

JAEA-Review 2023-021 DOI:10.11484/jaea-review-2023-021

# 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2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) – FY2020 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

February 2024

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

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。 本レポートはクリエイティブ・コモンズ 表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。 本レポートの成果(データを含む)に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の 条件で利用してください。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49 E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency. This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan

E-mail: ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2024

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2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

(2023年9月20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2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、平成 30 年度に採択された研究課題のうち、「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」の平成 30 年度から令和 3 年度分の研究成果について取りまとめたも のである(令和 3 年度まで契約延長)。

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(SiO<sub>2</sub>)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、エアロゾルの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、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した。

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

i

### JAEA-Review 2023-021

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

- FY2020 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 September 20, 2023)

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 FY2020.

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 from FY2018 to FY2021 (this contract was extended to FY2021).

The present study aims to understand the basic properties (size, chemical composition, isotopic composition - including concentration of  $\alpha$ -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 has been 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, 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	2
3.	令和元年度 採択課題	5
4.	令和2年度 採択課題	8
付	録 成果報告書	11

### Contents

1.	Outline of	Nuclear	Energy	Science &	a Technology	and Human	Resource	Development	Project	t
							•••••		1	L
2.	Accepted P	roposal	in FY20	18			•••••		· · · · · · 2	2
3.	Accepted P	roposal	in FY20	19			•••••		5	5
4.	Accepted P	roposal	in FY20	20			•••••		8	3
App	pendix Resul	lt Report	t						11	L

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式会社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(令和元年度より新設)に再編した。

### 2. 平成 30 年度 採択課題

平成30年度採択課題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
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

令和元年度採択課題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 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

### 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 康一朗	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
ー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 (~R2.3.31) 大曲 新矢 (R2.4.1~)	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 号機ペデ スタル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	渡邉 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 (~R3.6.30) 塚原 剛彦 (R3.7.1~)	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 (~R3.3.31) 岡山大学 (R3.4.1~)

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

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	淺間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティックスを融合した 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 (~R2.3.31) 竹下 健二 (~R3.6.30) 塚原 剛彦 (R3.7.1~)	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

### 4. 令和2年度 採択課題

令和2年度は、2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: 令和2年3月17日~令和2年5月14日(課題解決型) 令和2年5月13日~令和2年7月15日(国際協力型)

課題数:10課題

課題解決型廃炉研究プログラム	8 課題	(若手研究2課題、	一般研究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)	

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2年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れ の調査	楊 会龍 (~R4.7.31) 村上 健太 (R4.8.1~)	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の 分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料 研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド 中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー 加速器研究機構
α / β / γ 線ラジオリシス影響下における格納 容器系統内広域防食の実現:ナノバブルを用いた 新規防食技術の開発	渡邉 豊	東北大学
β、γ、X線同時解析による迅速・高感度放射性核 種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析 センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄 筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄 物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高 度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

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
革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技 術の開拓	浅尾 直樹	信州大学
無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン 技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・ 航空技術研究所

本報告書は、以下の課題の平成30年度から令和2年度分の研究成果について取りまとめたものである(令和3年度まで契約延長)。

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

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2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 R02I030-1)

# 成果報告書

# 令和4年3月

国立大学法人茨城大学

JAEA-Review 2023-021

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」の平成 30 年度から令和 3 年度分の研究成果を 取りまとめたものです。

## 目次

概略vü
1. はじめに1
2. 業務計画       8         2.1 全体計画       8         2.2 実施体制図       9         2.3 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法       10         2.3.1 当該年度における成果の目標及び業務の方法       10
<ul> <li>3. 令和2年度の実施内容及び成果</li></ul>
<ul> <li>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)</li> <li>3.1.4 まとめ</li> <li>3.2 放射性微粒子の性状把握</li> <li>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)</li> </ul>
<ul> <li>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)</li> <li>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:東京電機大学)</li> <li>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)</li> <li>4.2.5 た時体体の難測定体種の分析に関する研究(再季託先:共下大学)</li> </ul>
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)       44         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)       46         3.2.7 まとめ       46         3.3 研究推進       50         3.3.1 前年度までの実績       50         3.3.2 令和2年度の実績       50         3.3.3 英国側の報告       54
4. 結言
参考文献64
付録

執筆者リスト

## 事業代表者 (委託先)

国立大学法人茨城大学	特命研究員	五十嵐 康人
国立大学法人茨城大学	教授	北和之
再委託先		
国立大学法人大阪大学	教授	篠原 厚
国立大学法人京都大学	教授	大槻勤
国立大学法人筑波大学	教授	末木 啓介
学校法人慶應義塾大学	教授	奥田 知明
学校法人東京電機大学	助教	阿部 善也

### 連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究員 佐藤 志彦

### 表一覧

表 1-1	不溶性放射性微粒子の性状まとめ	7
表 3.1.1-1	2015, 2016, 2018, 2019, 2021 年に捕集した大気粒子試料から検出された月毎の	放
	射性 Cs 微粒子個数	13
表 3.2.1-1	Satou らの行った放射性微粒子の定義	26
表 3.2.2-1	放射性及び非放射性粒子の KPFM 測定結果	34

### 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6
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6
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6
図 1-4	事故サイトから 30 km 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6
図 1-5	福島第一原子力発電所の主要なリスク源が有するリスクレベルの例6
図 1-6	Phébus 実験のシミュレーションで考慮されている化学種6
図 1-7	高濃度 Cs 含有放射性微粒子の生成メカニズムに関する仮説の説明7
図 2-1	年度別全体計画
⊠ 2-2	実施体制図9
図 3.1.1-1	空気中の放射性微粒子を捕集、紫外光励起蛍光により検出・分離する装置の概念
	⊠
⊠ 3. 1. 1−2	模擬放射性粒子を紫外光励起蛍光により検出する実験装置概略図15
⊠ 3.1.1-3	対照粒子(上)及び模擬放射性粒子(下)を流水とともに流した際の蛍光信号.
図 3.1.1-4	蛍光顕微鏡と分光器をベースとした模擬放射性粒子及び大気中の放射性粒子を
	検出する実験装置概要17
図 3.1.1-5	蛍光顕微鏡をベースとした装置で流水中の模擬放射性粒子からの緑色蛍光を検
	出した実験状況17
⊠ 3.1.2-1	土壌試料のイメージング画像18
⊠ 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19
⊠ 3.1.3-1	土壌及び塵埃試料から粒子を取り出すまでの過程21
⊠ 3.1.3-2	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22
⊠ 3.1.3-3	取り出した放射性粒子のリストの例22
⊠ 3.2.1-1	1F 北西 5 km 地点で見つかったタイプ A 粒子 26
⊠ 3.2.1−2	タイプ C 粒子の代表的な写真 28
⊠ 3.2.1−3	放射性微粒子の系統分類の提案 29
⊠ 3.2.2-1	多価帯電した粒子を発生・捕集する実験系概略図31
⊠ 3.2.2-2	(左)大気粒子の捕集方法 (右)大気粒子の KPFM 測定系の概略図31
⊠ 3.2.2-3	-10 価の塩化セシウム粒子の KPFM 測定結果
図 3.2.2-4	実験により得られた粒子荷電数と表面電位の関係32
⊠ 3.2.2-5	放射性 Cs 粒子の生成実験の様子
図 3.2.2-6	放射性粒子の KPFM 測定結果の一例33
図 3.2.2-7	英国側提供サンプル (タイプ B-FIB 粒子)の KPFM 測定時の様子34
図 3.2.2-8	英国側提供サンプル (タイプ B-FIB 粒子)の KPFM 測定結果の一例35
⊠ 3.2.2-9	図 3.2.2-8 の結果を 3D 地形図で示した図
図 3.2.2-10	標準的な5種の防護服素材片の単位面積あたりの帯電電荷量36
図 3.2.3-1	テープろ紙試料から分離された放射性微粒子 8 点の SEM 像 38
⊠ 3.2.3-2	放射性微粒子の放射光マイクロビーム XRF スペクトルの比較

図 3.2.3-3	ガラス製認証標準物質 U26 の放射光マイクロビーム XRF スペクトル 40
図 3.2.3-4	ガラス製認証標準物質 U26 を用いた強度規格化方法の検討41
図 3.2.4-1	放射性粒子の各元素の濃度(最大、中央、最小値) 43
図 3.2.6-1	装置の概略図
図 3.2.6-2	生成した微粒子の SEM 像 47

### 略語一覧

東京電力	: 東京電力ホールディングス株式会社
1F	: 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
AFM	:Atomic Force Microscopy(原子間力顕微鏡)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science
	(廃炉環境国際共同研究センター)
DMA	:Differential Mobility Analyzer(微分型電気移動度分級器)
EDX	:Energy Dispersive X-ray Spectroscopy(エネルギー分散型 X 線分析法)
FE-SEM	: Field Emission Scanning Electron Microscope
	(電界放出型走査型電子顕微鏡)
FIB	:Focused Ion Beam (集束イオンビーム)
FP	:Fission Product(核分裂生成物)
Ge-SSD	:Ge Solid State Detector(ゲルマニウム半導体検出器)
ICP-MS	: Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry
	(誘導結合プラズマ質量分析法)
JAEA	: Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
KPFM	:Kelvin Probe Force Microscope(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)が供給している参照標準物質
	(Standard Reference Materials®)
PIXE	:Particle Induced X-ray Emission(荷電粒子励起エックス線放出分析)
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 Microscope(走査型プローブ顕微鏡)
XANES	:X-ray Absorption Near Edge Structure(X 線吸収端近傍構造分析)
XRF	: X-Ray Fluorescence(蛍光 X 線分析)
XRD	:X-Ray Diffraction (X線回折法)

概略

東京電力ホールディングス株式会社(以下、「東京電力」という。)福島第一原子力発電所(以) 下、「1F」という。)事故ではさまざまな放射性核種が環境へ放出されたが、そのうちで環境中に 長期に残留し、主要な外部被ばく源となったのは、放射性セシウム(Cs)である。また同時に事 故炉内に残留し廃炉措置において作業従事者に大きな被ばくをもたらす恐れのある放射性核種も Cs である。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 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 程度の真球形態のみでケイ素、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<sup>[1]-[3]</sup>、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<sup>[4]</sup>、重要性が一層深まった。本課題 の実施以前に、イメージングプレート (IP)やv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(以下、「SEM-EDX」という。)<sup>[1]</sup>、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<sup>[5]</sup>、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 号機及び 1 号機)に由来し、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<sup>[4]</sup>。この高比放射能の Cs (~10<sup>11</sup> Bq/g) を含むシリカ(SiO<sub>2</sub>) 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状況において原子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)に関しても重要と考えられた。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、関 連する情報は少なかった。

本課題では、こうした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、廃炉手順の確立一溶融燃料等の回収、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した。

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言える。課題実施途上にもたらされた事故炉シールドプラグ周 辺の Cs 汚染は、放射性微粒子との関連が強く疑われ、本課題の重要性をあらためて示した材料 と言える。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<sup>[6]-[8]</sup>、生成 要因が定まらない。もちろん、号機ごとに生成機序や要因が異なる可能性もあり、機序・生成要 因の解明は重要な目標であった。その解明によって、各号機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も可能となる。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。

このように、1F 事故の廃炉手順の確立(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・開発を実施した。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、 国立大学法人茨城大学(以下、「茨城大学」という。)、国立大学法人筑波大学(以下、「筑波大学」 という。)、学校法人慶應義塾(以下、「慶應義塾大学」という。)、学校法人東京電機大学(以下、 「東京電機大学」という。)(開始時は、学校法人東京理科大学)、国立大学法人大阪大学(以下、 「大阪大学」という。)、国立大学法人京都大学(以下、「京都大学」という。)、日本原子力研究 開発機構廃炉環境国際共同研究センター(以下、「JAEA/CLADS」という。)の計7者によって研究 業務の分担を行った。また英国側のパートナーとして School of Physics, Bristol University, United Kingdom (英国ブリストル大学理学部物理学科) 所属の Professor Thomas Bligh Scott (2022 年 2 月現在、3 つの所属を兼務; Interface Analysis Centre, Cabot Institute for the Environment and The Bristol Centre for Nanoscience and Quantum Information) ほかと連携 し、特に放射性微粒子の X 線 CT、第 3 世代放射光施設での顕微・蛍光観察及び微細加工の面で 協同して本課題を展開した。

#### 前年度までの概要

令和元年度は以下の進捗をみた。テーマ(1)については、①サイト及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。平成 27、28、30、31 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 の放射性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、蛍光スペクトルを測定することができた(茨城大学)。②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。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 ることがわかった(大阪大学)。③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した(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 Solid State Detector; Ge-SSD) などの併用が必要であることがわかったため、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(大阪大学)。

テーマ(2)については、①放射性微粒子の規格化のため、単離された放射性微粒子の性状に基 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 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走査型電子顕微鏡 (Scanning Electron Microscopy;以下、「SEM」という。)分析を行い、さらに英国で行った放射光実験の結果も踏ま え、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、Cs 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 ての放射性微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示された。放射性微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(JAEA)。②電気的特性の解明のた め、ケルビンプローブ力顕微鏡 (Kelvin Probe Force Microscope;以下「KPFM」という。)法に よる放射性微粒子の自家帯電状況の測定最適条件を検討した。令和2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。さらに、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(慶應義塾大学)。 ③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。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 (X-Ray Fluorescence;以下、「XRF」という。) 法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 U022+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 U02<sup>2+</sup>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(東京理科大学:分担者は令 和2年度に東京電機大学へ所属異動)。④荷電粒子励起エックス線放出分析 (Particle Induced X-ray Emission;以下、「PIXE」という。)法と誘導結合プラズマ質量分析法(Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry;以下、「ICP-MS」という。) で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、Pb を含めた重元素の分析に成功した。さ らに 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。さらにその分析結果から<sup>133</sup>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(筑波大学)。⑤<sup>90</sup>Sr 及び Pu 同位体を分析し、その分 析手法を検討した。4個の放射性微粒子について分析を行ったところ、90Sr/137Csは10-4のオーダ ーの放射能比であり、<sup>239</sup>Pu/<sup>137</sup>Csの放射能比は最大でも 10<sup>-8</sup> であることが明らかになった(大阪 大学)。⑥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。 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 <sup>95</sup>Zr、<sup>131</sup>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(京都大学)。

前年度までの成果報告書

JAEA-Review 2019-041, 2020, 71p. URL: https://doi.org/10.11484/jaea-review-2019-041 JAEA-Review 2020-033, 2021, 84p. URL: https://doi.org/10.11484/jaea-review-2020-033

最終年度においては下記の進捗をみた。まずテーマ(1)については、①令和元年度までに得ら れた放射性微粒子の蛍光に関する知見を応用し、東京電機大学と連携してより効率的な検出と分 離を行う手法の検討を行った。また、令和元年度に引き続き、1F 周辺で大気捕集フィルターに より継続的に捕集している大気試料を、環境中に飛散し土壌等に沈着した放射性粒子の再飛散リ スクについての評価を行う試料とした。さらに、大気試料中の放射性粒子のα核種含有可能性に ついて調査した(茨城大学)。②令和元年度に検討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を用いて、サイト周辺で採取した土壌について、 分析を系統的に行った。これにより1Fからの距離、方角による放射性Cs 微粒子の量や、土壌全 体に占める放射能比について明らかにした(大阪大学)。③令和元年度に確立した分離法(すな わち、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)によ って得られた放射性微粒子のリストを整理し、まとめた(筑波大学)。

テーマ(2)については、①単離された放射性微粒子を、令和元年度に引き続き高分解能 SEM に より分析し、放射性微粒子の分類評価を進めた(JAEA)。②放射性微粒子の電気的特性を解明す るため、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、令和元年度に引き続き、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、原子間力顕微鏡(Atomic Force Microscopy;以下、「AFM」 という。)法による粒子の幾何形状の解析、及び SEM-EDX 観察による粒子解析を併せて行った

(慶応義塾大学)。③放射性微粒子の物理・化学的性状の解明のため、大型放射光施設 SPring-8 での分析用に、組成既知の認証標準ガラス物質を入手し、定量法を開発した(東京電機大学)。 ④令和元年度に引き続き 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、放射性微粒子の組成分析についての定量的評価法を提案した(筑波大学)。⑤難測定核種の 分析に関する研究として、令和元年度に確立した方法を用いて、<sup>90</sup>Sr と Pu の分析を引き続き実 施した。分析のために放射性 Cs 微粒子の環境試料からの分離を進め、検体数を増加させること により放射性 Cs 微粒子間の違いや類似性を調査した。そして<sup>137</sup>Cs 放射能に対する <sup>90</sup>Sr と Pu 放 射能の量比から放射性 Cs 微粒子の生成過程について考察した(大阪大学)。⑥放射性エアロゾル の成長・輸送機構の解明を進めるため、ウラン試料の照射・加熱条件等を変化させ、令和元年度 と異なる化学種も対象とし、人工エアロゾル発生装置を用いた放出化学種の付着実験を行った。 また、Cs 等を含む微粒子の合成実験を行い、その化学組成や温度依存性等の条件を考察し、IF 近傍の放出粒子と比較した(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・情報の交換を行ったり、炉 内事故事象の進展に係り、他分野の専門家との研究会を設けたりする等、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と意見交換を実施した。平成 31 年 1 月より我が国において 拡大したコロナ禍による日英の往来・交流による大きな妨げがあってシナジーの最大化は達成不 能であり、やむを得ず一年の研究期間延長を行ったが、上述のように、最終年度までにおおむね 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予備的なデータ ベースの構築を日英合同で達成した。さらに、放射性 Cs 微粒子の電気的性質の研究や先端分析 において日英のシナジーを実際に生み出し、計画の進捗を図ることができた。 1. はじめに

東京電力 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、そのうちで環境中に長期 に残留し、主要な外部被ばく源となったのは、放射性セシウム(Cs)である。また同時に、事故 炉内に残留し廃炉措置において作業従事者に大きな被ばくをもたらす恐れのある放射性核種は Cs である。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 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 程度の真球形態のみで、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<sup>[1]-[3]</sup>)、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 1F 事故サイト近傍で発見され(図 1-2<sup>[4]</sup>)、 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(SiO<sub>2</sub>)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、Cs の放出インベントリーの観点からは 10<sup>15</sup>(ペタ;P)Bq に達する量が放 出されたとみなせる。本課題に参加する研究者はいち早く、本課題の実施以前にイメージングプ レート(IP)や γ 線測定での粒子単離と、SEM-EDX<sup>[1]</sup>、大型放射光施設 SPring-8 での X 線分析な ど<sup>55</sup>先端手法を適用した高精度の分析により、不溶性 Cs 含有放射性微粒子には、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<sup>[4]</sup>)。 この高比放射能の Cs(~10<sup>11</sup> Bq/g)を含む放射性微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<sup>[8],[9]</sup>)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 に関わるリスク評価が求められていた。

そこで本課題では、依然不明点が多い不溶性の放射性 Cs 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、生成要因の解明することで、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した。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、 基礎的に重要な炉内事故事象解明のための情報源でもある。本課題では、これら放射性微粒子の 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・開発を行うことをねらいとした。

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。本課題応募段階当時最新版であった 「NDF 技術戦略プラン 2017」<sup>[8]</sup>で示された 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と考えた。例えば、 本課題が目指す(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、ひいては廃炉作業 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減容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、本課題応募当時 NDF が措定した 6 つの 重要研究開発課題(NDF6 課題)<sup>[9]</sup>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 し、結果として汚染の拡散防止に寄与するとともに、廃炉作業全般の安全確保に寄与できると考 えた。

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、上述 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」<sup>[8]</sup>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<sup>[10][11]</sup>、 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。

改めて本報告書執筆段階での最新版「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子発所の廃 炉のため技術戦略プラン 2021」(以下、「NDF 技術戦略プラン 2021」<sup>[12]</sup>という。)を参照すると、 「福島第一原子力発電所の廃炉のリスク低減及び安全確保の考え方」において「廃炉の基本方針」 として、「『事故により発生した通常の原子力発電所にはない放射性物質に起因するリスクを、継 続的、かつ速やかに下げること』を基本方針とする。」とされており、放射性物質に起因するリ スク低減のために、i.リスクの定量的把握、ii.リスク源の特定と評価、iii.リスク低減戦略が議 論されている。本課題の対象物は、このうちiiとiiiに該当する内容であることが再度確認できる。

関連して、未だ物質的な証明はなされてはいないが、本課題での研究対象とした Cs 含有放射 |性微粒子放出の本体であったと想像できる高濃度 Cs 含有シリカガラス状物質は、令和 2 年に明 らかになった、格納容器上部に位置する原子炉建屋のウェルシールドプラグと呼ばれる箇所での 1~3 号機に共通した高線量率現象の原因となっている可能性が大きい。この高線量率の原因と なる放射性核種は Cs と判明しており、1、2、3 号機でそれぞれ、シールドプラグ下面に 0.1,30,40 PBq の汚染が蓄積していると推定されている(日本原子力学会安全部会 福島第一原 子力発電所事故 事故進展分析に関するワークショップ資料、原子力規制庁東京電力福島第一原 子力発電所事故対策室、「東京電力福島第一原子力発電所事故の調査・分析に係る中間取りまと め」概要)<sup>[13]</sup>。後述する Cs 含有放射性微粒子の生成要因の議論において気相反応が議論されて いることからも、高濃度 Cs 含有シリカガラス状物質がシールドプラグ周辺の主要な放射性物質 であろうとの推測は、的を射ていると考えられる。ウェルシールドプラグの汚染は、「NDF 技術 戦略プラン 2021」「12」においては、リスク源を分類した図 1-5 に示される「建屋内汚染構造物等 (原子炉建屋、PCV/RPV 内で、事故により飛散した放射性物質により汚染された構造物・配管・ 機器等(シールドプラグ・非常用ガス処理系配管等)及び事故以前の運転時の放射化物)」とさ れ、「将来的にもリスクが大きくなるとは考えにくいが廃炉工程において適切に対処すべきもの」 =緑色で表示に該当とされ、そのリスクは α デブリに比し軽いとみなされているようである。

