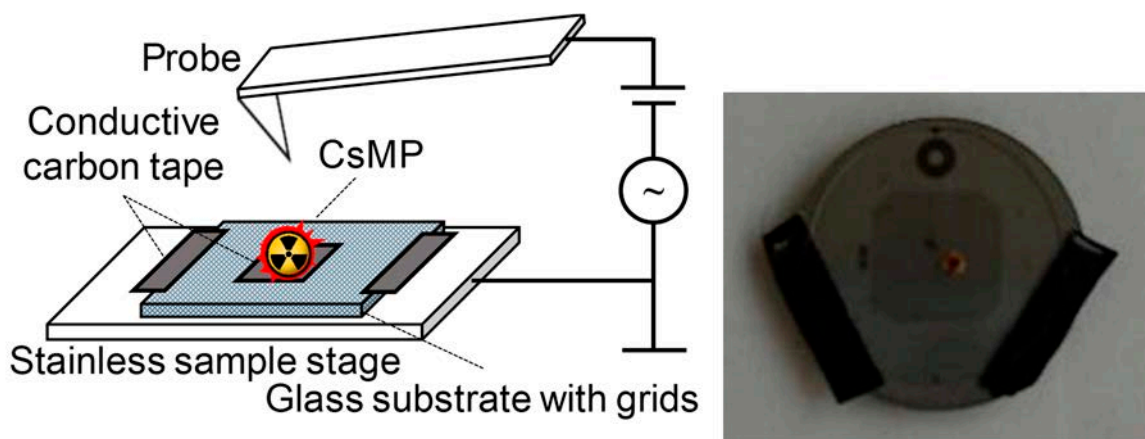


図 3.2.2-6 (左) 放射性 Cs 粒子の KPFM 測定実験系概略図 (右) 放射性 Cs 粒子サンプル

知的財産保護のため非公開

図 3.2.2-7 放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定結果 (左 : 高さ像 右 : 表面電位像)

Cantilever: EFM (Nano World), Lever Rate: 77.249 kHz, Lever Gain: 0.0600

Cantilever Bias Gain: 0.5000, Cantilever Bias Rate: 67.073 kHz, Calibration: -0.40 V

Scanning Size: 5 μm \times 5 μm , Scanning Rate: 0.10 Hz

Operating Point: 0.220 V, Internal Gain: 1000, Proportional Gain: 0.001

図 3.2.2-7 (右) の表面電位像において、放射性 Cs 微粒子はその表面電位に分布を持っていた。とりわけ、粒子の外縁部の表面電位が 0.3 V 程度近くと非常に高くなっているという特徴があった。このことについて、まず考えられる原因はプローブ形状に起因するエッジ効果である。一般的なエッジ効果の発生概略図を図 3.2.2-8 に示す。この図の左側のプローブのように、プローブがサンプルの平滑な面に対して垂直真上に存在する場合、プローブはその先端のみからサンプルとの間の相互的な力を検知することとなる。一方で、図の右側のプローブのように、サンプルの高さが急激に変化している箇所の近傍に位置している場合は、サンプルは先端の他にその側面からもサンプルとの相互的な力を検知することとなる。これによるプローブ走査測定結果への影響がエッジ効果である。ここで、図 3.2.2-7 において大きな表面電位を持っている粒子外縁部分は、確かに粒子の高さが大きく変化している部分であり、ある程度はエッジ効果の影響が認められるところである。しかし、他の複数の KPFM 測定結果より、エッジ効果が粒子に対して表れる場合には走査方向手前に顕著に表れることが多いことを確認している。図 3.2.2-7 で言うと、走査は視野の左から右に対して行われているため粒子の左側で強く発生するものと考えられる。これに対して図 3.2.2-7 では、粒子の左右両側で表面電位の増加が見られている。また、走査方向奥側では、エッジ効果による表面電位の変化が手前側に比べてテール状に伸びる傾向があるが、図 3.2.2-7 ではそれが確認されない。

以上の理由から、図 3.2.2-7 における粒子外縁での表面電位の増加はエッジ効果のみによるものではなく、放射性 Cs 微粒子が粒子表面上に持つ表面電位の偏りの一部であると考えられる。

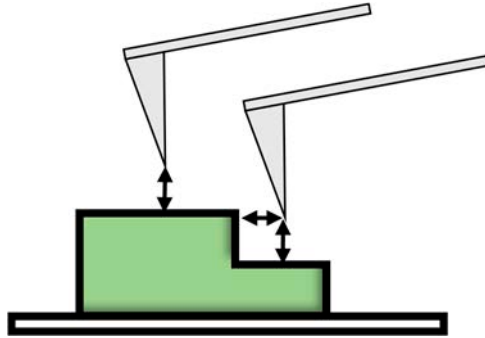


図 3.2.2-8 プローブによるエッジ効果の発生概略図

今回の結果は、放射性 Cs 微粒子が持つ化学的な不均一性を表しているものと考えられる。一般に放射性 Cs 微粒子は放射性 Cs と原子炉の材料が不均一に混合して生成されたものであり、その粒子内部で放射性 Cs は必ずしも均一に分布しているわけではない⁽²⁾。また、放射性 Cs はとりわけ粒子表面上に多く分布していることが報告されている⁽²⁾⁽³⁾。図 3.2.2-7 のような放射性 Cs 微粒子の表面電位像は、粒子の表面における構成成分の混合状態をよく表しているものと考えられた。

④ 薄片化されたタイプ B 放射性微粒子の KPFM 測定の検討

薄片化された放射性 Cs 微粒子のタイプ B 粒子について KPFM 測定を行った。本試料は JAEA が英国側に輸出し放射光実験ならびに X 線 CT を撮像し、セシウムの濃集点が判明した試料に対し FIB を用い剥片化したものである。測定の概略を図 3.2.2-9 に示す。試料は約 300 μm 四方の直方体の形状をしており、イオンビームによって平滑な断面が露出するよう切断されたタイプ B 粒子であった。また、断面が水平となるように導電性カーボンテープによって固定した。

この粒子について、KPFM 測定を行った結果を図 3.2.2-10 に示す。この測定の際の粒子に対するプローブの位置を、KPFM 直上の光学顕微鏡から撮影した写真を図 3.2.2-11 に示す。図 3.2.2-10 の高さ像からは、粒子表面が完全には平滑では無く、表面上に細かい凹凸を持っていることがわかる。この表面電位像において、周囲に比べて表面電位が低く（青く）なっている箇所は点在しているが、この表面電位の変化は高さ像に影響されたものである可能性がある。

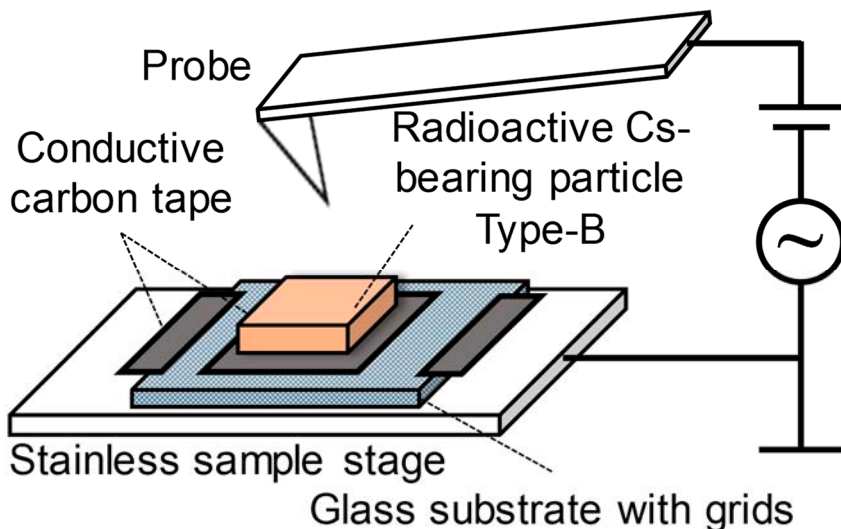


図 3. 2. 2-9 薄片化された放射性 Cs 微粒子の KPFM 測定系概略図

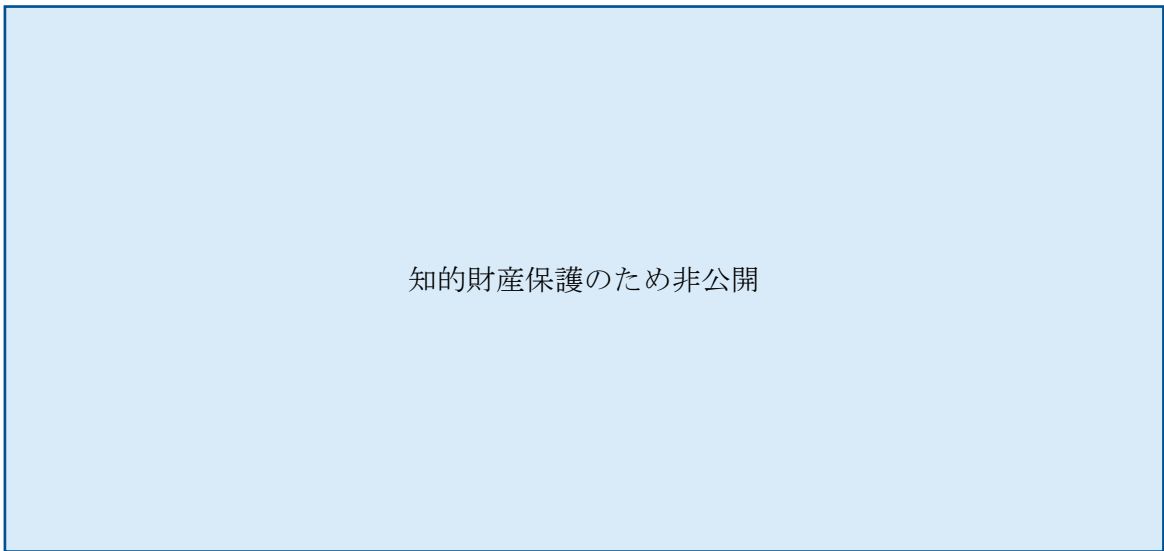


図 3. 2. 2-10 薄片化されたタイプ B 粒子の KPFM 測定結果 (1)

(左 : 高さ像 右 : 表面電位像)

Cantilever: EFM (Nano World), Lever Rate: 79.914 kHz, Lever Gain: 0.0400

Cantilever Bias Gain: 0.5000, Cantilever Bias Rate: 69.000 kHz, Calibration: 0.00 V

