

本資料は 2001.6.月6 日付けて登録区分、  
変更する。

[技術情報室]

# オートラジオグラフ法によるプルトニウムの 粒度分布測定および性状把握

Determination of plutonium particle size and chemical  
form by autoradiography.

1982年1月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:

Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

配布す  
, この

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)  
2001



T N 841-82-04

1982年1月21日



## オートラジオグラフ法によるプルトニウムの粒度分布測定 および性状把握

Determination of plutonium particle size and chemical form by autoradiography.

実施責任者 関 昭 雄 \*

報告者 小 泉 勝 三 \*

期間 1980年4月1日 ~ 1982年1月18日

目的 プルトニウムエーロゾルの粒度分布測定および性状把握をオートラジオグラフ法を用いて行ない、プルトニウム施設の放射線管理に必要な情報を得る。

要旨 放射性エーロゾルの吸入摂取に伴なう内部被曝線量を算定するためには、エーロゾルの粒子径と化学形の情報が必要である。そこで、プルトニウム施設において、一旦ろ紙に捕集したプルトニウムを試料として、オートラジオグラフ法を用いてプルトニウムエーロゾルの粒子径を測定した。また、エーロゾルの化学形の違いが、オートラジオグラフから推定可能か検討した。

その結果、空気サンプリングろ紙上に捕集した酸化プルトニウムの粒子径(MMAD)は $1.6\sim6\mu\text{m}$ 、幾可標準偏差は $1.3\sim1.8$ を得た。また、ZnS(Ag)オートラジオグラフから、硝酸プルトニウムと、酸化プルトニウムの違いを推定できることがわかった。

\* (所属部・課名) 安全管理部 放射線管理第一課

## 目 次

1. 序	1
2. 測定方法	1
2-1 試料の採取	1
2-2 オートラジオグラフ (ARG) 法	4
2-3 オートラジオグラフ (ARG) 法の操作手順及び粒度分布測定手順	4
3. 粒度分布測定例	8
3-1 エアースニファろ紙および鼻スミアろ紙に捕集したPuの粒度分布	8
3-2 個人ダストサンプラろ紙およびエアースニファろ紙に捕集したPuの粒度分布	15
3-3 その他の試料に捕集したPuの粒度分布	17
4. Puの性状把握	22
4-1 硝酸Puと酸化Puによる空気汚染の比較	22
4-2 硝酸Puと酸化Puによるカバーオールおよびチオックス汚染の比較	26
4-3 その他の試料	29
5. PuエーロゾルとRn, Tn娘核種の弁別	33
6. 空気サンプリング試料から得られたPu粒度分布 (MMA D) の内部被曝線量評価への適応	35
7. 結　　言	38
参考文献	39

## 1. 序

放射性エーロゾルの吸入による作業者の内部被曝線量を算定する場合、単にその濃度や摂取量を測定するばかりでなく、呼吸器系への沈着とその後の代謝に大きく影響するエーロゾルの粒度分布と化学形を知ることが重要である。<sup>1)</sup> 化学形については、取扱っている核種の化学形を知ることによって一応評価できる。しかし粒度分布は、グローブボックス内で取扱っている粉体の粒度分布と作業環境の空気中に飛出し、作業者が吸入する粒度分布が同じであるという保証はない。したがって粒度分布は、空気汚染の発生した都度測定できることが望ましい。エーロゾルの粒度分布を測定する方法には、カスケードインパクターや、呼吸器系領域への吸入性塵埃の測定を目的とした粒度弁別サンプラーなどがある。<sup>2), 3)</sup> しかし、これらのサンプラーを、発生が予測できない空気汚染をねらって数多く配置することは実際の管理上は不可能である。一方、プルトニウム取扱施設には、各グローブボックスの間に、作業環境中の空気を連続的にろ紙にサンプリングするエアースニファが配置されている。このサンプリングろ紙に一旦捕集したプルトニウム（以下「Pu」という）の粒度分布が測定できれば、空気汚染の発生の都度粒度分布を知ることが可能となる。このように一旦ろ紙に捕集したPuの粒度分布を測定する方法として、オートラジオグラフ（以下「ARG」という）法がある。<sup>4), 5), 6), 7)</sup>

本報告書は、このARG法を用いて、今までに得られたエアースニファろ紙、鼻スミアろ紙などに捕集したPu試料のうち代表的なものについて粒度分布を解析したデータと、ARGの写真からPuの化学形が推定可能かどうかを検討した結果についてまとめたものである。

## 2. 測 定 方 法

### 2-1 試料の採取

ARG用の試料は

- (1) エアースニファろ紙上に捕集したPu
- (2) 鼻スミアろ紙上に捕集したPu
- (3) 個人ダストサンプラのろ紙上に捕集したPu
- (4) その他汚染試料

である。

エアースニファは、各グローブボックス間に1個の割合で配置され、60ℓ/minの流量率で空気中の塵埃をサンプリングしている。エアースニファサンプリングヘッドをPhoto. 1に示す。

グローブ作業に伴なうグローブ損傷などによって空気汚染が発生した場合、発生現場近くに配置されたエアースニファろ紙上に Pu 粒子を捕集することができる。ろ紙は、セルローズアスベストの東洋ろ紙 HE 40 T (50 mm $\phi$ ) を使用している。ろ紙に捕集した Pu の  $\alpha$  放射能は、Rn, Tn の娘核種が減衰した後 ZnS(Ag) シンチレーション検出器を用いて測定する。さらに Si 半導体検出器を用いて、 $\alpha$  線スペクトルを測定し、Pu であることを確認した後、ろ紙を 4  $\mu\text{m}$  のマイラ膜で一重に包み、これを ARG 用の試料とする。ろ紙上の放射能の検出限界値は 5 分間測定で約 2 pCi (4.4 dpm) である。

鼻スミアろ紙は、Photo. 2 に示すように東洋ろ紙 S-100 (40mm $\phi$ ) を綿棒に扇状に巻きつけ鼻孔をスミアするもので、空気汚染が疑われる場合に作業者に吸入摂取があったかどうかを簡便に測定する方法として用いているものである。ICRP の呼吸器系モデルによれば、AMAD=1 $\mu\text{m}$  の Pu の場合、鼻咽頭腔には摂取量の約 30% が沈着する。そのうち鼻スミアによってその約 18%<sup>8)</sup> が採取できるものとすると、鼻スミアろ紙には摂取量の約 5% (20 分の 1) が捕集できることになる。ろ紙上の  $\alpha$  放射能は、エアースニファろ紙と同じ方法で測定した後、マイラ膜で一重に包み AGR 用の試料とする。

個人ダストサンプラは、グローブ交換、フィルタ交換など空気汚染の発生する恐れのある作業を行なう場合に、作業者の胸の位置に装着するもので、流量率は 2  $\ell/\text{min}$  で空気をサンプリングしている。ろ紙はグラスファイバろ紙 (ファトマン社 GF-A 25 mm $\phi$ ) を使用している。個人ダストサンプラの外観を Photo. 3 に示す。作業後にろ紙をとりはずし、前述した方法で  $\alpha$  放射能を測定し、有意値が確認された場合には、マイラ膜で一重に包み AGR の試料とする。

検出限界値は、鼻スミアろ紙、個人ダストサンプラのろ紙とも、5 分測定時約 2 pCi である。

---

脚注 1) 米国デュポン社の製のポリエチレンテレフタラートフィルムの商品名

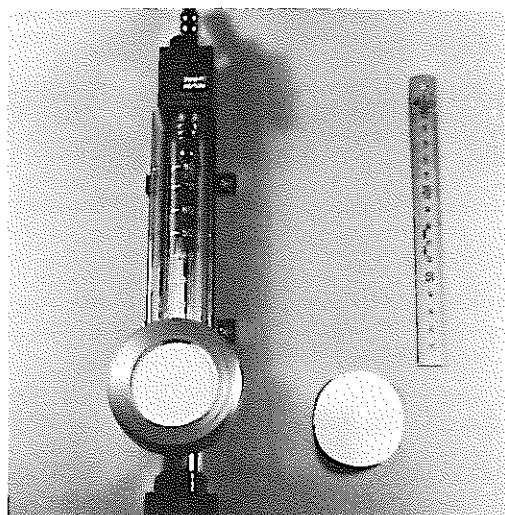


Photo. 1 Air smifter sampling head



Photo. 2 Nose swab sampling paper

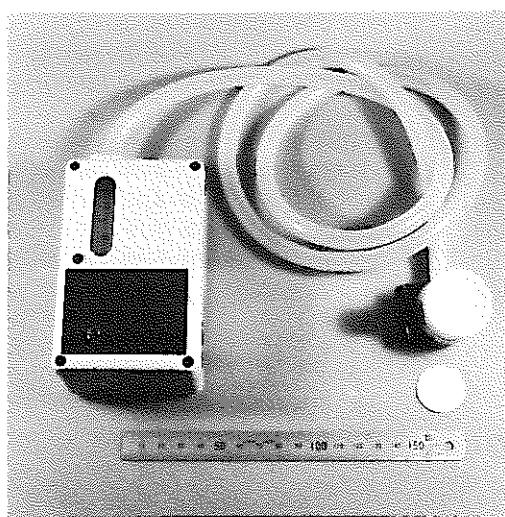


Photo. 3 Personal dust sampler

## 2-2 オートラジオグラフ (ARG) 法

ARG法には、原子核乾板を用いる方法とZnS(Ag)増感ARG法の2つの方法を用いる。原子核乾板を用いるARG法からは、

- (1)  $\alpha$ 放射能（幾何効率を50%と仮定し、密着時間が既知の時は崩壊数が求まる）
- (2)  $\alpha$ 放出核種の物理的（化学的）性状
- (3)  $\alpha$ 線のエネルギー<sup>9)</sup>
- (4) ろ紙への付着状況

などの情報を得ることができる。（文献9によれば、 $^{235}\text{U}$ (4.4 MeV),  $^{238}\text{U}$ (4.2 MeV), および $^{239}\text{Pu}$ (5.1 MeV)の粒子を $\alpha$ 線の飛跡の長さから識別可能としている。）しかし試料と乾板の密着操作および現像処理に暗室を必要とすること、顕微鏡観察、 $\alpha$ 線トラックの計数に熟練と根気を要することなどのため、定常的な手段としては難点がある。

一方、ZnS(Ag)増感ARG法からは、

- (1) プルトニウム粒子の数
- (2)  $\alpha$ 放射能（入射粒子数とスポット径が校正されている場合）
- (3) プルトニウムの性状

などの情報を得ることができる。この方法は暗室を必要とせず、誰でも簡単に行なうことができる利点をもっている。この方法の手順についてはN-841-78-47「ZnS(Ag)増感オートラジオグラフ法による $\alpha$ 放射性粒子の粒子径測定」<sup>10)</sup>の付録に記してある。今回の粒子分布測定においては、この方法は主に原子核乾板上の $\alpha$ 線スターの位置を、顕微鏡下で見つけ出すための位置決めの補助手段、およびPuの化学形および粒子分布を定性的に把握するための手段として用いた。

## 2-3 オートラジオグラフ (ARG) 法の操作手順及び粒度分布測定手順

### (1) 試料の準備

ARG用の試料は厚紙に張り、原子核乾板への汚染を防止するため4 $\mu\text{m}$ 厚さのマイラ膜を用いて一重に包む。

### (2) 原子核乾板との密着

原子核乾板には、KODAK社のNTA(25mm×75mm×1.7mm厚さのプレパラートに10 $\mu\text{m}$ の乳剤を塗布したもの)を使用する。<sup>脚注2)</sup>