しかしながら、「NDF 技術戦略プラン 2021」<sup>[12]</sup>では、使用済燃料プールからの燃料取り出しを

目標の一つに掲げ、「放射性物質の飛散防止をはじめとしたリスク評価・安全確保を確実に行い、 1 号機は令和 9~令和 10 年度、2 号機は令和 6~令和 8 年度にプール内燃料取り出しを開始する。 3 号機については、令和 2 年度内にプール内燃料取り出しを完了する(令和 3 年 2 月完了)。」と している。これらの作業では、例えば「1 号機のウェルプラグについては、2、3 号機の数十 PBq に比べ 2 桁程度低い汚染ではあることが、1F における事故の分析に係る検討会にて評価されて いるものの、事故時の爆発の影響でずれが生じ、不安定な状態になっている。今後、ウェルプラ グへの対応方法は、プール内燃料取り出しや後段作業である燃料デブリ取り出しへの影響を考慮 し、安全評価をつくしたうえで、総合的に判断することが必要である。」との記載もあって、本 課題が研究対象とした高濃度 Cs 含有ガラス状物質に対する対策(作業者と住民の安全確保)が 求められると思慮される。これは、「NDF 技術戦略プラン 2021」<sup>[12]</sup>に書かれる 5 つの原則のうち、 「安全」すなわち、「放射性物質によるリスクの低減並びに労働安全の確保、(検討例:放射性物 質の閉じ込め(環境への影響)、作業員の被ばく、リスク低減効果)」に該当する。本件は、原子 力規制庁 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会による「東京電力福 島第一原子力発電所事故の調査・分析に係る中間取りまとめ ~2019 年 9 月から 2021 年 3 月ま での検討~」<sup>[14]</sup>にも詳細に言及されており、重要な解決すべき課題であろう。

1F 事故より早 10 年が経過しており、確かに、「unknown unknowns」(何がわからないかがわか らない)とも言われる技術的な困難(「NDF 技術戦略プラン 2021」<sup>[12]</sup>)の状況からは研究進展が 見られてはいる。しかしながら、一般環境から抽出された 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、依然として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。1F 事故以前にはこうした微粒子の生成や環境への放出はまったく想定されておら ず(有名な Phébus 実験<sup>[15]</sup>においても然り:図 1-6 を参照)、例えば、シビアアクシデント解析 コードである MELCOR においても、Cs は CsI または CsOH と挙動すると想定されてきた<sup>[16]</sup>。した がって、事故進展のシナリオも「高濃度 Cs 含有シリカガラス状物質の生成」という事実に合わ せて修正されてきたと言える。例えば、JAEA/原子力基礎工学研究センターの研究グループは、 CsOH が鋼材表面に不純物である Si と反応して非水溶性の CsFeSiO4 として沈着することを明らか にし<sup>[17]</sup>、次いで、この Cs-Si-O 化合物は、Mo または B の存在に関係なく主要な生成物であり、 Cs-Mo-O と並び Cs 化学吸着物質として重要であることを示した<sup>[18]</sup>。さらに、Si 濃度の異なる SUS304 表面での Cs の分布を、SEM-EDX と硬 X 線光電子分光法(HAXPES) で調べ、Si 濃度が高く なると Cs<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>O<sub>5</sub>、Cs<sub>2</sub>Si<sub>4</sub>O<sub>9</sub> が生じることを明らかにした<sup>[19]</sup>。これらの結果から、彼らは ECUME (多相反応下の核分裂生成物の有効化学データベース)と呼ぶ核分裂生成物 (Fission Products;以下、「FP」という。)化学データベースの初期バージョンを拡張・修正し、既存のモ デルで考慮されていなかった気相の CsOH 濃度とステンレス鋼の Si 含有量の影響を再現すること で、原子炉内のCs分布のより正確な推定を達成した<sup>[20]</sup>。

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(WG)に属して議論を進めてきた。同WGでは、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。本課題では、この議論をさらに深める努力も継続さ れたことで、間接的に上記研究の達成にも貢献したと言えよう。

本課題で取り扱う放射性微粒子には、これまでに、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、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 同位体比と ORIGEN コード計算の結果との 比較から、それぞれ2または3号機(タイプA)、1号機由来(タイプB)と推定されている<sup>[4]</sup>。 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も行われている。さらに、 本課題の進捗によってタイプ C の存在も示唆され、タイプの違いは発生源に由来する(発生号機 の違い)と推測が可能である。しかし、Cs 含有不溶性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 つが主要な仮説である。(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(Molten Core Concrete Interaction; MCCI)による気相での反応・生成<sup>[7],[21]</sup>、(2) 上述の高温環境下での実験に基づく推定=炉心鋼材不純物であるシリカ、鋼材と Cs との反応・生 成<sup>[17]-[19]</sup>、(3)電顕観察等に基づく推定=断熱材の原材料であるシリカ、鋼材と Cs との反応・生 成<sup>[6]</sup>が議論されてきた。もちろん、号機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・生成要因の解明は依然、重要な目標の一つである(図 1-7)。本課題開始後になるが、上 述の JAEA の研究グループは、2 号機のペデスタルエリアとその周辺の高線量率に着目したうえ で、2 号機で使用された断熱材はケイ酸カルシウムであることから、CsOH とケイ酸カルシウム断 熱材の相互作用を 1100℃に至る高温条件で実験を実施し、沸騰水型原子炉の重大な事故下での 前例のない Cs 保持の可能性を評価するに至った<sup>[22]</sup>。生成した水に溶けにくい化合物は、 CsAlSiO4であり、不純物のアルミニウムの濃度に依存するらしいことが示された<sup>[22]</sup>。

これに加え、東京電力の伊東ほかは、タイプ A 粒子には Ca が顕著には含まれない、温度条件 により CsMo 酸化物が生成、Mo が存在すると CsMo 酸化物粒子が生じ、Si-Cs-O 粒子は生成しない、 Zn が存在すると Zn を含む粒子が生成という実験結果をもとに、Si 源はサプレッションチャンバ ー (SC) 内に塗布されていた無機性の塗料だと推定した。さらに、Si 源は塗料だけだと不足す るとし、不溶性ガラス状 Cs 粒子生成量は十数 kg 程度と推定した(伊東ほか、不溶性セシウム含 有粒子タイプ A の生成メカニズムに関する現象論的考察、2018 日本地球化学会第 65 回年会講演 要旨集<sup>[23]</sup>:伊東ほか、球状 Cs 含有粒子の生成メカニズムに関する現象論的考察、日本原子力学 会 2018 春の年会<sup>[24]</sup>)。しかし、物質収支としては完全な解明には至らず、謎は残っている。す なわち、伊東らのガラス状 Cs 粒子生成量十数 kg に、タイプ A 粒子で得られた最大の <sup>137</sup>Cs 比放 射能 10<sup>11</sup> Bq/g を掛け算すると、10<sup>4</sup>×10<sup>11</sup> となることから、ガラス状 Cs 粒子の全放射能は 10<sup>15</sup> Bq(PBq)という値となる。この量は、環境大気中への漏洩全量における不溶性 Cs 放射性粒子に 対する説明としては充分と考えられるが、前述のウェルシールドプラグでの<sup>137</sup>Cs 汚染(30~40 PBq)には数十分の一で不足している。ちなみに、平成23年3月時点での1Fの1~3号機に存在 した<sup>137</sup>Cs の総量は 700 PBq とされ<sup>[25]</sup>、水に溶けて流出した量は 430 PBq と推定されている(「東 京電力福島第一原子力発電所事故の調査・分析に係る中間取りまとめ ~2019 年 9 月から 2021 年3月までの検討~」(2021年3月5日)<sup>[14]</sup>)。したがって、不溶性Csガラス状物質は、相対的 にはマイナープレイヤーと推定される。

ところで、本課題代表者及び分担者らは、1F 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<sup>[26]</sup>ことから先見的にこのような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. Thomas B. Scott 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<sup>[27]</sup>。また、JAEA/CLADS や京都大学との協力で放射性微粒子の 3 次元トモグラフィー を明らかにするなど、先駆的な研究を推進してきた<sup>[6]</sup>。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。本課題で Pu の分析が実施された結果、放射 性微粒子が含む Pu の濃度は一般に低いと想定できることが明らかとなった。また、放射性微粒 子が含有するさまざまな元素濃度の情報や、新たな探索によって、各号機がそれぞれ固有の特徴 を持つ放射性微粒子を放出したと考えられることも明らかにできた。

本課題のさらに先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 たが、いまだに完全には達成されていない革新的な手法が必要となるため、本課題では、その基 礎となる研究調査を中心に実施した。すなわち、β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である。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と期待 される。

放射性微粒子の自家帯電に関する知見<sup>[28]</sup>は、大変残念なことに 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 (Scanning Probe Microscope;以下、「SPM」という。)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 KPFM 法を用いた。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。こうした測定も前例がなく世界 に先駆けた成果である。

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。そこで、本課題 では、レーザーアブレーションによる微粒子生成再現実験や、液滴となるエアロゾルへのウラン からの核分裂生成物の分配に関する実験を展開した。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 した。

まとめると、本課題では縷々述べたような背景や諸ニーズに沿って、1F 事故炉の廃炉手順の 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)について、知見を深めるとともに、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・開発を行うこととし、研究テーマを(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分け、茨城大学、筑波大学、慶應義塾大学、東京電機大 学、大阪大学、京都大学、JAEA/CLADS の計 7 者によって研究業務を分担し、課題の進捗に努め た。


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<sup>[1]</sup>



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<sup>[4]</sup>



図 1-5 福島第一原子力発電所の主要なリ スク源が有するリスクレベルの例

この図の中では Cs 含有放射性物質は、「建 屋内汚染構造物等」に分類されると考えら れる 「NDF 技術戦略プラン 2021」<sup>[12]</sup>より



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<sup>[2]</sup>



図 1-4 事故サイトから 30 km 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<sup>[4]</sup>



 図 1-6 Phébus 実験のシミュレーションで 考慮されている化学種<sup>[15]</sup>
 左側がヨウ素、右側がセシウムに関するもの セシウムと Re, Mo の酸化物化合物は想 定されているが Si 酸化物は想定外



図 1-7 高濃度 Cs 含有放射性微粒子の生成メカニズムに関する仮説の説明 タイプ A 粒子の生成要因として、a)熔融コア・コンクリート反応<sup>[21]</sup>、b)鋼材不純物-Si との反応 が挙げられている(原子力機構の研究開発成果 2016-17 より)。他方、タイプ B 粒子の生成要因 として c)断熱材-Si との反応が挙げられている<sup>[6]</sup>。a)では気相反応での生成が仮定されているが、 b)と c)では固相-液相での反応が想定されている。

	Particle type							
Characteristic	A	В						
Size distribution (observed)	1–10 µm	70–400 μm						
<sup>134</sup> Cs/ <sup>137</sup> Cs (mean)	1.04	0.93						
Other radionuclides	N/A	Antimony-125 (125Sb)						
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	SEM-EDS	synchrotron X-ray						
Elements contained	Fe, Sn, Cl	Na, Mg, Ca, Ba						
Elements in common	Si, O, Zn							

表 1-1 不溶性放射性微粒子の性状まとめ<sup>[4]</sup>

#### 2. 業務計画

2.1 全体計画

本課題では、1F 事故炉の廃炉手順の確立(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・開発を行うこととし、図 2-1 の 全体計画線表にあるように、研究テーマを(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分け、茨城大学、筑波大学、慶應義塾大学、東京電機大学 (担当者の所属異動による。本課題開始当初は東京理科大学)、大阪大学、京都大学、 JAEA/CLADS の計7者(本報告書記載時)によって研究業務を分担し実施した。研究テーマ(1) はさらに3つのサブテーマに、研究テーマ(2)はさらに6つのサブテーマとして研究が推進さ れた。これらに加えて研究推進のため、日英メンバーの相互訪問による意見・情報の交換を行 ったり、炉内事故事象の進展に係り、他分野の専門家との研究会を設けたりする等努力を継続 した。また、単離された放射性微粒子のデータを収集して日英共通化を測ったり、日本側で実 施不能な分析を英国側で実施したり、英国側で粒子への操作を行い日本側で分析を実施したり など、日英のシナジーを創出すべく企画構想をめぐらし実践した。

年度	平成30年度	会和1年度	会和2年度	令和3年度
頁目	+100 +100	11111 1 17 22	11 11 2 11 12	(繰越延長)
(1) 効果的な放射性粒子の分離方法の開発	試験実施	試験実施	試験実施・評価	試験実施・評価
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		a sector de	****	+
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	試験実施	試験美態	試験実施・評価	
(大阪大学)				
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	試験実施	試験実施	試験実施・評価	
(筑波大学)				
(2)放射性微動子の性状抑握		财政家族	1010 (B) (B) (B) (B) (B)	
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	試験実施	protection in the	<b>苏联关路·</b> 肝恒	試験美施 計加
(原子力機構)				
<b>のせんせんかっ かせるとかち パナエとか み ハビーロナ 7 行っ</b>	試驗実施	試験実施	試験実施・評価	試験実施・評価
②放射性微粒十の帝軍状態及び表面状態の分析に因する研究 (慶應義塾大学)	•			
⑦ 土 九 山 地 ひ マ ホ 4 - 10 1 ル 34 人 山 小 1 - 10 → 7 + 17 mm	試験実施	試験実施	試験実施・評価	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 (東京理科大学→東京電機大学)				
② 井原サフ ひわす ことう 彼井山 ハビナ し 汗波 社人 ゴニ イー 奈良 ハビナル・レス 美具	試験実施	試験実施	試験実施・評価	
④何重和十副起エックス線加出分析法と誘導結合ノラスマ員重分析法による領重 元素検出に関する研究	• •			
(筑波大学)	DOM NO.			
(5)α放射体等の難測定核種の分析に関する研究	試験実施	試験実施	試験実施・評価	
(大阪大学)				
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	試験実施	試験実施	試験実施·評価	
(京都大学)				
(3)研究推進	研究会等の開催	研究会等の開催	研究会等の開催	研究会等の開催
(茨城大学・原子力機構)			Δ Δ	A A
CONTRACTOR CONTRACTOR AND A	まとめ・詳価		<b>推研</b>	+1.4. 49.75

図 2-1 年度別全体計画

# 2.2 実施体制図

以下の図 2-2 に本研究の実施体制図を示す。



図 2-2 実施体制図

2.3 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法

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 業務では、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 発を実施している。

- 2.3.1 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

令和元年度に引き続き、1F周辺でフィルターに継続的に捕集している大気粒子試料を、環境中に飛散し土壌等に沈着した放射性粒子の再飛散リスクについての評価を行う試料とした。 また、大気試料中の放射性粒子のα核種含有可能性について調査した。

令和元年度までに得られた放射性微粒子の蛍光に関する知見を応用し、東京電機大学及び 筑波大学と連携し、より効率的な検出と分離を行う手法の検討を行うとともに、その手法に ついて模擬粒子あるいは 1F 近隣等で捕集したサンプルを用いた試験を実施し、実効性を検討 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) 令和元年度に検討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を用いて、サイト周辺で採取した土壌について分析を系統的に行った。

これにより 1F からの距離、方角による放射性 Cs 微粒子の量や、土壌全体に占める放射能 比について明らかにした。

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)

令和元年度で得られた分離方法と、それによって得られた放射性微粒子のリストをまとめた。

(2) 効果的な放射性微粒子の分離方法の開発

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)

令和元年度に引き続き SEM 分析を使用し、放射性微粒子の分類評価を行った。また、これ までに蓄積された結果を基にサンプルアーカイブの構築を進め、成果の取りまとめを行った。 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、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、令和元年度に引き続き、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、AFM 法による粒子の幾何形状の解析及び SEM-EDX 観察による粒子解析を併せて行った。

令和元年度に引き続き、KPFM 法による粒子の帯電状態の測定を行った。また、日本及び英国の研究機関と連携し、薄片化したタイプ B 粒子の KPFM 測定を行った。

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:東京電機大学)

レーザー顕微鏡を用いた 1 粒子単位での蛍光分光分析の結果について、環境中に存在する 土壌粒子等と比較を行った。また、大型放射光施設 SPring-8 での分析用に組成既知の認証標 準ガラス物質を入手した。 さらに、レーザー顕微鏡を用いた1粒子単位での蛍光分光分析の結果について、放射性Cs 微粒子を選択的に検出可能か検証した。また、大型放射光施設SPring-8においてXRFを行うことで、放射性Cs 微粒子の重元素濃度を半定量的に評価する方法を提案した。

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)

令和元年度に引き続き 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、放射性粒子の組成分析についての定量的評価法を提案した。

⑤ a 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)

令和元年度に確立した方法を用いて、<sup>90</sup>Sr と Pu の分析を引き続き実施した。分析のために 放射性 Cs 微粒子の環境試料からの分離を進め、検体数を増加させることにより放射性 Cs 微 粒子間の違いや類似性を調査した。そして、<sup>137</sup>Cs の放射能に対する <sup>90</sup>Sr と Pu の量から放射 性 Cs 微粒子の生成過程について考察した。

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)

ウラン試料の照射・加熱条件等を変化させ、令和元年度と異なる化学種も対象とし、人工 エアロゾル発生装置を用いた放出化学種の付着実験を行った。また、Cs 等を含む微粒子の合 成実験を行い、その化学組成や温度依存性等の条件の考察を行い、1F 近傍で採取された事故 放出粒子と比較した。

(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2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

IF 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<sup>[1][4]</sup>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。この研究項目では、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及び空気中に浮 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を目的としている。

- 前年度までの実績
- ① オートラジオグラフィーによる環境中での大気飛散した放射性粒子の検出

不溶性放射性微粒子が地面等から空気中に飛散することによるリスクの評価の材料とする ため、不溶性の放射性 Cs 微粒子が周辺土壌等から空気中に飛散し捕集される頻度と、検出さ れた粒子の性状を明確にすることを目的として、1F 周辺で大気粒子を捕集し、その中に存在 する放射性 Cs 微粒子の検出・分離を試みた。

ハイボリュームエアサンプラー(柴田科学 HV-1000RW, HV-1000R)による大気捕集を福島 県浪江町津島地区において継続して実施しており、得られた大気粒子試料から IP 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、光学顕微鏡下でマニュピレーターを 使用して分離を行った。分離に成功した粒子について 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ところ、放射性微粒子の形状は、すべて直径が約 1~3 μm の球状ある いは楕円体状であり、形状や構成元素からタイプ A であることがわかった<sup>[29]</sup>。

② 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する手法として、粒子の可視光及び紫外光 で励起される蛍光を利用する手法を検討した。令和元年度までに東京理科大学によりタイプ 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いたため、①において 1F 周辺で捕集した大気粒子試料から検出・分 離された不溶性放射性微粒子に関しても同様に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ける立ち合い分析により、蛍光スペクトルを測定した。しか し明確な蛍光は検出されず、この蛍光の原因となっていると考えられるイオンの含有量及び 粒子自体が小さいためではないかと考えられた。またタイプ B の不溶性放射性微粒子につい ても筑波大学が調べたが、このイオンが含有されないためか、やはりこの蛍光は検出されな かった。

(2) 今年度の実績

本業務項目については、令和2年度に終了を予定していた装置試作、紫外光励起による実験が、新型コロナウィルス感染拡大予防のため茨城大学の入構制限により令和2年4~9月の 半年間実施できず大幅に遅延したため、プログラムオフィサー(P0)の承認を得て、実施期間を12カ月間延長した。そのため、以下では令和2年4月~令和4年3月までの実績を述べる。

① オートラジオグラフィーによる環境中での大気飛散した放射性粒子の検出
 令和元年度までに浪江町津島地区において採取した大気粒子試料から、直径が約1~3 μm

の球状あるいは楕円体状のタイプ A 不溶性放射性粒子を検出・分離することができたが、そ れらが周辺の土壌から飛散したものか検討するため、大気捕集を行った地点近傍で採取した 表土試料中の不溶性放射性粒子を比較した。表土試料から大阪大学によりオートラジオグラ フィーを用い検出された不溶性放射性粒子の<sup>137</sup>Cs 放射能強度は、大気試料から分離されたも のとほぼ一致した。またその中から分離した不溶性放射性粒子の粒径や形態や元素組成もほ ぼ一致しており、大気フィルター試料から検出・分離された放射性 Cs 微粒子は周囲の土壌表 面から飛散したものと考えて良い。

令和3年から、より1Fに近い浪江町井出地区にて大気粒子を捕集し、その試料から放射性 Cs 微粒子の検出を試みた。これまでと同様に、ハイボリュームエアサンプラーを使用して大 気中の微粒子全体を石英繊維フィルター上に捕集し、IP 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。より 1F に近い井出地区では津島地区より空間線量が大き く、大気粒子試料から放射性微粒子が検出される頻度が増加する可能性があると予想したが、 表 3.1.1-1 に示すように津島地区で大気粒子試料を採取した平成 27 年(2015 年)から令和 元年(2019年)の期間と検出数は同程度か小さいことがわかる。

表 3. 1. 1-1 2015, 2016, 2018, 2019, 2021 年に捕集した大気粒子試料から検出された 月毎の放射性 Cs 微粒子個数<sup>[29]</sup> 「-」は、その月に大気粒子サンプリング、あるいは大気粒子試料からの

			放身	寸性微粒	立子検出	お行れ	っれてい	ないこ	ことを示	下す。			
月年	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	年 別 合 計
2015	0	0	0	0	2	1	1	0	0	2	0	0	6
2016	1	0	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	3
2018	0	0	1	0	1	0	0	1	0	0	0	0	3

0

0

1

1

0

 $\mathbf{2}$ 

0

0

0

0

0

 $\mathbf{2}$ 

3

3

1

1

0

0

0

0

1

0

0

3

さらに表 3.1.1-1 では、月毎の大気粒子試料からの放射性微粒子検出数を示している。検 出数が多いのは、3~5月の春季(合計9個)である。不溶性ではないイオン態の<sup>137</sup>Csの大気 再飛散に関する研究<sup>[30],[31]</sup>は、大気サンプリングを行った地域では、比較的表土が乾燥し風 速も大きい春季には土壤鉱物粒子の飛散が卓越し、それが<sup>137</sup>Csの担体エアロゾルとなってい ることを示している。不溶性放射性 Cs 微粒子も、土壌鉱物粒子と同様にフリーダストとして 飛散している<sup>[30]</sup>可能性が高いと考えられる<sup>[29]</sup>。

また、今回大気試料から分離できた放射性微粒子に関してα核種の検出が可能か大阪大学 と協議した。しかし、大きさと放射能から見て、検出限界以下であるという結論に達した。 ただし、SEM-EDX 分析で1 個だけ一部からウランが検出されており、微量に含まれている可 能性はあると考えられる。