Scanning Size: 10 μm \times 10 μm , Scanning Rate: 0.30 Hz

Operating Point: 0.220 V, Internal Gain: 1500, Proportional Gain: 0.001

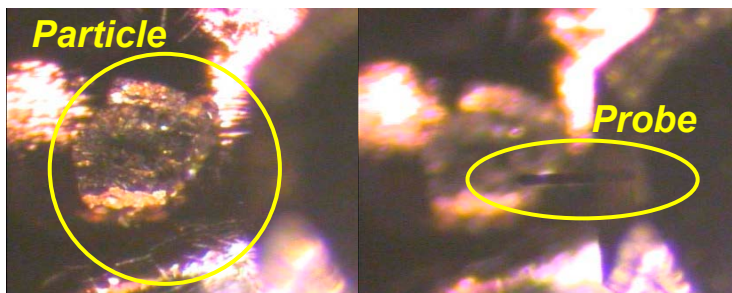


図 3. 2. 2-11 図 3. 2. 2-10 に示す測定実施時の粒子とプローブの位置

3.2-17

続いて、プローブの位置を変えて測定位置を変化させて行った KPFM 測定の結果を図 3.2.2-12 に、その際の粒子に対するプローブの位置の写真を図 3.2.2-13 に示す。図 3.2.2-12 の高さ像を見ると視野右下の部分など特に、図 3.2.2-10 のものに比べて平滑な断面をしていることがわかる。ここで表面電位について見ると、表面電位が高く（赤く）なっている部分は高さ像において隆起している部分の近傍であり、こちらも表面電位が高さ像に影響を受けているものと考えられる。

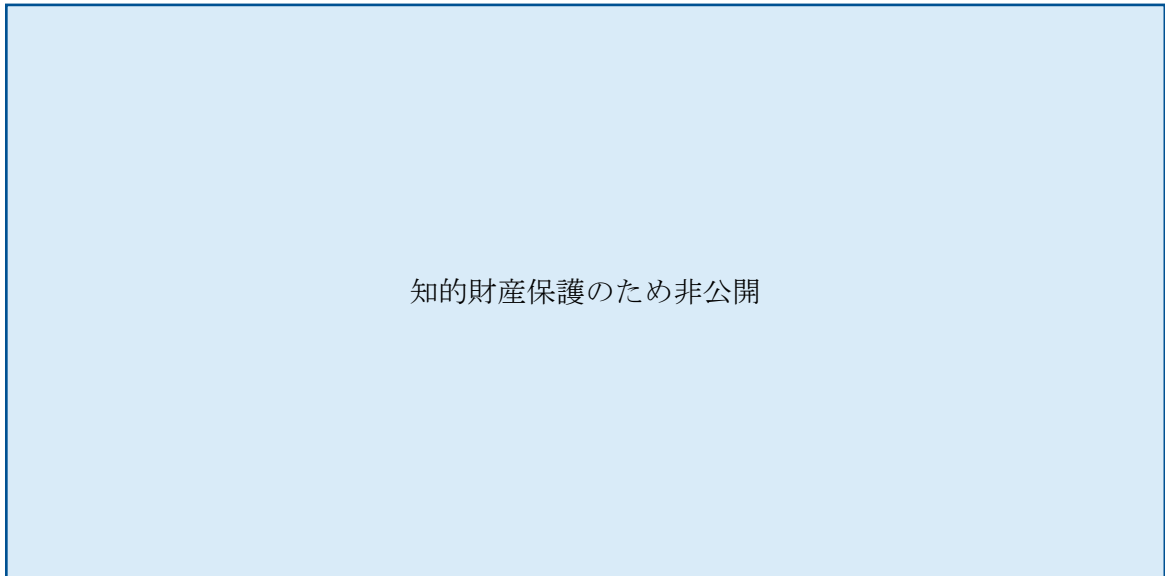


図 3.2.2-12 薄片化されたタイプ B 粒子の KPFM 測定結果(2)
(左：高さ像 右：表面電位像)

Cantilever: EFM (Nano World), Lever Rate: 79.914 kHz, Lever Gain: 0.0300
Cantilever Bias Gain: 0.5000, Cantilever Bias Rate: 69.000 kHz, Calibration: 0.00 V
Scanning Size: 10 μm \times 10 μm , Scanning Rate: 0.30 Hz
Operating Point: 0.130 V, Internal Gain: 1500, Proportional Gain: 0.001



図 3.2.2-13 図 3.2.2-12 に示す測定実施時の粒子とプローブの位置

以上の結果より、タイプ B 粒子について KPFM 測定を行う上では、粒子表面上の起伏に課題があるものと考えられる。また、KPFM による測定視野は今回の測定では 10 \times 10

と、この粒子の大きさに比べて小さいものであった。測定視野は最大では $30 \times 30 \mu\text{m}$ であるが、視野が大きくなるほど測定は難しくなる傾向にある。大きな粒子の一部分のみについての情報しか得られないことになるが、粒子表面上での放射性 Cs の分布などの局所的な情報を得ることができれば、この問題は解決されたと考えられた。

参考文献

- (1) K. Adachi et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013).
- (2) T. Kogure et al., Microscopy, 65, 451-459 (2016).
- (3) N. Yamaguchi et al., Sci. Rep. 6, 20548 (2016).

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

福島第一原発事故由来の放射性粒子はエアロゾル⁽¹⁾⁽²⁾や土壌粒子⁽³⁾⁽⁴⁾から相次いで発見されており、物理・化学的性状に関する多くの研究が行われている。その主要元素については複数の研究によって定量的な組成が明らかになっているが、核燃料由来と目されるウランやその核分裂生成物に帰属される微量重元素については、定性的にその存在が示されているものの⁽²⁾、具体的な濃度は明らかになっていない。これは、放射性微粒子に含まれる重元素の分析に用いられている放射光マイクロビーム蛍光 X 線 (SR- μ -XRF) 分析において、 μm レベルの微小試料における定量的な解析法が十分に確立されていないためである。そこで本研究では、放射性微粒子の化学組成に似せて合成したガラスを用いて、放射性微粒子に含まれる重元素組成の定量的な解析に向けた基礎検討を行った。

前年度の研究において、放射性微粒子について 1 粒子レベルでの蛍光分析を実施し、一部の放射性微粒子が特徴的な蛍光特性を持つことを明らかとした。そこで今年度は、蛍光が示された放射性微粒子について、1 粒子単位で蛍光発光スペクトルを測定し、参照試料との比較を行うことで、その蛍光の原因の特定を目指した。また、蛍光の原因の一つと目されるウラニルイオン (UO_2^{2+}) が放射性微粒子に含まれているかを検証するため、U-L₃ 吸収端の放射光マイクロビーム X 線吸収端近傍構造 (SR- μ -XANES) 分析により、粒子中のウランの化学状態を検証した。また、自然界に存在するさまざまな物質について同様の条件で蛍光分析を実施することで、放射性微粒子が示す蛍光の特異性を検証し、蛍光特性を利用した放射性微粒子の分離・回収の可能性について検討した。

(2) 実験内容

① 分析試料

本研究で用いた放射性微粒子は、SPM 計によりテープ濾紙上に捕集されたエアロゾルから、先行研究⁽¹⁾⁽²⁾と同様の方法により単離された 8 粒子である。いずれも先行研究⁽⁵⁾でタイプ A に分類される性状を持つ。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、更にエネルギー分散型特性 X 線 (EDX) 分析による主成分組成の分析を行った。また、1 粒子単位で Ge-SSD によるガンマ線スペクトル測定を行い、¹³⁴Cs 及び ¹³⁷Cs の放射能を調べた。なお、今回の放射光実験及び蛍光スペクトル測定に用いた粒子は、いずれも昨年度までに分離、SEM-EDX 分析、及びガンマ線スペクトル測定が完了しているものである。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、これを放射光実験及び蛍光分析用の測定試料とした。

SR- μ -XRF 分析用の合成ガラスは、以下の手順で準備した。市販されている実験試薬の Na_2CO_3 、 CaO 、 SiO_2 を一定の割合で粉砕混合し、アルミナ製のつぼに入れてシリコニット電気炉にて最大温度 1,250 °C で焼成して、ソーダ石灰ガラスを合成した。このソーダ石灰ガラスを再度粉砕し、以下の 15 元素を含む原子吸光用の標準溶液を任意の割合で混合した

ものを6種類用意した：Cr、Mn、Fe、Cu、Zn、Rb、Zr、Mo、Ag、In、Sn、Sb、Te、Cs、U。これらをそれぞれアルミナ製のつぼに入れ、再度シリコニット電気炉で焼成することで、6種類の合成ガラス（Syn-A、B、C、D、E、F）を得た。合成後のガラスを粉末化し、放射性微粒子と同様にホルダ上に固定して、SR- μ -XRF分析を実施した。

蛍光分析においては、SR- μ -XRF分析によって有意な量のウランが検出された放射性微粒子5点の他に、以下を参照試料として測定した。まずUO₂²⁺イオンを含むガラスとして、市販の「ウランガラス」の製品を粉末化したものを用意して、「UO₂²⁺イオン含有ガラス」とした。このウランガラスは、非破壊のXRFにより、数百ppmのウランを含むソーダ石灰ガラスであることが確認されている。また、UO₂²⁺イオンと同様に紫外光の励起によって緑色蛍光を示すことで知られるMn²⁺イオンについても、実験室系のXRF装置及び分光蛍光光度計（励起波長：365 nm）によってその存在が確認された既製品のガラスを粉末化し、「Mn²⁺イオン含有ガラス」とした。また、放射性微粒子と同じくケイ酸塩ガラスを主成分とする環境試料として、日本全土に広く分布する「始良 Tn 火山灰」、関東平野全土を覆う「関東ローム」と、自然界に存在する代表的なガラス状物質である「黒曜石」を粉末化したものについてもそれぞれ参照試料として選定した。これらの参照試料を放射性微粒子と同様にホルダ上に固定した。

U-L₃吸収端SR- μ -XANES分析では、放射性微粒子の他に蛍光分析用のUO₂²⁺イオン含有ガラスについても測定した。

②放射光マイクロビーム複合X線分析

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、令和元年11月28日10:00から12月2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極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 μ m以下に集光し、この放射光マイクロビームをプローブとするさまざまなX線分析を複合的に実施することができる。本研究ではSR- μ -XRF分析により粒子の化学組成及び粒子内での元素分布を、SR- μ -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。なお、前年度に実施した実験の結果、X線検出器としてビームライン標準付属の8素子シリコンドリフト検出器（SDD）を用いるよりも、単素子Ge-SSDを用いた方が高エネルギー領域の計数効率が高いことが明らかになったため、今回のビームタイムではGe-SSDを利用した。なお本稿では報告しないが、試料の後方200 mmの位置にフラットパネル型X線検出器が設置されており、透過デバイ・シェラー法による粉末X線回折測定も可能である。放射光実験を実施したBL37XUの光学系模式図を図3.2.3-1に示す。

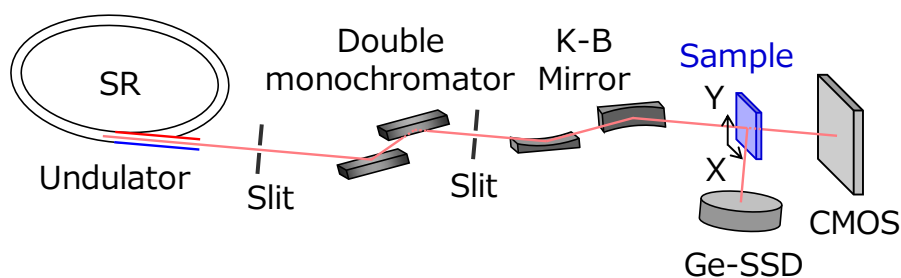


図 3.2.3-1 放射光実験を実施した SPring-8 BL37XU の光学系模式図

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（東京都港区白金台）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。前年度に実施した実験の結果、放射性微粒子の一部が波長 405 nm のレーザーによる励起で緑色蛍光を示すことが明らかになっているので、今年度の実験ではこの波長に限定して測定を進めた。