脚注2)  $^{239}\text{Pu}$ の5.14 MeVの $\alpha$ 線の乳剤中での飛程は16.3 $\mu\text{m}$ であり、飛跡の長さから $\alpha$ 線のエネルギーを測定する目的のためには16.3 $\mu\text{m}$ 以上の乳剤厚さを持つ原子核乾板を使用することが必要であるが、 $\alpha$ 線の崩壊数を知る目的のためには、10 $\mu\text{m}$ 厚さの乳剤を持つ原子核乾板で目的を達することが出来る。乳剤厚さが10 $\mu\text{m}$ 以上になると、現像処理中に乳剤が歪むため、温度現像法などの特別な操作が必要となる。

まず暗室において指先の感蝕で乾板の乳剤側を確かめ、試料と密着する。試料と乾板の密着性を良くするため $10\text{ g}/\text{cm}^2$ 程度の锤りをのせる。また密着開始時刻を記録する。

### (3) 現像、定着、水洗および乾燥処理

現像液にはD-19を用い20℃にて3分間現像処理する。停止液は1%の酢酸溶液を用い約30秒間行なう。定着液にはFuji-Fix(チオ硫酸ナトリウム)を用い乳剤が透明になる時間の約2倍(3分~5分間)行なう。以上(2), (3)の操作は全て、Wratten系No.2のフィルターをつけた15Wの電球の安全光から1m以上離した位置で行なう。

水洗は、15℃前後の冷たい、ごみのない静かな流れの中で15分間行なう。水洗後、清浄な空気の場所で乾燥させる。

### (4) 検鏡

乾燥後の原子核乾板を顕微鏡にセットし、倍率400倍で観察する。乾板上の $\alpha$ 線スターの位置は、ZnS(Ag)増感ARG法を用いて撮影した写真を参考にすることにより、短時間で見つけることができる。見つけ出した $\alpha$ 線スターの位置は、ステージのX軸とY軸の目盛を読みとり記録する。オートステージを取付けた顕微鏡の外観をPhoto.4に示す。

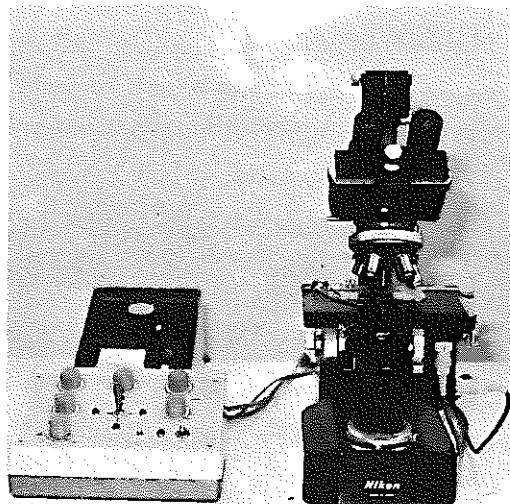


Photo. 4 Microscope with autostage

(5)  $\alpha$  線トラックの計数

検鏡によって見付けた $\alpha$ 線スターのトラック数を計数する。

顕微鏡の視野の中でトラック数が多くて肉眼によって数えることが難しいものについては  
写真撮影し写真上でトラック数を数える。

#### (6) 崩壊数 (dpm) から粒子径および粒度分布への変換

ARG法の幾何効率を50%と仮定し、計数した $\alpha$ トラック数を密着時間で除し、各々の $\alpha$ 線スターに対応するPu粒子の放射能A(dpm)を求める。放射能からPu粒子の粒子径d( $\mu\text{m}$ )への変換は、Pu粒子が球形であると仮定すれば次式によって求めることができる。<sup>4)</sup>

$$d = \left( K \times A \right)^{1/3} \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

ここに、酸化 Pu の場合  $\rho = 11.43^{11)}$  とすると  $K = 1.39$

硝酸 Pu の場合  $\rho = 2.9^{11)$  とすると  $K = 5.31$  となる。

(1)式をグラフ化したものを Fig. 1 に示す。

つぎに、各粒子径について質量頻度分布を求め、対数正規確率紙にプロットし、グラフから質量の 50% に相当する径（質量中央径：Mass Median Diameter）を求める。幾何標準偏差  $\sigma_g$  (Geometric Standard Deviation) は次式を用いて計算される。

$$\sigma_g = \frac{84.13\% \text{ 粒子径}}{50\% \text{ 粒子径}} = \frac{50\% \text{ 粒子径}}{15.87\% \text{ 粒子径}} \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

個数中央径 (Count Median Diameter (CMD)) は、Hatch-Chaoteの式(3)から  $MMD$  と  $\sigma_g$  を用いて求めることができる。

$$\ell_{n \text{ CMD}} = \ell_{n \text{ MMD}} - 3 (\ell_{n \sigma_g})^2 \quad \dots \quad (3)$$

空気力学的質量中央径 (Mass Median Aerodynamic Diameter (MMAD)) は、エーロゾルの密度  $\rho$  が求まれば次式から求められる。

$$MMA\,D = \sqrt{\rho} \cdot MMD$$

質量と放射能が比例するような粒子については、空気力学的放射能中央径 (Activity Median Aerodynamic Diameter(AMAD) ) は MMA D に等しい。

AMAD = MMA D (Mass  $\propto$  Activity)

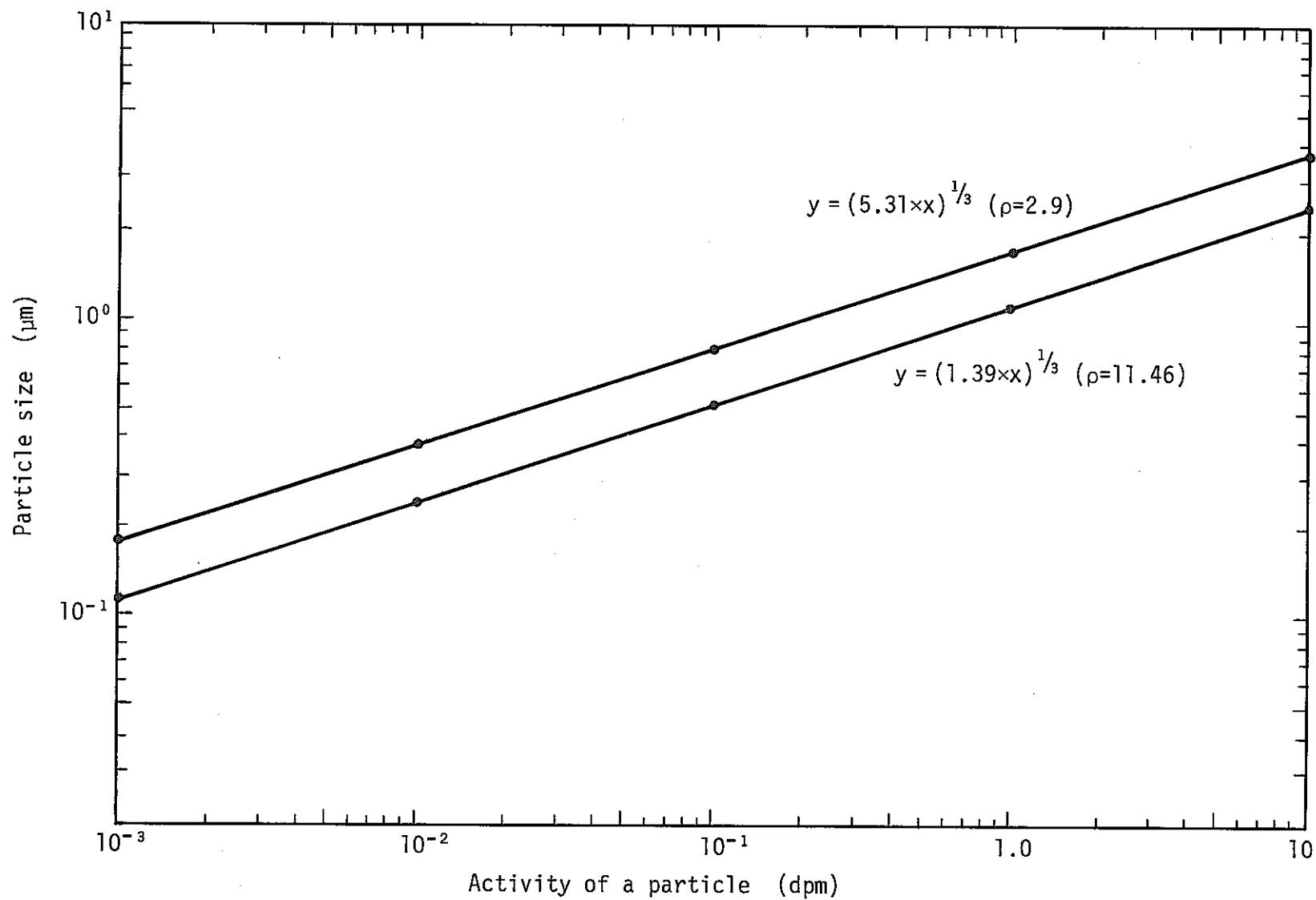


Fig. 1 Relation between activity of a particle and plutonium particle size

### 3. 粒度分布測定例

#### 3-1 エアースニファろ紙および鼻スミアろ紙に捕集した Pu の粒度分布 (例 1)

M O X Pu 取扱グローブボックスのグローブ交換作業中に発生した空気汚染によって、当該グローブから約 2 m 離れたエアースニファろ紙上に捕集した Pu の原子核乾板上の  $\alpha$  線スターの写真を Photo. 5 に、ろ紙の ZnS(Ag) 増感 A R G の写真を Photo. 6 に示す。原子核乾板上の個々の  $\alpha$  線スターのトラック数を計数し、2 章に述べた手順に従って酸化 Pu の粒子径に換算し、各粒子径について質量頻度分布を求め、その結果を対数正規分布図にプロットしたものを Fig. 2 に示す。Fig. 2 から質量中央径を求めるとき  $0.62 \mu\text{m}$  となり  $\sigma_g$  は 1.48 となる。参考として C M D を計算すると C M D は  $0.39 \mu\text{m}$  となる。Pu の発生源における化学形は酸化 Pu で密度 11.43 を用いて M M A D を求めると  $2.1 \mu\text{m}$  を得る。

一方上に述べた空気汚染発生時に、作業者の鼻スミアろ紙上に捕集した Pu の原子核乾板上の  $\alpha$  線スターの写真を Photo. 7 に、ZnS(Ag) 増感 A R G の写真を Photo. 8 に示す。原子核乾板上の  $\alpha$  線スターのトラック数を計数し、2 章に述べた手順に従って  $\text{PuO}_2$  粒子に換算し、各粒子径について質量頻度分布を求め、その結果を、対数正規分布図にプロットしたものを Fig. 3 に示す。Fig. 3 から質量中央径を求めるとき  $0.83 \mu\text{m}$  となり、 $\sigma_g$  は 1.34 となる。参考として C M D を計算すると C M D は  $0.64 \mu\text{m}$  となる。又、M M A D は  $2.8 \mu\text{m}$  となる。この時、エアースニファろ紙上の放射能は  $15 \text{ pCi}$ 、鼻スミアろ紙の放射能は  $5 \text{ pCi}$  であった。