② 大気不溶性放射性粒子の蛍光スペクトルの測定

2019

2021

月別

合計

0

0

1

0

1

1

1

0

3

1

1

3

タイプ A 微粒子で蛍光を発した物質の含有量が少ないなどの理由で、それに起因すると考 えられる緑色蛍光を発しない不溶性放射性微粒子、特にタイプ B 微粒子についても、蛍光に よる検出が可能か検討するため、生物用の蛍光顕微鏡(バイオツールズ、BS-2040TF)をカス

タマイズし、波長 365 nm の紫外光励起でタイプ B 粒子の蛍光スペクトルを測定する実験を行った。蛍光スペクトルは、分光器 (Ocean Optics MAYA2000pro カスタム品) にて測定した。

筑波大学から提供を受けた3つのタイプB粒子それぞれについて紫外光励起蛍光顕微鏡画 像を撮像したところ、各粒子内に水色の蛍光を発する部位が散在していることがわかった。 ただし粒子の一つには、リボン状の青緑色の強い蛍光を発する部位があった。測定した蛍光 スペクトルから、粒子固定に用いたカプトンテープに起因する背景蛍光を除去した正味蛍光 スペクトルは、水色蛍光部位のみを持つ2粒子ではほぼ一致しており、いずれも青色光を中 心とするブロードな極大を示した。それに対し青緑色の蛍光部位を持つ粒子の蛍光スペクト ルは極大波長が異なっており、またこの粒子のみ青色光励起で緑色の蛍光を発することが確 認できた。この蛍光スペクトル分布は、水色蛍光部位のみを持つ2粒子と同じ青色光を極大 とする蛍光スペクトルとタイプA微粒子と同じ蛍光(3.2.3項参照)の和であるとして説明 できる。したがって、この粒子には、他の2つのタイプB微粒子と同じ蛍光物質とタイプA 微粒子の蛍光物質の両方が存在している可能性が高い。

この青色蛍光を利用して、タイプ B などの放射性微粒子を検出することが可能か、さらに 検討する必要がある。この青色蛍光を発する部位がタイプ B 粒子中の<sup>137</sup>Cs が濃集する部位と 関連しているか、もしくは青色蛍光を発する物質が核分裂生成物など原子炉起源の物質に直 接関係しているかを明らかにする必要がある。また、平成 30 年度に放射性微粒子検出と干渉 する可能性のある大気バックグラウンド粒子の蛍光特性を測定しているが、その結果、蛍光 スペクトルの波長分布は異なるものの様々な粒子が青色光域に極大を持つことがわかってい る。そのため放射性微粒子を検出するには、胞子などバイオエアロゾルを除去するためのサ ンプルの加熱や、蛍光スペクトル波長分布の違いにより放射性微粒子を判別するための分光 測定が必要となると考えられる。

図 3.1.1-1 は、蛍光を利用して放射性微粒子をほぼリアルタイムで検出・分離するための 装置の概念図である。測定対象の空気をエアポンプで引込み、水を噴霧してミスト中に粒子 を捕集する。捕集された粒子を含む水は送液ポンプで吸引され石英管を通過する際に UV-LED からの励起光を照射され、粒子が放出する蛍光スペクトルを分光検出装置で検出、放射性微 粒子の有無を推定するとともに、判定結果により 3 方電磁弁を操作して放射性微粒子を取り 分けるというものである。

> 14 - 39 -



図 3.1.1-1 空気中の放射性微粒子を捕集、紫外光励起蛍光により検出・分離する装置の概念図

まず比較的検出が容易であると考えられる、緑色蛍光を発する放射性微粒子の検出模擬実験を行った。図 3.1.1-2 は、この実験に用いた装置の概略を示す。純水、ウランガラスを粉砕した模擬粒子を分散させた水、対照粒子として火山ガラス粒子を分散させた水を送液ポンプで流し、石英管を通過させる。石英管には紫外 LED から紫外光を照射し、RGB センサーで 蛍光を検出するというものである。



図 3.1.1-2 模擬放射性粒子を紫外光励起蛍光により検出する実験装置概略図



図 3.1.1-3 対照粒子(上)及び模擬放射性粒子(下)を流水とともに流した際の蛍光信号

図 3.1.1-3 は、対照粒子(火山ガラス)及び模擬放射性粒子(ウランガラス)をそれぞれ 分散させた水を石英管に流したときの、RGB センサー出力信号の変化を示す。対照粒子実験 では、信号変動が小さく、また赤(R)光信号と緑(G)光信号がほぼ同じ変化を示したのに 対し、模擬放射性粒子実験の場合には有意に緑(G)光信号が強く、模擬粒子からの蛍光が検 出できていると考えられる。これにより、緑色蛍光を発する放射性粒子について検出・分離 できる可能性が示されたと考えている。ただし、非常に粒径の小さい粒子については、検出 部の光学系やセンサーをより高性能のものとする必要がある。

小粒径の緑色蛍光を発する放射性粒子あるいは青色蛍光を発する放射性粒子について、蛍 光を用いて検出するにはより効率的な光学系が必要と考えられ、簡単に実現するには蛍光顕 微鏡をベースにすると良いと考えられる。図 3.1.1-4 は、そのための実験装置の概念図であ る。このような装置により、技術的には蛍光を放出する放射性微粒子を検知・分離すること は可能と考えられる。図 3.1.1-5 は、この装置で模擬放射性粒子(ウランガラス)を観察し た例である。しかし、どのくらい小さな粒子まで検出できるか、すべての放射性粒子がここ で挙げたような蛍光を放出するのかという問題があり、すべての放射性微粒子が検出できる わけではないことには注意する必要がある。また、コンクリート粉や土ぼこりなど他のダス トが多いと、光透過率が下がり蛍光が妨害され検出が難しくなる。特に青色蛍光については、 カビなどの胞子等のバイオエアロゾルも波長分布が近い蛍光を発するため、そういう粒子が 存在する場合にはスペクトルによる分別の他、空気取入口を高温にするなどで前もって除去 する対策も必要になる。



図 3.1.1-4 蛍光顕微鏡と分光器をベースとした模擬放射性粒子及び大気中の放射性粒子を 検出する実験装置概要



図 3.1.1-5 蛍光顕微鏡をベースとした装置で流水中の模擬放射性粒子からの緑色蛍光を 検出した実験状況

(3) 本研究成果が廃炉事業に貢献できる点

本研究の結果、環境中に放出された放射性微粒子は、放出から 10 年を経ても低頻度ではあ るが大気中に飛散するリスクがあることが示され、廃炉事業においても環境中への放射性粒 子の漏洩を防ぐことの重要性が改めて示された。

さらに、東京電機大学及び筑波大学との連携により、タイプ A 放射性微粒子では青色〜紫 外光励起により特有の緑色蛍光を、タイプ B 粒子は紫外光励起により青色蛍光を発すること が確認できた。簡単な装置による模擬実験を行い、放射性微粒子の空気中や水中への飛散を 高い背景放射能によりオートラジオグラフィーなど放射線測定による検出が簡単には適用で きない環境下でも、蛍光により迅速に検出できる可能性を示すことができた。 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)

前年度までの実績

放射性微粒子の放出量の推定や放出過程の知見を得るためには、放射性微粒子がどこにど れだけ存在しているかの情報が必要である。このためには、決められた方法で、決められた 面積で採取した土壌について、どれだけ放射性微粒子が存在しているのかについて調べるこ とが必要になる。これまで放射性微粒子の分析は、一つひとつの粒子を個別に取り出し研究 が行われてきたが、多くの地点、すなわち大量の土壌に対してそのような手法を適用するこ とは難しく、また「すべて」の粒子を損失なく取り出すというのは現実的ではない。そこで 本課題においては、放射線により感光する IP を用いたオートラジオグラフィーにより、放射 性粒子の特定法の検討を行った。

平成 30 年度はオートラジオグラフィーによる粒子弁別のプロトコル作成を行い、令和元年 度には実試料へ適用し放射性微粒子の分布を調べ、また実試料適用に伴うプロトコルの軽微 な改訂を行った。土壌中の放射性微粒子を特定する手法は次の(1)~(4)のようになって いる。(1) φ8.5 cm、深さ 2.5 cm の条件で採取した土壌試料について、円錐四分法(円錐状 に積み上げた試料を平たく押し広げ四分割し,相対する場所の試料を合わせて縮分試料とす る方法)により 4 g 程度まで土壌を減らし、これを 15 cm 四方の薬包紙上に均等にばらまい た。これを 3 時間 IP に暴露し、FLA-7000(富士フイルム)により放射能分布を画像化して二 次元分布を取得した(図 3.1.2-1)。この時、放射能の定量のために別に土壌より取り出した 1~20 Bq の放射性微粒子(標準試料)についても同時に測定した。(2)標準試料を用いて、 IP 上でのシグナル強度(QL 値)と放射能の検量線を作成した。(3)土壌中で上位 1%の QL 値 を持つピクセルを検出し、多くのピクセルが集中している点を放射性微粒子の候補とした。 そしてピクセル教と QL 値の相関を調べ、標準偏差が大きい、すなわち少ないピクセルに高い QL 値が集中している(ほとんどの放射能が小さい領域に存在していることに対応)ものに関 して、放射性微粒子として判定した。(4)検量線を用いて放射性微粒子一つずつの放射能を 決定した。

令和元年度は 10 地点で得られた土壌について、放射性微粒子濃度とインベントリーを調べた。不溶性粒子に由来する Cs 放射能は、土壌全体の Cs 放射能に対して割合としては小さいことが明らかとなり、地点によって大きく異なることがわかった。



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分析した土壌試料を示している。

# (2) 今年度の実績

令和元年度の実績である放射性微粒子分析のためのプロトコルに従い、新たに 10 地点で採 取された土壌の分析を行った。令和元年度の実績と合わせて、19 地点の土壌を分析したこと により、1F 周辺の陸地についてほとんどの方向をカバーする分析ができただけでなく、汚染 が遠方まで及んでいる北西方向では 1F からの距離依存を調べる分析を行うことができた(図 3.1.2-2)。



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 1F を示している。

それぞれの地点の土壌について、IP によるオートラジオグラフィーにより放射性微粒子の 探索を行った。いくつかの地点については、同じ試料の複数回測定、同一地点で採取された 別の試料の分析を行っており、結果は互いに整合することを確認した。

土壌中の放射性 Cs に占める放射性微粒子由来の放射性 Cs 濃度、すなわち放射性微粒子濃 度は地点により 10 倍程度の差が存在しているものの、全体として放射性微粒子濃度は低く、 土壌全体の放射性 Cs の主要な成分ではないことがわかった。また明確な方向依存性が存在し ていることを明らかにした。土壌全体の放射性 Cs 濃度は、1F から極めて高い領域が存在し ているが、放射性微粒子濃度に注目すると必ずしも高いわけではなく、明確な相関は得られ なかった。

放射性微粒子のインベントリーも地点によって大きく異なっており、放射性微粒子濃度と は異なる傾向も見られた。

本研究の結果を、先行研究である Ikehara らの結果<sup>[32]</sup>とも比較を行った。まず Ikehara ら は、本研究で分析した西側の地点と近い地点において、粒子濃度が 10%程度あることを報告 している。本研究では、粒子濃度はそれよりも低かった。不溶性粒子の判定プロセスが、不 溶性粒子濃度を決めるうえで重要であると考えられる。 (3) 本研究成果が廃炉事業に貢献できる点

本研究により、土壌中の放射性微粒子存在量が明らかとなった。これによりこれまで研究 されてきた土壌の汚染と事故時の 1F 炉内状況の関係について、放射性微粒子の生成、放出過 程の議論と初めてつなげることが可能となった。事故時のどの時点で粒子が生成したのかに ついて議論ができるようになったことで、炉内に存在する放射性微粒子の状況についても情 報が得られるようになり、これは廃炉において重要な基礎的な知見となる。 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)

前年度までの実績

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した。

図 3.1.3-1 に全体の流れをポンチ絵で示した。CF-01 塵埃試料をユニパックに入れ、超純水を加えた<sup>[4]</sup>。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<sup>137</sup>Cs の計数率を測定した(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<sup>137</sup>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載せた。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 半導体検出器で測定することで確かめた。<sup>137</sup>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 土壌及び塵埃試料から粒子を取り出すまでの過程

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試料の提供を行った。図 3.1.3-2 には、一か所の埃試料から筑波大学で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 半導体検出器などの併用が必要であることがわかったため、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 3.1.3-2 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 Bq)

(2) 今年度の実績

今までに筑波大学で取り出した放射性粒子については、粒子 1 個 1 個について放射能強度 (<sup>137</sup>Cs と <sup>134</sup>Cs) 及び SEM 像をまとめたリストを作成した。図 3.1.3-3 に作成した Word ファ イルの一部を掲載する。なお、リストの一部は付録に収録している。その主体はタイプ B 粒 子である。

					_			_					nu-
115	CF-01R039-	400-	4	- 230.6	±	7.9 -	212.0	±	- 5.1	0.92	±.	0.04 -	
116	CF-01R040-	400-	8	176.4	±	6.0	161.8	±	- 3.9	. 0.92	±.	0.04 -	
117	CF-01R041-	100-	-03	. 118.3	±	4.0 -	106.9	±	- 2.6	- 0.90	±.	0.04 -	
118	CF-01R042	100-	0	. 145.6	±	5.0	133.8	±	- 3.2	. 0.92	±.	0.04 -	
119	CF-01R043-	100-		- 240.4	±.	8.2 -	218.5	±	- 5.2	. 0.91	± .	0.04 -	Barry Cal
120	CF-01R044-	100-		. 189.5	±	6.5	173.1	±	. 4.2	. 0.91	± .	0.04 -	
121	CF-01R045	200-	8	. 92.2	+	3.1	83.3	±	- 2.0	- 0.90	±.	0.04 .	
122	CF-01R046-	200-	*	. 255.1	±	8.7	233.1	±	5.6			-	
123	CF-01R047	200	80	386.0	±	13.2		_	100	189	Ì	-	
124	CF-01R048	200-		. 243.5	±	8.3	The D	1		1		-W	A REAL PROPERTY AND A REAL
125	CF-01R049	200-	1	. 106.8	±	3.6		1		P	-	-	1
126	CF-01R050	100-	-	217.2	±	7.4			-		-		
	1			1	1			-	1		1		
								Ĩ			T		
								1					

図 3.1.3-3 取り出した放射性粒子のリストの例

(3) 本研究成果が廃炉事業に貢献できる点

本研究により、土壌中の放射性微粒子を取り出す技術が確立できた。これにより多くの放 射性微粒子が実際に収集できて多種の研究が可能となった。環境中から収集した放射性微粒 子の扱い方などの経験は、より多彩な放射性物質が存在する原子炉建屋内で、廃炉工程にお いて取り扱わねばならぬ放射性粒子に関する基礎技術の習得に役立つ。これは廃炉工程の設 計や具体的な廃棄物処理の方法確立において、重要な基礎的な知見となる。

## 3.1.4 まとめ

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)として、 令和元年度までに得られた放射性微粒子の蛍光に関する知見を応用し、東京電機大学と連携 し、より効率的な検出と分離を行う手法の検討を行った。令和元年度に引き続き、1F 周辺で 大気捕集フィルター継続的に捕集している大気試料を環境中に飛散し、土壌等に沈着した放 射性粒子の再飛散リスクについての評価を行う試料とした。また、大気試料中の放射性粒子 のα核種含有可能性について調査した。蛍光に関する知見を応用した、より効率的な検出と 分離を行う手法の検討を引き続き行うとともに、その手法について模擬粒子あるいは1F 近隣 等で捕集したサンプルを用いた試験を実施し、実効性を検討した。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)では、令和元年度に検討した、 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を用 いて、サイト周辺で採取した土壌について、分析を系統的に行った。これにより1F からの距 離、方角による放射性 Cs 微粒子の量や、土壌全体に占める放射能比について明らかにした。 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)では、 令和元年度で得られた分離方法と、それによって得られた放射性微粒子のリストをまとめた。

#### 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)

前年度までの実績

平成 30 年度及び令和元年度の本課題において、参画機関の分離した放射性微粒子の評価を JAEA 保有の資機材で行った。また英国側パートナーと試料交換の拠点となることで本課題を 推進した。

令和元年度までに本課題の中では従前の知見ではあまり見られていなかった放射性微粒子 を観察しており、その結果 1F 近傍にはタイプ A の不定形が数多く存在することと、1F 南側 で見つかった小石状の未知試料(暫定的にタイプ C)が、新たに放射性微粒子の 1 種である ことを認定した。さらに二次イオン質量分析装置で見出したウランの同位体分析においてウ ランが 1F 1 号機由来であることを確かめたと同時に、その含有量はわずかであり、ウランに よる影響は限りなく低いことを確認した。

英国側への試料輸出では3種類すべての放射性微粒子を、外為法及びJAEA内規に則り手続きを行ったうえで航空貨物として出荷し、先方での共同研究に供与した。特にタイプ C 粒子を原子炉由来の放射性粒子と認定するにあたり、英国の放射光施設 Diamond Light Source(DLS)で実施した蛍光 X 線による CT 撮影で粒子内部の元素分布測定を三次元的に行い、得られた結果を用いた。

(2) 今年度の実績

本業務項目については、日本では難しい放射光実験を英国の大型実験施設で実施し、その サンプルを分析することにより放射性微粒子の基礎物性を明らかにする予定であった。しか し、英国では令和2年11月より新型コロナウィルス感染拡大予防によるロックダウンが実施 されたため、サンプル作製、照射試験及びそれらの輸送が止まってしまった。そこで、P0の 承認を得て、実施期間を12カ月間延長したので、令和2年4月~令和4年3月までの実績を 以下に述べる。

① 目的

IF 事故で放出された放射性微粒子は、1F にある事故を生じた 4 つの原子炉のうち、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が複数発見されており<sup>[33]-[35]</sup>、本課題の 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、知見の整理が 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性が ある。加えて英国側と試料をやり取りする際の輸出管理を担い、円滑に事業に供する体制を 維持することが重要である。

放射性微粒子の SEM 観察は CLADS が保有する高分解能走査型電子顕微鏡(日本電子製 JSM-7800F)を用い、放射性微粒子の詳細画像取得及びエネルギーEDX 解析による元素分析を行い、 分類評価を行った。使用した装置の詳細は過年度の報告書に記載の通りである。一方、令和 2 年度(及び繰越となった令和 3 年度)は他の再委託先を含め取得し蓄積してきた放射性微 粒子のデータを取りまとめ、粒子の分類定義を再検証し、何号機でどのような放射性微粒子 と遭遇する可能性があるか検討した。

## 放射性微粒子の分類

本課題を開始した平成 30 年度の時点では 1F 事故で放出した放射性微粒子はタイプ A とタ イプBの2種類が認知されていた。タイプBは1F北北西のごく限られた地域のみに沈着して おり、発見された場所の汚染時期から3月12日の1号機水素爆発に伴い放出した1号機由来 の粒子だと断定されている。一方タイプ A は最初に存在が確認された放射性微粒子であり<sup>[1]</sup>、 3月15日未明から放出が始まり、放射性プルームの一部として首都圏にまで到達し、さらに 群馬県で U ターンするような軌跡を描きながら、福島県中通りに到達して降雨により地表沈 着したと推定されている。タイプ A は放出時期が 3 月 15 日ということもあり、それまでに幾 度となく 1F 周辺のモニタリングポスト(空間線量計)の値も上昇していることから、何号機 から放出されたものかは、特定に至っていなかった。採取した試料や、粒子そのもののセシ ウム<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 同位体比により、おそらく 2、3 号機のどちらかとされているが、研究者によ ってその放出源に関して異なる主張が存在する。一方、本課題の中でタイプ A 及びタイプ B いずれにも属さない一見すると黒い小石のような粒子が 1F 南側で見つかった<sup>[33]-[35]</sup>。この粒 子はケイ素、アルミニウムに加え鉄も豊富に含んでおり、放射能分析によりセシウム以外の y線放出核種、加えてウラン等のα放出核種は検出されず、令和元年度の報告書ではこの粒 子を暫定的にタイプCと称し、引き続き検証を進めることとした。以上のことから 1F 事故で は簡単に放射性微粒子と言っても複数種の特徴的なものが存在し、またそれらは発生源に依 存することで、廃炉作業における号機毎の安全対策も異なってくる可能性が示唆される。

# 1) 放射性微粒子の系統的分類

IF 由来の放射性微粒子を調査・研究するうえで、あらためて分類の整理を行った。特にタ イプ A とタイプ B は分類について誤解されている例が存在する。それはタイプ A が最初に見 つかったのが茨城県つくば市で IF から 170 km 南西に位置していたことから<sup>[1]</sup>、長距離輸送 されやすい粒径かつ形状の粒子のみが到達し、さらに 2~3 µm の球状だったことで「セシウ ムボール」という名称が広まったことに由来する。結果的にタイプ A は小さくて球状のもの で、大きくて球状だけでないものがタイプ B と誤解されるに至っている。しかし実際には本 課題の中でも複数発見されたように球状でないいびつな形状をしたタイプ A も存在する (図 3.2.1-1)。特に 1F 周辺ではその存在が顕著で、むしろ不定形のタイプ A の方が多い状況であ る。またタイプ B は 1F 周辺に近づくほど、球状でないものに加え、そもそも完全に微粒子化 される前のガラス繊維を纏うような粒子も見つかっている。

本課題の従事者は放射性微粒子のタイプA及びタイプBの分類について、Satou ら<sup>[4]</sup>が行った放出源を基本とした分類で放射性微粒子を取扱っている(表 3.2.1-1)。その中で放射性微粒子をそれぞれ分類するうえで構成元素、粒子形状、粒子の大きさ、単位体積あたりの放射能量(比放射能)及び<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs同位体比などを複合的に利用し定義している。次にそれぞれの放射性微粒子について特徴を整理する。なお表記順は発見順ではなく、発生源となった原子炉の号機順とし1号機から順番に紹介する。



図 3.2.1-1 1F 北西 5 km 地点で見つかったタイプ A 粒子

	Α	В
Size distribution (observed)	1–10 µm	70–400 μm
<sup>134</sup> Cs/ <sup>137</sup> Cs (mean value)	1.04	0.93
Distribution	Widely	Limited (North)
Suspectid emission date	15-Mar	12-Mar
Source reactor	Unit 2 or 3	Unit 1
Specific radioactivity	high	low
Detection of Cs characteristic X-ray	by EDS	by Synchrotron X-ray
Contain elements	Fe, Sn, Cl	Na, Mg, Ca, Ba
Elements in common	Si	i, O, Zn