(3) 結果と考察

①放射性微粒子の放射光 X 線分析

事故直後に SPM 計によって採集されたエアロゾルから分離された放射性微粒子 8 点について、SR- μ -XRF 分析を実施した。図 3.2.3-2(a)に、そのうちの 2 粒子（粒子 X 及び粒子 Y）の SR- μ -XRF スペクトルを示した。なお、ここで報告する粒子 X は、前年度の報告書で一部の分析データを報告した粒子 A と同一の粒子である。前年度の報告書においては、この粒子について 8 素子 SDD を用いて得られた SR- μ -XRF スペクトルを報告したが、ここでは Ge-SSD を用いて再測定したスペクトルを示している。更に、この図には下地（カプトン粘着テープ）部分のスペクトルも併せて示してあり、各スペクトルの強度は励起 X 線（37.5 keV）のトムソン散乱線によって規格化して表示している。この励起エネルギーでは、ウランは K 線（K 吸収端：115.6 keV）ではなく L 線（L₃ 吸収端：17.2 keV、L₂ 吸収端：20.9 keV、L₁ 吸収端：21.8 keV）を用いて検出することになるが、U-L 線の多くは別の元素の K 線や L 線と重複してしまう。ただし 16.4 keV に検出される U-L β_2 線については、他の元素のピークから比較的区別しやすく、図 3.2.3-2(a)に示した粒子 X 及び粒子 Y のスペクトルでもはっきりと検出されている。同様に U-L β_2 線に着目することで、今回分析した 8 粒子のうち 5 粒子において、非破壊の SR- μ -XRF 分析で検出できる程度のウランを含むことが確認された。非破壊の SR- μ -XRF 分析の検出下限について、元素によって感度が異なるが、少なくとも 10 ppm のウランが含まれていれば U-L β_2 線によって検出できるものと予想される。

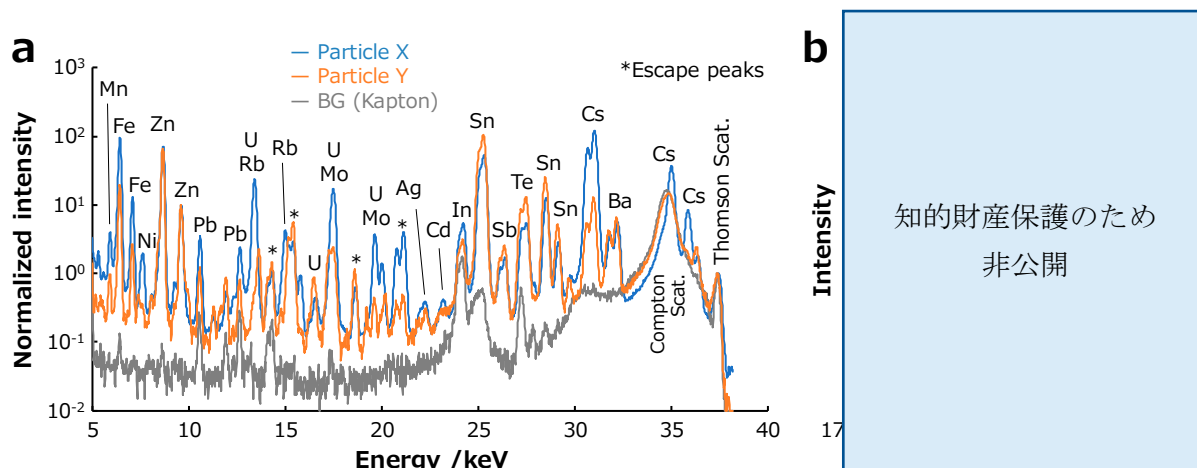


図 3.2.3-2 放射性微粒子（粒子 X, Y）の放射光 X 線分析の結果

(a) 37.5 keV 励起で得られた粒子 X, Y と下地（カプトン）の SR-μ-XRF スペクトルの比較

(b) 粒子 X, Y と UO_2^{2+} 含有ガラスの U-L₃ 吸収端 SR-μ-XANES スペクトルの比較

SR-μ-XRF 分析によって有意な量のウランを含むことが示された放射性微粒子のうち 2 粒子（粒子 X 及び粒子 Y）について、U-L₃ 吸収端の SR-μ-XANES 分析を実施した。粒子 X 及び粒子 Y の U-L₃ XANES スペクトルと、参照試料として測定した UO_2^{2+} イオン含有ガラスの U-L₃ XANES スペクトルを図 3.2.3-2(b) に示した。更に、図 3.2.3-2(b) には参照試料のスペクトルから予想した U^{4+} 、 U^{5+} 、 U^{6+} の吸収エネルギー（吸収が最大となるエネルギー）についても破線で示してある。放射性微粒子に含まれるウランは酸化数+6 (U^{6+}) に近い形で存在しており、更にそのスペクトルの形状は参照試料として測定した UO_2^{2+} イオン含有ガラスのものとよく一致した。ただし粒子 Y については、 UO_2^{2+} イオン含に比べて吸収のピークがシャープであり、酸化数+6 の別の化学状態のウランが混在している可能性もある。以上より、放射性微粒子に含まれるウランについて、今回分析した限りではガラス相中に UO_2^{2+} イオンの形で溶存しているものが主体であると判断された。

②SR-μ-XRF 分析による重元素組成の定量化に向けた基礎研究

合成した 6 点のガラス（Syn-A~F）について得られた SR-μ-XRF スペクトルを図 3.2.3-3 に示した。添加した各元素について、一部は段階的にピーク強度が変化していることがわかる。今後、この合成ガラスのスペクトルから各元素について検量線を作成し、放射性微粒子に含まれる重元素について定量化を試みる。ただし、一部の元素について焼成過程での揮発による損失が予想されるため、各元素の含有濃度については合成時の仕込み組成ではなく、酸溶解して ICP-AES や ICP-MS を用いて決定する予定である。また、今回分析した合成ガラスの他に、前年度に報告した米国標準技術研究所（NIST）製 SRM612 のような市販の認証標準ガラスについても同様に分析を進めた。ただし、図 3.2.3-2(a) 及び図 3.2.3-3 からわかるように、このエネルギー領域の重元素はピークの重複が避けられず、その濃度を定量的に評価するためには、ピークのデコンボリューションなど、スペクトルの解析が不可欠である。今回得られた合成ガラスのスペクトル（図 3.2.3-3）を基礎データとして、その解析方法の開発を行った。

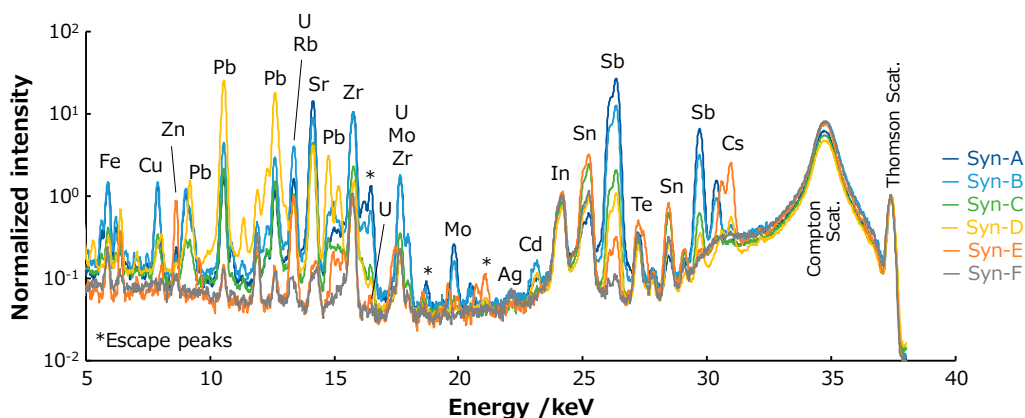


図 3.2.3-3 合成ガラス 6 点 (Syn-A～F) の SR-μ-XRF スペクトルの比較

③福島第一原発事故由来の放射性微粒子の蛍光特性

SR-μ-XRF 分析によって有意な量のウランを含むことが示された放射性微粒子 5 点について、波長 405 nm のレーザーを励起光とした蛍光を調べたところ、すべてにおいて特徴的な緑色の蛍光が観測された。そのうち、SR-μ-XANES 分析を実施した粒子 X 及び粒子 Y の蛍光発光スペクトルを図 3.2.3-4 に示した。この図には、同じ条件で測定した UO_2^{2+} イオン含有ガラスのスペクトルと、分光蛍光光度計 (励起波長 : 365 nm) によって UO_2^{2+} イオン含有ガラスを分析して得られたスペクトルも参考として示してある。ここに示していない 3 粒子を含め、放射性微粒子 5 点はいずれも 405 nm の励起波長に対して波長 520 nm に最大値を持つ緑色の発光を生じていることが、蛍光発光スペクトルの測定により明らかになった。

520 nm 付近を最大値とする蛍光という点は、参照試料として分析した UO_2^{2+} イオン含有ガラスとも対応するが、放射性微粒子の蛍光発光スペクトルは UO_2^{2+} イオン含有ガラスのそれらに比べて明らかにブロードであり、他の化学種が蛍光に関与している可能性も考えられる。図 3.2.3-2(a) を見ればわかるように、福島第一原発事故由来の放射性微粒子はウラン以外にもさまざまな重元素を含み、それらの化学状態によっては、波長 405 nm の励起光に対して蛍光発光を生じる可能性がある。緑色の波長領域に発光を生じる化学種として、 UO_2^{2+} イオン以外に Mn^{2+} イオンが挙げられる。 Mn^{2+} イオンは紫外領域の光によって励起され、波長 520 nm 付近を最大値とする緑色の発光を生じる。そこで、 Mn^{2+} イオン含有ガラスについて放射性微粒子と同一条件での蛍光分析を実施したが、波長 405 nm のレーザーによる励起では Mn^{2+} イオン含有ガラスは蛍光を生じないことがわかった。よって、放射性微粒子の一部で SR-μ-XRF 分析によって有意な量のウランが検出された点、更に SR-μ-XANES 分析によってそのウランが主に UO_2^{2+} イオンの状態で存在している点、そしてガラス相中の UO_2^{2+} イオンは紫外領域ではなく青色 (405 nm) の光でも励起される点を考慮して、本研究で明らかとなった放射性微粒子の特徴的な緑色蛍光は、ガラス相中の UO_2^{2+} イオンが主要な原因の一つであると結論付けられる。一方で、先述のように放射性微粒子の蛍光発光スペクトルは UO_2^{2+} イオンのものとは完全には対応しておらず、別の化学種の混在による影響も今後検証していく必要があると考える。

知的財産保護のため非公開

図 3.2.3-4 蛍光発光スペクトルの比較（多光子励起顕微鏡で得られた粒子 X, Y 及び UO_2^{2+} イオン含有ガラスのスペクトル（405 nm 励起）と、分光蛍光光度計で得られた UO_2^{2+} イオン含有ガラスのスペクトル（365 nm 励起））

本研究で示された放射性微粒子の蛍光特性を将来的に分離回収へと応用していくには、この蛍光特性、すなわち「波長 405 nm の光で励起され、波長 520 nm を中心とした緑色の蛍光を生じる」という特性が、自然界に存在する物質との識別に利用できることを検証する必要がある。その一環として、放射性微粒子と同じケイ酸塩ガラスを主成分とする火山ガラスに着目した。始良 Tn 火山灰、関東ローム、黒曜石の粉末について、それぞれ放射性微粒子と同じ条件で蛍光分析を実施したが、波長 405 nm の励起光に対して波長 400~600 nm の範囲に蛍光を生じたものはなかった。よって現時点では、放射性微粒子の蛍光特性は環境中に存在する他の無機物質と比べて特異性が高いものと考えられる。

今後はガラス質以外の鉱物も含めて、環境中に存在する蛍光特性を持つ物質について放射性微粒子と同一条件での蛍光分析を実施し、放射性微粒子を効率的に検出可能な励起・検出波長の特定を目指す。

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) Y. Igarashi et al., J. Environ. Radioact. 205-206, 101-118 (2019).