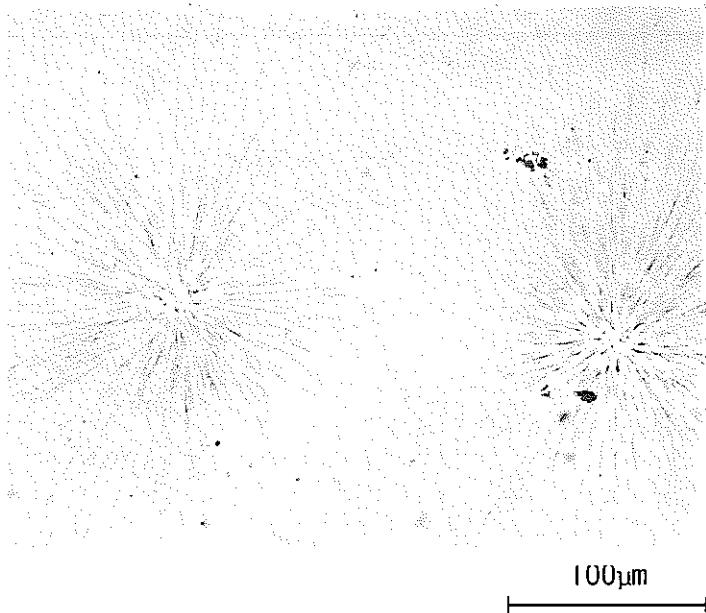


Photo. 5 Autoradiograph of PuO<sub>2</sub> particle on HE-40T filter paper

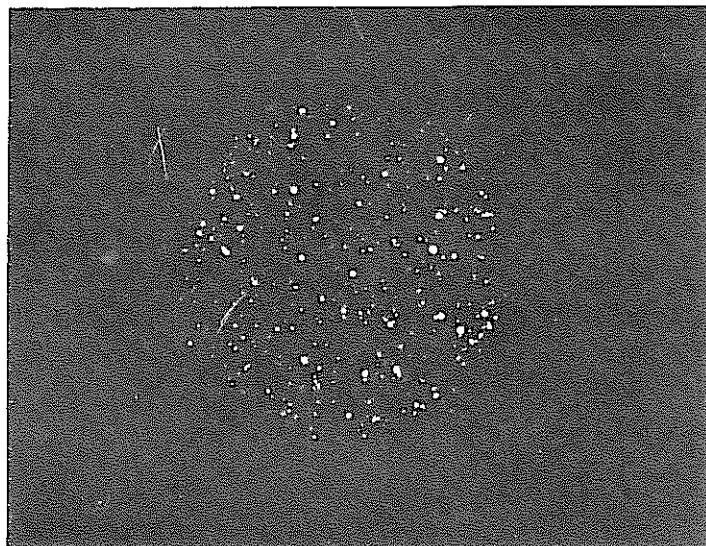


Photo. 6 ZnS(Ag) autoradiograph of PuO<sub>2</sub> on HE-40T filter paper  
(Activity 15 pCi :  $5 \times 10^{-12} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \cdot \text{hr}$ )

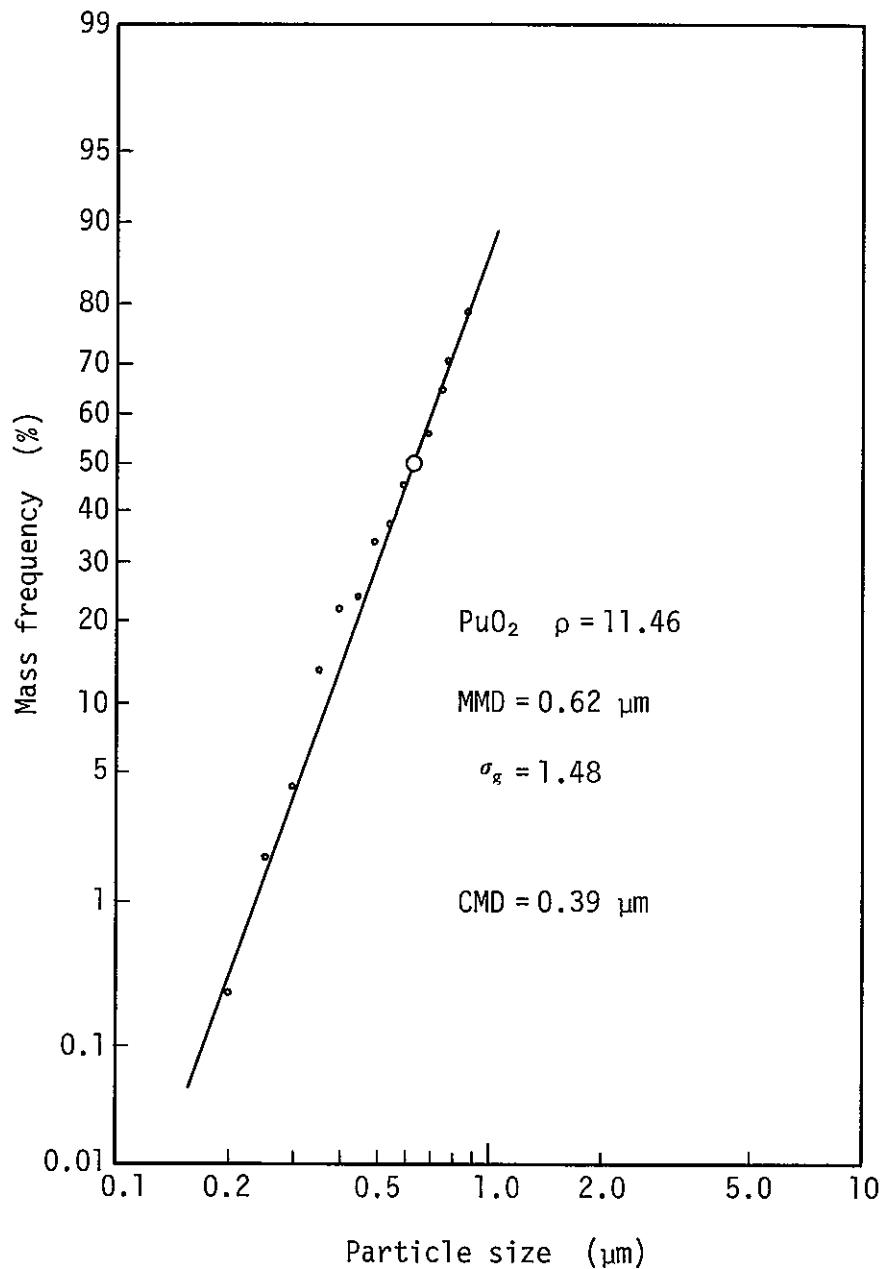


Fig. 2 Mass distribution of  $\text{PuO}_2$  on HE-40T filter paper

SN841-82-04

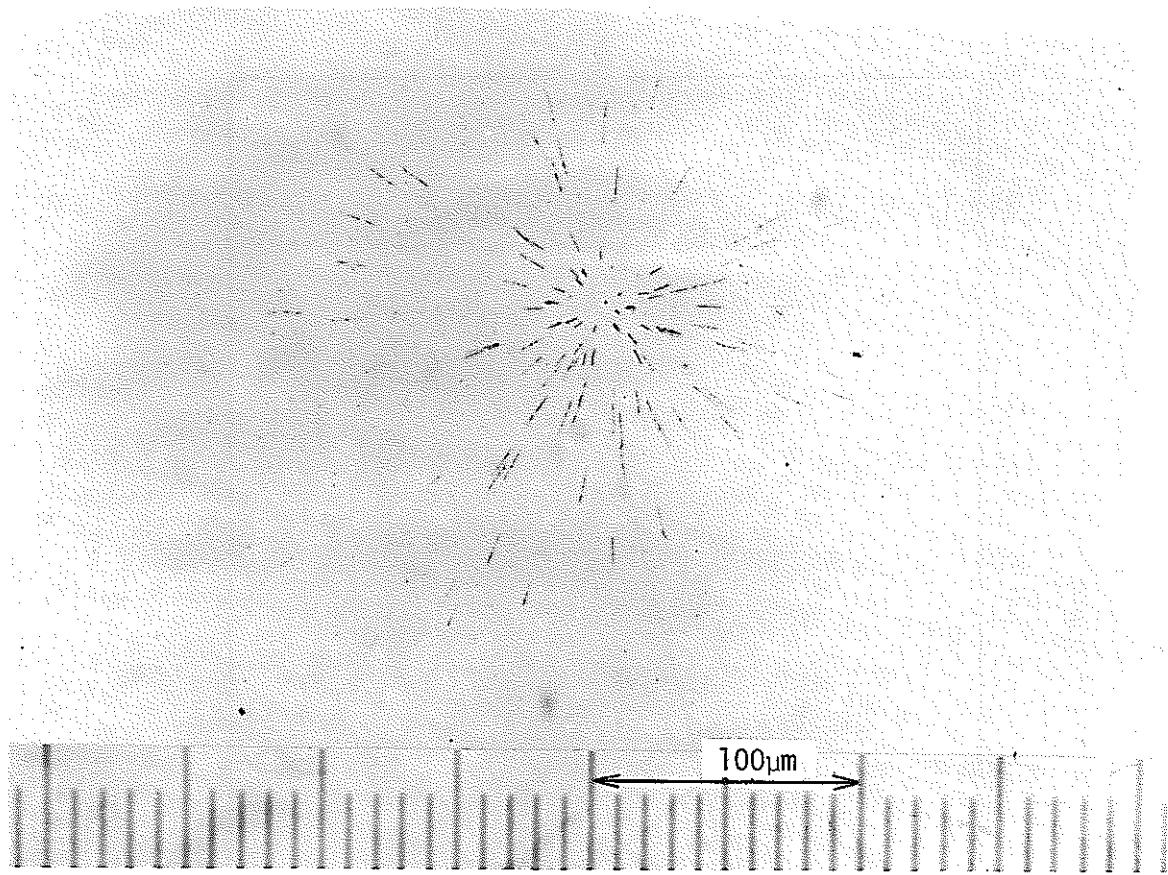


Photo. 7 Autoradiograph of PuO<sub>2</sub> particle on nose swab paper

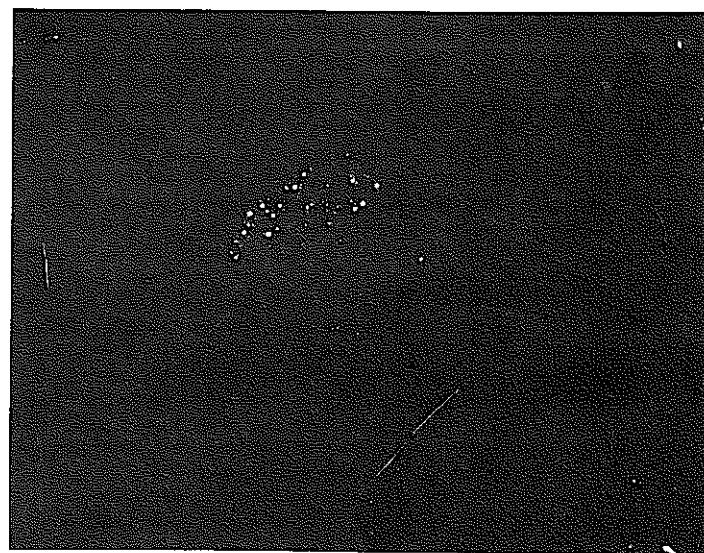


Photo. 8 ZnS(Ag) autoradiograph of PuO<sub>2</sub> on nose swab paper  
(Activity : 5 pCi)