表 3.2.1-1 Satou らの行った放射性微粒子の定義<sup>[4]</sup>

a) 1 号機由来の放射性粒子 (タイプ B)

1 号機水素爆発に伴い汚染した北北西の限られた範囲で見つかっている<sup>[4],[33],[34],[36]</sup>。この タイプの粒子は<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 同位体比が明らかに他の放射性粒子よりも小さい値を示しており、 1 号機の特徴である他の号機よりも低いセシウム同位体比を反映している。単位体積あたり の放射能もタイプ A より低い。12 日の水素爆発に伴って放出されたため、粒径が 500 μm 程 度の粒子も複数確認されている。

1 つの粒子として見た場合、セシウムの濃度は低いが粒径が大きいため、1 粒子あたりの放射能は極めて強くなり、最大 20 kBq (2 万ベクレル)級の粒子が敷地外でも見つかっている。 また小野ら<sup>[36]</sup>や Satou<sup>[4]</sup>らが指摘しているが<sup>[4][32]</sup>、タイプ B のセシウムは粒子内部で不均一に分布しており、粒子の自然風化でセシウムが濃集している箇所のみが飛散した場合、想定されるよりも大きな線量率効果を作業者、環境、一般公衆に与える可能性がある。

タイプ B は主成分であるケイ素の由来が唯一明白に判明している粒子で、その素となった のは 1 号機オペレーションフロア外壁に使われていた断熱材<sup>[37]</sup>である。水素爆発前にオペレ ーションフロアに充満したセシウムを含む蒸気がケイ酸を主成分とした断熱材に取り込まれ、 爆発の衝撃ともに粒子が形成され北西方向に飛散したと考えられる。その際、セシウム以外 にアンチモン-125(<sup>125</sup>Sb)、<sup>90</sup>Sr、微量の <sup>235</sup>U、Pu も取り込まれ検出されている<sup>[4], [33], [34]</sup>。 これらの放射性・核燃料物質が見られるのは、炉心が極めて高温の状態で放射性物質が格納 容器外に漏洩したことを示唆しており、その状況は、これまでに推定された事故進展とも一 致している。

このようにタイプ B は 1 粒子あたりの放射能と粒径が大きいが、放出したイベントが特定 されており、敷地外についてはおおよその分布も明らかになっている。また敷地内において も 1 号機関連の瓦礫等廃棄物に含まれる可能性があるが、比放射能は低いため基本的な対処 法である粉塵の飛散防止対策で 2 次的環境放出は抑止できると期待される。

b) 2号機由来の放射性粒子(タイプ A)

タイプ A 粒子は、これまで 2 号機もしくは 3 号機のどちらからか放出されたとされ、具体 的な放出源は断定されていなかった。事故進展の時系列的には 2 号機からの放出であること がもっぱら正しそうだが、東京電力が平成 25 年に実施した 3 号機オペレーションフロアでの 粉塵調査で、タイプ A の可能性が示唆される粒子が発見されたことで<sup>[37]</sup> 放出源が断定できな くなった。本来であれば <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 同位体比で決定づけられれば良いが、2、3 号機はいずれ も炉内で生成した <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 同位体比が近い値となっており<sup>[38]</sup>、不確かさの大きい炉内イン ベントリー情報から推定されるセシウム同位体の生成量からだと、有為な値の差というのが 認められていなかった。その後、3 号機水素爆発時に HEPA フィルターが溶融して粒子が生成 したという説も発表される<sup>[39]]</sup>など、タイプ A の生成・放出が 2、3 号機どちらだったかの結 論は出されなかった。

しかしながらタイプ A が最初に見つかったつくば市に到達したプルームは、15 日未明に放 出され<sup>[40]</sup>、太平洋上を通過し関東平野に到達している。その時に生じていたのは 2 号機の圧 力容器の圧力低下である。また Ikehara らの行った放射性微粒子が福島県内の地表汚染にど れくらいの割合で降下したかを調査した研究で、先の 15 日未明に放出したプルームが沈着し た地点で放射性微粒子の寄与が顕著に多かった<sup>[41]</sup>。そして東京電力が行った 2 号機オペレー ションフロアに留置されていた養生シートの分析で、タイプ A に似た粒子が見つかった<sup>[42]</sup>。 一方 3 号機のオペレーションフロアに沈着したタイプ A に類似した粒子は、3 号機が水素爆 発を起こし、建屋外壁を喪失した後に 2 号機からタイプの放出が起きているため、3 号機オ ペレーションフロア上に 2 号機由来の放射性微粒子が沈着していても矛盾しない。したがっ てタイプ A は 2 号機で発生したと考えるのが妥当であり、さらに比放射能が高い粒子である ことから、より高濃度にセシウムが集まる場所で生成したと考えられる。

タイプ A がオペレーションフロアのブロアアウトパネルから放出した湯気に乗って環境放 出されたと仮定すると、オペレーションフロアにはまだたくさんのタイプ A が残留している 可能性がある。また格納容器上方のシールドプラグの下に大量の放射性物質(セシウムが主 成分)が沈着している可能性が指摘されている。このことから格納容器周辺にはまだ大量の タイプ A が残留している恐れがあり、燃料デブリ取出しに限らず、格納容器周辺で作業を行 う際は、急激な圧力変動に伴う空気の拡散に十分注意を払う必要があると思われる。

c) 3 号機由来の放射性粒子(タイプ C)

タイプ C は放射性微粒子の分布調査の過程で、1F 南側を中心見つかったものである(図 3.2.1-2)  $[^{33]-[35]}$ 。この粒子はケイ素、アルミニウム、鉄が主成分で外観も黒い色をしており、他の粒子と見た目が大きく異なる。また比放射能はタイプ B よりもさらに低く、粒径は 1 mm を超える粒子が複数確認されている。そして  $^{134}Cs/^{137}Cs$  同位体比はほぼタイプ A と同じ 1.0

前後の値を示した。このうち1つを英国に輸送し1 μm四方の高分解度で蛍光 X線 CT の撮影 を行ったところ、セシウムの濃集点が発見されなかった。この結果はタイプ A が環境中に元 から存在した小石に付着し、見かけ上新しい種類の放射性粒子と誤認されているのではなく、 まったく新しい放射性粒子であることを支持している。そして粒径が大きく通常の風では飛 散することが困難であること、加えて粒子そのものの放射能は周辺土壌よりも強いことから、 環境中でセシウムを吸着したとは考え難い。これらの状況を踏まえると、この粒子は原子炉 周辺のどこかで生成し、水素爆発のような大きな力で放出されたと推定されるが、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 同位体比及び粒径から3号機水素爆発時に放出された可能性が濃厚である。

タイプ C が 3 号機水素爆発で放出したとすると、その影響で飛散した瓦礫類はすでに撤去 され 1F 敷地内に保管されている。また 3 号機から南側は処理水タンク置き場となっており表 面はシーリングが完了している。そのためタイプ C が廃炉作業に与える影響としては 3 号機 から使用済み核燃料を取り出すためにオペレーションフロアで作業する際、作業者らが接触 する可能性がある。しかし 1 粒子あたりの放射能と比放射能いずれもタイプ B より低く、一 般的な飛散防止対策で対応できると考えられる。



図 3.2.1-2 タイプ C 粒子の代表的な写真

③ まとめ

本連携協力項目では放射性微粒子のタイプ A-C の粒子の特徴を整理した。特に放射性微粒 子が 1F 事故で損傷した 3 つすべての原子炉から放出されたことが示され、セシウム化学挙動 を検討するうえで重要な知見を与えた。図 3.2.1-3 に本課題で整理した放射性微粒子を系統 的に整理したが、直接放出と二次生成の粒子はどちらもオートラジオグラフィー上では黒点 となり単純に強度だけではどのタイプの粒子であるか判断できない。しかし放射性微粒子は あまねくどこにでもあるものではなく、環境中ではおおよその分布が予想できることから廃 炉作業においても適切な監視を行うことが大切である。これら放射性微粒子を系統的に整理 しサンプルアーカイブの構築を進め、成果の取りまとめを行った。結果の一部を「付録」に 示す。



図 3.2.1-3 放射性微粒子の系統分類の提案

(本文中にあるように放射性 Cs の同位体比、形状・元素組成、分布状況などに基づく 分類である)二次生成型の放射性微粒子の分類はMukai et al.の提唱<sup>[43]</sup>に基づく 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)

前年度までの実績

試験の目的

IF 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。令和元年度までに、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。次に、比較的採取が容易である環境大気中粒子についての KPFM 測定条件の最適化を行い、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 測定条件の最適化を行った。さらに、既知の荷電数を持った粒子を基板上に捕集して KPFM 測定を行い、粒子の荷電数と KPFM 測定値(表面電位)との線形性を調べた。

## 試験装置

基本的な試験装置及び測定条件は令和元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:  $225 \mu$ m/ $28 \mu$ m/ $3 \mu$ m、探針高さ:  $10 \sim 15 \mu$ m、探針先端曲率半径: 15nm、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  $256 \times 256$  ピクセル、スキャンスピードは  $0.1 \sim 0.3$  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°C、湿度  $35 \sim$ 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 電界放出型走査型電子顕微鏡(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いる。

カバーガラス上の塩化ナトリウム、カバーガラス上の塩化セシウム、石英ガラス基板上の 塩化セシウムについて実験を行った。実験系を図 3.2.2-1 に示す。この帯電ガンは、ガン先 端でコロナ放電を行うことによりマイナスの大気イオンを発生する装置である。エアロゾル の発生溶液には塩化セシウム、硫酸アンモニウム、塩化ナトリウムそれぞれの 1% 水溶液を 用い、発生した粒子を帯電ガンの先につけたチャンバー内で荷電させ、微分型電気移動度分 級器(Differential mobility analyzer;以下、「DMA」という。)に通した。その後インパク ターで粒径 300~500 nm 粒子を分級し、基板上に捕集して KPFM 測定を行った。粒子の捕集に 用いた自作のインパクターの概略図を図 3.2.2-2 (左) に、また KPFM 測定時のセッティング イメージを図 3.2.2-2(右) に示した。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使用した。



③ 試験結果

得られた測定画像の例として、-10 価,400 nm の塩化セシウム粒子を分級して捕集し、 KPFM 測定した結果を図 3.2.2-3 に示す。この図(左)に示した高さ像から、粒子一つ一つに ついて粒径を求め、算出した実際の粒径と、DMA で粒子を分級する際に設定した電気移動度 を用いて、それぞれの粒子について荷電数を求め、表面電位との関係をプロットしたものを 図 3.2.2-4 に示す。これより、KPFM による表面電位と粒子荷電数の間に線形性が確認できた。





図 3.2.2-4 実験により得られた粒子荷電数と表面電位の関係

(2) 今年度の実績

本業務項目については、日本では難しい放射光実験を英国の大型実験施設で実施し、日本では加工が困難なタイプ B 粒子の薄片化サンプルの提供を英国より受け、KPFM 分析を実施する予定であった。しかし、英国では令和2年11月より新型コロナウィルス感染拡大予防によるロックダウンが実施されたため、英国でのサンプル作製、照射試験及びそれらの輸送が止まってしまった。そこで、P0の承認を得て、実施期間を12カ月間延長したので、令和2年4月~令和4年3月までの実績を以下に述べる。

① 放射性粒子の生成実験により得られた粒子と非放射性粒子の KPFM 測定

AFM 法による粒子の幾何形状の解析及び SEM-EDX 観察による粒子解析を合わせて行った放射性 Cs 粒子の生成実験は、以下の通り行った。まず京都大学複合原子力科学研究所において、 塩化セシウムに中性子を照射し、<sup>134</sup>Cs を含む塩化セシウム 54 MBq/g を生成した。次に、珪藻 土(富士フイルム和光純薬、化学用)0.16 g、放射性塩化セシウム (54 MBq/g)0.04 g、純 水 1 mL を混合し、φ10 mm×20 mm の円筒形のステンレス容器(以下、「るつぼ」という。) に入れ、るつぼごと乾燥器で 60℃、20 時間以上加熱し乾燥させた。その後、るつぼ及び微粒 子捕集用の石英板などを、上面にガラス窓のある密閉容器に入れ、その密閉容器をさらに大 きなチャンバー内に設置し、上部からレーザー(種別:連続波ファイバーレーザー、波長: 1,080 nm、照射時間:約 1 秒)を照射した。照射後、石英板を回収し、SEM-EDX 観察を行い、 粒子が Cs を含んでいることを確認したうえで、KPFM 測定用の試料とした。実験の様子を図 3.2.2-5 に示す。ここで得られたサンプルを、「放射性粒子の生成実験により得られた粒子」 (以下、「放射性粒子」という。)と記述する。



図 3.2.2-5 放射性 Cs 粒子の生成実験の様子 (左)密閉容器内の配置 (右) レーザー照射時の様子

また、放射性 Cs 粒子の生成実験と同様の手順で、生成した放射性塩化セシウムではなく放 射線を照射していない塩化セシウムを用いて得られた粒子を「非放射性粒子」とした。

放射性粒子の KPFM 測定結果の一例を図 3.2.2-6 に示す。高さ像からはっきりと粒子の輪郭 が得られたものを選択し、ImageJ で解析して粒子の表面電位と石英ガラス基板の電位の差を 求めた。なお視野内に粒子が複数存在する場合は、選択した粒子を一番右の白黒画像に示し ている。



図 3.2.2-6 放射性粒子の KPFM 測定結果の一例 左:高さ像 中央:電位像 右:高さ像 (白黒) から選択した粒子 Cantilever: EFM (NanoWorld), Lever Rate: 64.664 kHz, Lever Gain: 0.0981 Cantilever Bias Gain: 0.5000, Cantilever Bias Rate: 54.700 kHz Scanning Size: 5 μm ×5 μm, Scanning Rate: 0.10 Hz Operating Point: 0.226 V, Integral Gain: 800, Proportional Gain: 0.001

粒径 150 nm 以上の粒子について解析した結果を表 3.2.2-1 に示す。放射性粒子は非放射 性粒子と比較してその電位が有意に低かった。この原因として、粒子中に含まれている放射 性セシウムそのものはβ崩壊により正に帯電する一方で、放射性セシウム粒子の周囲に存在 している別の物質が電子吸収して負電荷を帯びることで、より粒子表面に近い負電荷の影響 が見えている可能性が考えられた。今後はこのプロセスの妥当性につき、シミュレーション 等を進めることで検証していく必要がある。

表 3.2.2-1 放射性及び非放射性粒子の KPFM 測定結果

粒子の種別	n	電位の平均値 [V]
放射性粒子	8	$-0.241\pm0.087$
非放射性粒子	8	$-0.084 \pm 0.095$

② 放射性粒子の生成実験により得られた粒子と非放射性粒子の KPFM 測定

英国側から提供された、タイプ B 粒子を集束イオンビーム(以下、「FIB」という。)により 加工したサンプルにつき、KPFM 測定を実施した。KPFM 測定時における、探針と粒子の位置関 係を図 3.2.2-7 に示す。このセッティングにおいて、20×20  $\mu$ m の視野で測定を行った結果 を図 3.2.2-8 に示す。画像の上部に電位が高くなっている部分が見られた。電位が高くなっ ている部分の中心と外側の電位の差は、トレース画像においておよそ 0.75 V、リトレース画 像でおよそ 0.70 V であった。電位が高くなっている部分において、わずかに高さが変化して いる様子が見られた。このサンプルを 50 分静置し、その後再び測定したところ、同様の結果 が得られた。次に、図 3.2.2-8 のように得られた結果を 3D 地形図(高さ像から地形図を再現 し、電位像の色をもとに地形図に色付けした図)として表したものを図 3.2.2-9 に示す。こ れより、サンプルの粒子上のある点において、電位が周囲とは異なっていることが示された。



図 3.2.2-7 英国側提供サンプル (タイプ B-FIB 粒子)の KPFM 測定時の様子



中央:トレース(左から右に走査した時)電位像 右:リトレース(右から左に走査した時)電位像



図 3.2.2-9 図 3.2.2-8 の結果を 3D 地形図で示した図

③ 本研究成果が廃炉事業に貢献できる点

本研究では放射性粒子の帯電現象に関する基礎的な知見を得た。特に、人工的に放射性粒 子を生成してその帯電状態を測定した結果より、放射性粒子は、同様の化学組成を持つ非放 射性粒子とは異なる特徴的な帯電状態を持つ可能性が示唆された。この現象を応用すれば、 例えば、帯電状態の違いを利用した効率的な放射性粒子の収集や除去を行うことができる可 能性がある。また、マスクや防護服の素材選定の際に、放射性粒子の帯電現象を利用して粒 子を選択的に吸着して呼吸による内部被ばくを防ぐなどの設計ができる可能性がある。防護 服は脱着時に、表面に付着した放射性物質が再飛散し作業者が吸入する可能性もある。

そこで、放射性物質の飛散が想定される区域で着用される防護服につき、その標準的な 5 種の素材片をサンプルとして、ファラデーケージ(春日電機製 KQ-1400)を用いて単位面積 (47 mm φ = 17.35 cm<sup>2</sup>)あたりの帯電電荷量を測定した。その結果を図 3.2.2-10 に示す。こ れより、機能的には同様であるような防護服であっても、素材によってその帯電電荷量が異 なることがわかった。将来的には、この帯電状態の違いを利用して、放射性粒子からの人体 の効果的な防護法などに利用できる可能性が示された。



(エラーバーは n=4 の標準偏差を示す)

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:東京電機大学)

前年度までの実績

放射性微粒子の物理・化学的性状に関する研究では、大型放射光施設 SPring-8 において、 土壌や大気粉塵から分離された放射性微粒子を対象としたマイクロビーム X 線分析を実施し、 XRF 分析、X 線吸収端近傍構造(X-ray absorption near edge structure;以下、「XANES」と いう。)分析、粉末 X 線回折(X-Ray Diffraction;以下、「XRD」という。)分析により、詳細 な物理・化学的性状を1粒子単位で明らかとした。

(2) 今年度の実績

本業務項目については、大型放射光施設 SPring-8 において放射光 X 線分析を令和 2 年度の 後期に行う予定であったが、新型コロナウィルス感染拡大予防のため SPring-8 の運転スケジ ュールが順延したため、令和 2 年度の実験は不可能となった。SPring-8 での実験は代替でき ないため、P0 の承認を得て、実施期間を 12 カ月間延長し、令和 3 年に実施したので以下に 述べる。

① 目的

放射性 Cs 微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・化学的性状の調査・研究は事故事象の解明、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うえで、きわめて重要である<sup>[1]-[7],[29],[44]-[46]</sup>。本研究では事故 由来の放射性微粒子のうち、特に大気汚染常時監視網として日本全国に設置されている浮遊 粒子状物質自動測定機のテープろ紙試料<sup>[47]</sup>から分離されたエアロゾル粒子に着目して、大型 放射光施設 SPring-8 においてマイクロビーム X 線をプローブとした複合的な X 線分析を実施 し、その物理・化学的性状を調査した。また、非破壊の放射光マイクロビーム XRF 分析によ って、粒子に含まれる重元素濃度を定量的に評価するための方法を検討した。

② 実験内容

1) 分析対象

テープろ紙試料として、平成23年3月に関東とその近隣地域の測定機で捕集されたものを 対象とし、先行研究<sup>[1]</sup>と同様の方法で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 EDX による主 成分組成の分析を行った。また、1粒子単位で Ge 半導体検出器による y 線スペクトル測定を 行い、<sup>134</sup>Cs 及び <sup>137</sup>Cs の放射能を調べた。

2) 放射光マイクロビーム 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、放射性微粒子1 点をテープ粘着面の中央付近に貼り付け、X 線分析用のフィルムで覆い、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。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二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、Kirkpatrick-Baez ミラー集光素子によって縦横1 μm 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、XRF 分析により粒子の化学組成を、XANES 分析により粒子に含まれる一部の金属元素(Fe、Zn、Mo、Sn、U)の存在状態を、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<sup>[5]</sup>を参照のこと。ビームタイムは、令和3年6月26日10:00から同28日10:00までの計48時間であり、SPring-8施設側で管理される本実験の課題番号は2021A1285である。また、令和元年度までに同ビームラインで実施した実験データについても合わせて解析した。

放射光マイクロビーム XRF 分析で得られたスペクトルから、放射性微粒子に含まれる重元 素の存在量(濃度)を定量的に評価するため、市販のガラス製の認証標準物質を粉末化し、 放射性微粒子と同様の方法でホルダ上に固定したものを分析した。また、XANES 分析では各元 素について金属、酸化物、ガラス等の参照物質を用意し、粒子と同様の条件で分析した。XRD 測定では Si 粉末を試料ホルダ上に塗布して測定した。

③ 結果及び考察

1) 事故直後に関東及び近隣地域に飛散した放射性エアロゾル<sup>[48]</sup>

平成 23 年 3 月 15 日の日中に首都圏を含む関東及び周辺地域の計 7 地点で捕集されたテー プろ紙試料から、8 個の放射性微粒子を分離することに成功した。粒子の SEM 像を図 3.2.3-1 に示す。いずれも直径 1 μm 程度の球形で、1 粒子あたり<sup>137</sup>Cs として 1 Bq 弱の放射能を有し ていた。平成 23 年 3 月 11 日当時に減衰補正した<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比は約 1.0~1.1 となり、 1F における 2 号機または 3 号機の燃料の推定値<sup>[38]</sup>とよく対応した。



図 3.2.3-1 テープろ紙試料から分離された放射性微粒子 8 点の SEM 像 (スケール:1 μm)

SPring-8 において、37.5 keV に単色化された高エネルギー放射光マイクロビーム X 線を励 起源とする XRF 分析を 1 粒子単位で実施した結果、8 粒子すべてから Cs とともに Fe、Zn、Rb、 Mo、Sn、Sb、Te、Ba が共通して検出された。XRF スペクトルの例を図 3.2.3-2 に示した。こ の図には、参照データとして先行研究<sup>[5]</sup>において同ビームラインで分析された放射性微粒子 のスペクトルも載せてある。さらに、一部の粒子からは Ag、Cd、Pb、U も検出された。これ らの重元素は、核燃料である U とその放射壊変生成物、さらに炉内の構成物に帰属すること ができた。XANES 分析及び XRD 分析からは、これらの重金属元素をカチオンとして含有する ガラス状物質であることが示された。これらの物理・化学的性状は、先行研究で「タイプ A」<sup>[46]</sup> と呼ばれる放射性微粒子のものときわめてよく対応している。以上より、1F から 250 km 以上離れた地域を含む関東及び周辺において、タイプ A の放射性微粒子が 3 月 15 日の日中 の時点で飛散していたことが実証された。

