



## 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

## 講演資料集

講演資料等の著作権は各講演者に帰属します。

# 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 プログラム

- 9:30 ・開会挨拶 阪大院理・篠原 厚
- 9:40 ・セッション1「生体影響」（座長：高宮幸一）  
依頼講演「放射性微粒子の吸入による内部被ばく～線量評価法の構築と今後の課題～」真辺健太郎（JAEA）
- 10:40 ・セッション2「生体影響、環境動態」（座長：箕輪はるか）  
「不溶性セシウム粒子による細胞影響解析」鈴木正敏（東北大）  
「放射性不溶性粒子の吸入による生物影響—動物実験より—」山田 裕（QST）  
「太田川において放射性セシウム粒子が水生昆虫の放射性セシウム濃度に与える影響（仮）」三浦輝（電中研）  
「Comparison of aerosol and soil insoluble radiocesium particles, and their distribution and fate/エアロゾルと土壌不溶性放射性粒子の比較、およびそれらの分布と運命」Tang Peng（茨城大）
- 12:00 <ランチブレイク>
- 13:00 ・セッション3「放射性微粒子の分析(1) 性状分析」（座長：佐藤志彦）  
「1号機由来放射性粒子とプルーム軌跡の探索」箕輪はるか（慈恵医大）\*  
「不溶性放射性粒子の蛍光による検出実験」北 和之（茨城大）  
「ICP-MSを用いた放射性粒子の多元素定量分析」横山大輝（筑波大）  
「放射性微粒子に含まれるプルトニウム同位体分析（仮）」五十嵐淳哉（阪大）
- 14:30 ・セッション4「放射性微粒子の分析(2) 模擬実験」（座長：二宮和彦）  
「KPFM法を用いた放射性Cs微粒子の帯電状態の解明」新家雪実（慶応大）  
「不溶性放射性微粒子の模擬生成実験」稲垣 誠（京大）\*  
「放射性溶液エアロゾルの模擬生成による生成過程の解明」高宮幸一（京大）\*  
「放射性Cs含有微粒子の物理化学的性質とそれに基づく模擬ガラスの合成」奥村大河（東大）\*  
「環境試料中の放射性Cs含有微粒子定量法の提案」小暮敏博（東大）
- 16:10 ・セッション5「英国連携セッション（オンデマンド）」（座長：五十嵐康人）  
「Investigating FDNPP Release Particulates Over Multiple Length-Scales」Peter G. Martin（University of Bristol）
- 16:30 ・セッション6「総合討論」（進行：篠原 厚）
- 16:50 ・閉会挨拶 京大複合研・五十嵐 康人

（講演時間 20 分：講演 15 分 + 討論 5 分）、\* 講演時間 15 分：講演 12 分 + 討論 3 分）

一部の講演については講演資料を掲載していません。

# 放射性微粒子の吸入による内部被ばく ～線量評価法の構築と今後の課題～

---

真辺 健太郎



国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構  
原子力基礎工学研究センター  
JAEA Nuclear Science and Engineering Center



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  
令和2年12月24日 オンライン

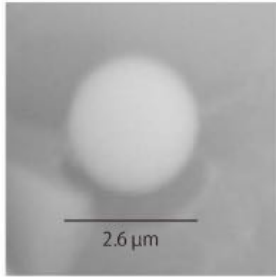
# 内容

---

- はじめに
- 通常の内被ばく線量評価法
- 放射性微粒子の吸入による被ばくの特徴
- 放射性微粒子用の線量評価法の構築
- 線量評価結果
- 今後の課題
- まとめ



# 放射性微粒子が発見と内部被ばく

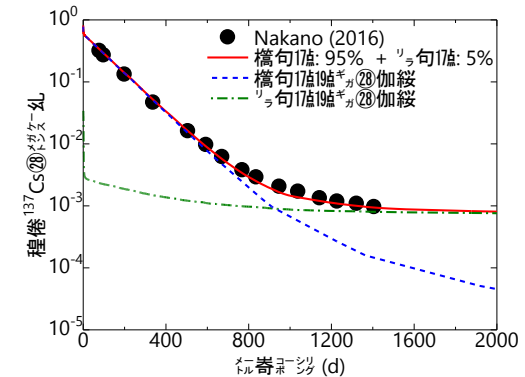


高い比放射能で放射性セシウムを含んだ  
放射性微粒子の発見

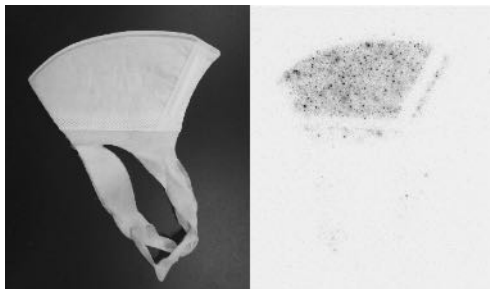
Adachi et al., Sci. Rep. (2013)

オンサイト作業者のWBC：長期保持成分  
放射性微粒子によるもの？

Nakano et al., Radiat. Prot. Dosim. (2016)



フィッティングは  
真辺が実施



福島住民が着用したマスクから

Higaki et al., Health Phys. (2020)

参考写真：Higaki et al., Health Phys. (2013)