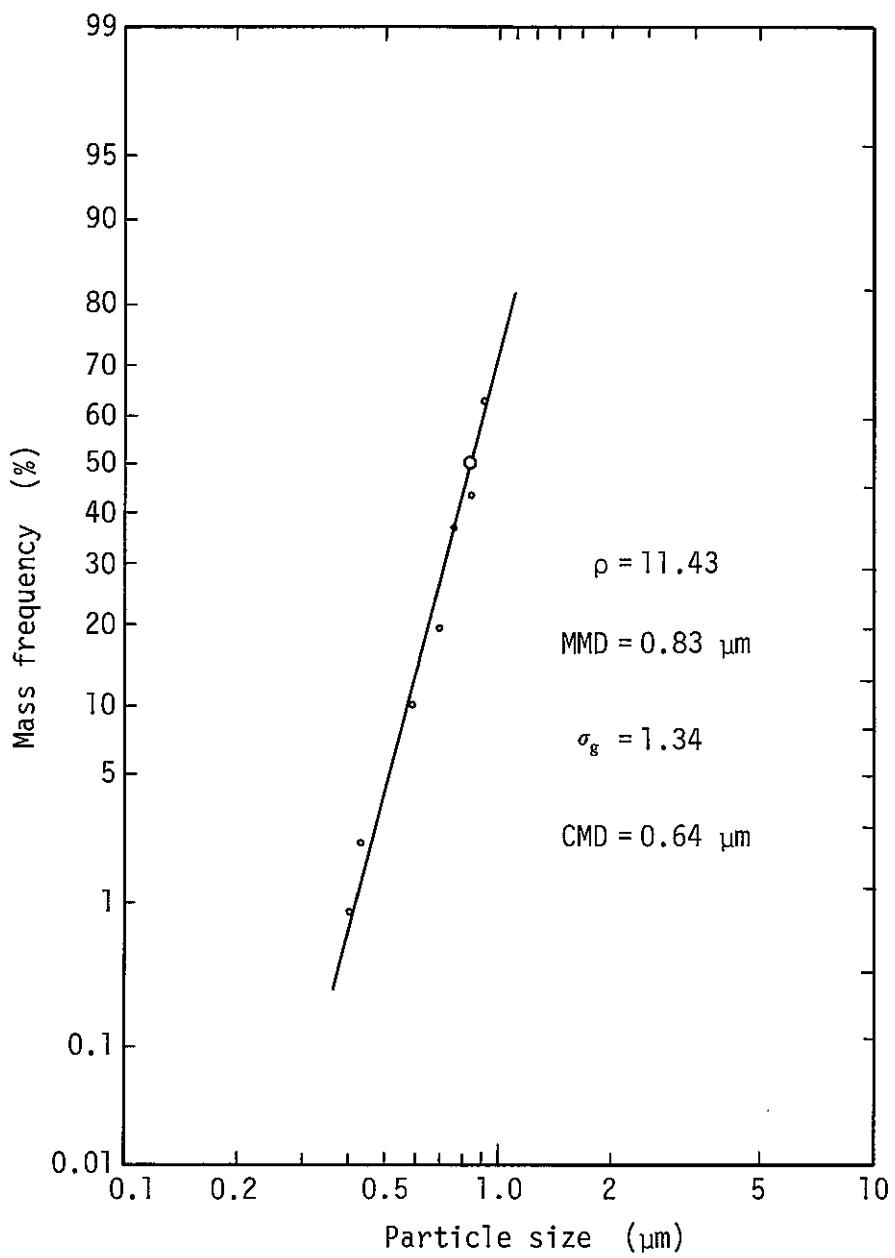


Fig. 3 Mass distribution of  $\text{PuO}_2$  on nose swab paper

(例 2)

M O X ペレット研削粉回収グローブボックスにおける作業中微小なグローブ損傷に伴い発生した空気汚染により、当該グローブポートから約 3 m 離れたエアースニファろ紙に捕集された酸化 Pu の ZnS(Ag) A R G の写真を Photo. 9 に鼻スミアろ紙に検出された酸化 Pu の ZnS(Ag)A R G の写真を Photo. 10 に示す。

エアースニファろ紙上の酸化 Pu の MMD は  $0.96 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_g$  は 1.45 であった。

鼻スミアろ紙上の酸化 Pu の MMD は  $0.46 \mu\text{m}$   $\sigma_g$  は 1.5 であった。放射能は、エアースニファろ紙が  $120 \text{ pCi}$ , 鼻スミアろ紙が  $18 \text{ pCi}$  であった。

例 1 と例 2 について、エアースニファろ紙に捕集される酸化 Pu の MMD と鼻スミアろ紙に付着する酸化 Pu の MMD を比較すると、大きな差がない。鼻スミアろ紙には、エアースニファろ紙と同程度の微小な酸化 Pu 粒子も付着していることから、鼻孔（鼻毛を含む）には、粗大な粒子のみでなく微少な粒子も捕集されるといえる。このことは酸化 Pu より粒子径の小さい硝酸 Pu エーロゾルが、鼻スミアに検出されることからもうらづけられる。（参照 Photo. 13(a))

SN841-82-04

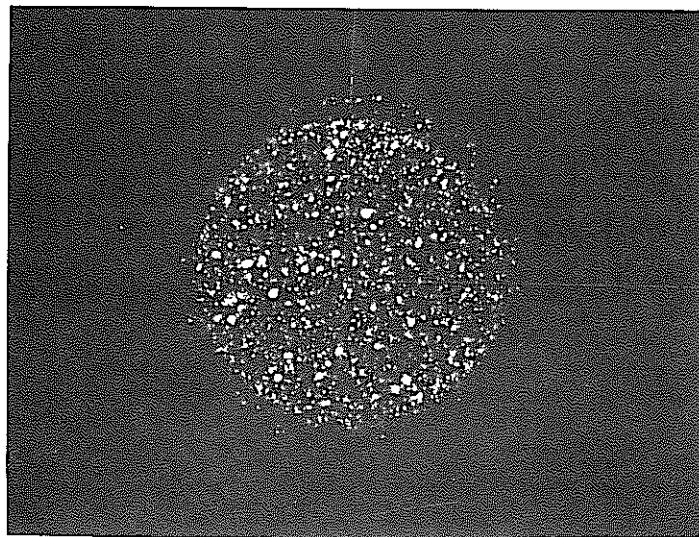


Photo. 9 ZnS(Ag) autoradiograph of PuO<sub>2</sub> on HE-40T filter paper  
(120 pCi :  $4 \times 10^{-12} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \cdot \text{hr}$ )

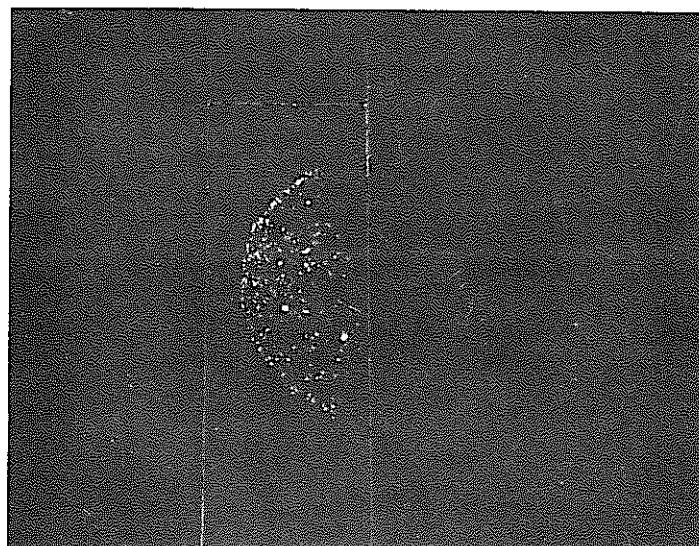


Photo. 10 ZnS(Ag) autoradiograph of PuO<sub>2</sub> on nose swab paper (18 pCi)

### 3 - 2 個人ダストサンプラろ紙およびエアースニファろ紙に捕集した Pu の粒度分布

M O X 粉末取扱グローブボックスの一次フィルタ交換作業時に発生した空気汚染時、作業者の個人ダストサンプラのろ紙に捕集された酸化PuのZnS(Ag)ARGの写真をPhoto. 11に示す。また、この時汚染源から約20m離れたエアースニファろ紙に捕集された酸化PuのZnS(Ag)ARGの写真をPhoto. 12に示す。

個人ダストサンプラろ紙上の酸化Pu粒度分布を解析した結果、MMDは $1.50\text{ }\mu\text{m}$ 、 $\sigma_g$ は1.47であった。一方エアースニファろ紙上の酸化Puの粒度分布は、MMDで $1.30\text{ }\mu\text{m}$ 、 $\sigma_g$ で $1.67\text{ }\mu\text{m}$ であった。放射能は個人ダストサンプラが $1,500\text{ dpm}$ 、エアースニファろ紙上の放射能は $50\text{ dpm}$ であった。

この空気汚染時には、作業者のカバーオール、周辺床が広範囲にわたって汚染したが、作業者は半面マスクを着用していたことによって、鼻スミアに汚染は検出されなかった。この例から、エアースニファろ紙には、発生源から20m離れていた場合にも、発生源近くにおいて個人ダストサンプラに捕集した粒度分布に近い粒度分布の粒子が捕集されていることがわかる。

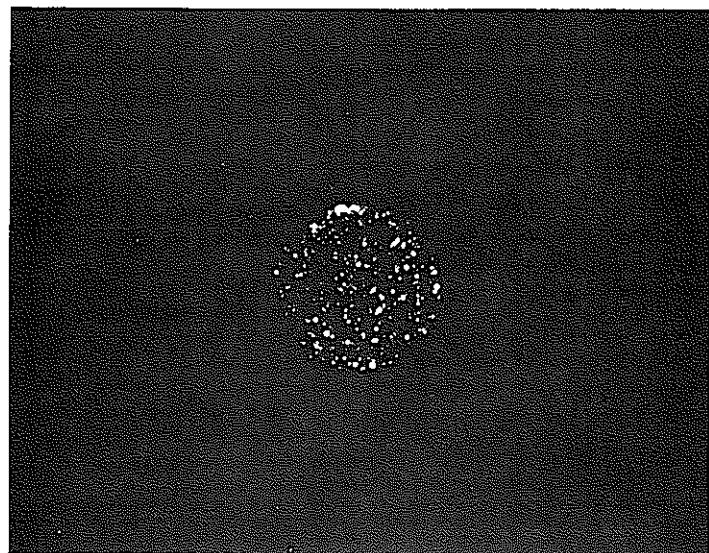


Photo. 11 ZnS(Ag) autoradiograph of  $\text{PuO}_2$  on personal sampler filter paper  
(680 pCi,  $5.6 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \cdot \text{hr}$ )

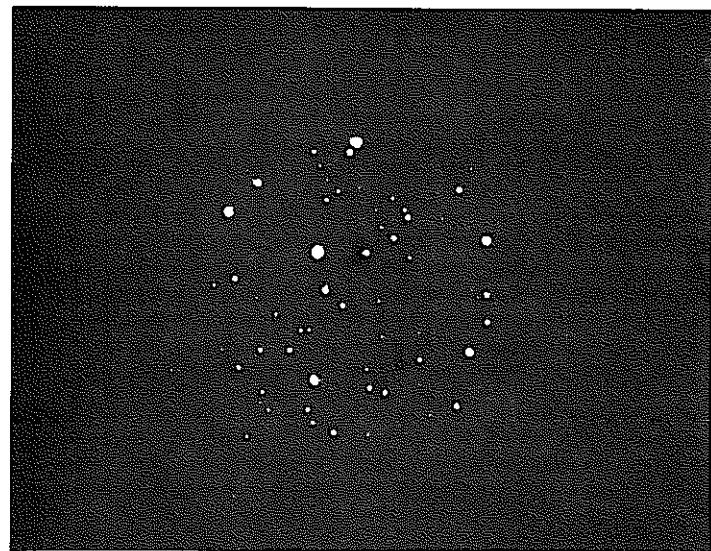


Photo. 12 ZnS(Ag) antoradiograph of  $\text{PuO}_2$  on air sniffer paper  
(23 pCi,  $7.5 \times 10^{-12} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3 \cdot \text{hr}$ )

### 3 - 3 その他の試料に捕集した Pu の粒度分布

エアースニファろ紙のみに酸化 Pu が捕集された試料、または鼻スミアろ紙のみに酸化 Pu が捕集された試料について粒度分布を測定した結果を、前節 1 と 2 で述べた結果と共に Table 1. にまとめて示す。また、外科手術用手袋（チオックス）、靴底、白衣、に付着した 1 スポットの酸化 Pu 粒子を幾何径に変換した結果を Table 2. にまとめて示す。