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。カプトンと逆の面に高純度の石英ガラスの上に乗せてから、カプトンをはがして研磨剤を使用して研磨を行い、実態顕微鏡で観察をしながら粒子の適当な面が出るところまで研磨する。

【測定】作製した研磨片はSEMで観察したのち、筑波大学1 MV タンデトロン及び6 MV タンデムのPIXEを用いていくつかのポジションについてのXRF及びマイクロスキニングビームコースにおいて元素マッピングの測定を行った。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、更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（関東化学製、ELグレード）3 mLとフッ化水素酸（Wako製、特級またはTamapure-AA-100）2 mLを加え封入した。これを130 °Cで10分、175 °C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（キョウリツ電子製）に移して、Ge-SSDによってγ線を測定し、¹³⁷Cs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 °C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て調整し、測定を行った。

(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1 MV 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20 μm 角の面積の測定を行った。図3.2.4-1にPIXEスペクトルと分析位置を示した。元素の定量結果からは主要成分の軽元素からSnとPbのK-X線の観測ができた。元素マッピングを得る目的で筑波大学の応用加速器部門の6 MV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いてPIXE測定を行った。図3.2.4-2は1 μm 角ビームで得られた元素マッピングを示す。Ti, Fe, Znは濃集点がありその位置は元素によって異なることが明らかになった。ただし目標としていたより重い元素、特にCsについての情報を得ることは難しいことが明らかになった。

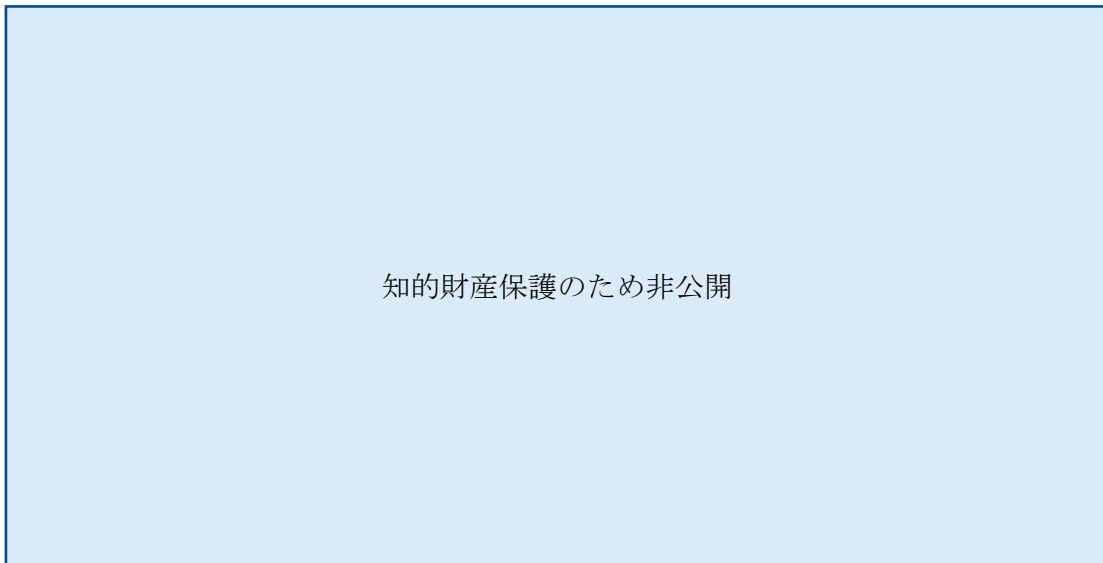


図3.2.4-1 1 MV タンデトロンでのPIXEスペクトルと放射性粒子の分析位置

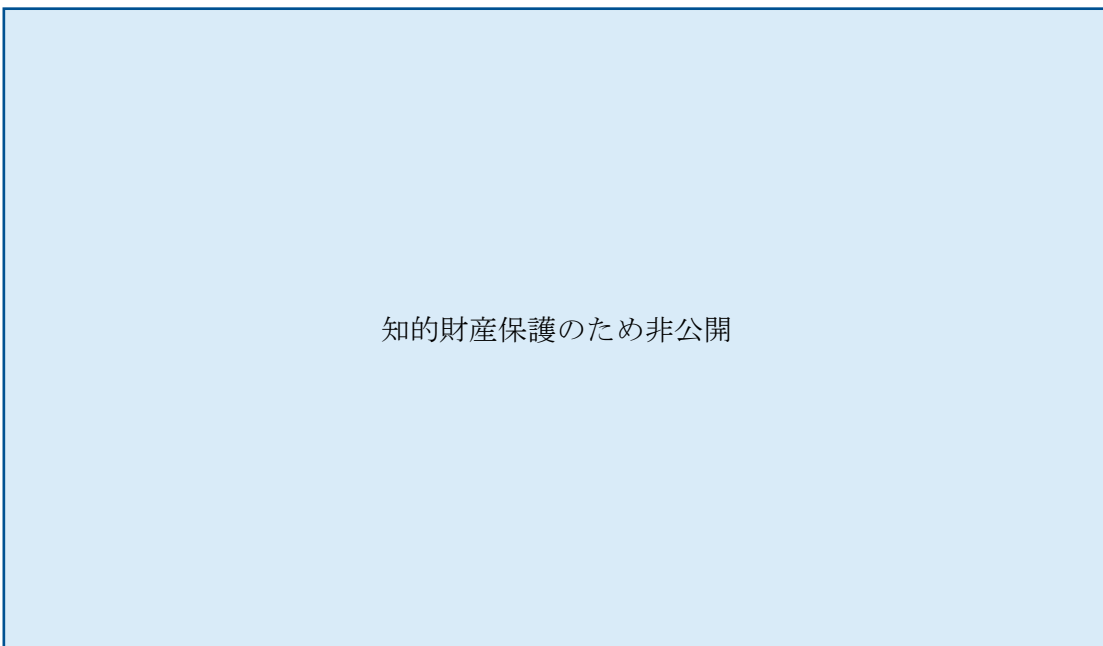


図3.2.4-2 6 MV タンデムのマイクロ走査による元素マッピングとX線スペクトル

②誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS)

【粒子の分析結果】 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放射性微粒子の酸分解を行った。 ^{137}Cs の放射能を用いて、粒子から溶液状態にいたる分解操作での回収率を求めた。元素ごとの回収率は多くの元素に対して、ほぼ 100 % となった。分析した結果を図 3.2.4-3 に示す。主要元素はその変動パターンが類似しているものが多いが、微量元素においてはそれぞれの粒子によって濃淡が大きく変わっている。 ^{55}Cs の濃度は 0.06 - 0.86 ng/particle と非常に低く、放射性セシウム (^{137}Cs) の放射能 161 - 920 Bq/particle から推定した濃度 0.05-0.29 ng/particle と同程度であることが分かった。したがって、粒子中の非放射性含めたセシウムの大部分は核分裂由来であると考えられる。また、燃料と関係しそうなウランの濃度が粒子によって大きく異なっていた。これは放射性粒子の生成に大きくかかわりそうである。

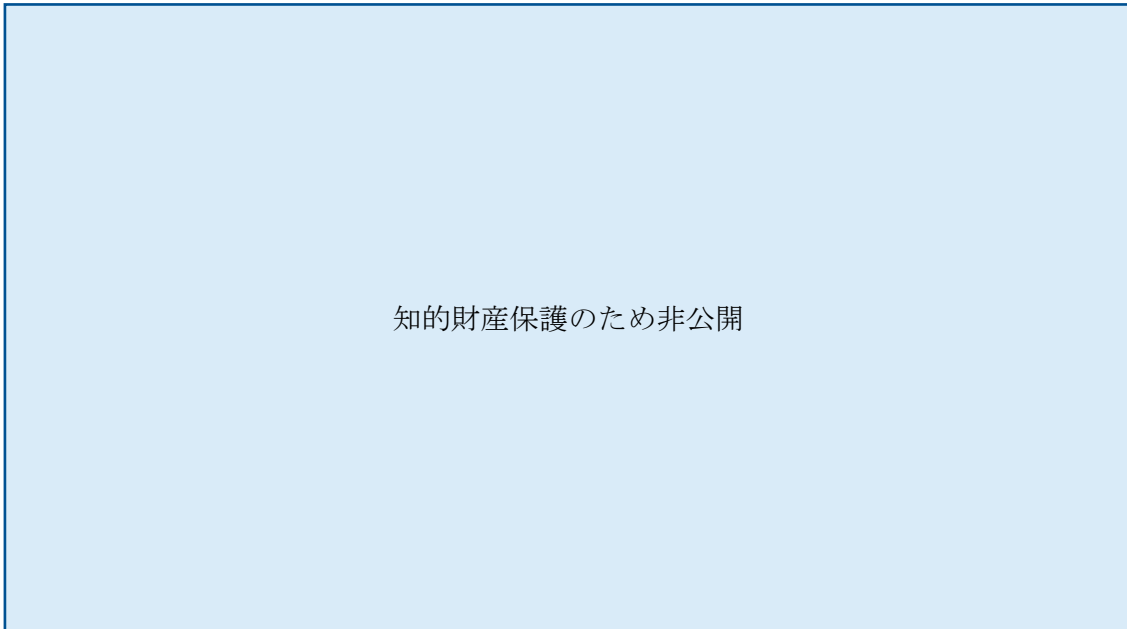


図 3.2.4-3 放射性粒子中の各元素の濃度

参考文献

- (1) M. Kurosawa, S. Shimano, S. Ishii, K. Shima, T. Kato, “Quantitative trace element analysis of single fluid inclusions by proton-induced X-ray emission (PIXE)” *Geochim. Cosmochim. Acta*, 67(22), 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