1F近隣自治体の住家内にも

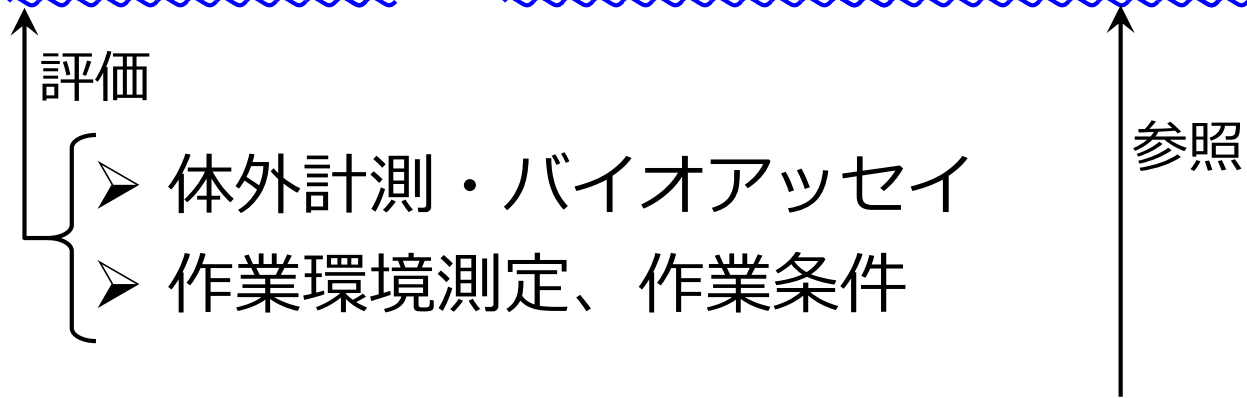
Yoshida et al., Sci. Rep. (2020)



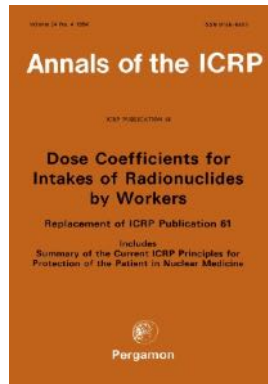
参考写真：Yoshida et al., JHPS51 (2018)

# 内部被ばく線量の評価

$$\text{摂取量 (Bq)} \times \text{実効線量係数 (Sv/Bq)} = \text{実効線量 (Sv)}$$



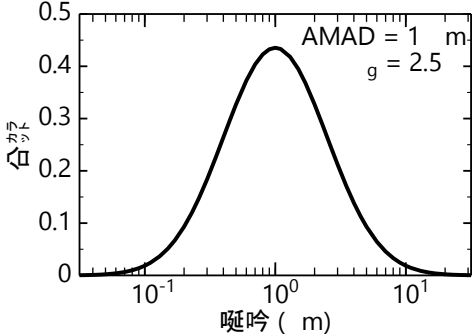
## ➤ 国際放射線防護委員会 (ICRP) のデータ



Nuclide	$t_{1/2}$	Type	Effective dose coefficients (Sv Bq <sup>-1</sup> )				
			$f_i$	Inhalation, $e_{inh}(50)$		Ingestion	
				1 $\mu$ m AMAD	5 $\mu$ m AMAD	$f_i$	$e_{ing}(50)$
Sr-85m	1.16h	F	0.300	3.1E-12	5.6E-12	0.300	6.1E-12
		S	0.010	4.5E-12	7.4E-12	0.010	6.1E-12
Sr-87m	2.80h	F	0.300	1.2E-11	2.2E-11	0.300	3.0E-11
		S	0.010	2.2E-11	3.5E-11	0.010	3.3E-11
Sr-89	50.5d	F	0.300	1.0E-09	1.4E-09	0.300	2.6E-09
		S	0.010	7.5E-09	5.6E-09	0.010	2.3E-09
Sr-90	29.1y	F	0.300	2.4E-08	3.0E-08	0.300	2.8E-08
		S	0.010	1.5E-07	7.7E-08	0.010	2.7E-09
Sr-91	9.50h	F	0.300	1.7E-10	2.9E-10	0.300	6.5E-10
		S	0.010	4.1E-10	5.7E-10	0.010	7.6E-10

放射性微粒子：既存の線量係数でよいのか？

# 線量評価で考慮すべき放射性微粒子の特徴

	一般的な放射性Csエアロゾル(Type F)	放射性エアロゾル Type S	放射性微粒子
化学的特性 (溶解性)	水に可溶 (速やかに血液に)	難溶性 (ゆっくり血液に)	非常に溶けにくい
物理的特性 (粒径)	対数正規分布 (幅広い分布)	 <p>環境中エアロゾルのICRP既定値</p>	μmオーダー
放射能の状態	無数のエアロゾル粒子に 極少量ずつ付着		高い比放射能 (Bq/個) 粒子数が少ない 粒子内部にも分布して 容易に拡散しない

線量評価上、何が問題なのか？

# 内容

---

- はじめに
- 通常の内被ばく線量評価法
- 放射性微粒子の吸入による被ばくの特徴
- 放射性微粒子用の線量評価法の構築
- 線量評価結果
- 今後の課題
- まとめ

# 実効線量係数 $e$ の計算

$$e = \sum_T w_T h_T$$

$T$ : 標的臓器  
 $w_T$ : 組織加重係数  
 $h_T$ : 等価線量係数 (Sv/Bq)

$$h_T = \sum_S \tilde{a}_S S_w(T \leftarrow S)$$

$S$ : 線源領域, 組織・臓器等の放射性核種の分布領域  
 $\tilde{a}_S$ : 1 Bq摂取時の $S$ での総壊変数 ( $\text{Bq}^{-1}$ )  
 $S_w(T \leftarrow S)$ :  $S$ 係数,  $S$ で1回壊変した時の $T$ の等価線量 (Sv)