また、当時の気象データを利用した流跡線解析、さらに事故事象と対応付けた考察を行った結果、これらの放射性微粒子は3月14日夜から15日未明にかけて1F2号機から放出され、本州東側の海上を経由し、関東及び周辺地域に飛来した可能性が高いと結論づけられた。本研究で得られた知見は、事故による環境及び生体への影響の実態を評価するうえで、きわめて有益な情報になると期待される。



図 3.2.3-2 放射性微粒子の放射光マイクロビーム XRF スペクトルの比較 テープろ紙試料より分離された粒子 4 点(A1、B1、C1、E1)と先行研究<sup>[5]</sup>のタイプ A 粒子

2) 放射光マイクロビーム XRF 分析による微量重元素定量法の検討

上述した成果では、放射光マイクロビーム XRF 分析により、粒子中に含まれる微量な重金 属元素を非破壊で検出し、その来歴等を考察した。しかしながら、こうした考察は定性的な 議論にとどまっており、「主成分か否か」といった程度の大まかな識別は行えるものの、その 存在量について定量的に評価できていない。これは、Ba-K 吸収端まで励起可能な 37.5 keV という高エネルギーの単色 X 線を用いて微小試料を分析しているために、照射された X 線が 試料を完全に透過してしまい、蛍光 X 線の信号量が試料の大きさ(主に厚さ)による影響を 受けるためである。また、試料がごく微小であった場合には、下地(今回はカプトンテープ) からの信号も検出される。そのため、スペクトル上に検出された元素のピーク強度を算出す ることはできても、試料間で直接その大小を比較できない。そこで本研究では、非破壊の放 射光マイクロビーム XRF 分析により得られたスペクトルを解析し、存在量(濃度)の定量的 な評価を行う方法について検討した。

重金属元素として Sb、Ba、U を含むガラス製の認証標準物質 U26(LGC Standards 製)を粉 末化し、放射性微粒子と同様の方法で放射光マイクロビーム XRF 分析を行った結果を図 3.2.3-3(a)に示した。この際、大きさが異なる 5 点の破片(#1~#5)についてそれぞれ分析 し、さらに比較のために下地であるカプトンテープ部分についても分析を行った。U26 粉末 の XRF スペクトルは、厚さが薄くなるにつれて(#1→#5 の順)全体の強度が明らかに減少し ており、組成の均一性が担保されている認証標準物質であっても、そのサイズ(主に厚さ) によって蛍光 X 線信号量が大きく変化することが確認された。



図 3.2.3-3 ガラス製認証標準物質 U26 の放射光マイクロビーム XRF スペクトル (a)得られたスペクトルをカウント強度のまま比較、(b)コンプトン散乱による強度の規格化

一般的に、XRF 分析においてこうした影響を補正する方法として、散乱 X 線や主成分元素 のピーク強度を用いてスペクトル全体の強度を割り、規格化するという方法が取られる。例 として、35 keV 付近に検出されている励起 X 線のコンプトン散乱(励起 X 線が試料表面で非 弾性散乱された成分)によって各スペクトルを規格化したものを図 3.2.3-3(b)に示した。厚 さが最も薄い破片#5(厚さ 0.1 µm レベル)は大きくずれているものの、破片#1~#4 につい てはスペクトル間の強度の違いが多少補正されたことがわかる。

そこで、破片#1~#5 のスペクトルをそれぞれ解析し、Sb-Kα線、Ba-Kα線、U-Lα線につ いてピーク積分強度を算出した。さらに、各元素の強度に対して、(a)規格化なし、(b)コン プトン散乱による規格化、(c)トムソン散乱による規格化、(d)Ba-Kα線による規格化を適用 し、それぞれの結果を図 3.2.3-4 にまとめて示した。破片#1~#5 は本来同一の組成を持つか ら、ここに示した各元素の強度が横一直線になれば、適切な強度の規格化が行えていると判 断できる。まず、図 3.2.3-4(a)の規格化なしの状態では、試料の厚さによって信号量が大き く変動していることを確認できる。一方、図 3.2.3-4(b)のコンプトン散乱による規格化の場 合、対数スケールで示されたスペクトル上での比較(図 3.2.3-3(b))では有用性が期待され たものの、各元素についてピーク面積を求めた今回の比較では、試料厚による違いを補正し きれていないことがわかった。続いて、図 3.2.3-4(c)のトムソン散乱による規格化、すなわ ち励起 X 線(37.5 keV) が試料表面で弾性散乱された成分による規格化では、破片#1~#4 に 対して比較的良好な強度の補正が実現できていることがわかる。ただし、ごく微小な破片で ある#5 においては、試料厚による影響を完全に補正することはできなかった。最後に図 3.2.3-4(d)の Ba-Kα線による規格化であるが、これは破片#1~#5 のすべてにおいて、信号量 の違いを適切に補正することができた。ただし、この方法では「2 元素間の比」の形で強度 を表現することになるため、この規格化方法を用いて強度データから元素濃度を算出する場 合には、規格化の分母に用いる元素(ここでは Ba-Kα線)の量を別の方法で定量しなくては ならない。組成未知の放射性微粒子を対象とする本研究では、厚さ1 µm を超えるような大 きさの試料に限定する形で、トムソン散乱による強度の規格化(図 3.2.3-4(c))を採用する ことにした。



以上のように、放射性微粒子に対して行われた 1 粒子レベルかつ非破壊の放射光マイクロ ビーム XRF 分析の結果について、適切な規格化方法の選定及び認証標準物質を用いた解析に よって、微量に含まれる重元素の濃度を定量的に評価することに成功した。

(3) 本研究成果が廃炉事業に貢献できる点

本研究で対象とした放射性微粒子は環境試料中から分離されたものであるが、同様の性状 を持った粒子が原子炉及び建屋内に大量に残存していると推定することは、「はじめに」に述 べられたように至極妥当と考えられる。粒子の放射能については多くの定量的な検証が行わ れており、廃炉作業に伴う作業員の被ばくリスクについては、本研究でも度々議論されてい る。一方,放射能を持たない(あるいは放射能がきわめて低い)重元素については定性的な 議論しか行われておらず、毒性の高い重金属による汚染の危険性についても十分に理解しな くてはならない。本研究で提案した手法により、放射性微粒子中の重元素濃度を定量的に評 価すれば、そうした重金属によるリスクの有無やその低減方法の提案へと貢献できると考え られる。

以上、大型放射光施設 SPring-8 において蛍光 X 線分析を行うことで、放射性 Cs 微粒子の 重元素濃度を半定量的に評価する方法を提案した。
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)

前年度までの実績

① 荷電粒子励起エックス線放出分析法

荷電粒子励起エックス線放出分析法の分析は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 装置を用いて行った<sup>[49]</sup>。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、研磨片にした 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 行い、PIXE スペクトルを得られた。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ける PIXE 測定を行った。4 μm 角ビームを 用いて元素マッピングを得た。Ti, Fe, Zn は濃集点がありその位置は元素によって異なってい 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。

#### ② 誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)

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して、ICP-MS 用試料として分析を行った。XSTC-622、XSTC-1, XSTC-331 標準溶液(SPEX 社)の混合溶液を用い て回収率を求め及び分析の標準として用いた。10 個のケイ素主体のガラス質粒子について分解 した後に 50 元素の分析を行った。

(2) 今年度の実績

誘導結合プラズマ質量分析法

令和元年度で 10 試料の分析が進み、継続して 10 試料を分析した。計 20 試料のタイプ B のケ イ酸ガラス主体の放射性粒子の分析を行うことができた。粒子の主要元素の組成と微量元素の量 については、SEM-EDX を用いた粒子の表面分析の結果に基づいて主要元素(Na, Ma, Al, Si, K, Ca, Fe, Zn)の組成を求めることにした。それ以外の元素については、ICP-MS で求めた粒子あ たりの質量を得た。主要元素については、Na 元素を ICP-MS で得られた粒子あたりの質量を基準 にすることで、他の元素についても質量を求めることに成功した。得られたすべての元素が酸化 物で存在すると仮定して、粒子に含まれる酸素の質量も計算することができ、そこから粒子の質 量を概算した。SEM-EDX から主成分の元素組成を ICP-MS から微量成分の質量を求めどちらから もデータが得られる Na を基準にして定量的に評価できるようになった。20 個の放射性粒子 1 個 あたりの質量が 11~173  $\mu$ g の範囲であり、その結果から得られた比放射能は、1.8~52.8 MBq/g の範囲となった。

概算した質量をもとに、粒子中の各元素の濃度の中央値及び最小値と最大値を図 3.2.4-1 に示 す。これらの結果から、濃度の広がりが小さな元素と大きく変化する元素が見出された。放射性 粒子中の<sup>137</sup>Csの放射能から質量に換算して<sup>133</sup>Csの質量の<sup>133</sup>Cs/<sup>137</sup>Csは0.54から5.30の範囲で 存在しており、<sup>133</sup>Csの量が<sup>137</sup>Csとほぼ同量であるか数倍の範囲で収まっていたことから、<sup>133</sup>Cs はシリカなどの原料物質からの不純物由来ではなく、核分裂生成物由来であることがわかった。 濃度の広がりの小さな元素は、放射性粒子の基になった原料物質が有していた元素であると考え られる。それに対して<sup>133</sup>Cs は広がりが大きく<sup>137</sup>Cs との関係からも放射性セシウムと一緒に原子 炉内から気化して原料物質に吸着したものと考えられる。これと似た挙動をする元素として Cd, Sb, Mo が挙げられた。極微量分析により、原料物質由来の元素と原子炉内由来の元素を大別す ることができたと考えられる。



(3) 本研究成果が廃炉事業に貢献できる点

本研究により、ケイ酸ガラス質のタイプ B 放射性微粒子に含まれる微量元素の定量方法を確立 することができ、放射性セシウムと挙動をともにした可能性のある元素などを調べることができ た。このような放射性物質に含まれる極微量元素の分析によって、どのような元素が炉心から供 給されているかなどを知ることができ、タイプ B 粒子の生成過程に基礎的な知見が得られた。ま た、廃炉工程において処理すべき物質の特性を知るために、重要な基礎的な知見となる。以上、 放射性粒子の組成分析についての定量的評価法を提案した。 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)

前年度までの実績

1F の事故において、放射性微粒子の詳細な分析が行われているが、微量に含まれていると 考えられる放射性 Cs 以外の放射性核種が、実際にはどの程度含まれているのかについては、 これまで情報が無かった。放射性核種は基本的に原子炉燃料に由来していると考えられるた めに、これらの存在量を調べることで、放射性微粒子がどのような過程で形成したのかについて いて情報が得られると期待される。

本研究課題では、平成 30 年度に放射性微粒子中の <sup>90</sup>Sr の濃度決定について報告し、同時に Pu 同位体分析のための分析法の検討を行ってきた。令和元年度には、さらに多くの放射性微 粒子について <sup>90</sup>Sr の分析を行い、さらにいくつかの放射性微粒子について <sup>239,240,241</sup>Pu の定量 に初めて成功した。これにより <sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs の放射能比は 10<sup>-4</sup> のオーダーであり、放射性微粒子 中の <sup>90</sup>Sr の濃度は低いことがわかった。Pu についてはその濃度は <sup>137</sup>Cs に比べて 10<sup>-8</sup> オーダ ーと極めて低いことを明らかにした。さらに Pu の同位体比に注目したところ、1F の燃料の 推定値に近いことを明らかにした。

(2) 今年度の実績

令和元年度までに確立した<sup>90</sup>Sr 及び Pu の分析法を用いて、福島県双葉町で採取した土壌試 料からより多くの放射性微粒子を分離したうえで、それらについて<sup>90</sup>Sr と Pu の分析を実施し、 その濃度決定を行った。本研究で分析した放射性微粒子は、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs がすべて 0.9 程度であ り、1F で事故を起こした原子炉のうち、1 号機に由来するタイプ B と考えられる。

多くの粒子を分析したことにより、<sup>90</sup>Sr と Pu の濃度について、より高い精度での議論が可能となった。まず<sup>137</sup>Cs との放射能比については、令和元年度に報告したように<sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs の放射能比は 10<sup>-4</sup>のオーダーであること、Pu については 10<sup>-8</sup>オーダーと極めて低いことを確認した。これは粒子の生成過程、すなわち事故時の 1F の炉内状況と深くかかわっていると考えられ、廃炉作業において炉内の状況を知るうえで重要な情報である。

本研究では、さらに Pu の同位体比についても高い精度で決定することができた。 <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu は過去の原爆実験等に由来するグローバルフォールアウトの値<sup>[50]</sup>より明らかに大 きかった。また IF の原子炉燃料に含まれている Pu の同位体比については、シミュレーショ ンによる計算値<sup>[38]</sup>と環境試料からの実測値<sup>[50]-[54]</sup>が報告されている。本研究で得られた同位 体比は、シミュレーションによる計算値と比較するとわずかに高い数字を示しているものの、 よく整合していることがわかった。また環境試料との比較では、報告のいずれよりも高い値 であることがわかった。これは過去の環境試料の分析では、環境中にすでに存在しているグ ローバルフォールアウト由来の Pu 汚染の影響を排除できていないことが原因であると考えら れる。

<sup>241</sup>Pu の同位体比(<sup>241</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu)についても、同様の考察を行った。本研究で得られた同位体比 は、シミュレーションによる計算値と比較すると明らかに低い数字を示していた。計算値は 炉内全体の平均値として得られており、このずれから原子炉内のどの燃料が損傷して、Pu が 粒子に取り込まれたのか、についての情報を得ることができると期待される。また環境試料 との比較では、報告のいずれよりも高い値となっており、環境試料の分析においてはグロー バルフォールアウトによる影響を排除できていないと考えられる。 (3) 本研究成果が廃炉事業に貢献できる点

本研究において放射性微粒子は間違いなく 1F から放出されたものであるということが、Pu の同位体比の観点からも確かめられた。放射性微粒子は、グローバルフォールアウトに由来 する Pu 汚染が極めて低いことから、その分析は 1F 由来の Pu 同位体比を実験的に決定できる ほとんど唯一の方法となっている。炉内の燃料棒ごとに Pu 同位体比は異なっており、計算と 組み合わせることで炉内のどの燃料が損傷してこの粒子が生成したのかについて、詳細な議 論ができるようになった。また、本研究により得られた放射性微粒子中の<sup>90</sup>Sr と Pu の<sup>137</sup>Cs に対する比から、放射性粒子がどのような温度条件で形成したのかについて強い制約を与え ることができる。<sup>137</sup>Cs の放射能に対する<sup>90</sup>Sr と Pu の量から放射性 Cs 微粒子の生成過程につ いて考察した。

以上の 2 つの観点から、放射性微粒子がどのような過程で形成したのかという最大の問題 に迫ることができる。放射性微粒子の生成過程を知ることは、炉内に残存している放射性微 粒子の分布や生成量の予想にも役立ち、廃炉作業において重要な情報をもたらす。 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 1F 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) 前年度までの実績

放射性微粒子の模擬生成実験

不溶性の放射性微粒子が事故時に生成した過程を解明するため、事故状況を模擬した模擬 微粒子の生成実験を行った<sup>[55]</sup>。生成実験に先立ち、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。その結果、粒子表面の元素組成は 0、Si、Na が主体であり、そ の他 A1、Ca、Mg、Zn、Fe、Ti などを含むことがわかった。また、粒子表面から珪藻土(珪藻 化石)が見つかった。次いで、元素組成が放射性微粒子の分析結果に近い原料を選定し、電 気炉を用いてそれらを 1250℃に加熱することでガラス状の物質を生成し、生成物と放射性微 粒子の組成を比較した。原料としては珪藻土と海水の混合物、玄武岩、グラスウールの 3 種 を用いた。生成したガラス状物質を SEM-EDX を用いて元素分析した結果、珪藻土と海水の混 合物、玄武岩は 0、Si、Na が主体であり、その他 Al、Ca、Mg、Fe、Ti などを含んでいた。一 方、グラスウールは 0、Si、Na が主体であり、その他 A1、Ca、Mg などを含んでいたが、Fe、 Ti は欠いていた。すなわち、珪藻土と海水の混合物や玄武岩といった天然物を原料とした場 合に、放射性微粒子の組成により近いガラス状物質が生成することがわかった。ただし、3 種とも Zn を欠いており、これらに Zn を含む物体が混合して原料になった可能性が考えられ る。また、代表として珪藻土と海水の混合物を用いて加熱温度を変えながら粒子状物体の生 成を試みたところ、985℃で加熱することにより、数百マイクロメートルの大きさの粒子状物 体の生成に成功した。

## ② 人工放射性エアロゾルの発生実験

溶融した燃料デブリから放出された FP が、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。模擬 FP 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<sup>[56]-[60]</sup>。エアロゾル生成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種のハロゲン化ナトリウムを用い、各溶液で生成したエアロゾル粒子に対する FP 核種 の付着挙動を相互比較した。FP 核種間での付着率を比較すると、<sup>131</sup>I と <sup>95</sup>Zr 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、<sup>103</sup>Ru は <sup>131</sup>I に比べ 1~2 桁程度低い付着率 となることがわかった。つまり、FP の溶液状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。

- (3) 令和2年度の実績
- 放射性微粒子の模擬生成実験

令和元年度までに生成に成功したガラス状物質を元に、タイプ A の放射性微粒子に類似し た微粒子、すなわち直径数マイクロメートルの球状の微粒子の生成を目指した実験を行った<sup>[61]</sup>。 微粒子生成の元となるガラス状物質は、電気炉を用いて原料を 1250℃に加熱することで生成 した。原料としては、珪藻土と海水の混合物及び玄武岩の 2 種を用いた。生成したガラス状 物質をチャンバー中に設置し、そこに出力 300 W、波長 1080 nm の連続波ファイバーレーザ ーを照射し、発生したフュームをインパクター吸引してフィルター上に捕集した。装置の概 略図を図 3.2.6-1 に示す。フュームを吸引したフィルターに対し、SEM-EDX を用いた観察及 び元素分析を行った。その結果、2 種の試料ともに、図 3.2.6-2 のように直径数マイクロメ ートルの球状の微粒子が生成していた。微粒子の元素組成は、元となったガラス状物質に対 し、A1、Ca、Mg、Ti といった元素が減少していた。これらは、タイプ B の放射性微粒子に含 まれる一方、タイプ A の放射性微粒子においては不検出ないしは微量の検出にとどまる元素 である。このことから、タイプ A とタイプ B の放射性微粒子の元素組成の違いは、生成プロ セスの違いに起因する可能性もあるといえる。また、ガラス状物質を加熱することにより比 較的容易に微粒子が生成したことから、廃炉作業等において原子炉内外の放射性の物体を加 熱することは、放射性微粒子が再発生するリスクを伴うことが示された。



図 3.2.6-1 装置の概略図

人工放射性エアロゾルの発生実験



図 3.2.6-2 生成した微粒子の SEM 像

エアロゾル粒子への付着挙動を測定する FP 核種の種類を増やすため、これまでより半減期 の短い FP を対象として人工放射性エアロゾルの発生実験を行った。特に燃料デブリ中に長期 間において存在し続けるセシウム及びストロンチウムの同位体に着目し、<sup>138</sup>Cs(半減期:約 32分)及び <sup>92</sup>Sr(半減期:約2.6時間)の付着率を得るために、ウラン試料に対する中性子 照射の条件を変更するとともに、ウラン試料の照射から FP エアロゾルの生成、捕集後の測定 までの時間も変更して実験を行った。また、エアロゾル粒子の原料とする溶液の種類につい ては、ハロゲン化アルカリ以外の溶液エアロゾル粒子との挙動と比較することを目的として、 硫酸アンモニウム溶液を用いた実験も行った。 短寿命 FP を対象とした実験では5分の照射の後、3時間静置し、管状炉内で1000℃に加熱 して 60 分加熱することで照射したウラン試料中から FP を放出させた。一方で、0.01 M の塩 化ナトリウム、臭化ナトリウム、ヨウ化ナトリウムの3種のハロゲン化ナトリウム及び 0.01 M の硫酸アンモニウム水溶液を原料とし、アトマイザーを用いて溶液状エアロゾルを生成さ せ、FP とともにステンレス製のチャンバー内に導入した。このチェンバー内で両者を混合す ることで、各種の溶液状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γ線スペクトロメトリを行い、各溶液で生成したエアロゾル粒子に対 する FP 核種の付着挙動を比較した。

実験の結果、<sup>138</sup>Cs, <sup>134,135</sup>I, <sup>134</sup>Te, <sup>128</sup>Sn に対する付着率が得られた。これらの FP 核種の前述の 4 種類の溶液状エアロゾル粒子への付着率を比較すると、<sup>138</sup>Cs, <sup>134,135</sup>I, <sup>134</sup>Te については同程度の付着率であったが <sup>128</sup>Sn ではこれらの FP と比較し 1/1000 程度の低い付着率となった。一方で、溶液エアロゾル粒子の溶質の違いによる付着率の差異は最大でも 10 倍程度であった。したがって、FP の溶液状エアロゾル粒子への付着過程においては、溶液状エアロゾルの溶質よりも FP の化学的性質の差異の方が、より大きな影響を与えると結論された<sup>[62],[63]</sup>。

(4) 本研究成果が廃炉事業に貢献できる点

廃炉作業等において原子炉内デブリ等の取り出しにおける高温状態で存在する放射性微粒子の確認や飛散において微粒子の性状の知見を得、また高温デブリの除去作業の際の放水冷却時における FP 溶液状エアロゾル粒子の発生やその挙動等の知見を得るなど、デブリ処理設計に応用できる可能性がある。