福島第一原発事故では、放射性 Cs が高濃度に濃集した水に不溶性放射性微粒子（不溶性粒子）が放出された⁽¹⁾。これまでに不溶性粒子には複数の種類が存在していることが分かっており⁽²⁾、シンクロトロン放射光や、質量分析等によりその微量元素分析が行われている⁽³⁾⁻⁽⁵⁾。これらの研究をもとに、不溶性粒子は SiO₂ の粒子母材に高温で揮発した放射性元素のガスが接触することで形成したと考えられている。一方でこれらの元素分析では、原子炉燃料に含まれる元素の定量ができていないものの、それらが本当に原子炉燃料に由来しているのかについては十分理解されていない。このことを調べるためには、寿命の長い放射性同位元素に注目し、放射化学的な分析を用いたごく微量の分析を行う必要がある。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。すなわち、それぞれの原子炉で SiO₂ 源だけでなく、生成過程自体が大きく異なることが予想される。そのため、不溶性粒子に含まれる微量の原子燃料由来の放射性同位元素を調べることで、その生成過程について理解することができると期待される。

福島第一原発事故では、冷却機能の喪失により原子燃料中の核分裂生成物の壊変熱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 Sr や Pu に着目して研究を行う。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。これまで不溶性粒子の ⁹⁰Sr や Pu 同位体分析は試みられていたが、その量が極めて少なく検出には成功していなかった。本研究課題では、昨年度（平成 30 年度）いくつかの粒子について、放射化学的な分析を行い ⁹⁰Sr 定量に成功した。本年度（令和元年度）は昨年度検討を行った Pu 分析法を基にして、実際に不溶性粒子の Pu 分析を実施した⁽⁷⁾。

(2) 不溶性粒子の探索と Sr 分析実験

福島第一原発からそれぞれ北西及び南西に 3 km の地点で採取したダストや土壌試料から不溶性粒子の単離を行った。不溶性粒子はイメージングプレートを用いたオートラジオグラフィにより試料中の位置を特定し、小さな土壌フラクションを取り出した。これをバイアル瓶に移し、4 mL の水を加えて攪拌し、分離することを繰り返すことによって土壌のマトリクス成分を取り除き、不溶性粒子だけを取り出した。本研究では北西方向で採取の試料から 3 個の、南西方向から採取の試料から 1 個の不溶性粒子を単離した。

得られた不溶性粒子は電子顕微鏡により形状観察を行い、更に Ge-SSD を用いたガンマ線測定によって放射性 Cs (¹³⁴Cs、¹³⁷Cs) を定量した。得られた不溶性粒子の例について、図 3.2.5-1 に示す。粒子はともに粒径が数百 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 SiO₂ を母材としており、これまで見つかった不溶性粒子と同様の性質を持っていることが分かった。不溶性粒子の ¹³⁷Cs 放射能は 200-800 Bq であり、¹³⁴Cs/¹³⁷Cs の値

は平成 23 年 3 月時点の換算で 0.9 程度のもの、1.0 程度のもの 2 種類があることが分かった。0.9 程度のは福島第一原発から北西方向で採取されたダスト試料のみから見つかり、1.0 程度のは南西方向で採取された土壌試料から見つかった。過去の研究から、前者は福島第一原発 1 号機から、後者は 2 号機から放出されたものと考えられる⁽²⁾。

これらの不溶性粒子について、それぞれ Sr の分析を行った。アルカリ溶融により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⁽⁸⁾。妨害となる放射性 Pb を分離した後、得られた ^{90}Sr フラクシオンについて、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、0.04~0.59 Bq であった。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、 $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ の放射能比で検討すると、すべての粒子で 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ため、同一の起源を有すると判断された。

(3) 不溶性粒子の Pu 分析

昨年度、不溶性粒子の Pu 分析法について検討を行ったが、今年度は ^{242}Pu 収率トレーサーの調達を行うことができ、不溶性粒子の分析法について α 線測定に基づいた基礎的な研究を進めることができた。それを基に図 3.2.5-2 に示す実験スキームでの分析法を確定することができた⁽⁷⁾。本研究では、Sr の分析を行った不溶性粒子と同じものについて Pu の分析を行うために、Sr-Rad disk を通過したフラクシオンについて分析を行うことを考えた。なお、Sr-Rad disk を通過させても Pu のロスがないことは Pu トレーサーを用いることで確認した。Pu の分析のために、沈殿法により不純物を取り除いた後、TEVA、U-TEVA、DGA の 3 種類の分離用樹脂を用いて Pu フラクシオンの濃縮を行った。

4 つの不溶性粒子について、Pu 分析を行った結果について、Sr の分析結果と併せて表 3.2.5-1 に示す。本研究では、不溶性粒子に Pu 同位体が含まれていることを初めて明らかにした。その濃度は ^{137}Cs に比べて 10^{-8} オーダーと極めて低いが、これは土壌等で報告されている福島第一原発事故に由来する Pu の存在量と良く整合していた。Pu は原発から北西方向で採取された試料 (DP 試料) でのみ定量され、南西方向で採取された試料 (SP 試料) からは定量できなかった。このような Pu 濃度の違いは、これらの不溶性粒子が異なる環境で形成されたことを示している。

得られた不溶性粒子の Pu の同位体比に注目すると、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ は 0.33-0.42、 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ は 0.16-0.18 となった。これは大気圏内核実験に由来するグローバルフォールアウトの Pu 同位体比⁽⁹⁾⁻⁽¹⁰⁾とは大きく異なっており、これらの Pu が福島原発に由来していることが確認された。更にこの同位体比を、他の福島第一原発事故後に測定された環境試料の Pu 同位体比との比較を行った。結果をそれぞれ図 3.2.5-3 及び図 3.2.5-4 に示す。本研究で得られた不溶性粒子の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の結果は、他の環境試料⁽¹¹⁾⁻⁽¹⁷⁾と良く整合することが分かった。一部の土壌試料の分析結果⁽¹¹⁾は、より低い $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ を示すが、これは福島第一原発事故に由来する Pu の量が極めて少なく、グローバルフォールアウトに由来する Pu の汚染を受けているものと考えられる。また、不溶性粒子の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ は、計算で得られた福島第一原発の燃料中の Pu 同位体比⁽¹⁸⁾とも良く整合していた。 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ についても、先行研究での報告は少ないものの

$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ と同様の結果が得られた⁽¹¹⁾。すなわちリターに由来する環境試料とは近い値が得られており、逆にグローバルフォールアウトの汚染を受けていると考えられる土壌試料よりは高い値を示していた。更に計算による燃料中の比とも良く整合した⁽¹⁸⁾。一方で $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ では、他の環境試料よりも不溶性粒子では幾分高い値が得られていることも明らかになった。 ^{241}Pu の量は極めて少ないことから、落ち葉でもわずかにグローバルフォールアウトに由来する汚染を受けている可能性がある。

以上のように本研究では、不溶性粒子に含まれる Pu の定量に初めて成功した。環境中に存在している Pu は、グローバルフォールアウト、福島第一原発の 3 つの異なる原子炉から放出されたものが混合しており、福島第一事故由来の Pu 同位体比を正確に決めることは極めて難しい。不溶性粒子は、Cs の同位体比や、その採取された場所によって由来を特定することが可能であり、原子炉ごとの Pu の同位体比を決定する唯一の方法である。現時点では誤差が大きいものの、検体数を増やすことで実験的な同位体比を求めることができ、計算から得られた値との比較を通して事故時の燃料破損の不均一性などの情報が得られると期待される。

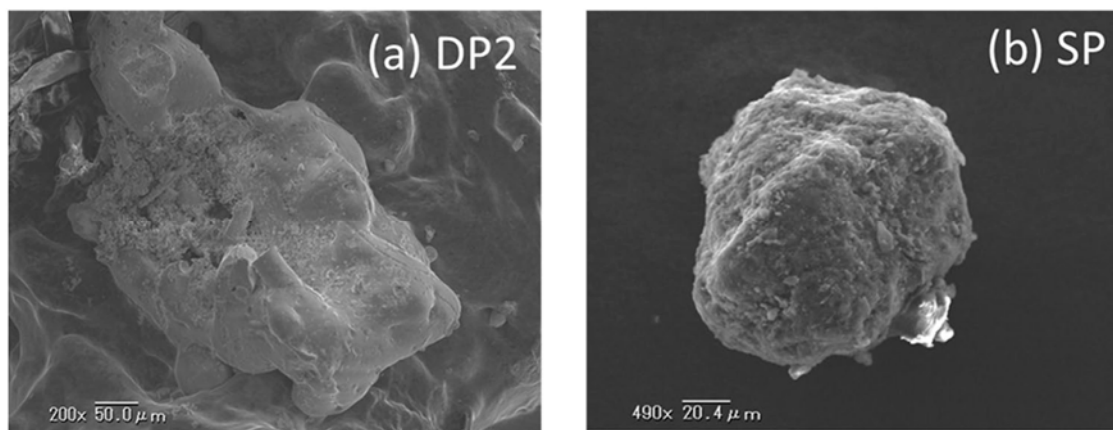


図 3.2.5-1 本研究で分析を行った不溶性粒子の SEM 像

DP は北西方向で採取した試料、SP は南西方向で採取した試料から単離したものである。

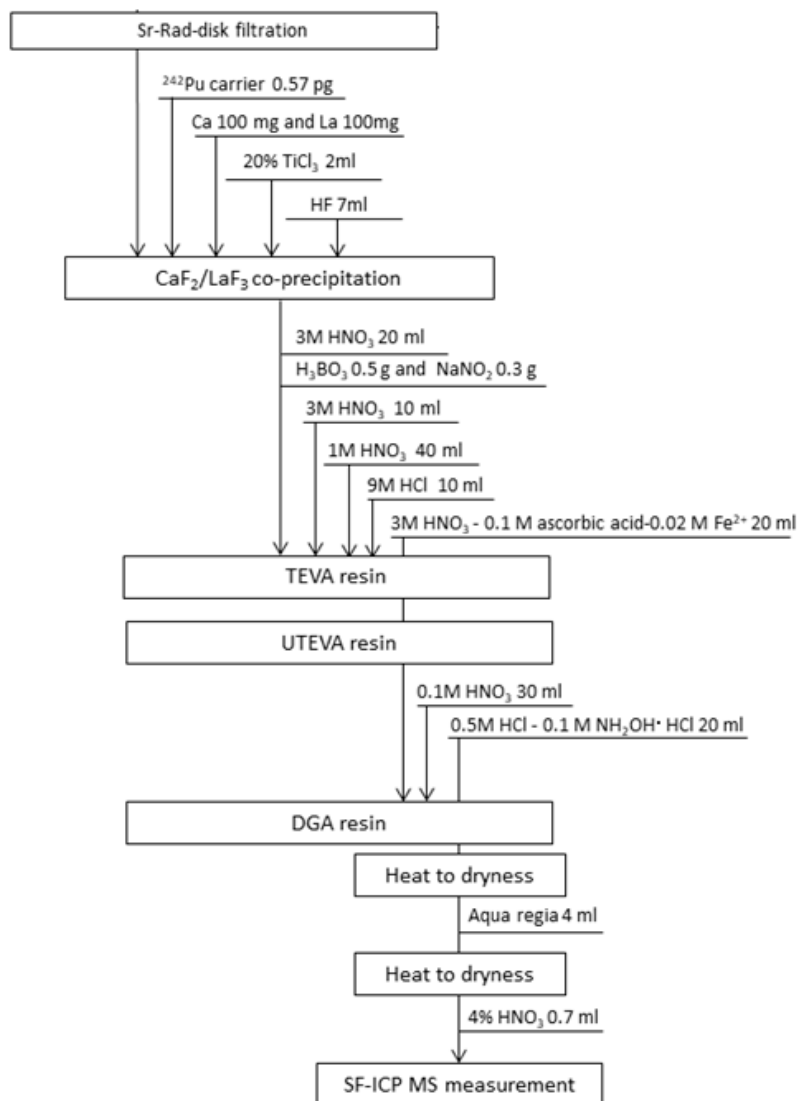


図 3.2.5-2 Pu 分析法のスキーム

Sr 分析のための Sr-rad disk を通過したフラクションを用いて Pu を分析した。
測定は SF-ICP-MS を用いて行った。

表 3.2.5-1 本研究で分析した不溶性粒子の ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, ²³⁹⁺²⁴⁰Pu, ²⁴¹Pu の定量値