Table 1. から、エアースニファろ紙や、鼻孔に捕集される酸化 Pu の粒子径は、個数中央径（幾何中央径）で  $0.2 \sim 1 \mu\text{m}$ 、MMD で  $0.4 \sim 1.6 \mu\text{m}$ 、MMAD で  $1.6 \sim 6 \mu\text{m}$ 、 $\sigma_g$  は  $1.3 \sim 1.8$  間にあることがわかる。一方、Table 2. から靴底に付着した 1 粒の酸化 Pu（一旦、床に落下したもの）粒子の幾何径は  $3 \sim 10 \mu\text{m}$  あり、明らかにエアースニファろ紙に捕集される酸化 Pu よりも 1 衡大きいことがわかる。

粒子の沈降速度 V とその幾何径の関係は次式で求められる。

$$V = \frac{\rho \cdot g \cdot d^2 \cdot C_m}{18 \cdot \eta} \quad [\text{cm/sec}] \quad \dots \dots \dots (4)$$

ここに  $\rho$  = 粒子の密度 ( $\text{g/cm}^3$ )

$g$  = 重力の加速度 ( $\text{cm/sec}^2$ )

$d$  = 粒子の直径 (cm)

$C_m$  = Cunningham の補正項

$$C_m = 1 + 2 A \frac{\lambda}{d}$$

$$A = A_0 + B \cdot \exp\left(-\frac{C \cdot d}{2\lambda}\right)$$

$$A_0 = 1.25 \quad B = 0.44 \quad C = 1.10$$

$$\eta = \text{空気の粘性係数} = 1.828 \times 10^{-4}$$

( $\text{g/cm} \cdot \text{sec}$ ) (23°C, 1 気圧)

$\lambda$  = 空気分子の平均自由行程

$$= 6.81 \times 10^{-6} \text{ cm} (23^\circ\text{C}, 1 \text{ 気圧})$$

(4)式から、粒子径  $1 \mu\text{m}$  酸化 Pu の沈降速度を求めると  $0.04 \text{ cm/sec}$  となり、粒子径が  $10 \mu\text{m}$  の酸化 Pu の沈降速度は  $4 \text{ cm/sec}$  となる。

一方、作業環境中の空気の流速は  $0.1 \text{ m} \sim 1 \text{ m/sec}$  である。したがって幾何径が  $1 \mu\text{m}$  の酸化 Pu 粒子は、水平距離  $20 \text{ m}$  の移動に対し  $0.8 \text{ cm}$  程度の沈降を生ずるのみで  $20 \text{ m}$  下流のエアースニファに捕集されることが説明できる。

一方、粒子の幾何径が  $10 \mu\text{m}$  になると、水平移動  $20 \text{ m}$  に対して  $80 \text{ cm}$  沈降するので、この様な粒子は床に沈降し、スミアや、靴底に捕集されることになる。

Table 1. Particle size of plutonium aerosol obtained from working environment

Sampling method		Chemical form assumed	Count median diameter (CMD) ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_g$	Mass median diameter (MMD) ( $\mu\text{m}$ )	Density assumed	Mass median aerodynamic diameter(MMAD) ( $\mu\text{m}$ )
Air sniffer	(1)*	Oxide	0.39	1.48	0.62	11.46	2.1
	(2)	Oxide	0.68	1.59	1.30	11.46	4.4
	(3)**	Oxide	0.63	1.45	0.96	11.46	3.3
	(4)***	Oxide	0.59	1.67	1.30	11.46	4.4
	(5)	Oxide	0.46	1.54	0.80	11.46	2.7
	(6)	Oxide	0.84	1.56	1.52	11.46	5.2
	(7)	Oxide	0.64	1.53	1.1	11.46	3.7
Nose swab	(1)*	Oxide	0.64	1.34	0.83	11.46	2.8
	(2)**	Oxide	0.27	1.52	0.46	11.46	1.6
	(3)	Oxide	0.49	1.78	1.35	11.46	4.6
	(4)	Oxide	0.66	1.43	0.97	11.46	3.3
Personal sampler	(1)***	Oxide	0.96	1.47	1.50	11.46	5.1

Table 2. Particle size of a plutonium obtained from working environment

Sample		Chemical form assumed	Activity (dpm)	Geometrical diameter ( $\mu\text{m}$ )
Shoes	1	Oxide	500	8.8
	2	Oxide	260	7.1
	3	Oxide	260	7.1
	4	Oxide	720	10
	5	Oxide	21	3.1
	6	Oxide	500	8.8
Surgical glove	1	Oxide	100	5.2
	2	Oxide	120	5.5
White robe	1	Oxide	60	4.4

参考として Rocky Flats<sup>5)</sup>, Los Alamos<sup>6)</sup>, Hanford<sup>8)</sup> の Pu 取扱施設において, A R G 法を用いて測定した Pu の粒子径を Table 3. にまとめて示す。

酸化 Pu について比較すると, Rocky Flats における測定例は, M M D が  $0.33 \sim 1.72 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_g$  が  $1.77 \sim 2.46$  である。一方, 今回の測定例は, M M D が  $0.4 \sim 1.6 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_g$  は  $1.3 \sim 1.8$  であり, 両者の M M D は良く一致している。幾何標準偏差は, Rocky Flats が大きく, 粒度分布の分散の幅が大きいことを示している。

Table 3. から, Pu カーバイドや, 硝酸 Pu は, 酸化 Pu に比べ粒子径の小さいことがわかる。溶融 Pu のエーロゾルは, さらに小さく, Ettinger<sup>12)</sup> らは M M D が  $0.05 \sim 0.13$ ,  $\sigma_g$  が  $1.2 \sim 1.8$  と報告している。

Table 3. Plutonium particle size from plutonium fabrication facility

Facility	Operation	Chemical form assumed	MMD ( $\mu\text{m}$ )	CMD ( $\mu\text{m}$ )	$\sigma_g$
Rocky Flats	Oxide crushing Metal breakout Oxide reduction	$\text{PuO}_2$	0.33 ~ 1.72 (Average : 0.88)	0.06 ~ 0.34 (Average : 0.21)	1.77 ~ 2.46 (Average : 2.02)
	Glove failure	Pu metal	4.1	0.45	2.36
	Leaking polyethylene bag	oxidized Pu metal	1.2	0.39	1.84
Los Alamos Scientific Laboratory	Metal preparation area	Nitrate	0.36 ~ 0.65	0.14 ~ 0.35	1.4 ~ 1.8
	Metal fabrication area (dath operation)	—	0.14 ~ 0.41	0.13 ~ 0.25	1.4 ~ 1.6
Hanford Laboratory	In room air	Pu carbide	0.50 ~ 0.80	0.21 ~ 0.48	1.4 ~ 1.8
	In room air	Pu oxide	0.2 ~ 4.2	0.05 ~ 0.10	1.8 ~ 3.0

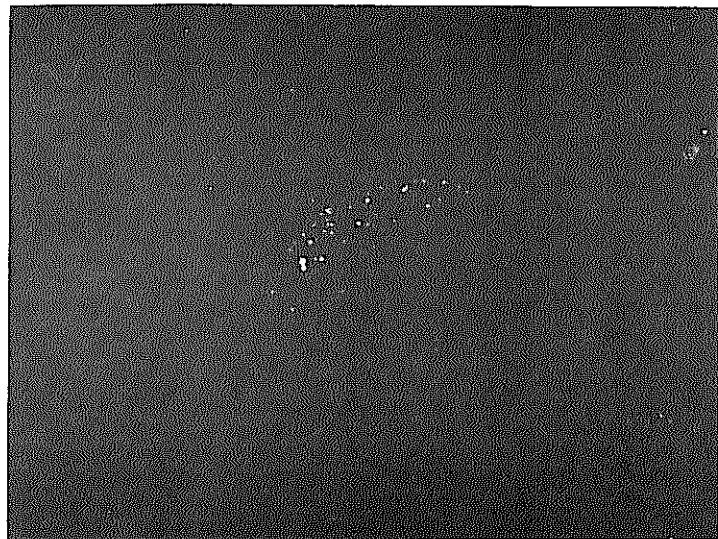
#### 4. Pu の性状把握

##### 4-1 硝酸Puと酸化Puによる空気汚染の比較

硝酸Pu取扱中に発生した空気汚染時に採取した鼻スミアろ紙のZnS(Ag)ARG写真をPhoto. 13の(a)に、MOX Pu取扱中に発生した空気汚染時に採取した鼻スミアろ紙のZnS(Ag)ARG写真をPhoto. 13の(b)に示す。また、硝酸Pu取扱中に発生した空気汚染時に採取したエースニファろ紙のZnS(Ag)ARG写真をPhoto. 14(a)に、MOX取扱中に発生した空気汚染時に採取した個人ダストサンプラーろ紙のZnS(Ag)ARG写真をPhoto. 14の(b)に示す。Photo. 13やPhoto. 14から、定性的に明らかに硝酸Puのエーロゾルの粒子径が酸化Puのエーロゾル粒子径に比べて小さいことがわかる。Photo. 15の(a)はPhoto. 14の(a)の、またPhoto. 15の(b)はPhoto. 14の(b)の試料の原子核乾板によるARG写真である。Photo. 15の(b)においては、個々の粒子は $\alpha$ 線スターとして識別できる。一方、Photo. 15の(a)においては、個々の粒子は $\alpha$ 線スターを形成せず $\alpha$ 線の飛跡写真から個々の粒子の放射能を求めるることは難しくARG法によって粒子径を求めることができない。Photo. 15の(a)の密着時間は20時間であり、この時間内では $\alpha$ 線スターを形成していない。個々の粒子は1崩壊しかしていないとの前提で硝酸Puの粒子径を求めるとき幾何径は0.2 $\mu\text{m}$ という値になる。

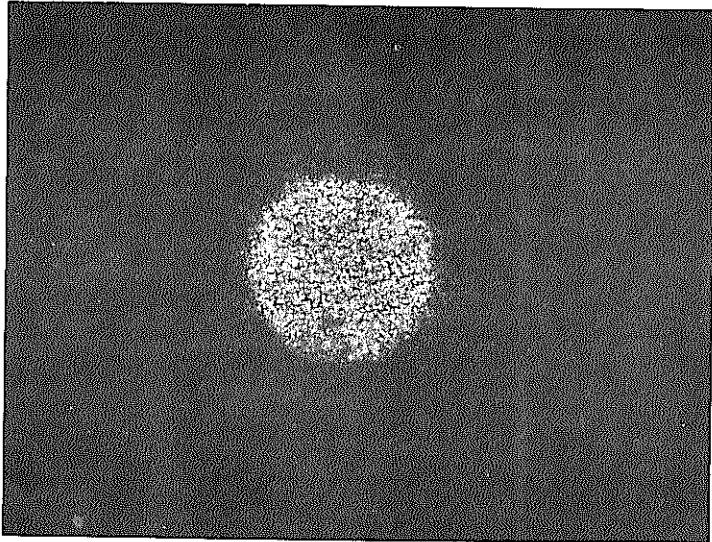


(a)  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  aerosol (5.4 pCi)