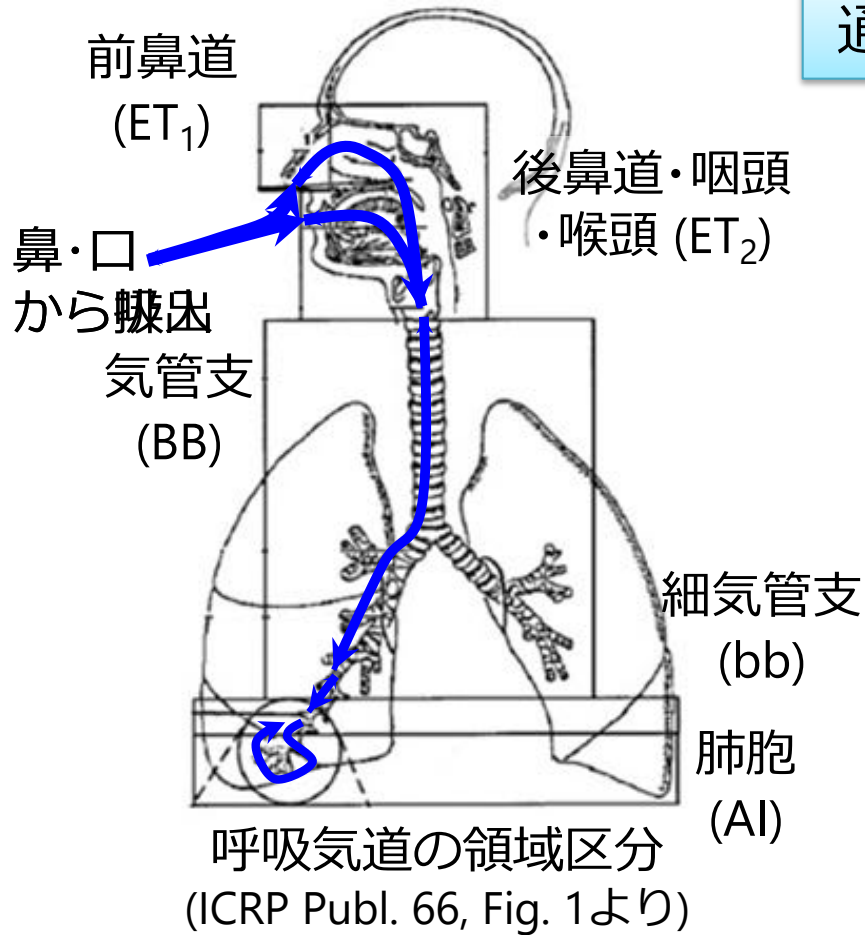
放射性核種の性状と無関係

- 放射性核種の壊変データ
- 人体モデルを用いたモンテカルロ計算

放射性核種の性状に依存

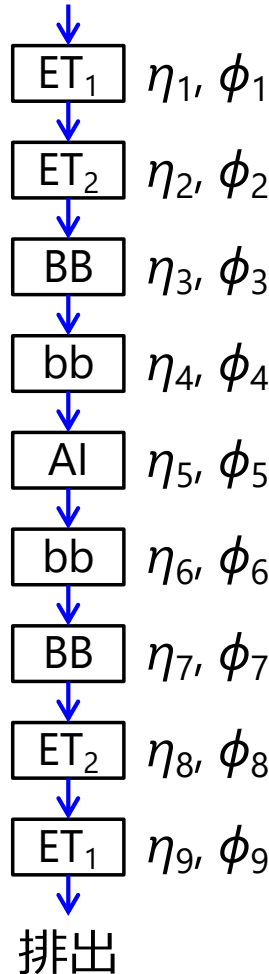
- 粒径: 呼吸気道のどこにどれだけ沈着するか
- 溶解性: 血液 (体内) にどれだけ移行するか

# 呼吸気道モデル



通過する各領域 = 捕集効率 $\eta$ のフィルタ

吸入  $\eta_0$  (呼吸気道に入らない確率)