Radioactive particle	DP1	DP2	DP3	SP	
Activity [Bq]	¹³⁴ Cs	214 ± 2	794 ± 4	679 ± 4	230 ± 1
	¹³⁷ Cs	234 ± 1	887 ± 4	736 ± 4	224 ± 1
	⁹⁰ Sr	0.171 ± 0.010	0.589 ± 0.034	Not measured*	0.0455 ± 0.0040
	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	(1.70 ± 0.20) × 10 ⁻⁵	(3.48 ± 0.45) × 10 ⁻⁵	(7.06 ± 0.57) × 10 ⁻⁵	< 4.44 × 10 ⁻⁶
	²⁴¹ Pu	< 1.97 × 10 ⁻³	(4.10 ± 0.68) × 10 ⁻³	(8.10 ± 1.27) × 10 ⁻³	< 2.23 × 10 ⁻³
Atom ratio	²⁴⁰ Pu/ ²³⁹ Pu	0.330 ± 0.077	0.415 ± 0.069	0.373 ± 0.045	—
	²⁴¹ Pu/ ²³⁹ Pu	—	0.178 ± 0.016	0.162 ± 0.028	—
Radioactivity ratio	¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs	0.915 ± 0.009	0.895 ± 0.005	0.922 ± 0.006	1.03 ± 0.01
	⁹⁰ Sr/ ¹³⁷ Cs	(7.31 ± 0.43) × 10 ⁻⁴	(6.64 ± 0.39) × 10 ⁻⁴	—	(2.03 ± 0.18) × 10 ⁻⁴
	²³⁹⁺²⁴⁰ Pu/ ¹³⁷ Cs	(7.26 ± 0.86) × 10 ⁻⁸	(3.92 ± 0.51) × 10 ⁻⁸	(9.58 ± 0.78) × 10 ⁻⁸	< 1.98 × 10 ⁻⁸

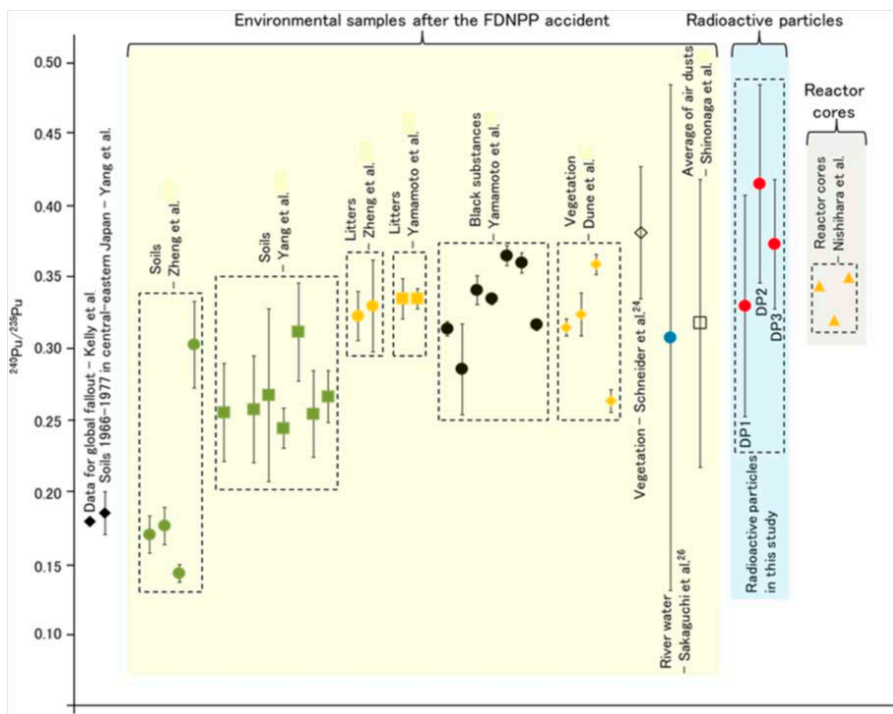


図 3. 2. 5-3 本研究で得られた不溶性粒子の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ とグローバルフォールアウト⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾、他の環境試料⁽¹¹⁾⁻⁽¹⁷⁾、計算値⁽¹⁸⁾との比較

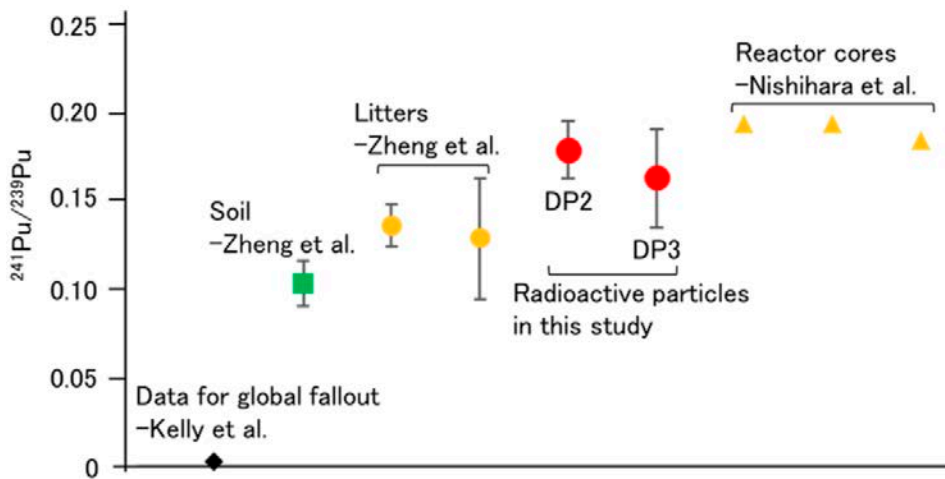


図 3. 2. 5-4 本研究で得られた不溶性粒子の $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ とグローバルフォールアウト⁽⁹⁾⁽¹⁰⁾、他の環境試料⁽¹¹⁾⁻⁽¹⁷⁾、計算値⁽¹⁸⁾との比較

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., Nuclear Engineering and design, 240, 1853-1866 (2010).
- (7) J. Igarashi et al., Sci. Rep., 9, 11807 (2019).
- (8) Z. Zhang et al., Environ. Sci. Technol. 52, 9917-9925 (2018).
- (9) J. Kelly et al., Sci. Total. Environ. 237-238, 483-500 (1999).
- (10) G. Yang et al., Sci. Rep. 5, 9636 (2015).
- (11) J. Zheng et al., Sci. Rep. 2, 304 (2012).
- (12) G. Yang et al., Sci. Rep. 7, 13619 (2017).
- (13) M. Yamamoto et al., J. Environ. Radioact. 132, 31-46 (2014).
- (14) S. Schneider et al., Sci. Rep. 3, 2988 (2013).
- (15) J. A. Dunne et al., Sci. Rep. 8, 16799 (2018).
- (16) A. Sakaguchi et al., Geochem. J. 46, 355-360 (2012).
- (17) T. Shinonaga et al., Environ. Sci. Technol. 48, 3808-3814 (2014).
- (18) K. Nishihara et al., JAEA-Data/Code 2012-018, 65-117 (2012).

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福島第一原発の炉内に残留する放射性微粒子の挙動を推測するため、放射性微粒子の模擬生成実験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、SEM-EDX を用いた分析と模擬微粒子の生成実験を行い、生成される微粒子の加熱温度依存性について検討を行った。また、中性子照射した二酸化ウランを用いて、核分裂生成物を含む人工の放射性溶液エアロゾル粒子の成長・輸送の模擬実験を行った。

(2) 放射性微粒子の模擬生成実験

① 目的

福島第一原発の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、まずは福島第一原発周辺から採取された放射性微粒子の性状分析を行い、次いで模擬微粒子の生成実験を行った。

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、環境中から採取された放射性微粒子(タイプB)に対しSEM-EDXを用いた外観観察と元素分析を行った。次いで、分析から推定された微粒子の原料である珪藻土と海水を電気炉で加熱し、模擬微粒子の生成・分析及び加熱温度依存性の検討を行った⁽¹⁾⁻⁽⁴⁾。

③ 結果

EDX分析から、タイプB粒子の表面の元素組成はO、Si、Naが主体であり、その他Ca、Al、Mgなどを含むことが分かった。また、SEM観察により、複数の微粒子の表面から0.1～1 μm程度の穴の開いた構造物が発見され(図3.2.6-1)、EDX分析からこの構造物の元素組成は微粒子表面に近いことが分かった。外観及び組成から、この構造物は珪藻土であると推定される。また、熔融し粒子本体と一体化したような構造もみられた。以上のことから、O、Si、Alなどを含む珪藻土及びNa、Ca、Mgなどを含む海水をタイプB粒子の材料の候補と考えた。

珪藻土及び人工海水を電気炉で950℃に加熱して得られた粒子状物質(模擬微粒子)をSEMで観察したところ、珪藻土が熔融して滑らかになった構造が確認された(図3.2.6-2)。また、EDX分析から、模擬微粒子の表面の元素組成はO、Si、Naが主体であり、その他Mg、Al、Ca、Feなどを含むことが分かった。すなわち、外観・組成ともに、タイプB粒子と類似したものが生成された。また、温度を変化させながら同じ材料を加熱したところ、材料の熔融には900℃程度の温度が必要であることが分かった。

珪藻土はSiO₂が主成分であり、ろ過助剤や断熱材などに用いられている。ひとつの仮説として、事故時に何らかの形で存在した珪藻土と事故後に原子炉の冷却に注入された海水などが加熱され、いずれかの段階で放射性物質を取り込んでタイプB粒子が生成したと考

えることができる。

今後は、珪藻土以外の材料（コンクリートなど）の検討、ならびにレーザーによる急熱・飛散を利用したタイプ A 様の模擬微粒子の生成と放射温度計による温度依存性の検討を行い、放射性微粒子の生成過程のさらなる解明を目指す。