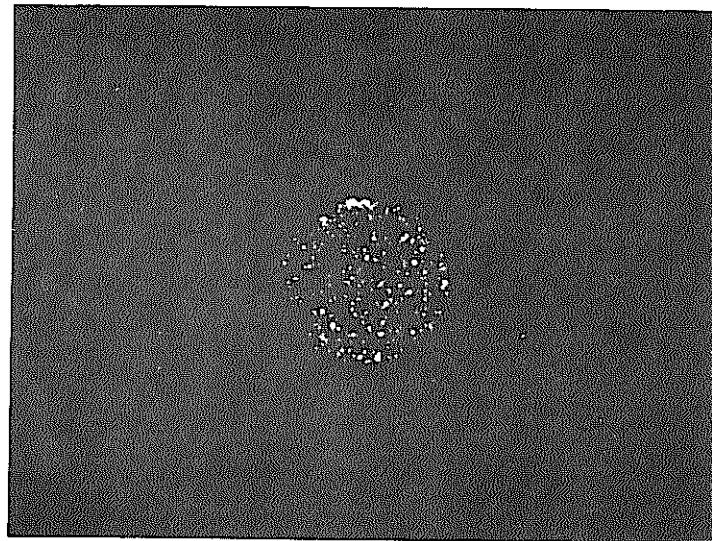


(b)  $\text{PuO}_2$  aerosol (4.3 pCi)

Photo. 13 ZnS(Ag) autoradiograph of nose swab sample

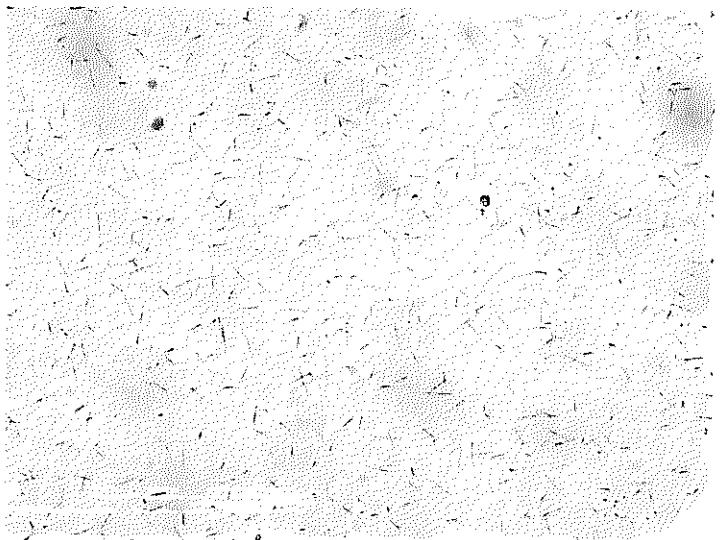


(a)  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  aerosol ( $3.4 \times 10^4$  pCi)

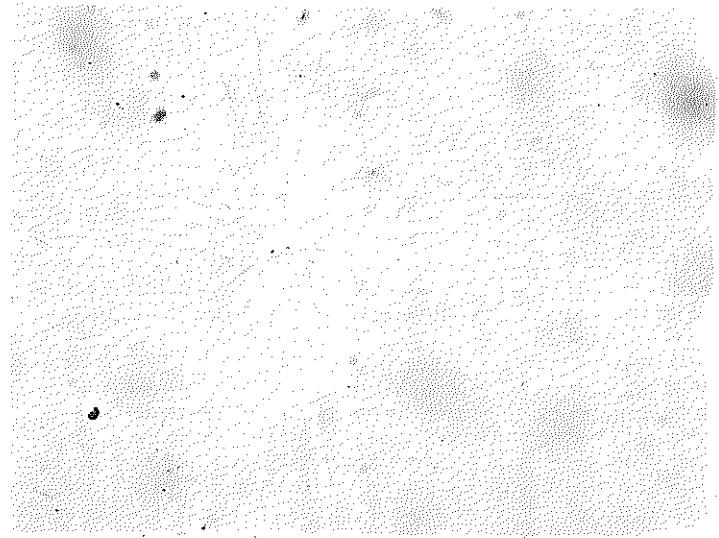


(b)  $\text{PuO}_2$  aerosol ( $6.8 \times 10^2$  pCi)

Photo. 14 ZnS(Ag) autoradiograph of air sniffa paper and personal sampler paper



(a)  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  aerosol



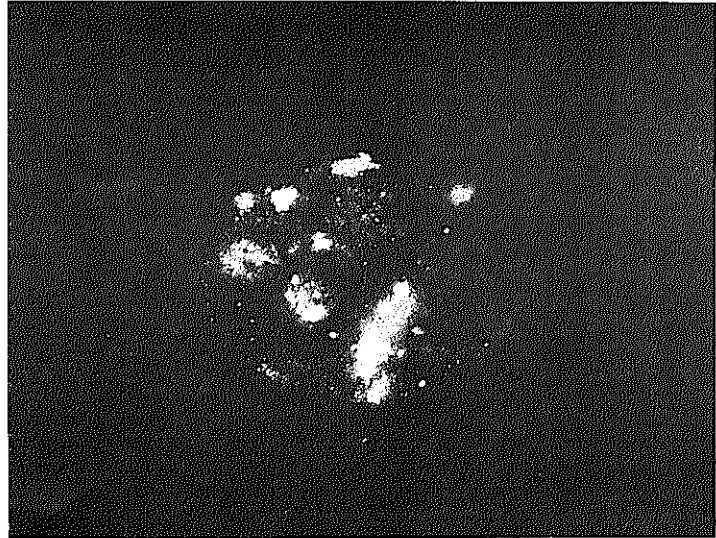
(b)  $\text{PuO}_2$  aerosol

Photo. 15 Autoradiograph of  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  aerosol and  $\text{PuO}_2$  aerosol

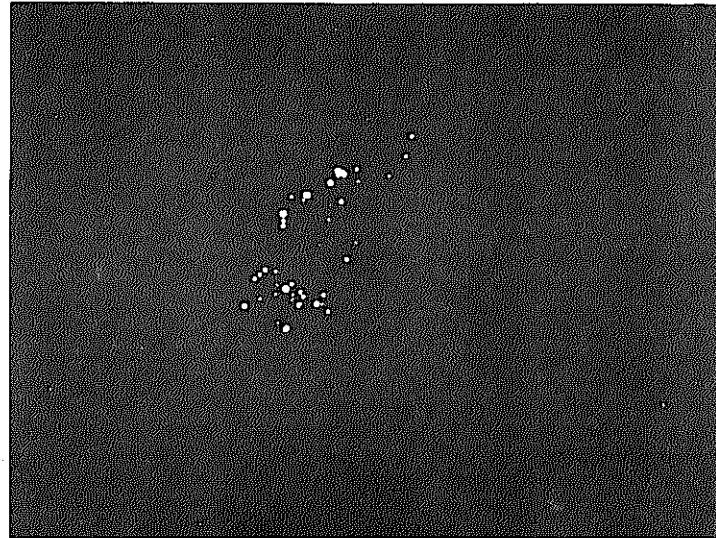
#### 4-2 硝酸Puと酸化Puによるカバーオールおよびチオックス汚染の比較

Photo.16の(a)は硝酸Pu取扱中に生じたカバーオール汚染のZnS(Ag) A R G写真, Photo.16(b)はMOX取扱中に生じたカバーオール汚染のA R G写真である。写真から一見して性状の違いがわかる。硝酸Puの場合にも、酸化Puに見られる様な大きな白いスポットを部分的に認めることが出来るが、白い細かい点の部分を原子核乾板A R Gの写真で見ると(1)で述べたと同様に $\alpha$ 線スターを形成せず、硝酸Puに特有の像を形成する。一方、酸化Puの場合には硝酸Puに見られる細かい白い点は現われない。

Photo. 17(a)は、硝酸Pu取扱中に生じたチオックス汚染のZnS(Ag) A R G写真, (b)はMOX Pu取扱中に生じたチオックス汚染のA R G写真である。(2)のカバーオールと同様に、硝酸Puの場合には白い細かな点がなく、両者の違いがわかる。



(a)  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  aerosol (6,500 pCi)

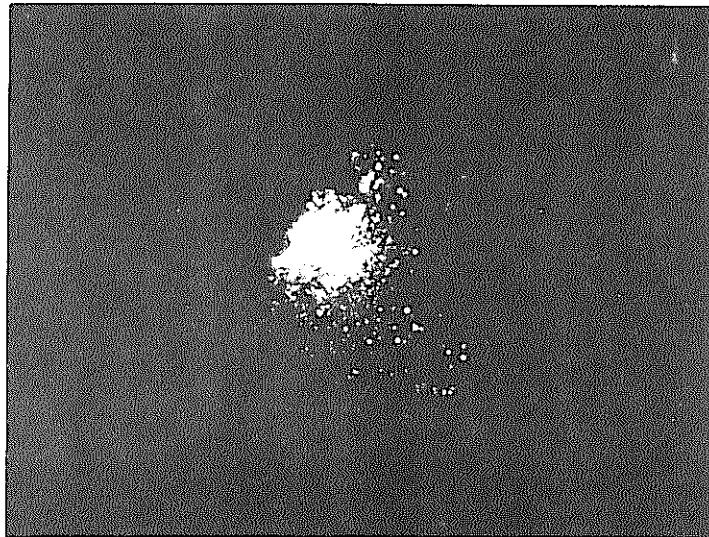


(b)  $\text{PuO}_2$  aerosol (210 pCi)

Photo. 16 ZnS(Ag) autoradiograph of overalls



(a)  $\text{Pu}(\text{NO}_3)_4$  aerosol



(b)  $\text{PuO}_2$  powder

Photo. 17 ZnS(Ag) autoradiograph of surgical globe

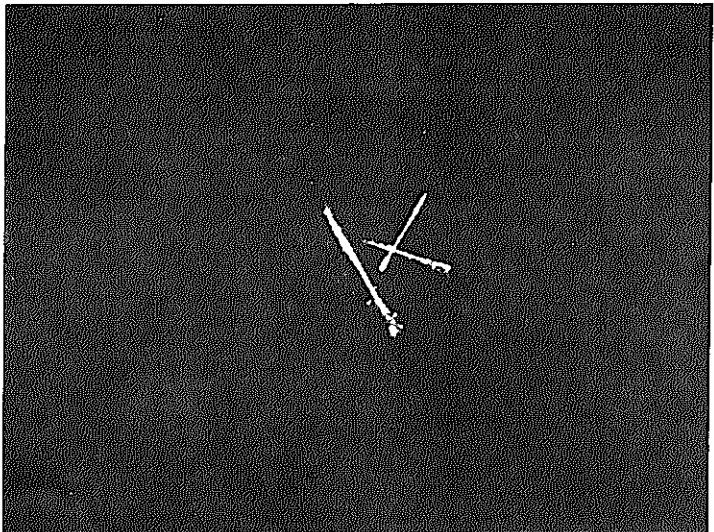
#### 4 - 3 その他の試料

Photo. 18(a)は、硝酸Pu取扱いグローブボックスのビニールバッグを切断した後のハサミをスマアしたろ紙のZnS(Ag)ARG写真、Photo. 18(b)は、MOX取扱いグローブボックスの一次フィルター交換作業時、床のスマアによって検出された汚染のZnS(Ag)ARG写真である。

Photo. 19は硝酸Pu取扱フードをスマアしたろ紙のZnS(Ag)ARGの写真である。

Photo. 20は、湿式系グローブボックス内の機器の徹去作業中、指先を刺傷した際、綿手袋に付着した血液の原子核乾板を用いたARG写真である。血液中にPuが溶解していること、および一部分粒子状のPuが存在している様子が写真から判読できる。

1節から3節に述べた事例から、硝酸Puの場合には、部分的には酸化Puに現われるスポットが存在するが、必ず白い細かな点が数多く現われるので酸化Pu系の汚染と区別することが出来る。ZnS(Ag) ARGの写真で判別がつきにくい場合には、原子核乾板を用いてARG写真を撮ることによって、1節に述べた像の現われ方の違いから硝酸Puと酸化Pu系の汚染の区別をつけるための情報を得ることが出来る。