3.2.7 まとめ

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)において は、令和元年度に引き続き SEM 分析を使用し放射性微粒子の分類評価を行った。これまでに蓄積 された結果を基にサンプルアーカイブの構築を進め、成果の取りまとめを行った。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)では、放射性微粒子 の電気的特性を解明するため、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、令和元年度に引き続き、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、AFM 法による粒子の幾何形状の解析及 び SEM-EDX 観察による粒子解析を併せて行った。令和 2 年に引き続き、KPFM 法による粒子の帯 電状態の測定を行った。また、日本及び英国の研究機関と連携し、薄片化したタイプ B 粒子の分 析を試みた。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:東京電機大学)につ いては、レーザー顕微鏡を用いた1粒子単位での蛍光分光分析の結果について、環境中に存在す る土壤粒子等と比較を行った。また、大型放射光施設 SPring-8 での分析用に、組成既知の認証 標準ガラス物質を入手した。レーザー顕微鏡を用いた1粒子単位での蛍光分光分析の結果につい て、放射性 Cs 微粒子を選択的に検出可能か検証した。また、大型放射光施設 SPring-8 において 蛍光 X 線分析を行うことで、放射性 Cs 微粒子の重元素濃度を半定量的に評価する方法を提案し た。④ICP-MS による微量元素検出に関する研究(再委託先:筑波大学)では、令和元年度に引 き続き 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、放射性粒子の

組成分析についての定量的評価法を提案した。さらに、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)では、令和元年度に確立した方法を用いて、<sup>90</sup>SrとPuの分析を 引き続き実施した。分析のために放射性Cs微粒子の環境試料からの分離を進め、検体数を増加 させることにより放射性Cs微粒子間の違いや類似性を調査した。そして<sup>137</sup>Csの放射能に対する <sup>90</sup>SrとPuの量から放射性Cs微粒子の生成過程について考察した。これに加えて、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)では、ウラン試料の照 射・加熱条件等を変化させ、令和元年度と異なる化学種も対象とし、人工エアロゾル発生装置を 用いた放出化学種の付着実験を行った。また、Cs等を含む微粒子の合成実験を行い、その化学 組成や温度依存性等の条件の考察を行い、1F近傍の放出粒子と比較した。

## 3.3 研究推進

- 3.3.1 前年度までの実績
- (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。

- a. 令和元年7月13日、慶應義塾大学日吉キャンパスにて令和元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。
- b. 令和元年9月24日~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。
- c. 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。
- (2) 学会・協会等での発表、論文等学術雑誌での発表

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。

3.3.2 令和2年度の実績

(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ほか、 少数のメンバーでも随時ウェブ会合で議論を行い、進捗管理等に努めた。

- a. 令和2年6月13日、ウェブにて令和2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。特に、本事業の出口戦略について、学術的には論文出版が意味をなすが、事業としてはどのように廃炉に貢献するかが求められる、との認識を深めてほしい旨、代表からの説明があった。
- b. 令和2年8月6日には五十嵐康人、北和之、大槻勤、篠原厚、末木啓介、阿部善也、奥田知明、佐藤志彦の8名が、「英知事業国際協力研究(日英)-Cs 挙動に関する研究会」を開催し、JAEA/原子力基礎工学研究センター性能高度化技術開発グループの逢坂氏、三輪氏らと意見交換を実施した。
- c. 令和2年9月9日にウェブ開催となった日本放射化学会第64回大会にて、本課題各分担 部分の発表を実施して、成果の整理と公表に努めた。
- d. 令和2年12月21日にウェブにて開催された「燃料デブリ関係英知事業の情報交換会」
   への招請があったため、課題代表者の五十嵐康人が参加し、研究進捗状況ならびに研究
   実施内容のハイライトについて紹介を行った。

- e. 令和3年1月12,13日にウェブ開催された公営財団法人原子力安全研究協会 /JAEA\_CLADSの共催によるUK-Japan Meeting and Workshop 2021において、招請を受け たことから、課題代表者の五十嵐康人が参加し、研究進捗状況ならびに研究実施内容の ハイライトについて紹介を行った。
- f. 令和3年3月10日にウェブにて大阪大学放射線科学基盤機構・新規教育研究プロジェクトが開催した「福島第一原子力発電所事故に関する分野横断シンポジウム」への招請があったため、課題代表者の五十嵐康人が参加し、研究進捗状況ならびに研究実施内容のハイライトについて紹介を行った。
- g. 令和3年4月13日にコロナ禍への対応に基づく本課題期間延長に即して、キックオフ会議をウェブにて開催した。各機関からの実施計画説明(計画終了機関は5分、JAEA、茨城大学、慶応義塾大学、電機大学は10分)をはじめ、延長期間における実施計画に基づく予定、プログラムオフィサー(P0)からの要望事項への対応、課題代表者からの要望事項への対応、最終報告書の取りまとめ方針について提起し、議論を行った。
- (2) 学会・協会等での発表、論文等学術雑誌での発表

令和2及び3年度に本課題分担者が主著者、または共著となり行った学会・協会等での発 表は、16件であり、引き続いて対外的に非常に活発かつ積極的に発表を行った。また、 Scientific Data 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、10報の報告が行われた。Scientific Data 誌での発表は、特 に日英のシナジーを端的に表す成果となっている。

## 発表成果一覧

【学会等における口頭・ポスター発表】

- Sueki K., Yokoyama H., Hasegawa R., Ishii T., Matsuo K., Satou Y., Adachi K., Trace elements of radioactive particles derived from Unit 1 and their origin (ポスター)、福島大学環境放射能研究所 国際シンポジウム:原発事故から 10 年後の福 島の"森・川・海"と"食"~復興に向けて残された課題~、コラッセ福島(オンライン同 時開催)、2021 年 10 月 11 日~12 日
- ・稲垣誠、関本俊、高宮幸一、沖雄一、大槻勤,福島原発事故に由来する不溶性微粒子の レーザー加熱法による模擬生成実験(ロ頭)、日本放射化学会第65回討論会(2021)(オ ンライン)、2021年9月22日
- ・村上貴士、二宮和彦、五十嵐淳哉、吉村 崇、篠原 厚、箕輪はるか、吉川英樹、福島事 故で放出された放射性粒子の性状解析と微量放射性核種の分析(ポスター)、日本放射化 学会第65回討論会(2021)(オンライン)、2021年9月23日
- ・中村司,山崎信哉,石井聡,冨田成夫,笹公和,末木啓介、マイクロビーム PIXE による 福島第一原子力発電所事故で放出された放射性粒子の元素分布測定(ロ頭)、第 22 回 「環境放射能」研究会(KEK)(オンライン)、2021年3月10日~12日
- ・稲垣誠,佐藤諒,関本俊,高宮幸一,沖雄一,大槻勤、福島第一原子力発電所事故に由 来する不溶性放射性微粒子の模擬生成実験(ロ頭)、第22回「環境放射能」研究会(KEK) (オンライン)、2021年3月10日~12日
- ・五十嵐康人、ガラス状放射性微粒子から考える廃炉と環境汚染(ロ頭)、福島第一原子力 発電所事故に関する分野横断シンポジウム(大阪大学・オンライン同時開催)、2021年3 月10日

- ・稲垣誠、佐藤諒、関本俊、高宮幸一、沖雄一、大槻勤、不溶性放射性微粒子の模擬生成 実験(ロ頭)、京都大学複合原子力科学研究所「福島原発事故で放出された放射性物質の 多面的分析」専門研究会(4)、(ハイブリット)、2020年12月24日
- ・奥田知明、新家雪実、黒澤景一、岩田歩、佐藤志彦、阿部善也、五十嵐康人、放射性 Cs 微粒子の表面電位測定のための KPFM 法の検討(口頭)、日本放射化学会第 64 回討論会 (オンライン)、2020年9月9日
- ・阿部善也,小野崎晴佳,石川真帆,中井泉,北和之,五十嵐康人,大浦泰嗣,鶴田治雄, 森口祐一、放射性 Cs 微粒子の表面電位測定のための KPFM 法の検討(口頭)、日本放射化 学会第 64 回討論会(オンライン)、2020 年 9 月 9 日
- ・末木啓介、長谷川涼、松尾一樹、石井達也、佐藤志彦、足立光司、放射性粒子の微量元 素組成(ロ頭)、日本放射化学会第64回討論会(オンライン)、2020年9月9日
- ・佐藤志彦,五十嵐康人,Peter G. Martin, Omran Alhaddad, Thomas B. Scott、放射性 微粒子データライブラリーの開発(ポスター)、日本放射化学会第 64 回討論会(オンラ イン)、2020年9月9日~11日
- Peng Tang, 畑中恒太郎, 北和之, 佐藤志彦, 二宮和彦, 篠原厚, 五十嵐康人, Re-suspension of insoluble Cs radioactive particles to the atmosphere (ポスター)、
   日本放射化学会第 64 回討論会 (オンライン)、2020 年 9 月 9 日~11 日
- ・竹内佑、竹内裕弥、高宮幸一、稲垣誠、関本俊、沖雄一、大槻勤、福島原発事故に由来 する放射性微粒子の分析および模擬生成実験(ロ頭)、日本放射化学会第 64 回討論会 (2020)(オンライン)、2020年9月9日~11日
- ・稲垣誠、佐藤諒、関本俊、高宮幸一、沖雄一、大槻勤、福島原発事故に由来する放射性 微粒子の分析および模擬生成実験(ロ頭)、日本放射化学会第64回討論会(2020)(オン ライン)、2020年9月9日~11日
- ・佐藤諒、稲垣誠、関本俊、高宮幸一、沖雄一、大槻勤、福島原発事故により生じた放射 性微粒子のレーザー照射による模擬生成実験(ポスター)、日本放射化学会第 64 回討論 会(2020)(オンライン)、2020年9月9日~11日
- Inagaki, M., R. Sato, S. Sekimoto, K. Takamiya, Y. Oki, T. Ohtsuki, Generation and analysis of the radioactive particles emitted from the Fukushima nuclear accident (口頭)、Goldschmidt 2020 (Virtual), 21-26, June, 2020

## 【学会誌・雑誌等における論文掲載】

- Shinke, Y., Mori, T., Iwata, A., Muhammad Aiman bin Mohd Nor, Kurosawa, K., Inagaki, M. Sekimoto, S., Takamiya, K., Oki, Y., Ohtsuki, T., Igarashi, Y.
   Okuda, T., Technique for estimating the charge number of individual radioactive particles using Kelvin Probe Force Microscopy, Aerosol Science & Technology, 2023. Doi: 10.1080/02786826.2023.2221726
- Tang, P., Kita, K., Igarashi, Y., Satou, Y., Hatanaka, K., Adachi, K., Kinase, T., Ninomiya, K., Shinohara, A., Atmospheric Resuspension of Insoluble Radioactive Cesium Particles Found in the Difficult-to-Return Area in Fukushima, Progress in Earth and Planetary Science, 9(17), 2022.

- Abe, Y., Onozaki, S., Nakai, I., Adachi, K., Igarashi. Y., Oura. Y., Ebihara, M., Miyasaka, T., Nakamura, H., Sueki, K., Tsuruta, H. and Moriguchi, Y., Widespread distribution of radiocesium-bearing microparticles over the greater Kanto Region resulting from the Fukushima nuclear accident. Progress in Earth and Planetary Science. 8, 13, 2021.
- Martin, P. G., Jones, C. P., Bartlett, S., Ignatyev, K., Megson-Smith, D. A., Satou, Y., Cipiccia, S., Batey, D., Rau, C., Sueki, K., Ishii, T., Igarashi, J., Ninomiya, K., Shinohara, A., Rust, A. C., & Scott, T. B., Structural and compositional characteristics of Fukushima release particulate material from Units 1 and 3 elucidates release mechanisms, accident chronology and future decommissioning strategy, Scientific Reports 10, 22056, 2020.
- Kajino, M., Adachi, K., Igarashi, Y., Satou, Y., Sawada, M., Sekiyama, T.T., Zaizen, Y., Saya, A., Tsuruta, H., Moriguchi, Y., Deposition and dispersion of radio-cesium released due to the Fukushima nuclear accident: 2. Sensitivity to aerosol microphysical properties of Cs-bearing microparticles (CsMPs). Journal of Geophysical Research: Atmospheres, 126, e2020JD033460, 2020.
- Futagami, F, Soliman, M, Takamiya, K, Sekimoto, S, Oki, Y, Kubota, T, Konno, M, Mizuno, S, Ohtsuki, T. Isolation, characterization and source analysis of radiocaesium micro-particles in soil sample collected from vicinity of Fukushima Dai-ichi nuclear power plant, Journal of Environmental Radioactivity, 223-224, 106388, 2020.
- Martin, P., Alhaddad, O., Verbelen, Y., Satou, Y., Igarashi, Y. & Scott, T.B., Project IPAD, a database to catalogue the analysis of Fukushima Daiichi accident fragmental release material, Scientific Data 7, 282, 2020.
- ・五十嵐康人,不溶性 Cs 粒子企画にあたって, [シリーズ放射性微粒子の追求],科学 90(8),677-680,2020.
- ・末木啓介,五十嵐康人,不溶性 Cs 粒子とは,[シリーズ放射性微粒子の追究],科学 90(9),795-800,2020.
- ・高宮幸一, 不溶性 Cs 粒子の溶解や加熱による変化, [シリーズ放射性微粒子の追究], 科学 90(11), 1032-1034, 2020.

## 3.3.3 英国側の報告





Above:laboratory XRT selection through Unit 1 derived particulates.

to fragmentation through attrition. These results facilitated subsequentwork, utilising he knowledge of Bristolvol canologists



Following the analysis of both Unit 1 (Type 'A') and a new suite of potentially Unit 3 derived (Type 'C') particulates, we applied volcanic analogues (using the expertise of the University of Bristol volcanologists) to consider the structural form of both types of this material and how it relates to its environmental particulate stability and the bulk removal of residual materials from the damaged reactors. We conclude that the brittle and angular Unit 3 particulate are more susceptible to further fragmentation and particulate generation hazard than the round, higher-strength, more homogenous Unit 1 material.



University of BRISTOL			So NU	UTH WEST CLEAR HUB
Convective & radiative cooling: viscosity 1949 1950 1950	Parameters Thermai conductivity Melt heat capacity Density Particle velocity Fit parameter	Symbol $k_p$ $c_{pm}$ $p_p$ $v_p$ A	Value Particle Parameters 1.5 1006 2400 360 90 90 90 90 90 90 90 90 90 90 90 90 90	Unit Wm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> Jkg <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup> kgm <sup>-1</sup> m <sup>-1</sup>
1900 Q 1300 Q	rit parameter Fit parameter Glass transition temperature External Pressure Internal Pressure Initial bubble radius	B C $T_g$ $P_e$ $P_0$ $R_0$	4385.1 674.5 951.4 Bubble Parameters 0.1 (1 atm) 0.55 2.5-10	K K MPa MPa µm
Muzzle velocity Temperature and viscosity	Prandtl number External (air) temperature Air viscosity Air velocity Air conductivity	$\Pr_{T_{\infty}}$ $T_{g}$ $v_{g}$ $k_{g}$	Air Parameters 0.71 280 1.81×10 <sup>-5</sup> 1.6 0.026	K Pas ms <sup>-1</sup> Wm <sup>-1</sup> K <sup>-1</sup>

The integrated model developed operates on two scales coupled to one another through the "melt viscosity". The particle-scale model captures the cooling of silicate melt fragments as they travel through the ambient atmosphere immediately after the hydrogen explosion. The melt viscosity, which depends strongly on temperature, is then computed at every point within the particle for any given time. Within the micro-scale model, bubble growth is calculated radially along the 1D profile of the individual melt fragment. At both scales, the radial expansion of particles due to bubble growth is neglected for simplicity, and it is assumed that melt fragments are spherical, isotropic and of uniform composition.





JAEA-Review 2023-021





## 4. 結言

本研究課題では、1F 事故により放出された Cs を高濃度に含有する不溶性放射性微粒子を研究 対象として設定した。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 を実施してきた。また、これらの放射性微粒子は、依然と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た。本研究課題は大きくは、テーマ(1)効果的な放射 性微粒子の分離方法の開発とテーマ(2)放射性微粒子の性状把握によって構成されている。

本年度は最終年度として、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、テーマ(1)効果的な放射性微粒子の分離方法の開発については、下記の進 捗をみた。<br />
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)と して、令和元年度までに得られた放射性微粒子の蛍光に関する知見を応用し、東京電機大学と連 携し、より効率的な検出と分離を行う手法の検討を行った。令和元年度に引き続き、1F 周辺で 大気捕集フィルター継続的に捕集している大気試料を環境中に飛散し土壌等に沈着した放射性粒 子の再飛散リスクについての評価を行う試料とした。また、大気試料中の放射性粒子のα核種含 有可能性について調査した。蛍光に関する知見を応用した、より効率的な検出と分離を行う手法 の検討を引き続き行うとともに、その手法について模擬粒子あるいは 1F 近隣等で捕集したサン プルを用いた試験を実施し、実効性を検討した。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)では、令和元年度に検討した、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を用いて、サイト周辺で採取した 土壌について、分析を系統的に行った。これにより 1F からの距離、方角による放射性 Cs 微粒子 の量や、土壌全体に占める放射能比について明らかにした。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)では、令和元年度で得られた分離方法と、それ によって得られた放射性微粒子のリストをまとめた。

このほかテーマ(2)効果的な放射性微粒子の分離方法の開発については、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)においては、令和元年度に引き 続き SEM 分析を使用し放射性微粒子の分類評価を行った。これまでに蓄積された結果を基にサン プルアーカイブの構築を進め、成果の取りまとめを行った。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)では、放射性微粒子の電気的特性を解明す るため、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、令和元年度に引き続き、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、AFM 法による粒子の幾何形状の解析及び SEM-EDX 観察による 粒子解析を併せて行った。令和 2 年に引き続き、KPFM 法による粒子の帯電状態の測定を行った。 また、日本及び英国の研究機関と連携し、薄片化したタイプ B 粒子の分析を試みた。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:東京電機大学)にては、レーザー顕微鏡を用 いた1粒子単位での蛍光分光分析の結果について、環境中に存在する土壌粒子等と比較を行った。 また、大型放射光施設 SPring-8 での分析用に、組成既知の認証 標準ガラス物質を入手した。 レーザー顕微鏡を用いた 1 粒子単位での蛍光分光分析の結果について、放射性 Cs 微粒子を選択 的に検出可能か検証した。また、大型放射光施設 SPring-8 において蛍光 X 線分析を行うことで、 放射性 Cs 微粒子の重元素濃度を半定量的に評価する方法を提案した。④ICP-MS による微量元素

検出に関する研究(再委託先:筑波大学)においては、令和元年度に引き続き 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、放射性微粒子の組成分析についての定量 的評価法を提案した。さらに、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)では、令和元年度に確立した方法を用いて、<sup>90</sup>Sr と Pu の分析を引き続き実施した。分析 のために放射性 Cs 微粒子の環境試料からの分離を進め、検体数を増加させることにより放射性 Cs 微粒子間の違いや類似性を調査した。そして<sup>137</sup>Cs の放射能に対する<sup>90</sup>Sr と Pu の量から放射 性 Cs 微粒子の生成過程について考察した。これに加えて、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)では、ウラン試料の照射・加熱条件等を変化 させ、令和元年度と異なる化学種も対象とし、人工エアロゾル発生装置を用いた放出化学種の付 着実験を行った。また、Cs 等を含む微粒子の合成実験を行い、その化学組成や温度依存性等の 条件の考察を行い、1F 近傍の放出粒子と比較した。

上記に加えて、研究推進のため、日英メンバーの Web 会議による意見・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努めた。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。

以上のように、3 カ年計画の3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。 特に最終年度においては、上記(1)及び(2)の研究テーマに関し一層の研究の進捗とまとめを図り、 特に先端分析での論文成果とりまとめや帯電状況の分析(3.2.2参照)において日英のシナジー を具体的に示した。

なお、本課題遂行によって得られた諸知見及びそれら諸知見の廃炉プランの設計や実工程改善、 作業者のリスク低減、環境影響の低減などへのより具体的な貢献の可能性は、以下に列挙するご とくである(関連する章または節番号をカッコ内に示す)。

- ○土壌や大気試料からの効果的な放射性微粒子の分離方法の開発が達成され、炉内から得られた 試料の分析や単離へも適用可能であることが示された。
  - ・IP オートラジオグラフィーのイメージデータの適切なデータ処理により、比較的高濃度に Cs を吸着した土壌粒子と Cs を含有したガラス状放射性微粒子との判別が可能になった (3.1.2)。放射性微粒子のイメージでは、IP イメージのごく少数のピクセルに高い QL 値が 集中することが明らかとなった。確立されたプロトコルは、今後廃炉工程で得られた炉内か らの試料の分析にも適用可能である。
  - ・放射性微粒子のみを土壌粒子などから単離するため、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し、10 Bq 以上の放射能を有する放射性微粒子の単離が IP のみを利用するよりも簡便となることを実証した(3.1.3)。放射性微粒子は水に不溶であるため純水に分散させ、それを分割して<sup>137</sup>Cs 放射能を測定することで、土壌など環境中の多量の粒子から単離することが可能である。この手法は、廃炉工程で得られた炉内からの試料の分析にも適用可能である。

○放射性微粒子のデータの収集が進められた。

・放射性微粒子の性状や電子顕微鏡写真などのデータ収集が進められ(3.1.3)、英国との協力によって、国際的な放射性微粒子のデータベースの基礎を準備することができた(3.3.2;
 Project IPAD)。これらのデータは、次に述べる放射性微粒子の系統的な分類作業(3.2.1)に大きく寄与した。