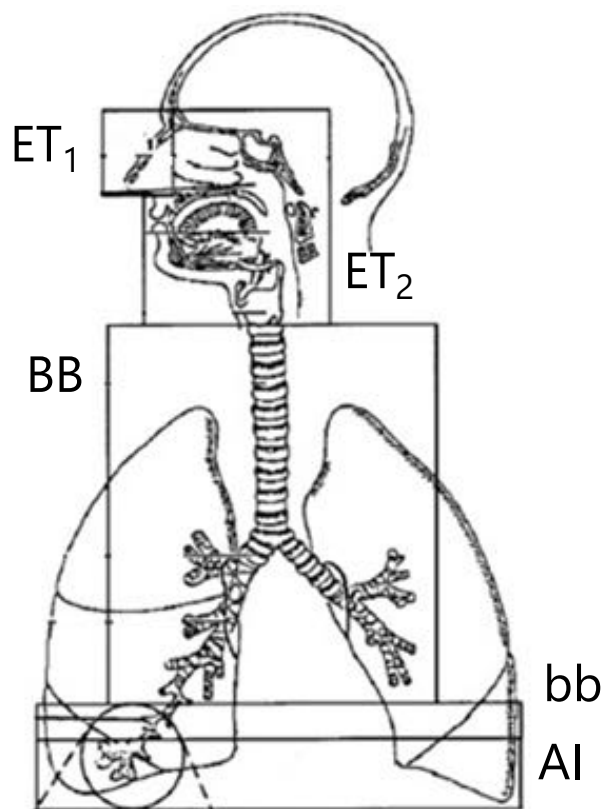
各段における沈着割合 $D_i$

$$D_i = \eta_i \phi_i \prod_{j=0}^{i-1} (1 - \eta_j)$$

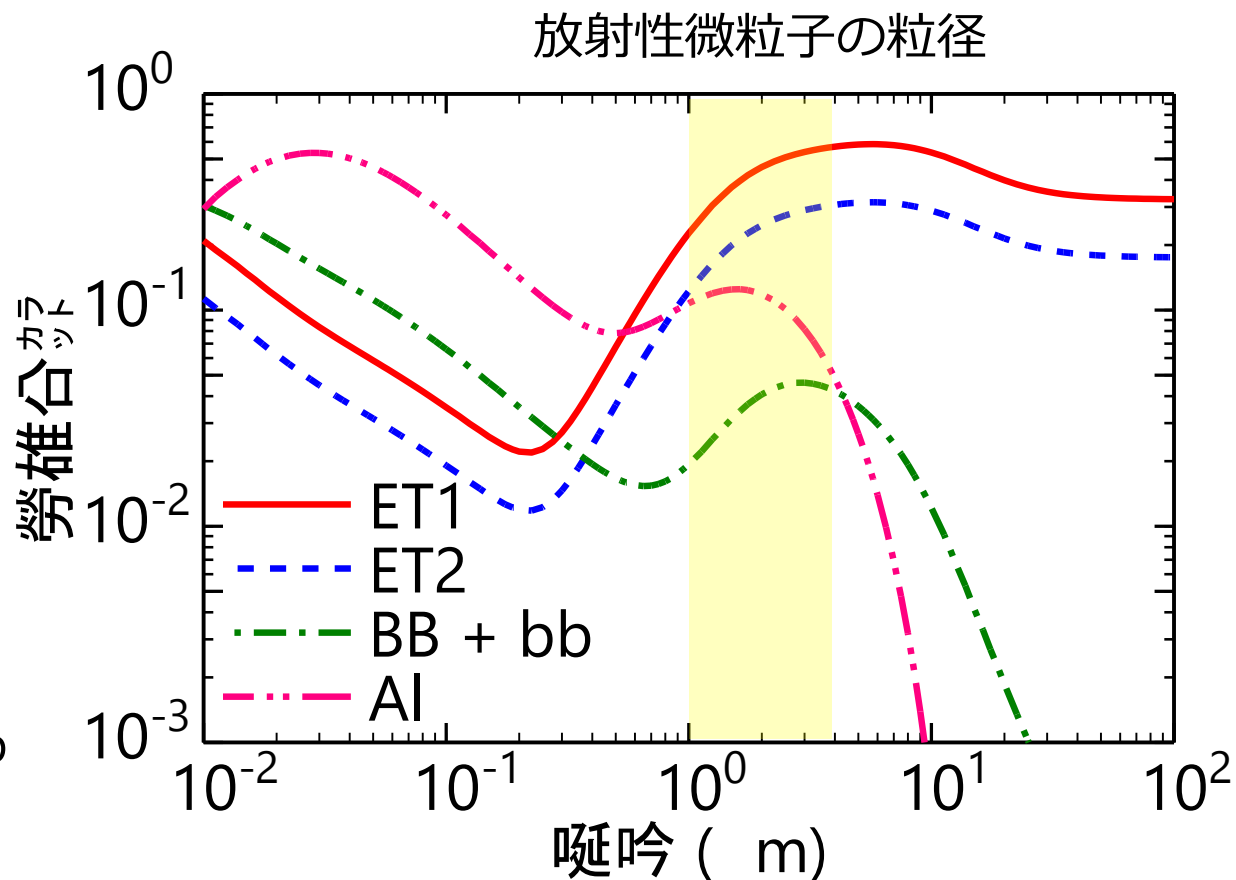
$\phi$ : 流量割合  
 (その領域に届く空気割合)

$\eta$ : エアロゾルの空気動力学・  
 熱力学的過程を考慮して計算  
 $\phi$ : 呼吸気道の解剖学的・  
 生理学的パラメータから計算

# 呼吸気道沈着割合



呼吸気道の領域区分  
(ICRP Publ. 66, Fig. 1より)