(a) smear sample of scissors



(b) flower <sup>O</sup> smear

Photo. 18 ZnS(Ag) autoradiograph of smear sample

SN841-82-04



Photo. 19 ZnS(Ag) autoradiograph of smear paper

SN841-82-04

- 32 -

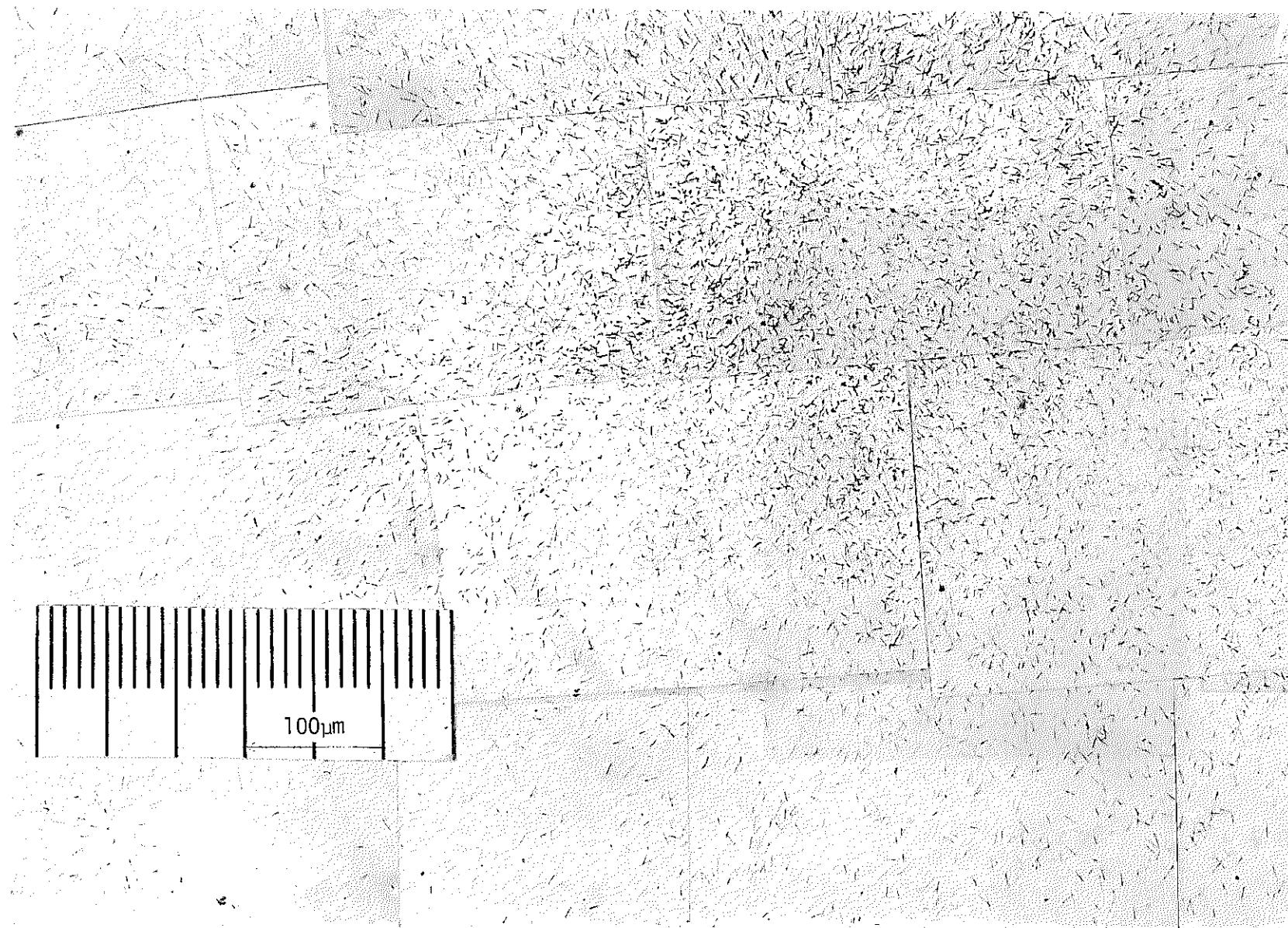


Photo. 20 ZnS(Ag) autoradiograph of Pu in blood (190 pCi, Exposure time 370 min)

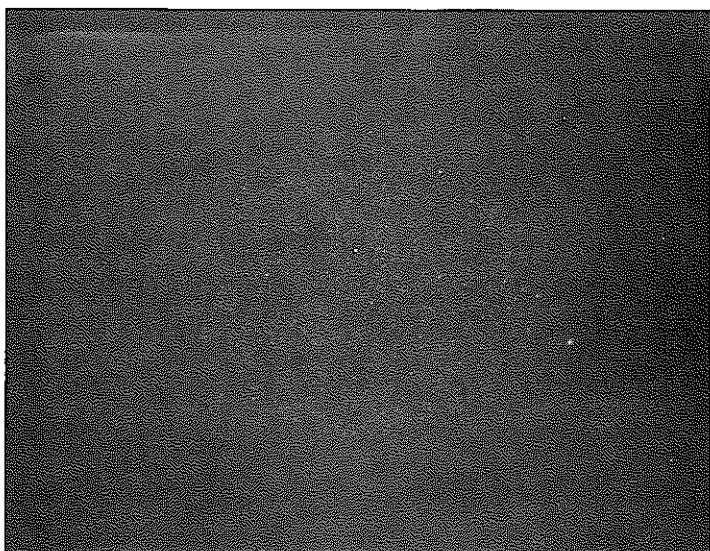
×200

## 5. Pu エーロゾルと Rn, Tn 娘核種の弁別

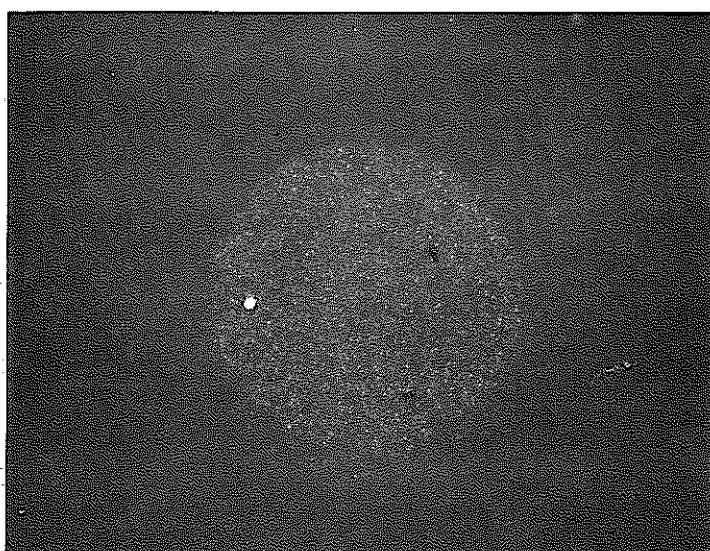
エアースニファにより、管理区域内空気を  $60 \ell/\text{min}$  の流量率でサンプリングした直後、 $\alpha$  放射能を測定すると約 300 dpm の放射能が検出される。これは主に大気中の Rn の娘核種の RaA, RaB, RaC のエーロゾルがろ紙に捕集されたものである。このろ紙を取りはずした直後に ZnS (Ag) A R G 写真を撮ると Photo. 21 の(a)に示す微細な点からなる像が得られる。この細かい小さいスポットは密着時間を長くしても、Rn 娘核種の半減期が数分～数時間と短いこと、およびエーロゾルそのものの粒子径が小さいことから大きな点像には成長しない。一方、酸化 Pu エーロゾルは 3 章に述べたように、MMD が  $0.5 \sim 1.6 \mu\text{m}$  あるため、ろ紙上に酸化 Pu が捕集されている場合には、密着時間の増加と共にスポット径は大きくなる。また、硝酸 Pu が捕集されている場合で、密着時間が短い時には Rn, Tn 娘核種と同様の細かな点像を示すが、密着時間の増加と共に白さを増し、最後には全面が白くなるので、密着時間の違う二種類の写真を撮れば Rn, Tn の娘核種による像か硝酸 Pu 汚染による像かの判断ができる。

$\alpha$  放射能測定や、 $\alpha$  線スペクトロメトリでは、Rn, Tn の娘核種が減衰した後でないと Pu の汚染を確認することは困難であるが、ZnS (Ag) A R G 法によれば、酸化 Pu および硝酸 Pu のいずれの場合にも、取りはずし直後の Rn, Tn 娘核種が存在するろ紙について Rn, Tn の娘核種か、Pu 汚染かの判別を行うことが可能である。

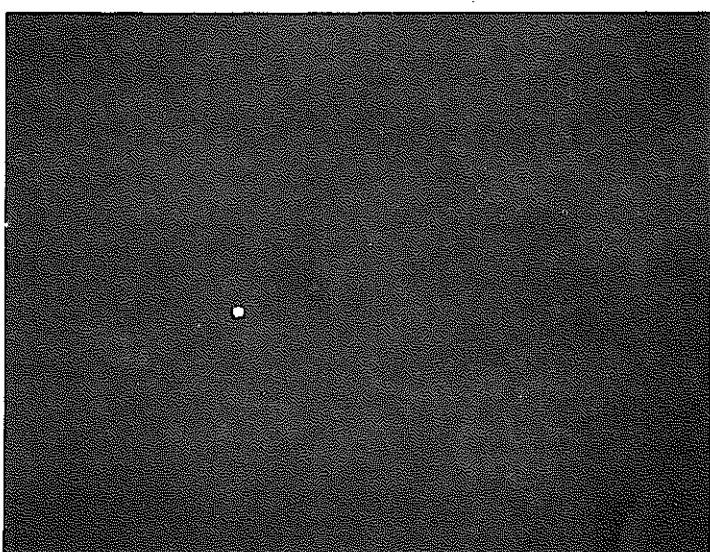
Photo. 21 (b)には、Rn, Tn 娘核種中に 10 dpm ( $2.5 \mu\text{m}$ ) の 1 粒の酸化 Pu 粒子が捕集されている例を示す。このろ紙を 3 日後に再度写真を撮ると Photo. 21 (c)に示すように Rn, Tn 娘核種の像は消え、酸化 Pu の像のみが残る。



(a) Rn-daughter aerosol



(b) Rn-daughter aerosol + PuO<sub>2</sub>



(c) After decay of Rn-daughter  
(PuO<sub>2</sub> only)

Photo. 21 ZnS(Ag) autoradiograph of Rn-daughter aerosol and PuO<sub>2</sub> on HE-40T filter paper

## 6. 空気サンプリング試料から得られた Pu 粒度分布 (M M A D) の内部被曝線量評価への適応

I C R P Publication 30 の「呼吸器モデル」において、酸化 Pu はクラス Y に該当し、クラス Y の場合、吸入した酸化 Pu の粒子径 (A M A D) と、各器官または組織の預託線量当量は Fig. 4 に示すようになる<sup>11)</sup>。

Fig. 4 からわかるように、預託線量当量は粒子径が小さくなると大きくなる。

今回、作業環境中からサンプリングした酸化 Pu の粒子径 (M M A D) は  $1.6 \sim 6 \mu\text{m}$  であった。したがって、線量評価時には酸化 Pu の場合、粒子径 (A M A D) を  $1 \mu\text{m}$  として線量を算定すれば過大評価側となり、摂取量が年摂取限度を越えないような場合には、安全側の評価と言える。摂取量が年摂取限度を越える恐れのある場合には、粒子径を正確に求め、その粒子径から沈着量を求め、線量算定を行う必要がある。

硝酸 Pu は、クラス W に該当し、クラス W の場合には吸入した硝酸 Pu の粒子の粒子径と各器管または組織の預託線量当量の関係は Fig. 5 に示すようになる。Fig. 5 からわかるように、肺を除く預託線量当量は粒子径に関係なくほぼ一定である。