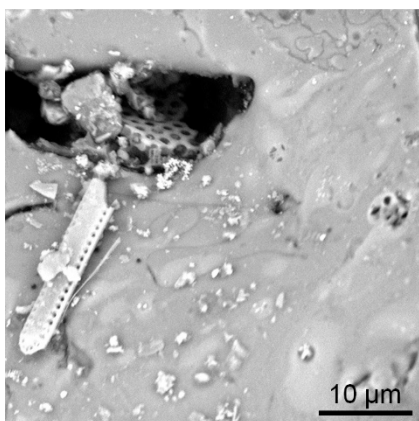


図 3.2.6-1 環境中から採取された放射性微粒子の一部
珪藻土構造が見える。

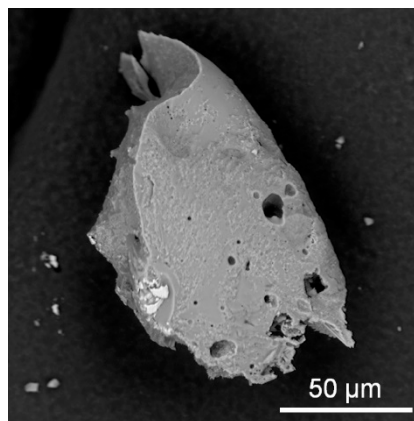


図 3.2.6-2 生成した模擬微粒子の SEM 像を拡大した SEM 像

(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核分裂生成物（Fission Product; FP）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、周囲の空气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を改良して実験を行った⁽⁵⁾⁻⁽⁹⁾。

石英管内に減圧封入した約 10 mg の二酸化ウラン粉末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、10～40 分間の中性子照射を行なった。照射後にウラン試料の一部を加熱用石英管に分取し、管状炉内で 1000 °C に加熱して ⁹⁵Zr、¹³¹I などの FP を放出させた。一方、アトマイザーを用いて 0.01 M のハロゲン化ナトリウムを原料として溶液状エアロゾルを生成し、FP とともに改良により内容積を可変としたステンレス製のチャンバー内に導入した。このチャンバー内で両者を混合することで、ハロゲン化ナトリウム溶液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-SSD

を用いてガンマ線スペクトロメトリを行った。エアロゾル生成に用いたハロゲン化ナトリウムには、塩化ナトリウム、臭化ナトリウム、ヨウ化ナトリウムの3種を用い、各溶液で生成したエアロゾル粒子において、FP核種間の付着挙動を比較した。

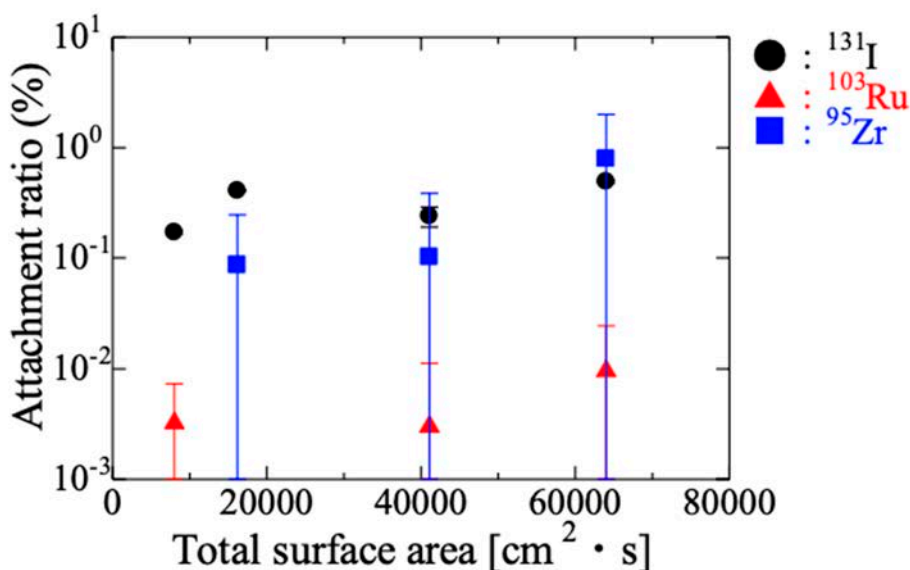


図 3.2.6-3 NaBr 溶液エアロゾル粒子に対する ¹³¹I, ¹⁰³Ru, ⁹⁵Zr の付着率とエアロゾル粒子の全表面積との相関

③結果

中性子照射したウラン試料から放出された FP である ¹³¹I, ¹⁰³Ru, ⁹⁵Zr の 0.01 M NaBr 溶液エアロゾル粒子に対する付着率と、エアロゾル粒子の全表面積との相関を図 3.2.6-3 に示す。核種間での付着率を比較すると、¹³¹I と ⁹⁵Zr の付着率はエアロゾルの全表面積にかかわらず同程度の値となり、¹⁰³Ru は ¹³¹I に比べ 1~2 桁程度低い付着率となることが分かった。つまり、FP の溶液エアロゾル粒子への付着挙動には、核種の違いによる差異が生じることが明らかとなった。

発表リスト

- (1) 稲垣誠, 関本俊, 高宮幸一, 沖雄一, 大槻勤, 「福島原発事故で放出された不溶性微粒子の生成模擬実験」, 日本放射化学会第 63 回討論会(2019) ポスター発表, いわき, (2019 年 9 月 24-26 日).
- (2) 稲垣誠, 佐藤諒, 関本俊, 高宮幸一, 沖雄一, 大槻勤, 「福島原発事故により放出された放射性微粒子の分析および模擬生成実験」, 京都大学複合原子力科学研究所「福島原発事故で放出された放射性物質の多面的分析」専門研究会, 口頭発表, 熊取, (2019 年 12 月 19 日).
- (3) 稲垣誠, 佐藤諒, 関本俊, 高宮幸一, 沖雄一, 大槻勤, 「福島原発事故で放出された放射性微粒子の分析および模擬生成実験」, 第 54 回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会 ポスター発表, 熊取, (2020 年 2 月 5-6 日).

- (4) 稲垣誠, 佐藤諒, 関本俊, 高宮幸一, 沖雄一, 大槻勤, 「福島原発事故により放出された放射性微粒子の模擬生成実験」, 第 21 回「環境放射能」研究会 ポスター発表, つくば, (2020 年 3 月 12-13 日).
- (5) 竹内裕弥, 高宮幸一, 関本俊, 沖雄一, 大槻勤, 「照射ウランを用いた放射性エアロゾル生成模擬実験」, 日本放射化学会第 63 回討論会(2019) ポスター発表, いわき, (2019 年 9 月 24-26 日).
- (6) 竹内裕弥, 竹内佑, 高宮幸一, 稲垣誠, 関本俊, 沖雄一, 大槻勤, 「核分裂生成物と溶液エアロゾル粒子の静電相互作用による吸着挙動」, 第 54 回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会 ポスター発表, 熊取, (2020 年 2 月 5-6 日).
- (7) 竹内佑, 竹内裕弥, 高宮幸一, 稲垣誠, 関本俊, 沖雄一, 大槻勤, 「短寿命核分裂生成物の溶液エアロゾルへの付着挙動」, 第 54 回京都大学複合原子力科学研究所学術講演会 ポスター発表, 熊取, (2020 年 2 月 5-6 日).
- (8) 高宮 幸一, 西澤 佑介, 関本 俊, 沖雄一, 大槻 勤, 「溶液状エアロゾル粒子への核分裂生成物の付着過程における化学的効果」, 日本放射化学会第 63 回討論会(2019) 口頭発表, いわき, (2019 年 9 月 24-26 日).
- (9) 高宮幸一, 竹内裕弥, 竹内佑, 関本俊, 沖雄一, 大槻勤, 「核分裂生成物と溶液状エアロゾルによる放射性エアロゾルの生成」, 京都大学複合原子力科学研究所「福島原発事故で放出された放射性物質の多面的分析」専門研究会, 口頭発表, 熊取, (2019 年 12 月 19 日).

3.3 研究推進

3.3.1 研究推進に関わ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。

(1)令和元年7月13日、慶應義塾大学日吉キャンパスにて本年度の日本側キックオフ会合を行った。この場において本年度の契約状況、ならびに業務遂行計画について認識の共有を行った。

(2)令和元年9月24～26日には五十嵐康人、大槻勤、高宮幸一、末木啓介、佐藤志彦の5名が英国ブリストル大学から来日したDr. Peter G. Martin及びMr. Tom Walles Smithと先方の実施項目及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)令和2年1月13日から五十嵐康人及び佐藤志彦が英国側カウンターパートのブリストル大学を訪問し、相手方代表のProf. Tom Scottらと研究進捗状況、ならびに最終年度の実施内容について確認を行った。またその際、英国に供与済みの試料を加工し、日本側へ返送するよう依頼した。

3.3.2 学会・協会等での発表、論文等学術雑誌での発表

本課題では令和元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では、全部で8件の発表があった。本課題分担者が主体ではない一般の学会・協会等での発表は、33件であり、対外的に非常に活発かつ積極的に発表を行った。

また、Nature Communications 誌、Scientific Reports 誌での論文掲載をはじめとして、国内外の学術誌での英文、和文論文を含めて、16報の報告が行われた。Nature Communications 誌の発表は、特に日英のシナジーを端的に表す成果となっている。

3.3.3 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。

日英:EPSRC-MEXT プロジェクト
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-令和2年4月

P. G. Martin and T. B. Scott

本報告書は、2011年の1F事故後に環境中に放出されたサブmm放射性微粒子の存在、分布、組成及び環境挙動を更に理解することを目的とした日英共同研究プロジェクトに関する2020年4月開始時点での進展を詳述するために提供される。この研究で期待される成果は以下の通りである。

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. ウラン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。これらは廃棄物管理と除染の最適な戦略の選択を支える。従来の研究は、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を理解-これらは全て、廃炉作業上の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、本プロジェクト実施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開始される直ちに取り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可能なものとする統計モデリング手法の開発。

提案書に記載されている上記のタスクと、その現在までの進捗状況について、以下に説明する。

業務 1.1. 共同野外サンプリング

2019年にブリストル大学、茨城大学及び JAEA の研究者が共同で野外サンプリングを実施した。この共同演習の一環として、試料採取に加え、空中 UAV により放射線及び画像調査を多数実施し、環境中での放射性物質の移動及び滞留を調査した。プロジェクトを開始するため、2019年3月中旬に茨城大学でキックオフミーティングが開催され、各計画分担者の関与の範囲が正式に決定された。追加のプロジェクト会議は2020年4月に大阪で予定され、ブリストル大のチームが訪日予定となっていたが、COVID-19 感染拡大が生じた結果、延期となった。この会議の代替案は現在最終決定されている。この会合では、いくつかの業務完了の確認とともに、この日英プロジェクトの終了後にさらに作業を要するトピックスや、追加的で潜在的な協力活動を明確にする予定であった。

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こととしてい

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測定装置、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) 装置が整備されつつある。これらの作業は、佐藤博士とそのチームが以前の研究で得ていた既存試料に加えて、前述の共同フィールドサンプリング演習中に新たな試料が収集されたことで、無事に完了した。この (以前に得た) 試料を用いて、佐藤博士は、福島第一原発サイトに隣接する地域から採取したバルクサンプルに由来するサブ mm 粒子の単離を継続することができ、これらの放射性粒子の多くはブリストル大学に送られ、Diamond Light Source シンクロトロンでの研究を含め、各粒子の組成分析、さらに重要な構造分析が実施された。