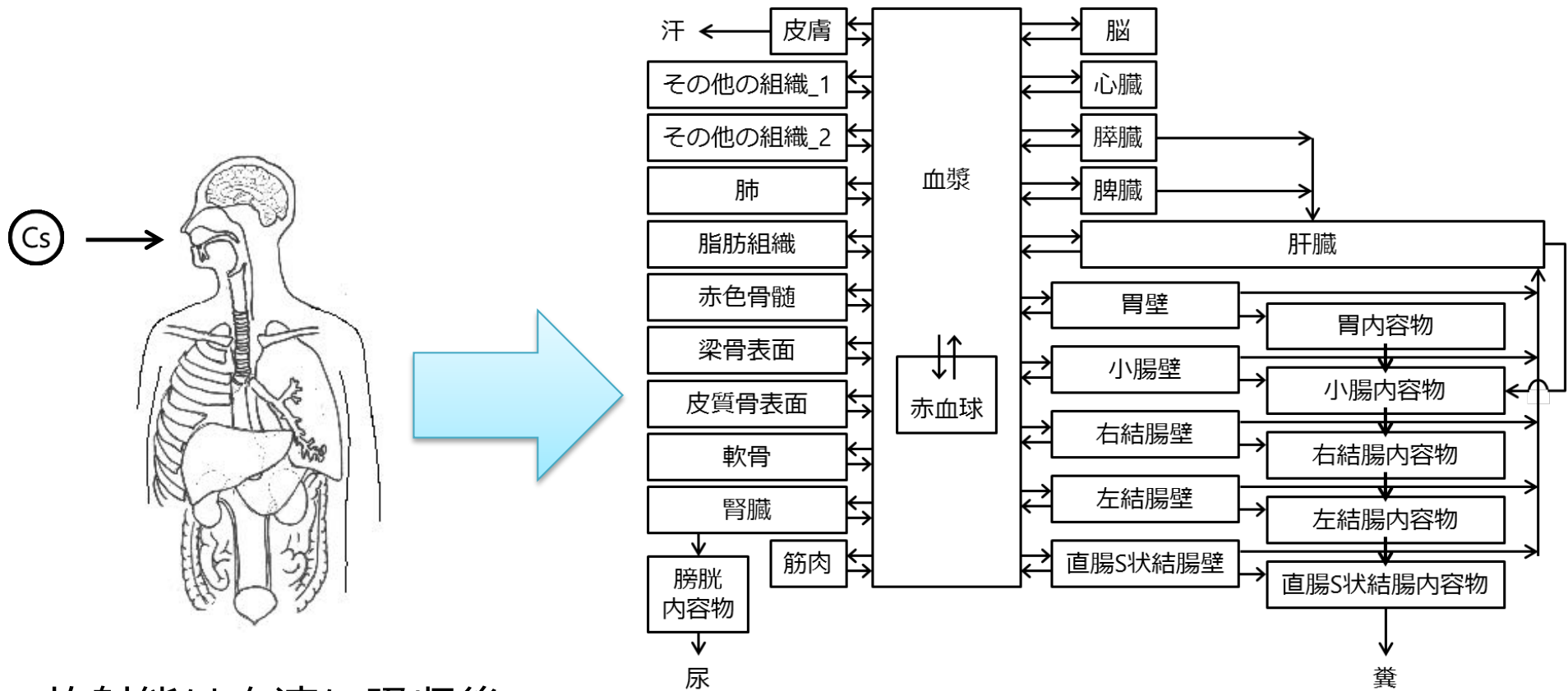


密度：2.0 g/cm<sup>3</sup>、形状係数：1 (球形)  
成人男性、鼻呼吸、軽作業時

## パラメータ

- 粒子：粒径、密度、形状
- 吸入した人：年齢、呼吸習慣、運動状態

# 血液吸収後の体内移行挙動



放射能は血液に吸収後  
各組織・臓器に拡散・移行

Csの体内動態モデル (ICRP Publ. 137より)

- 分布する組織・臓器
- 放射性核種の移行経路

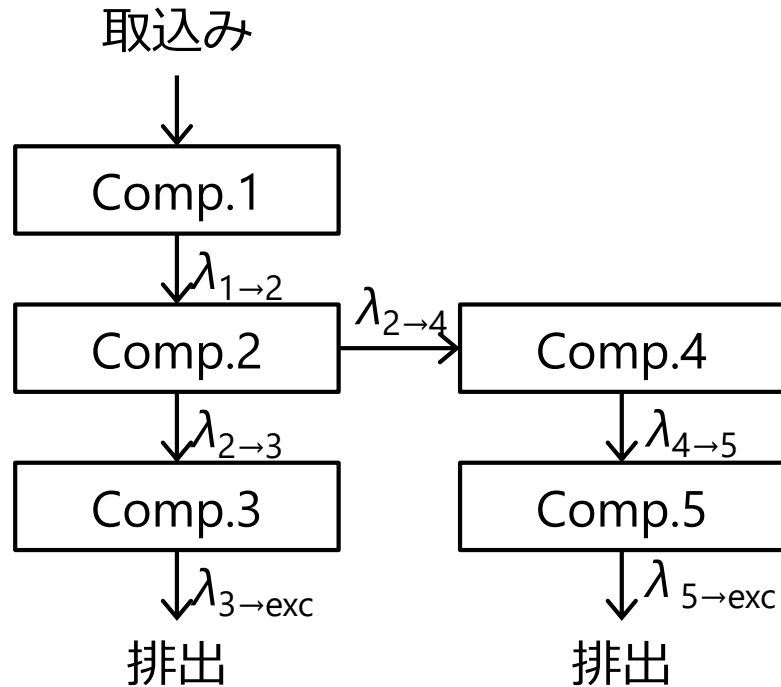
コンパートメント  
(箱) で表現

コンパートメントモデル



# 総壊変数 $\tilde{a}_S$ の計算

1. コンパートメントモデルを組む



( $\lambda$ : 移行係数)

2. 連立常微分方程式 (ODE) を立てる

$$\begin{cases} \frac{da_1(t)}{dt} = -\lambda_{1 \rightarrow 2} a_1(t) \\ \frac{da_2(t)}{dt} = -(\lambda_{2 \rightarrow 3} + \lambda_{2 \rightarrow 4})a_2(t) + \lambda_a a_1(t) \\ \frac{da_3(t)}{dt} = -\lambda_{3 \rightarrow \text{exc}} a_3(t) + \lambda_{2 \rightarrow 3} a_2(t) \\ \frac{da_4(t)}{dt} = -\lambda_{4 \rightarrow 5} a_4(t) + \lambda_{2 \rightarrow 4} a_2(t) \\ \frac{da_5(t)}{dt} = -\lambda_{5 \rightarrow \text{exc}} a_5(t) + \lambda_{4 \rightarrow 5} a_4(t) \end{cases}$$

( $a_i(t)$ : 時間 $t$ 経過時のComp. $i$ における放射能)

3. 数値解析的にODEを積分する

$$\tilde{a}_S = \int a_S(t) dt$$

通常の線量評価法は決定論的手法

# 内容

---

- はじめに
- 通常の内部被ばく線量評価法
- 放射性微粒子の吸入による被ばくの特徴
- 放射性微粒子用の線量評価法の構築
- 線量評価結果
- 今後の課題
- まとめ

# 放射性微粒子 of 吸入

## 放射性微粒子の特徴

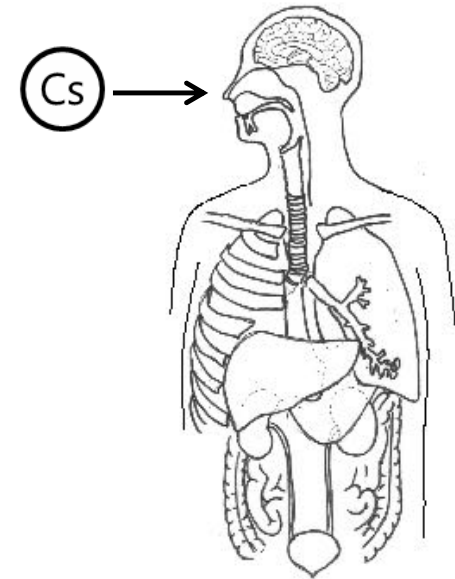
- 非常に溶けにくい  
⇒ 放射性核種が拡散せず粒子状のまま移行
- 粒子数が少ない