また、年摂取限度は、骨の非確率的影響で決定されるので骨についての預託線量当量を求めておけば良い。

一方、作業環境から得られた硝酸 Pu エーロゾルの粒子径は幾何径で  $0.2 \mu\text{m}$  以下のものもあるが、預託線量当量はクラス W の場合、肺を除いてはクラス Y のように粒子径には大きく依存しないので、クラス W で A M A D が  $0.2 \mu\text{m}$  から  $10 \mu\text{m}$  の範囲にある場合には、粒子径は  $1 \mu\text{m}$  として評価しておけば問題はないと言える。

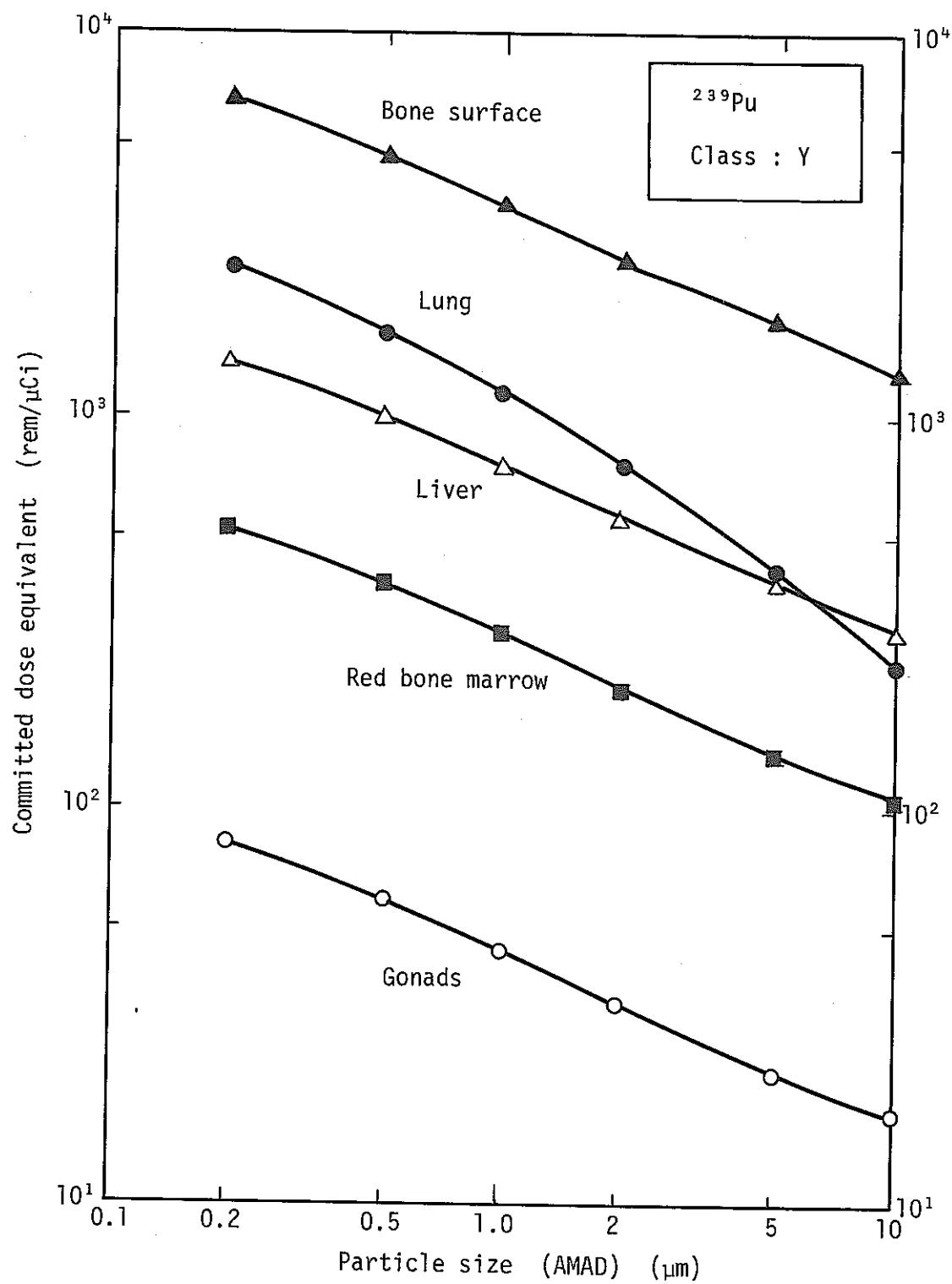


Fig. 4 Dependence of particle size to committed dose equivalent

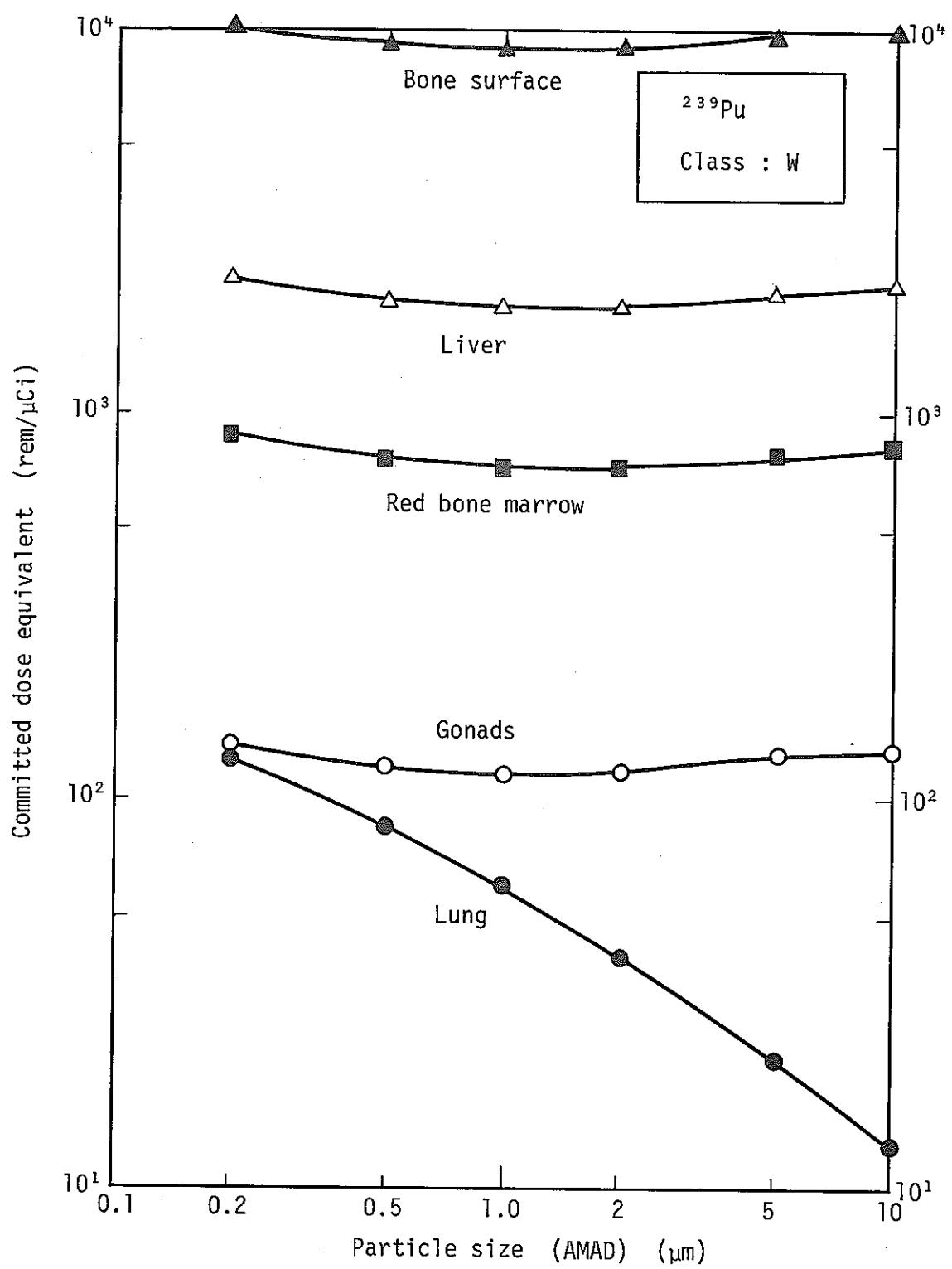


Fig. 5 Dependence of particle size to committed dose equivalent

## 7. 結 言

プルトニウム取扱施設の作業環境から得られた試料をもとに、Puエーロゾルの粒子径をオートラジオグラフ法を用いて求めた。また、オートラジオグラフから、Puの性状把握の可能性について調べた。得られた結論は以下の通りである。

- (1) エアースニファろ紙、鼻スミアろ紙に捕集した酸化Puエーロゾルの粒子径 (M M A D) は  $1.6 \sim 6 \mu\text{m}$ ,  $\sigma_g$  は  $1.3 \sim 1.8$  の間にあった。
- (2) エアースニファろ紙に捕集した硝酸Puエーロゾルの粒子の幾可径は  $0.2 \mu\text{m}$  以下のものも存在する。
- (3) ZnS(Ag)オートラジオグラフから、硝酸Puと酸化Puはそれぞれ特徴ある像を示し、写真から両者の判別が可能である。原子核乾板を用いるオートラジオグラフ法を併用すればより判別は容易となる。
- (4) ZnS(Ag)オートラジオグラフにより、Rn, Tn娘核種とPu汚染の判別を、取りはずし直後のエアースニファろ紙を用いて行なうことができ、Pu空気汚染の早期発見に有効である。
- (5) 酸化Puの場合、粒子径 (A M A D) を  $1 \mu\text{m}$  として内部被曝線量を計算しておけば過大評価側となり、摂取量が年摂取量を越えないような場合には、安全側の評価といえる。

最後に、粒度分布解析手順に関し、終始有益な助言を頂いた日本原子力研究所・放射線管理第一課・課長代理松井浩氏に感謝の意を表します。

## 参 考 文 献

- 1) ICRP Publication 30, Limits for intakes of radionuclides by workers, Pergamon Press (1978).
- 2) Morton Lippmann, S.M., A compact cascade impactor for field survey sampling, Ind. Hyg. Jurn. 348 Oct. (1961).
- 3) 大畠勉, 松井浩 他, 粒度弁別サンプラーに関する調査, JAERI-memo-5314 (1973).
- 4) J.A. LEARY, Particle-size determination in radioactive aerosols by autoradiography, Ana. chemi. Vol. 23, No.6 (1951).
- 5) R.A. KIRCHNER, A plutonium particle size study in production area at Rocky Flats, American Hygiene Association Jour. 396 (1966).
- 6) W.D. Moss et. al., Particle size studies on plutonium aerosols, Health Physics Vol.5, 212, (1961).
- 7) B.V. ANDERSON, Plutonium aerosol particle size distribution in room air, Health Physics, Vol. 10, 899 (1964).
- 8) R.F. HOUNAM, The removal of particle size from the NP compartment of the respiratory tract by nose blowing and swabbing, Health Physics, Vol. 28, 743, (1975).
- 9) G. BATALLER, Etude granulometrique des particules d'une enceinte de fonderie pendant la fabrication d'alliage U-Pu, CEA-R2558 (1964).
- 10) 斎藤節子, 小泉勝三 他, ZnS(Ag) 増感オートラジオグラフ法による $\alpha$ 放射性粒子の粒子径測定, N841-78-47 (1978).
- 11) 無機化学全書 XVII-2 プルトニウム, P.116, P.208, 丸善.
- 12) Ettinger, H.J., W.D. Moss and H. Busey, Nucl. Sci. Eng., 30, 7, (1967).
- 13) 小泉勝三, 石黒秀治 他, ICRP Publication 30に基づく $^{239}\text{Pu}$ による預託線量の計算, 保健物理, 16, 51, (1981).