- ○放射性微粒子の物理・化学性状の把握が一層進められ、廃炉作業へのフィードバック可能なデ ータが収集された。
  - ・多数の微粒子を解析することによって、放射性微粒子のタイプ A-C の粒子の特徴を整理した (3.2.1)。特に、放射性微粒子が 1F 事故で損傷した 3 つすべての原子炉から放出したこと がはじめて示され、1 から 3 号機のいずれからもシリカ主材の微粒子が放出されたことは、 Cs-Si-0 や Fe, Zn 酸化物の役割を改めて示し、事故を生じた原子炉におけるセシウム化学挙 動を検討するうえで重要な知見を与えた。この解明によって、各号機内部での Cs を高濃度 で含有するシリカガラス状物質の分布の推定や解釈(シールドプラグ周辺での高濃度の Cs 分布を含む)等に貢献できる可能性が高い。
  - ・タイプ B 放射性粒子中の難測定核種である <sup>90</sup>Sr と Pu の分析により、放射性粒子中の <sup>90</sup>Sr 及 び α 放射体濃度は低いことを確認した(3.2.5) すなわち、<sup>90</sup>Sr/<sup>137</sup>Cs の放射能比は 10<sup>-4</sup> のオ ーダー、Pu については 10<sup>-8</sup> オーダーと極めて低いことを確認した。このことは、放射性微 粒子に関する生体影響については、Cs 同位体のみに注目すれば良いことを示唆する。また 同時に、Pu の同位体比の観点から、放射性微粒子は間違いなく 1F から放出されたというこ とが確かめられた。放射性微粒子の分析は、1F 由来の Pu 同位体比を実験的に決定できるほ とんど唯一の方法であるが、炉内の燃料棒ごとに Pu 同位体比は異なることから、計算と組 み合わせることで炉内のどの燃料が損傷してこの粒子が生成したのか、詳細な議論も可能と なる。また、放射性微粒子の <sup>90</sup>Sr と Pu の <sup>137</sup>Cs に対する比は、放射微性粒子がどのような温 度条件で形成したのかについても強い制約を与える。この 2 つの観点から、放射性微粒子が どのような過程で形成したのかという最大の問題に迫ることができる。放射性微粒子の生成 過程を知ることは、炉内に残存する放射性微粒子の分布や生成量の予想にも役立ち、廃炉作 業において重要な情報となる。
  - タイプ B 放射性粒子の ICP-MS による多元素同時分極微量分析により、原料物質由来の元素 と原子炉内由来の元素を大別することが、初めて達成された(3.2.4)。こうした放射性微粒 子の詳細な元素組成の情報を今後詳細に解析することで、Cs 及び FP の事故炉内での挙動や それを扱ったモデルの改善、さらには事故事象の深い理解にも繋がり、ひいては廃炉工程の 改善や効率化につながると期待される。
  - ・短波長の励起光照射によって放射性微粒子が蛍光を発することがタイプA及びBについて、はじめて詳細に示された(3.2.3)。蛍光特性の把握は、研究あるいは除染を目的として土壌や大気粉塵等から放射性微粒子を分離する際に、新規かつ効率的な手法の提案(3.1.1)へとつながる点で価値が高い。さらに、目に見えない放射線と異なり、本課題で見出された緑色蛍光は、肉眼で観測できるという点が非常に重要である。将来計画される廃炉作業に際し、少なくともタイプAに似た物理・化学的性状を持った粒子を「可視化」できるという点は、作業員の被ばくリスクの大幅な低下に貢献できると思慮される。すなわち、作業員がブラックライトや可搬型紫外光レーザー装置により、Csを高濃度に含有するSiガラス状物質を視認することも可能かもしれない。また、こうした装置と放射線測定装置を適宜組み合わせることが、現場作業にとって有効である可能性もある。
  - ・KPFM という新手法を適用して、はじめて、タイプ A 及びタイプ B 放射性粒子の帯電現象に 関する基礎的な知見を得た(3.2.2)。タイプ B 放射性粒子の分析には、英国側の積極的な協 力が威力を発揮した(FIB による切削作業)。人工的にタイプ A に類似した放射性微粒子を 生成してその帯電状態を測定した結果より、放射性粒子は、同様の化学組成を持つ非放射性

粒子とは異なる特徴的な帯電状態を持つ可能性が示された。この現象を応用すれば、帯電状 態の違いを利用した効率的な放射性粒子の収集や除去を行うことができる可能性がある。 ・また、マスクや防護服の素材選定の際に、放射性粒子を選択的に吸着して作業者の呼吸によ る内部被曝を防ぐ、などの設計ができる可能性がある。特に防護服脱着時に、表面に付着し た放射性微粒子が再飛散し作業者が吸入する可能性を防止することは重要であろう。そこで、 防護服につき、その単位面積あたりの帯電電荷量を測定し、素材によってその帯電電荷量が 異なることを示した(3.2.2)。帯電状態の違いを利用して、放射性粒子からの作業者の効果 的な防護法や放射性微粒子飛散防止法などの確立に応用できる可能性が示された。帯電をど のように活用するのかは、除塵するのか、それとも集塵しないように制電するのか、いずれ の対応を取るかで異なる。除塵に帯電を利用するのであれば、例えば、エレクトレット素材 を活用したフィルターは市販されている(例:東洋紡の除塵フィルター(エリトロン®))。 また、静電防止剤や制電繊維も市販・活用されている(例:クラレのコロナ放電式帯電防止 不織布<エレブレイク>)。電気的な捕集方法に対しても、示唆に富む結果を得たと考えてい る。

○土壌や大気試料に含まれる放射性微粒子のより効果的な検出・検知方法の検討を実施した。

 ・大気中の放射性微粒子をその蛍光特性により自動で測定する装置の予備的検討を行った (3.1.1)。本課題の実施によって、はじめてウラニルイオンを多く含むタイプ A 放射性微粒 子は紫〜紫外光励起により特有の緑色蛍光を、それ以外でもタイプ B 粒子は紫外光励起によ り青色蛍光を発することが確認された。簡単なモックアップ装置による模擬実験を行い、放 射性微粒子の空気中や水中への飛散を蛍光により迅速に検出できる可能性を示すことができ た。実用性のある機器の開発には、さらなる検討や開発研究の余地は大きいが、廃炉作業や 環境モニタリングにおいて、こうした装置の適用可能性が示された。

○廃炉作業の基礎となる情報が多く収集された。

- ・環境中に放出された放射性微粒子は、放出から 10 年を経てもごく低頻度ではあるが大気中 に飛散するリスクがあることが示され、廃炉事業においても環境中への放射性粒子の漏洩を 防ぐことの重要性が改めて示された(3.1.1)。
- ・1F 近傍及び高汚染地域の土壌中の放射性微粒子存在量が明らかとなった(3.1.2)。その結果、これまで研究されてきた土壌の汚染と事故時の 1F 炉内状況の関係について、放射性微粒子の生成、放出過程の議論と初めてつなげることが可能となった。事故時のどの時点で粒子が生成したのかについて議論ができるようになったことで、炉内に存在する放射性微粒子の状況についても情報が得られるようになり、これは廃炉において重要な基礎的な知見となる。
- ・廃炉作業等において原子炉内デブリ等の取り出しにおいて、切削やレーザーやガスによる鎔 断によって局所的な高温状態がもたらされれば、放射性微粒子が容易く発生することが確認 された(3.2.6)。飛散する放射性微粒子は、多くが輸送されやすい球状となった。また高温 デブリの除去作業の際の放水冷却時においても FP 溶液状エアロゾル粒子が発生するだろう こと、それらエアロゾル粒子の挙動等の基礎的な知見を得た。これらの知見は、デブリ処理 設計に応用できる可能性がある。
- ・英国側において、タイプB放射性粒子のシンクロトロン放射光を利用した3次元撮像が実施され、含有される気泡の実態解明が進められた(3.3.2)。さらに、気泡生成に関して、火山からの噴出物をアナロジーとした解析が実施され、その生成条件をモデル化することによって、気泡の径分布の説明が可能となった(3.3.2)。粒子の生成条件を推定できるため、事故炉内の事象に関して基礎的な知見の提供となっている。

・現時点では、放射性微粒子の影響に関して放射能を持たない(あるいは放射能がきわめて低い)重元素については定性的な議論しか行われておらず、毒性の高い重金属による汚染の危険性についても十分に理解しなくてはならない。特にタイプA粒子は微小であることから、ICP-MSやPIXEの適用は全般に難しい。本課題では、これに対して放射光X線分析の手法を提案した(3.2.3)。この手法を用いて放射性微粒子中の重元素濃度を定量的に評価すれば、放射性粒子の生成に関する基礎的な情報(FPの挙動)が得られるとともに、そうした重金属によるリスクの有無やその低減方法の提案へも貢献できると考えられる。

最後に、これらに加え、放射性微粒子の性状から判断し、例えば、廃炉工程において大き な障害となるだろうシールドプラグ周辺の Cs 含有のガラス状物質(放射性微粒子の母体とな っただろう物質)の除去法に関する提案を記す。Cs 含有ガラス状物質は、高比放射能である ため、放射線量率を高めていることが問題の本質であり、何らかの手法で希釈することが解 決につながろう。シールドプラグ周辺の Cs による高放射線量率の原因物質の採取・分析によ る最終的な確定は必要だが、物質が本課題で扱った放射性微粒子と同様の Cs 含有シリカガラ ス状物質であれば、本課題に参画する研究者の過去の研究が参考となる。その結果では、放 射性微粒子はシリカガラス主材であるため、アルカリ溶液に比較的易溶であることが判明し ている。したがって、アルカリ溶液の噴霧はこうした物質の溶解をもたらすと考えられる。 しかし、同時に、エアロゾルの発生が防止でき、かつ水溶性とする手法でも水量を徒に増や すことなく、物質自体を希釈することが望まれる。そこで、アルカリ性物質を高濃度に含む 界面活性剤含有のジェル、ペーストを調整してガラス状物質に吹きかける、または塗り付け、 時間をおいてスチーム(高温水蒸気)を当てることで、ガラス状物質自体を徐々に溶解させ る工法の適用が提案できる。フォーム(泡状物質)も想定できるが、泡がはじけるとエアロ ゾルが生成するためジェルやペーストの方がより適切である。作業には当然ロボットが必要 だが、この工法を繰り返すことで、ガラス状物質の溶解が徐々にではあれ進み、Cs が液相-滞 留水などへ移行すれば(別途捕集することも想定できるが)希釈がはかどるため、高放射線 量率の線源を解消できる可能性があるのではなかろうか。

知彼知己者、百戦不殆(孫子『謀攻』)。今後も Cs を高濃度に含むシリカガラス主材の物質 や微粒子について、その基礎物性の解明などの研究が継続され、得られる新規知見が、効率 的で安全な廃炉作業工程の確立や作業者・周辺住民などの安全確保に用いられんことを心よ り期待する。

> 63 - 88 -

参考文献

- [1] Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y., and Igarashi, Y., Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. Scientific Reports, 3, 2554, (2013), Doi:10.1038/srep02554.
- [2] Satou, Y., Sueki, K., Sasa, K., Adachi, K., and Igarashi, Y., First successful isolation of radioactive particles from soil near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Anthropocene, 14, 71-76, (2016), Doi:10.1016/j.ancene.2016.05.001.
- [3] Yamaguchi, N., Mitome, M., Kotone, A. H., Asano, M., Adachi, K., and Kogure, T., Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant. Scientific Reports, 6, 20548, (2016), Doi:10.1038/srep20548.
- [4] Satou, Y., Sueki, K., Sasa, K., Yoshikawa, H., Nakama, S., Minowa, H., Abe, Y., Nakai, I., Ono, T., Adachi, K., and Igarashi, Y., Analysis of two forms of radioactive particles emitted during the early stages of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident. Geochemical Journal, 52(2), 137-143, (2018), Doi: 10.2343/geochemj.2.0514.
- [5] Abe, Y., Iizawa, Y., Terada, Y., Adachi, K., Igarashi, Y., and Nakai, I., Detection of uranium and chemical state analysis of individual radioactive microparticles emitted from the Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron radiation X-ray analyses. Analytical Chemistry, 86(17), 8521-8525, (2014), Doi: 10.1021/ac501998d.
- [6] Martin, P.G., Satou, Y., Griffiths, I., Richards, D., and Scott, T., Analysis of external surface irregularities on Fukushima-derived fallout particles, Front. Energy Res. 5, 25, (2017), Doi: 10.3389/fenrg.2017.00025.
- [7] Imoto, J., Ochiai, A., Furuki, G. et al., Isotopic signature and nanotexture of cesium-rich micro-particles: Release of uranium and fission products from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Scientific Reports, 7, 5409, (2017). Doi:10.1038/s41598-017-05910-z.
- [8] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構,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 (2017), https://www.dd.ndf.go.jp/files/user/pdf/strategic
  - plan/book/20170831\_SP2017FT.pdf, (2022 年 1 月 20 日参照). 原子力損害賠償・廃炉等支援機構,研究連携タスクフォース中間報告,第 4 回廃
- [9] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構,研究連携タスクフォース中間報告,第4回廃 炉研究開発連携会議(2016年12月26日),(資料1-1)研究連携タスクフォース 中間報告,https://www.dd.ndf.go.jp/files/user/pdf/decommissioningresearch/dr-committee/materials/04/doc1-1.pdf,(2022年1月20日参照).
- [10] Steinhauser, G., Niisoe, T., Harada, K. H., Shozugawa, K., Schneider, S., Synal, H. A., Walther, C., Christl, M., Nanba, K., Ishikawa, H. and Koizumi, A., Post-accident sporadic releases of airborne radionuclides

from the Fukushima Daiichi nuclear power plant site. Environmental Science and Technology, 49(24), 14028-14035 (2015), Doi: 10.1021/acs.est.5b03155.

- [11] Matsunami, H., Murakami, T., Fujiwara, H., and Shinano, T., Evaluation of the cause of unexplained radiocaesium contamination of brown rice in Fukushima in 2013 using autoradiography and gamma-ray spectrometry. Scientific Reports, 6(1), 20386 (2016), Doi:10.1038/srep20386.
- [12] 原子力損害賠償・廃炉等支援機構,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 2021 (2021), https://www.dd.ndf.go.jp/files/user/pdf/strategicplan/book/20211029\_SP2021FT.pdf, (2022年1月20日参照).

[13] 原子力規制庁,日本原子力学会安全部会 福島第一原子力発電所事故 事故進展分 析に関するワークショップ資料,東京電力福島第一原子力発電所事故の調査・分 析に係る中間取りまとめ~原子炉建屋における水素挙動と水素爆発について~,

http://www.aesj.or.jp/~safety/pdf/other/20211022\_nra\_presentation.pdf, (2022 年 6 月 15 日参照).

- [14] 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会,東京電力福島第 一原子力発電所事故の調査・分析に係る中間取りまとめ ~2019 年 9 月から 2021 年 3 月までの検討~, 2021 年 3 月 5 日, https://www.nsr.go.jp/data/000345595.pdf, (2021 年 2 月 4 日参照).
- [15] Girault, N., and Payot, F., Insights into iodine behaviour and speciation in the Phébus primary circuit. Annals of Nuclear Energy, 61, 143-156, (2013), Doi:10.1016/j.anucene.2013.03.038.
- [16] Zheng, X., Itoh, H., Tamaki, H., and Maruyama, Y., Source term uncertainty analysis: probabilistic approaches and applications to a BWR severe accident. Mechanical Engineering Journal, 2(5), 15-00032, (2015), Doi: 10.1299/mej.15-00032.
- [17] Di Lemma, F. G., Nakajima, K., Yamashita, S., and Osaka, M., Surface analyses of cesium hydroxide chemisorbed onto type 304 stainless steel. Nuclear Engineering and Design, 305, 411-420, (2016), Doi: 10.1016/j.nucengdes.2016.06.023.
- [18] Di Lemma, F. G., Yamashita, S., Miwa, S., Nakajima, K., and Osaka, M., Prediction of chemical effects of Mo and B on the Cs chemisorption onto stainless steel. Energy Procedia, 127, 29-34, (2017), Doi: 10.1016/j.egypro.2017.08.092.
- [19] Kobata, M., Okane, T., Nakajima, K., Suzuki, E., Ohwada, K., Kobayashi, K., Yamagami, H., and Osaka, M., Chemical form analysis of reaction products in Cs-adsorption on stainless steel by means of HAXPES and SEM/EDX. Journal of Nuclear Materials, 498, 387-394, (2018), Doi: 10.1016/j.jnucmat.2017.10.035.
- [20] Miwa, S., Nakajima, K., Miyahara, N., Nishioka, S., Suzuki, E., Horiguchi, N., Liu, J., Miradji, F., Imoto, J., Mohamad, A., Takase, G., Karasawa, H., and Osaka, M., Development of fission product chemistry

database ECUME for the LWR severe accident. Mechanical Engineering Journal, 7(3), 19-00537, (2020), Doi: 10.1299/mej.19-00537.

- [21] Furuki, G., Imoto, J., Ochiai, A., Yamasaki, S., Nanba, K., Ohnuki, T., Grambow, B., Ewing, R. C. and Utsunomiya, S., Caesium-rich microparticles: A window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Scientific Reports, 7(1), 42731, (2017), Doi: 10.1038/srep42731.
- [22] Rizaal, M., Nakajima, K., Saito, T., Osaka, M., and Okamoto, K., Investigation of high-temperature chemical interaction of calcium silicate insulation and cesium hydroxide. Journal of Nuclear Science and Technology, 57(9), 1062-1073, (2020), Doi: 10.1080/00223131.2020.1755733.
- [23] 伊東賢一ほか,不溶性セシウム含有粒子タイプ A の生成メカニズムに関する現象
   論 的 考 察 , 2018 日本地球化学会第 65 回年会講演要旨集, Doi:10.14862/geochemproc.65.0\_240.
- [24] 伊東賢一ほか,球状 Cs 含有粒子の生成メカニズムに関する現象論的考察,日本 原子力学会 2018 春の年会, https://confit.atlas.jp/guide/eventimg/aesj2018s/2M20/public/pdf?type=in, (2022年6月15日参照).
- [25] 西原健司、山岸功、安田健一郎、石森健一郎、田中究、久野剛彦、稲田聡、後藤雄一、福島第一原子力発電所の滞留水への放射性核種放出、日本原子力学会和 文論文誌、11 巻 1 号、13-19、(2012)、Doi: 10.3327/taesj.J11.040.
- [26] Igarashi, Y., Kajino, M., Zaizen, Y., Adachi, K., and Mikami, M., Atmospheric radioactivity over Tsukuba, Japan: a summary of three years of observations after the FDNPP accident. Progress in Earth and Planetary Science, 2(1), 1-19, (2015), Doi: 10.1186/s40645-015-0066-1.
- [27] Martin, P. G., Griffiths, I., Jones, C. P., Stitt, C. A., Davies-Milner, M., Mosselmans, J. F. W., Yamashiki, Y., Richards, D.A. and Scott, T. B., In-situ removal and characterisation of uranium-containing particles from sediments surrounding the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy, 117, 1-7, (2016), Doi: 10.1016/j.sab.2015.12.010.
- [28] 高橋幹二,原子力とエアロゾル,エアロゾル研究,4,1989,4-10,Doi: 10.11203/jar.4.4.
- [29] Tang, P., Kita, K., Igarashi, Y., Satou, Y., Hatanaka, K., Adachi, K., Kinase, T., Ninomiya, K., and Shinohara, A., Atmospheric Resuspension of Insoluble Radioactive Cesium Particles Found in the Difficult-to-Return Area in Fukushima, Progress in Earth and Planetary Science, 9(17), 2022, Doi:10.1186/s40645-022-00475-6.
- [30] Ishizuka, M., Mikami, M., Tanaka, T. Y., Igarashi, Y., Kita, K., Yamada, Y., Yoshida, N., Toyoda, S., Satou, Y., Kinase, T., Ninomiya, K., and Shinohara, A., Use of a size-resolved 1-D resuspension scheme to evaluate resuspended radioactive material associated with mineral dust

particles from the ground surface. Journal of Environmental Radioactivity, 166, 436-448, (2017). Doi: 10.1016/j.jenvrad.2015.12.023.

- [31] Kinase, T., Kita, K., Igarashi, Y., Kouji, A., Ninomiya, K., Shinohara, A., Okochi, H., Ogata, H., Ishizuka, M., Toyoda, S., Yamada K., Yoshida, N., Zaizen, Y., Mikami, M., Demizu, H., and Onda, Y., The seasonal variations of atmospheric 134,137Cs activity and possible host particles for their resuspension in the contaminated areas of Tsushima and Yamakiya, Fukushima, Japan. Progress in Earth and Planetary Sciences, 5, 12, (2018). Doi: 10.1186/s40645-018-0171-z.
- [32] Ikehara, R., Suetake, M., Komiya, T., Furuki, G., Ochiai, A., Yamasaki, S., Bower, W. R., Law, G. T. W., Ohnuki, T., Grambow, B., Ewing, R. C., and Utsunomiya, S., Novel method of quantifying radioactive cesium-rich microparticles (CsMPs) in the environment from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Environmental Science & Technology, 52(11), 6390-6398, (2018), Doi: 10.1021/acs.est.7b06693.
- [33] Zhang, Z., et al., Activity of <sup>90</sup>Sr in Fallout Particles Collected in the Difficult-to-Return Zone around the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. Environmental Science & Technology, 53, 10, 5868-5876, (2019), Doi: 10.1021/acs.est.8b06769.
- [34] Igarashi, J., et al., First determination of Pu isotopes (<sup>239</sup>Pu, <sup>240</sup>Pu and <sup>241</sup>Pu) in radioactive particles derived from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Scientific Reports, 9, 11807, (2019), Doi: 10.1038/s41598-019-48210-4.
- [35] Martin, P.G., et al., Compositional and structural analysis of Fukushima-derived particulates using high-resolution x-ray imaging and synchrotron characterisation techniques. Scientific Reports, 10, 1636, (2020), Doi: 10.1038/s41598-020-58545-y.
- [36] 小野貴大, ほか, 福島第一原子力発電所事故により 1 号機から放出された放射性 粒子の放射光マイクロビーム X 線分析を用いる科学性状の解明, 分析化学, vol. 66, (2017), pp. 251-261, Doi: 10. 2116/bunsekikagaku. 66. 251.
- [37] 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3号機原子炉建屋上部のダストフィルタの調査結果について. https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-

np/handouts/2015/images/handouts\_150512\_06-j.pdf (2022 年1月 20 日参照).

- [38] 西原健司,岩元大樹,須山賢也,福島第一原子力発電所の燃料組成評価. JAEA-Data/Code 2012-018,2012,190p.
- [39] Hidaka, A., Formation mechanisms of insoluble Cs particles observed in Kanto district four days after Fukushima Daiichi NPP accident. Journal of Nuclear Science and Technology, 56, 831-841, (2019), Doi: 10.1080/00223131.2019.1583611.