## 放射性微粒子を吸入すると...

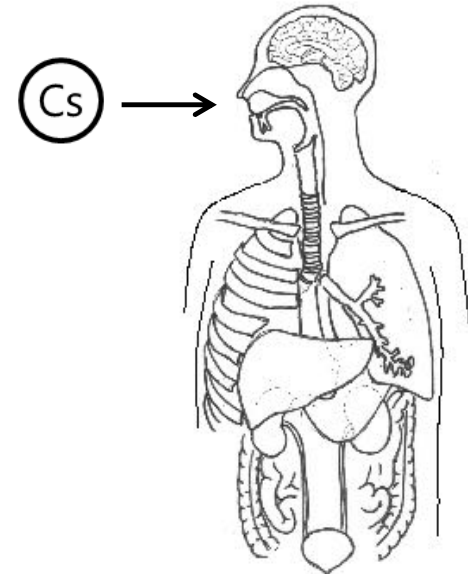
- 沈着する部位
  - ある場所から別の場所へ移行する  
タイミング（保持時間）
- ⇒ 粒子によって違う

- $\tilde{a}_s \cdot e$  は粒子の移行経路に依存
- 粒子の移行：確率論的挙動

通常の線量評価法(決定論的手法)は  
そのまま適用できない



例1  
ET<sub>1</sub>沈着  
→ 環境中



例2  
肺胞沈着  
→ 消化管  
→ 糞

# 放射性微粒子の体内移行経路

## 吸入された不溶性微粒子の体内動態<sup>\*1</sup>

<sup>\*1</sup>環境省, 微小粒子状物質健康影響  
評価検討会報告書 (2008)

- 細気管支より上部に沈着 ⇒ 粘膜輸送で消化管へ
  - 肺胞に沈着
    - 大部分 ⇒ マクロファージが貪食後、粘膜輸送で消化管へ
    - ごく一部 ⇒ 間質を経てリンパへ、粒子状のまま体内移行
- サブミクロンサイズの粒子：循環器系に影響？研究例多い

## その他、参考となる情報

- ラットへの $\mu\text{m}$ サイズ $\text{CeO}_2$ 粒子吸入試験<sup>\*2</sup>

肺残留率、肝臓・脾臓・腎臓・精巣・脳への移行割合
- ラットへのサブミクロンサイズ $\text{Eu}_2\text{O}_3$ 粒子吸入試験<sup>\*3</sup>

肺門リンパへの移行割合

<sup>\*2</sup>Geraets et al., Toxicol. Sci. (2012)

<sup>\*3</sup>Creutzenberg et al., J. Appl. Toxicol. (2016)

$\text{SiO}_2$ が母材の $\mu\text{m}$ サイズ粒子についてのデータはない

# 内容

---

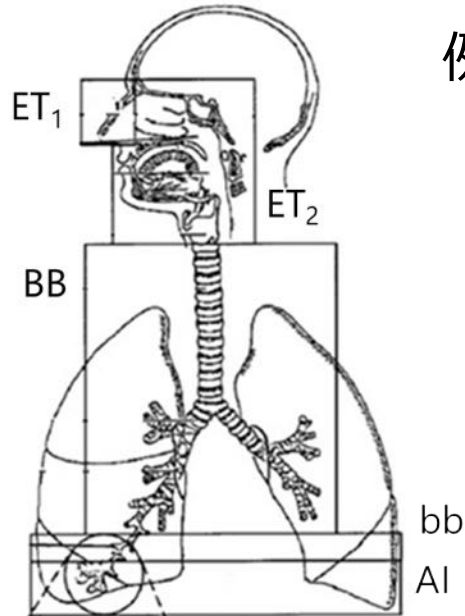
- はじめに
- 通常の内部被ばく線量評価法
- 放射性微粒子の吸入による被ばくの特徴
- **放射性微粒子用の線量評価法の構築**
- 線量評価結果
- 今後の課題
- まとめ

# 確率論的挙動のモデル化

粒子の移行挙動をモンテカルロ法(乱数)で決める

- ① 沈着部位：沈着割合
- ② 保持時間：生物学的半減期
- ③ 移行先：移行係数の比率

## ① 沈着部位



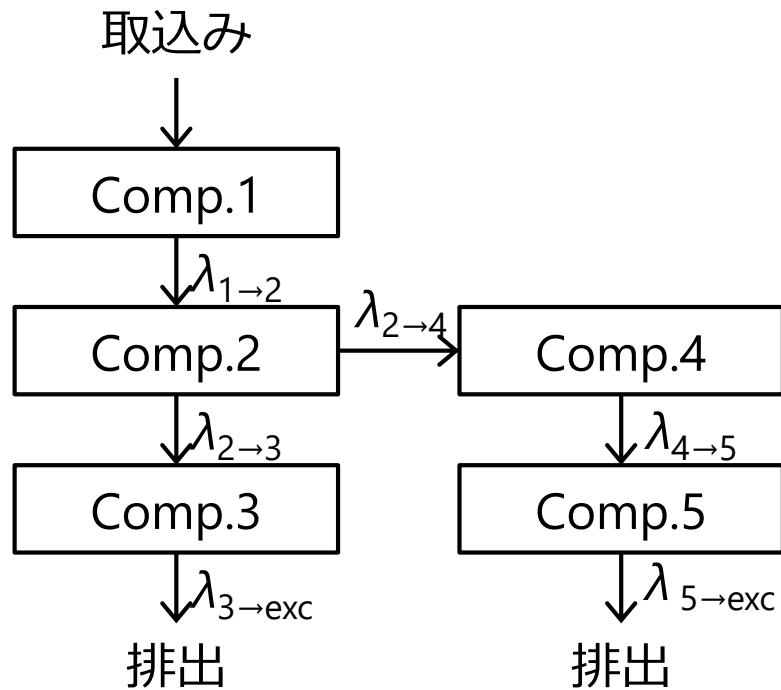
例：粒径 $2\mu\text{m}$ の粒子の沈着割合

沈着しない：0.135  
ET<sub>1</sub>：0.459  
ET<sub>2</sub>：0.247  
BB：0.025  
bb：0.016  
Al：0.118