業務 2.1. 単一粒子の同位体分析の高度化

上記業務 1 に加え、この 9 か月の作業進捗により、現在の英国側の単一粒子の鑑識分析能力と方法論を強化することができた。進展のあった/応用可能性が検討された二つの単一粒子解析法は以下の通りである。(i) 3次元原子プローブトモグラフィー (3D-APT)、(ii) レーザアブレーション-誘導結合プラズマ質量分析 (LA-ICP-MS) である。Peter Martin 博士、Tomas Martin 博士、David Richards 博士は、非放射性物質 (プロキシマテリアル) を用いた実験と、ごく最近に福島で採取された試料の分析について評価を実施した。どちらの技術も、福島第一原発事故由来の試料を含む放射性微粒子の分析において、その高分解能、正確性、スループットに大きな可能性を示した。

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 大学、Sheffield 大学)

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 を用いてその表面の化学状態を調べ、二次相の存在と進化につき評価を行った。この業務は最近開始され急速に加速している。加えて、Peter Martin 博士は、日本側の Kelvin Probe 分析のために、1号機から放出されたと思われる粒子状物質 (タイプ B 粒子*日本側注) の表面の平滑化のため、いくつかの集束イオンビームによる切断作業を実施した。これは、Si 母材のサブ mm 微粒子材料内で誘導される可能性のある放射線影響 (帯電*日本側注) を詳細に示す。

業務 2.3. 粒子組成と形態の解析 (茨城大学、JAEA および Bristol 大学)

茨城大学の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た、ウラン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。この活動は、他の業務における英国側の活動を補完し、大規模な粒子データセットを確立するために、実質的に高いスループットで粒子分析を行う。本プロジェクト開始前に抽出された微粒子の分析は、既に日本のチームによって達成されている。サンプルデータの膨大な目録が日本のさまざまな機関

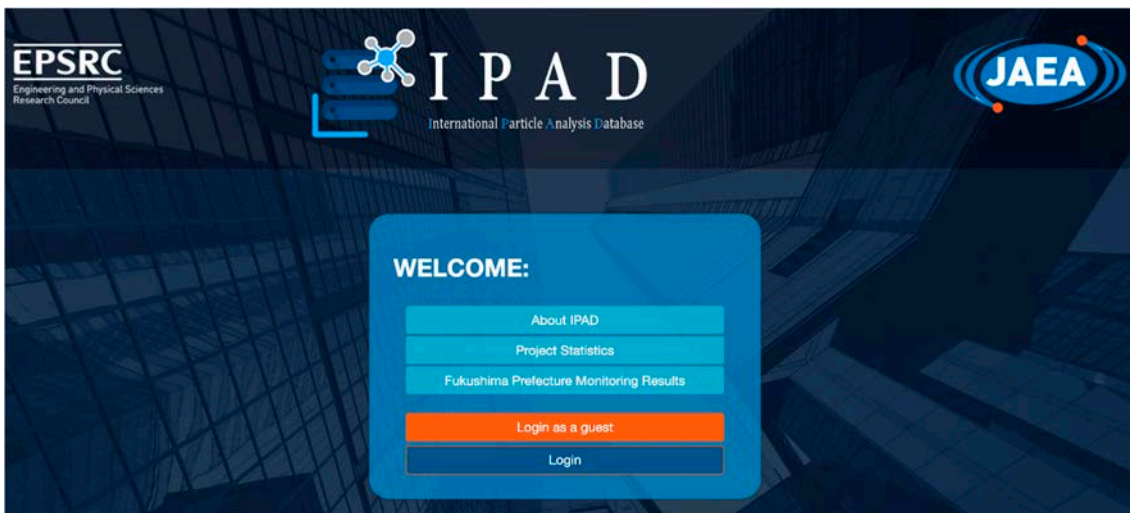
で収集され、保持されている。その後、これらの物質の一部はブリストル大学に送られて断層撮影分析が行われており、英国では、Diamond Light Source 放射光施設において、さらなる微粒子の分析が計画されている。

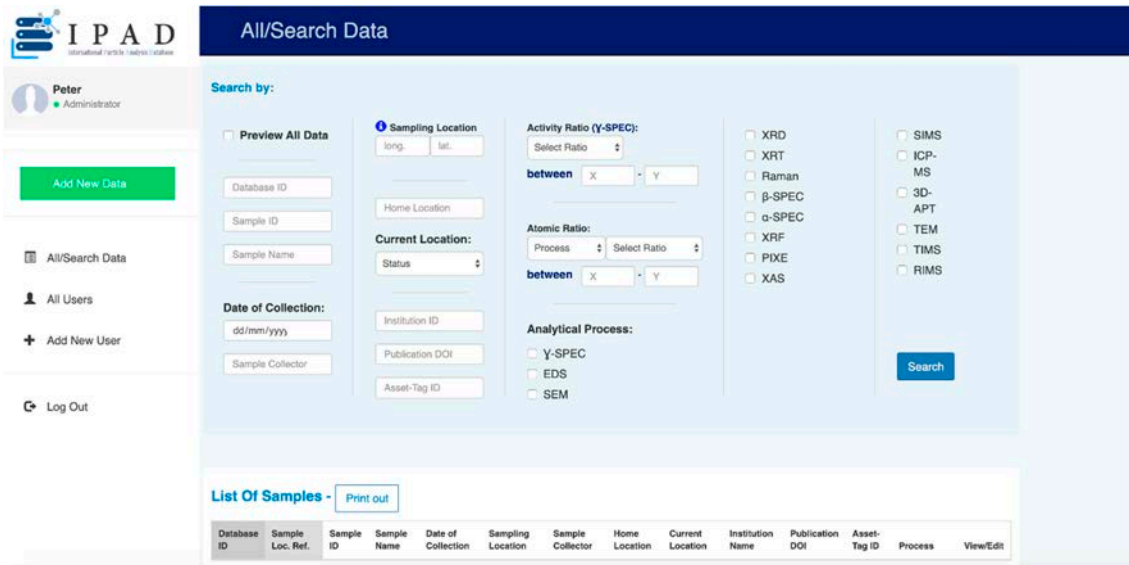
業務 2.4. 使用済燃料デブリ粒子腐食挙動 (Sheffield 大学)

ろ過した天水を用いてバッチ実験を行い、抽出された燃料マイクロ粒子試料の腐食挙動について検討が続けられており、2020年4月末までには長期の結果が得られると予想される。Sheffield 大の施設から得られた実験室での結果を裏付けるために、ブリストル大の同位体グループ (BIG) が保有する最先端の同位体分析施設を用いた追加分析と、Diamond Light Source 放射光施設での特性評価が実施される予定である。

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

本業務の目的は、得られた既存の粒子解析データを編集・編纂して粒子ライブラリを構成することである。粒子「テーブル」(完全に機能し、ユーザーが自由に質問できる「データベース」に発展するだろう)の運用が現在開始されており、参加学術機関のユーザーがデータを入力するように推奨されている。システムは AWS EC2 と RDS プラットフォームを利用して、ベータ版として広くテストを実施中である。IAEA に対し、近い将来、本プロジェクト関係者以外のグループが保有するデータを含めることを支持・奨励するように求める。Scott 教授と Martin 博士は、少なくとも今後 10 年間、データベースをオンラインに維持し、アクセス可能とするための追加の競争的資金を得た-したがって、燃料回収作業から得られた追加データを含めてシステムを拡張することが可能となった。このデータベースの作成は、各原子炉内に依然として存在するデブリの状態のさらなる理解と、複数の原子炉での冷却材喪失事故中に生じた事象の時系列説明に寄与する。二つの情報を総合によって、近々に開始される事故サイトデコミッションングの有効な選択肢を直接的に得られる。





業務 4. 地理統計モデルによる粒子類型分布図の作成

この業務は、10 km 以下の範囲に限定された近距離領域での大気汚染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。業務 3 の一部として、データベースの母集団から「実際の」入力データを取得する概略的なモデルが開発されたことから、このタスクは 2020 年の夏に完了する予定である。

これまでの出版物

- Cipiccia, S., Batey, D., Shi, X., Williams, S., Wanelik, K., Wilson, A., Rau, C. (2019). Multi-scale multi-dimensional imaging at I13-coherence branchline in diamond light source. *AIP Conference Proceedings*, 2054 (1), 6. <https://doi.org/10.1063/1.5084623>.
- Connor, D. T., Martin, P. G., Smith, N. T., Payne, L., Hutton, C., Payton, O. D., Scott, T. B. (2018). Application of airborne photogrammetry for the visualisation and assessment of contamination migration arising from a Fukushima waste storage facility. *Environmental Pollution*, 234, 610-619. <https://doi.org/10.1016/j.envpol.2017.10.098>.
- Dunne, J. A., Martin, P. G., Yamashiki, Y., Ang, I. X. Y., Scott, T. B., & Richards, D. A. (2018). Spatial pattern of plutonium and radiocaesium contamination released during the Fukushima Daiichi nuclear power plant disaster. *Scientific Reports*, 8(16799), 9. <https://doi.org/10.1038/s41598-018-34302-0>.

- Martin, P. G., Jones, C. P., Cipiccia, S., Batey, D. J., Hallam, K. R., Satou, Y., Scott, T. B. (2020). Compositional and structural analysis of Fukushima-derived particulates using high-resolution x-ray imaging and synchrotron characterisation techniques. *Scientific Reports*, 10(1636), 11. <https://doi.org/10.1038/s41598-020-58545-y>.
- Martin, P. G., Louvel, M., Cipiccia, S., Jones, C. P., Batey, D. J., Hallam, K. R., ... Scott, T. B. (2019). Provenance of uranium particulate contained within Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Unit 1 ejecta material. *Nature Communications*, 10 (2801), 7. <https://doi.org/10.1038/s41467-019-10937-z>.
- Martin, P. G., Davies-Milner, M., Nicholson, J., Richards, D., Yamashiki, Y., & Scott, T. (2019). Analysis of particulate distributed across Fukushima Prefecture: Attributing provenance to the 2011 Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident or an alternate emission source. *Atmospheric Environment*, 212, 142-152. <https://doi.org/10.1016/j.atmosenv.2019.05.043>.

投稿準備中の出版物:

1. Structural and compositional comparison of sub-mm ejecta material released from Fukushima Daiichi Units 1 and 3 (in-preparation).
2. 3D-Atom Probe Tomography of Fukushima-derived Cs-balls to evaluate formational mechanism and compositional evolution (in-preparation).
3. LA-ICP-MS of Fukushima Daiichi Unit 1 fallout particulate - a technique to rapidly determine variation across single particle material (in-preparation).

4. 結言

本研究では、福島第一原発事故により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、日英の研究シナジーにより α 放射体の量的評価を含む放射性微粒子の諸特性を更に解明して、「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。サイト及び周辺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にくい特徴を利用し、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：JAEA）。粒子の電気的性質の解明のため、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：慶應義塾大学）。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）。PIXE と 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 及び 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）。更に、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、関連学会での研究発表、分担機関での研究会の開催などにより今年度も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、本年度も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、サンプルアーカイブのハード、ソフトの両面から検討を行い、データベース化するための基礎検討は完了した。

以上のように、3カ年計画の2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。最終年度においては、上記(1)及び(2)の事項に関し研究の進捗とまとめを図るとともに、特に先端分析での論文成果とりまとめや、相互比較など日英のシナジーを更に具体的に示していきたい。