- [40] Katata, G., et al., Detailed source term estimation of the atmospheric release for the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station accident by coupling simulations of an atmospheric dispersion model with an improved deposition scheme and oceanic dispersion model, Atmospheric Chemistry and Physics, Atomosphilic Chemistry and Physics, 15, 1029–1070 (2015), Doi: 10.5194/acp-15-1029-2015.
- [41] Ikehara R., et al., Abundance and distribution of radioactive cesiumrich microparticles released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the environment, Chemosphere, 241, 125019, (2020), Doi: 10.1016/j.chemosphere.2019.125019.
- [42] 東京電力ホールディングス株式会社, 1~3 号機原子炉格納容器内部調査関連サンプル等の分析結果 https://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2018/images2/handouts\_180810\_04-j.pdf (2022年1月20日参照).
- [43] Mukai, H., et al., Speciation of Radioactive Soil Particles in the Fukushima Contaminated Area by IP Autoradiography and Microanalyses, Environmental Science and Technology, 48, 13053-13059, (2014), Doi: 10.1021/es502849e.
- [44] 小野﨑晴佳,阿部善也,中井泉,足立光司,五十嵐康人,大浦泰嗣,海老原充, 宮坂貴文,中村尚,末木啓介,鶴田治雄,森口祐一,福島第一原子力発電所事故 により1号機から放出された放射性エアロゾルの物理・化学的性状の解明,分析 化学,68,757-768,(2019),Doi: 10.2116/bunsekikagaku.68.757.
- [45] 小野貴大,飯澤勇信,阿部善也,中井泉,寺田靖子,佐藤志彦,末木啓介,足立 光司,五十嵐康人,福島第一原子力発電所事故により1号機から放出された放射 性粒子の放射光マイクロビームX線分析を用いる化学性状の解明,分析化学,66, 251-261,(2017),Doi: 10.2116/bunsekikagaku.66.251.
- [46] Igarashi, Y. et al., A review of Cs-bearing microparticles in the environment emitted by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Journal of Environmental Radioactivity, 205-206, 101-118, (2019), Doi: 10.1016/j.jenvrad.2019.04.011.
- [47] Tsuruta, H. et al., First retrieval of hourly atmospheric radionuclides just after the Fukushima accident by analyzing filter-tapes of operational air pollution monitoring stations, Scientific Reports, 4, (2014), Doi: 10.1038/srep06717.
- [48] Abe, Y., Onozaki, S., Nakai, I., Adachi, K., Igarashi. Y., Oura. Y., Ebihara, M., Miyasaka, T., Nakamura, H., Sueki, K., Tsuruta, H. & Moriguchi, Y., Widespread distribution of radiocesium-bearing microparticles over the greater Kanto Region resulting from the Fukushima nuclear accident. Progress in Earth and Planetary Science, 8, 13, (2021), Doi: 10.1186/s40645-020-00403-6.
- [49] Kurosawa, M., Shimano, S., Ishii, S., Shima, K., & Kato, T., Quantitative trace element analysis of single fluid inclusions by proton-induced X-ray emission (PIXE): application to fluid inclusions in

hydrothermal quartz. Geochimica et Cosmochimica Acta, 67(22), 4337-4352, (2003).

- [50] Kelly, J. et al., Global distribution of Pu isotopes and <sup>237</sup>Np. Sci. Total. Environ. 238/238, 483-500, (1999), Doi : 10.1016/S0048-9697(99)00160-6.
- [51] Zheng, J., Tagami, K., Watanabe, Y. et al. Isotopic evidence of plutonium release into the environment from the Fukushima DNPP accident. Scientific Reports, 2, 304, (2012), Doi:10.1038/srep00304.
- [52] Yang, G., Tazoe, H., Hayano, K. et al. Isotopic compositions of <sup>236</sup>U, <sup>239</sup>Pu, and <sup>240</sup>Pu in soil contaminated by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Scientific Reports, 7, 13619, (2017), Doi:10.1038/s41598-017-13998-6.
- [53] Yamamoto, M. et al. Isotopic Pu, Am and Cm signatures in environmental samples contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Journal of Environmental Radioactivity. 132, 31-46, (2014), Doi:10.1016/j.jenvrad.2014.01.013.
- [54] Dunne, J.A., Martin, P.G., Yamashiki, Y. et al., Spatial pattern of plutonium and radiocaesium contamination released during the Fukushima Daiichi nuclear power plant disaster. Scientific Reports, 8, 16799, (2018), Doi:10.1038/s41598-018-34302-0.
- [55] 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 一発表,つくば,(2020年3月12-13日).
- [56] 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).
- [57] 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).
- [58] 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).
- [59] 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).
- [60] 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).
- [61] 佐藤諒, 稲垣誠, 関本俊, 高宮幸一, 沖雄一, 大槻勤, 「福島原発事故により生 じた放射性微粒子のレーザー照射による模擬生成実験」, 日本放射化学会第 64 回討論会(2020) ポスター発表, 豊中, (2020 年 9 月 9-11 日).

- [62] 竹内佑,竹内裕弥,高宮幸一,稲垣誠,関本俊,沖雄一,大槻勤,「核分裂生成物のエアロゾルへの付着実験における対象核種の拡張」,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).
- [63] 竹内佑,竹内裕弥,高宮幸一,稲垣誠,関本俊,沖雄一,大槻勤,「放射性エア ロゾル生成過程における FP の化学的性質の影響」,日本放射化学会第 64 回討論 会(2020) ポスター発表,豊中,(2020 年 9 月 9-11 日).

This is a blank page.

## 付録

# List of Cs-enriched radioactive particles

This is a blank page.

			2										
					Samplin	g Site:	CF-01						
							Activ	ity on 201	1/3/1	1 14:46	.0		
	Sample name	Size	BSE image	Note		<sup>137</sup> Cs		-	<sup>34</sup> Cs		<u> </u>	<sup>34</sup> Cs/ <sup>1</sup>	<sup>37</sup> Cs
		μμ			Bq		error	Bq		error			error
	CF-01#01	001			1.930 ×10⁴	+1	658.0	I.768 ×I0⁴	+1	426.I	0.92	+1	0.04
	CF-01#03	200			001			94.5			0.94		
-	CF-01M01	001		Fusion	480.0	+1	16.4	435.5	+1	10.5	0.91	+I	0.04
2	CF-01M02	300		熱加水分解 I-129	311.4	+1	10.6	283.8	+1	6.8	0.91	+I	0.04
ß	CF-01M03				426.6	+1	14.5	385.4	+1	9.3	0.90	+1	0.04
4	CF-01M04	300	Ø.	SPring8_37 TOF-SIMS	997.4	+1	34.0	910.8	+1	22.0	0.91	+1	0.04
Ŋ	CF-01M05	500	V	Fusion	1072	+1	36.6	974.4	+I	23.5	0.91	+I	0.04
9	CF-01M06	300		熱加水分解 I-129	718.4	+1	24.5	649.3	+I	15.7	0.40	+I	0.04
7	CF-01M07	001		Fusion	81.9	+I	2.8	73.3	+I	I.8	0.89	+I	0.04
00	CF-01M08	300	- AN	熱加水分解 I-129	1422	+1	48.5	I 282	+1	30.9	0.40	+I	0.04

List of Cs-enriched radioactive particles ("Size" indicates approximate size in the long axis direction and "Note" shows applied analytical methods.)

付録

## JAEA-Review 2023-021

73 - 99 -

0
0
Diamor
0 Serie
0
0 SPring8
0
0
0
0
0
0
0 SPrings

JAEA-Review 2023-021

74 - 100 -

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
0.91	0.91	0.40	0.93	0.93	0.97	0.92	0.92	0.93	0.92	0.92	0.91	0.92	0.93	0.93
1.7	8.6	5.0	34.7	15.5	0.1	12.4	2.1	4.1	2.4	5.0	2.5	3.0	1.0	1.2
+I	+1	+1	+1	+1	+I	+1	+1	+I	+1	+1	+1	+I	+1	+I
69.8	355.0	208.2	1416	632.5	5.0	506.5	84.0	I 67.3	98.1	203.7	102.7	123.2	40.7	48.0
2.6	13.4	7.8	51.8	23.3	0.2	18.7	3.1	6.1	3.6	7.5	3.8	4.6	1.5	I.8
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I	+I	+I	+1	+1
77.0	392.2	230.0	I 520	683.1	5.1	549.4	91.8	180.5	106.7	221.2	112.5	133.7	43.7	51.6
	beta			ICP-MS				Diamond SPring8_37		ICP-MS			SPring8_37	
	R	di.	And the American Control of the American	E COL	Ś	the design of the second states and the second						STA .	3	
001	001	300		200	200			001	001	001	001	001	001	001
CF-01M21	CF-01M22	CF-01M23	CF-01T01	CF-01T02	CF-01T03	CF-01T04	CF-01T05	CF-01T06	CF-01T07	CF-01T08	CF-01T09	CF-01710	CF-01711	CF-01T12
23	24	25	26	27	28	29	30	31	32	33	34	35	36	37

75

- 101 -

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+1	+1	+I	+1	+1	+1	+I	+1	+1	+1
0.92	0.92	0.92	0.92	0.92	0.92	0.91	0.92	0.92	0.92	0.92	0.91	0.92
1.7	8.4	-	5.6	0.5	2.1	4.7	3.9	11.5	3.8	7.1	2.3	3.6
+1	+1	+1	+1	+1	+I	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
71.2	344.8	44.9	228.4	21.0	83.9	1.061	158.0	468.8	155.1	291.0	95.6	147.9
2.6	12.8	1.7	8.4	0.8	3.1	7.1	5.8	17.4	5.8	10.7	3.6	5.5
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I	+1	+1	+1	+1	+1	+1
77.3	376.4	49.0	248.0	22.8	91.4	208.6	171.6	510.3	169.5	315.0	105.3	161.2
KUR	beta				Diamond		ICP-MS		ICP-MS	PIXE		ICP-MS
P						A MA				Ý	A State	¥\$
001	001	200	001	001	001		200	200	200	300	50	200
CF-01T13	CF-01T14	CF-01715	CF-01T16	CF-01T17	CF-01T18	CF-01T19	CF-01T20	CF-01T21	CF-01T22	CF-01T23	CF-01T24	CF-01T25
38	39	40	41	42	43	44	45	46	47	48	49	50

JAEA-Review 2023-021

**76** - 102 -
0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
0.92	0.91	0.93	0.92	0.92	1.01	0.92	0.93	0.97	0.40	0.91	0.91	0.92
9.4	2.0	0.6	0.1	0.2	0.1	-	0.2	0.1	8.8	19.1	8.6	16.2
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I	+1	+I	+I	+I	+I	+I
385.0	80.1	26.5	3.7	6.2	4.3	46.6	7.9	2.8	364.9	791.0	356.1	673.1
14.3	3.0	0.1	0.1	0.2	0.1	1.7	0.3	0.1	13.8	29.8	13.4	25.0
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
419.2	87.9	28.6	4.0	6.7	4.3	50.7	8.5	2.9	404.3	872.6	392.6	732.8
							Tohoku U		酸分解(表面)		PIXE	KUR
			8			Ŵ			Star and a star	THE REAL	P	Ô
001	001	50	400	40	200	001	50	400	300	300	200	001
CF-01T26	CF-01T27	CF-01T28	CF-01T29	CF-01T30	CF-01T31	CF-01T32	CF-01T33	CF-01T34	CF-01T35	CF-01T36	CF-01T37	CF-01T38
51	52	53	54	55	56	57	58	59	60	61	62	63

**77** 

- 103 -

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
0.92	0.92	0.92	0.92	0.92	0.92	0.93	0.92	0.92	0.91	0.92	0.92	0.91
12.9	20.3	6.8	17.8	27.7	31.4	8.9	11.3	6.9	28.4	22.4	19.5	24.2
+1	+1	+1	+1	+I	+I	+1	+1	+I	+I	+1	+1	+1
535.7	841.8	281.6	740.3	1150	1303	367.6	468.9	285.8	1177	929.6	810.2	1003
19.9	31.3	10.4	27.5	42.6	48.4	13.5	17.4	10.6	43.9	34.3	30.1	37.8
+1	+1	+1	+1	+I	+I	+1	+1	+I	+I	+1	+1	+1
583.7	918.1	306.3	805.8	1248	1418	396.9	510.5	310.9	1287	1007	883.2	1108
beta	ICP-MS		SPring8_37	beta	Iron_oxide beta	ICP-MS Cs isotopes	ICP-MS	PIXE	SPring8_37		ICP-MS	酸分解(表面)
E.		B	E.	Color-			Ø		Å.		A CONTRACT	
200	001	001	300	300	300	200	200	300	300	400	400	200
CF-01T39	CF-01T40	CF-01T41	CF-01T42	CF-01T43	CF-01T44	CF-01T45	CF-01T46	CF-01T47	CF-01T48	CF-01T49	CF-01T50	CF-01R001
64	65	66	67	68	69	70	71	72	73	74	75	76

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
0.91	0.92	0.92	0.91	0.92	0.92	0.91	0.90	0.92	0.92	0.92	0.92	0.92
8.3	10.8	15.1	22.0	15.7	18.6	24.0	6.6	28.5	21.9	15.6	2.8	10.4
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I	+I	+1	+1	+1	+1	+I
346.2	449.5	624.5	913.0	653.2	772.5	947.0	272.4	181	908.4	646.4	117.9	431.6
13.0	16.7	23.1	34.1	24.2	28.7	37.6	10.3	43.8	33.8	24.0	4.4	16.0
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I	+I	+1	+1	+1	+1	+I
381.4	489.6	678.0	1001	710.6	842.5	1011	302.0	1286	992.2	704.7	128.1	470.5
ICP-MS	ICP-MS Cs isotopes	ICP-MS	SPring8_22	KUR			PIXE	Diamond SPring8_37 SPring8_22		KUR		ICP-MS
									۲	Ś		
200	200	200	001	200	001	200	001	50	400	300	200	300
CF-01R002A	CF-01R002B	CF-01R003	CF-01R004	CF-01R005	CF-01R006	CF-01R007	CF-01R008	CF-01R009	CF-01R010	CF-01R011	CF-01R012	CF-01R013
77	78	79	80	8	82	83	84	85	86	87	88	89

- 105 -

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+	+1	+1	+	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+
0.92	0.91	0.90	0.90	0.91	0.91	0.90	0.92	0.92	0.92	0.92	0.91	0.91	0.92
11.2	5.	12.1	9.2	9.2	6.5	5.6	3.5	2.4	2.2	2.1	4.6	10.1	5.6
+1	+1	+1	+I	+I	+1	+1	+I	+1	+I	+I	+1	+I	+1
464.2	213.5	503.0	382.6	383.1	274.0	236.4	143.4	98.7	93.2	88.5	189.2	419.4	232.6
17.2	8.0	19.0	14.4	14.4	10.3	8.9	5.3	3.7	3.5	3.3	7.1	15.7	8.6
+1	+1	+1	+1	+I	+1	+1	+I	+1	+1	+1	+1	+1	+1
505.9	233.9	557.6	423.I	421.5	301.3	261.7	I 55.8	107.8	101.5	96.5	207.9	460.4	252.4
酸分解(表面)			ICP-MS	beta	ICP-MS		beta			Diamond		SPring8_22	
	00	exector environmental 111 - Mil	Ĩ	Ş		Ø	2						A
200	001		200	200	200	200	300	100	100	100	001	200	200
CF-01R014	CF-01R015	CF-01R016	CF-01R017	CF-01R018	CF-01R019	CF-01R020	CF-01R021	CF-01R022	CF-01R023	CF-01R024	CF-01R025	CF-01R026	CF-01R027
90	91	92	93	94	95	96	<i>д</i> 7	98	66	001	101	102	103

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
0.91	0.91	0.91	0.91	0.40	0.92	0.91	0.92	0.91	0.92	0.92	0.92	0.92
13.5	15.0	5.7	д.7	6.6	8.	5.3	5.1	4.8	5.9	6.3	5.1	3.9
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I
560.6	621.3	235.7	400.6	275.5	334.1	221.7	209.8	194.0	243.1	262.5	212.0	161.8
20.9	23.2	8.8	15.0	10.4	12.4	8.3	7.8	7.4	9.0	9.8	7.9	6.0
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
613.6	679.4	258.9	441.1	305.0	364.4	243.4	227.9	217.8	263.9	286.5	230.6	176.4
					beta		ICP-MS Cs isotopes			ICP-MS		ICP-MS
		il in the		<b>(</b> )	Ja. L	P		À		and the second s	Ĵ>	T
200	400	300	200	300	100	300	200	200	100	200	400	400
CF-01R028	CF-01R029	CF-01R030	CF-01R031	CF-01R032	CF-01R033	CF-01R034	CF-01R035	CF-01R036	CF-01R037	CF-01R038	CF-01R039	CF-01R040
104	105	106	107	108	109	011	Ξ	112	113	114	115	116

**81** 

- 107 -

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+I	+I	+I	+I	+1	+I	+I	+I	+1	+1
0.90	0.92	0.91	0.91	0.90	0.91	0.91	0.92	0.92	0.91	0.91	0.92	0.91
2.6	3.2	5.2	4.2	2.0	5.6	8.5	5.4	2.4	4.8	5.2	7.9	6.3
+I	+I	+1	+I	+I	+I	+I	+1	+I	+I	+I	+I	+1
106.9	133.8	218.5	173.1	83.3	233.1	352.1	224.1	98.5	197.5	220.1	335.8	267.2
4.0	5.0	8.2	6.5	3.1	8.7	13.2	8.3	3.6	7.4	8.2	12.5	10.0
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I	+1	+1	+1
118.3	145.6	240.4	189.5	92.2	255.1	386.0	243.5	106.8	217.2	241.1	366.2	292.3
						Tohoku U	Kougakuin U	beta	beta	beta		Left piece is SiO <sub>2</sub>
<b>E</b>							Ð	÷				J.
001	001	001	100	200	200	200	200	200	001	200	001	400
CF-01R041	CF-01R042	CF-01R043	CF-01R044	CF-01R045	CF-01R046	CF-01R047	CF-01R048	CF-01R049	CF-01R050	CF-01R051	CF-01R052	CF-01R053
117	811	119	120	121	122	123	124	125	126	127	128	129

82

- 108 -

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+I	+1	+1	+I	+1	+I	+I	+1	+I	+I	+I	+I	+1
0.90	0.90	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.91	0.92	0.91	0.40	0.40	0.91	0.91
3.3	7.0	4.9	4.9	5.0	4.9	3.6	3.6	3.6	2.0	2.0	3.3	0.6	1.9
+I	+I	+1	+1	+I	+1	+1	+1	+1	+I	+1	+1	+I	+1
139.9	294.8	207.6	209.2	209.3	208.8	151.5	153.6	151.0	87.5	83.1	139.9	26.7	80.5
5.3		7.8	7.8	7.8	7.8	5.7	5.7	5.6	3.3	3.1	5.3	1.0	3.0
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1
155.0	326.4	228.0	229.4	228.9	228.8	I 66.5	167.9	I 64.8	96.0	92.0	155.0	29.3	88.4
ICP-MS		Kougakuin U				ICP-MS							
					÷	<b>6</b> 2	i an	(A)			available environmente	CERT.	une la eseruira els 11 11 1 NA
300	001	100	100	200	300	200	300	001	001	50		001	
CF-01R054	CF-01R055	CF-01R056	CF-01R057	CF-01R058	CF-01R059	CF-01R060	CF-01R061	CF-01R062	CF-01R063	CF-01R064	CF-01R065	CF-01R066A	CF-01R066B
130	131	132	133	134	135	136	137	I 38	139	140	141	143	144

- 109 -

0.04	0.04				0.04		0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1				+1		+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I
0.91	0.90				0.90		0.90	0.90	0.91	16.0	0.91	0.91	0.90	0.91
1.6	4.0				4.2		2.5	12.1	13.1	5.8	7.5		10.3	16.4
+1	+1				+1		+I	+1	+1	+I	+I	+1	+1	+1
67.8	168.0				175.1		104.4	512.1	554.0	246.1	318.9	468.2	434.7	695.1
2.6	6.3				6.6		3.9	19.3	20.8	9.3	12.0	17.5	16.4	26.1
+I	+1				+1		+1	+I	+1	+I	+1	+I	+1	+I
74.9	186.4				194.0		115.4	567.9	609.6	271.7	351.9	514.0	481.7	765.0
							beta	ICP-MS	beta	ICP-MS	PIXE		PIXE	
a navi	- <sup>2</sup>				No.	A total a second second							5	
001	200				300		001	001	200	001	50	200	001	200
CF-01R067	CF-01R068	CF-01R069	CF-01R070	CF-01R071	CF-01R072	CF-01R073	CF-01R074	CF-01Y01	CF-01Y02	CF-01Y03	CF-01Y04	CF-01Y05	CF-01Y06	CF-01Y07
145	146	147	148	149	150	151	152	153	154	155	156	157	158	159

84 - 110 -

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04	0.04		0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I		+1	+1	+1	+1	+1
0.91	0.91	0.91	0.90	0.91	0.91	0.91	0.91		0.90	0.87	0.88	0.89	0.89
6.3	5.9	5.5	31.7	14.7	5.0	3.4	5.0		6.74	11.88	11.56	11.33	10.25
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+I		+1	+1	+1	+1	+I
265.8	251.5	233.5	1341	621.6	212.1	142.5	210.6		275.2	485.1	471.9	462.4	418.4
10.0	9.4	8.8	50.7	23.2	8.0	5.3	7.9		10.43	18.95	18.27	17.72	16.07
+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1	+1		+1	+1	+1	+1	+I
293.0	277.3	258.0	1487	680.2	233.8	I 56.9	231.8		306.3	556.4	536.4	520.2	471.9
			ICP-MS	beta					beta	beta	beta	beta	beta
	J.	<b>G</b> -		8	A.			2 Martin Company of Martin	Y		$\sum$		
200	00	300	200	200	200	00	200						
CF-01Y08	CF-01Y09	CF-01Y10	CF-01Y11	CF-01Y12	CF-01Y13	CF-01Y14	CF-01Y15	CF-01F001a	CF-01F001b	CF-01F002	CF-01F003	CF-01F004	CF-01F005
160	161	I 62	I 63	164	I 65	166	167	168	169	170	171	172	173

- 111 -

0.04	0.04	0.04	0.04	0.04
+1	+1	+1	+1	+1
0.89	0.93	0.89	0.89	0.88
9.00	8.78	7.60	7.72	7.07
+1	+1	+1	+1	+1
367.4	358.2	310.2	315.3	288.8
14.09	13.12	11.91	12.07	11.22
+1	+1	+1	+1	+1
413.5	385.3	349.7	354.3	329.5
beta	beta	beta	beta	beta
		R	8	
CF-01F006	CF-01F007	CF-01F008	CF-01F009	CF-01F010
174 (	175 (	176 (	177	178 (