乱数  $r$  ( $0 < r \leq 1$ ) で  
沈着部位を決める

# 確率論的挙動のモデル化

② 保持時間： $t_r$



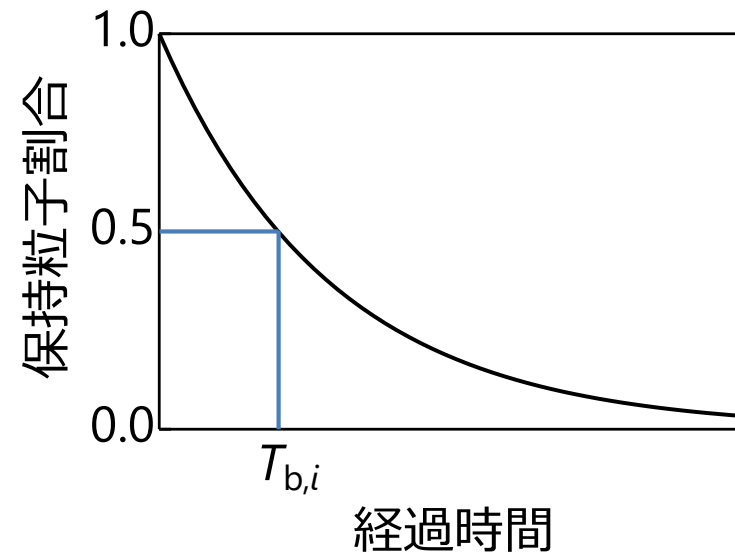
$\lambda$ : 移行係数



$T_b$ : 生物学的半減期

$$T_{b,1} = \frac{\ln 2}{\lambda_{1 \rightarrow 2}} \quad (T_{b,i} : \text{Comp.}i \text{の生物学的半減期})$$

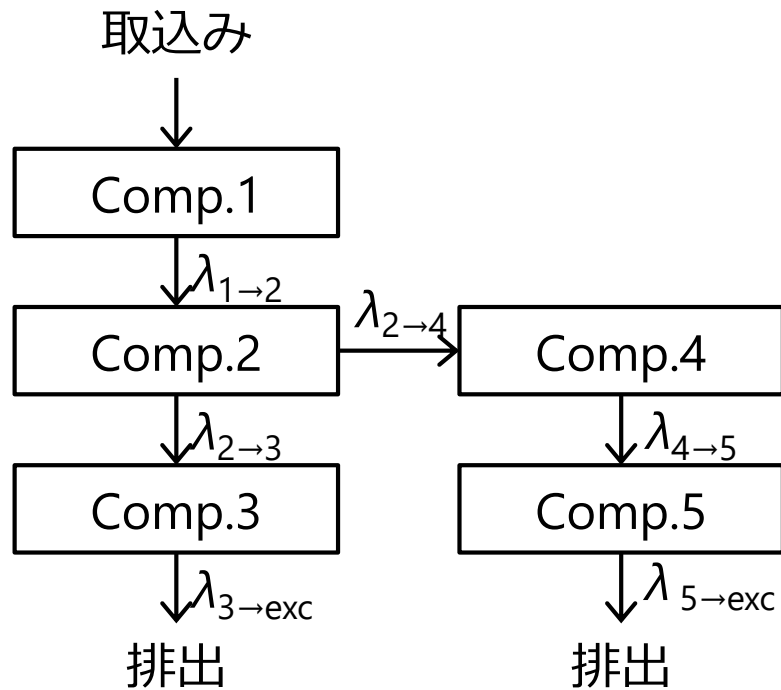
$$T_{b,2} = \frac{\ln 2}{\lambda_{2 \rightarrow 3} + \lambda_{2 \rightarrow 4}}$$



粒子が無数にある場合

# 確率論的挙動のモデル化

② 保持時間： $t_r$



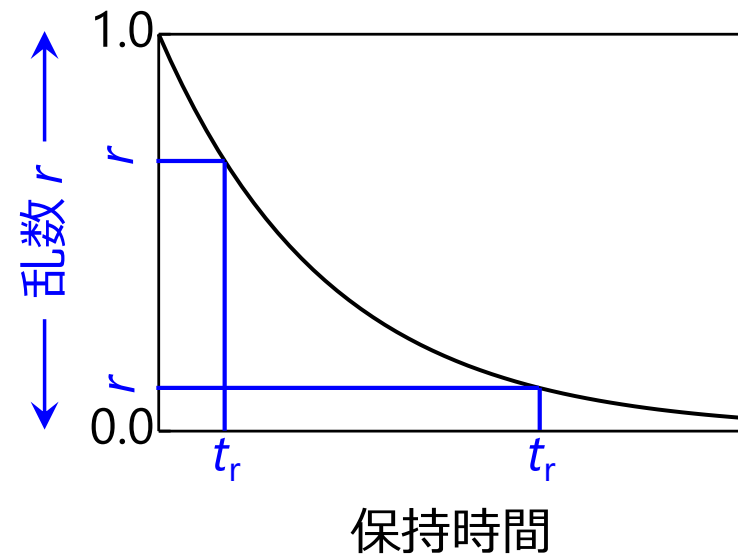
$\lambda$ : 移行係数



$T_b$ : 生物学的半減期

$$T_{b,1} = \frac{\ln 2}{\lambda_{1 \rightarrow 2}} \quad (T_{b,i} : \text{Comp.}i \text{の生物学的半減期})$$

$$T_{b,2} = \frac{\ln 2}{\lambda_{2 \rightarrow 3} + \lambda_{2 \rightarrow 4}}$$



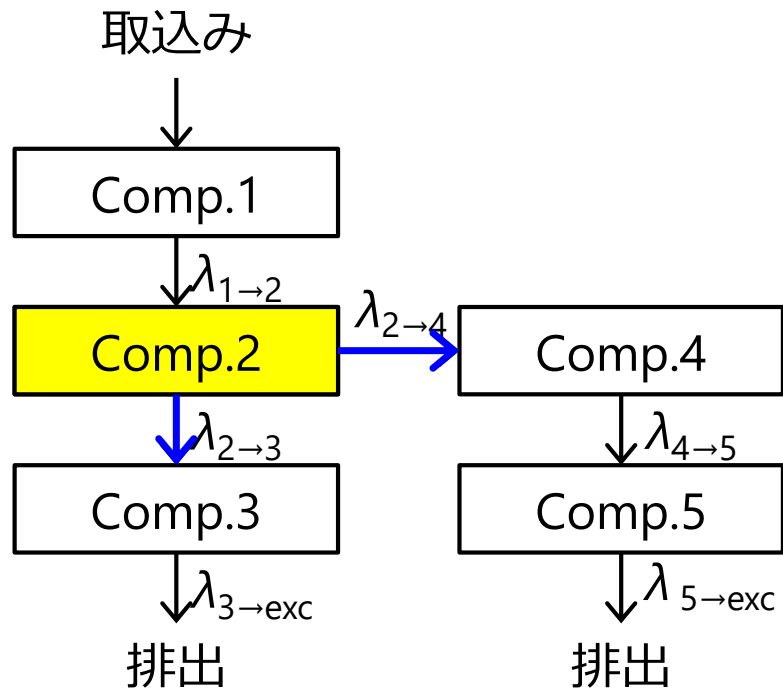
乱数  $r$  で  $t_r$  を決める

$$t_r = T_b \log_{0.5} r$$



# 確率論的挙動のモデル化

## ③ 移行先



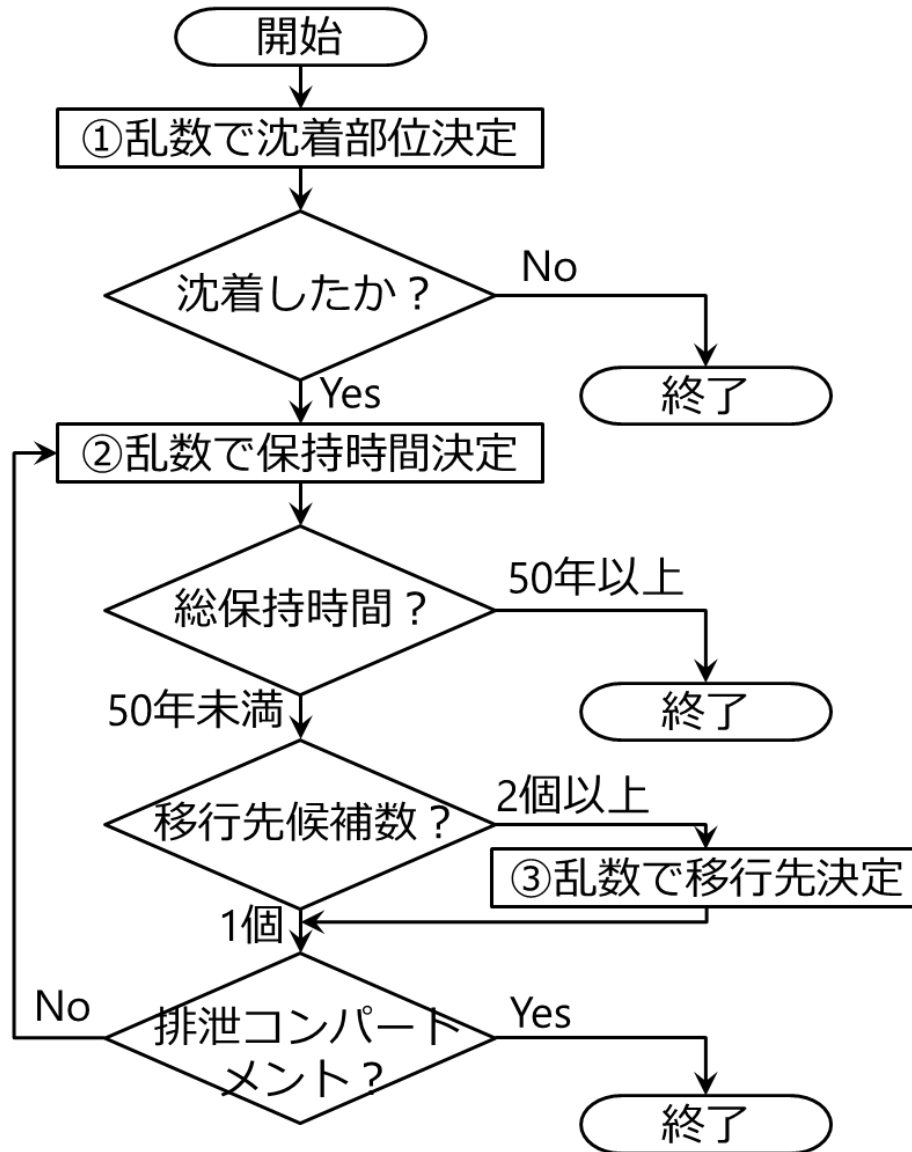
$\lambda$ : 移行係数

Comp.2の粒子の移行するときの経路  
⇒ 移行係数の比とする

$$\text{Comp.3} : \text{Comp.4} = \lambda_{2 \rightarrow 3} : \lambda_{2 \rightarrow 4}$$

乱数  $r$  で移行先を決める

# 確率論的挙動のモデル化

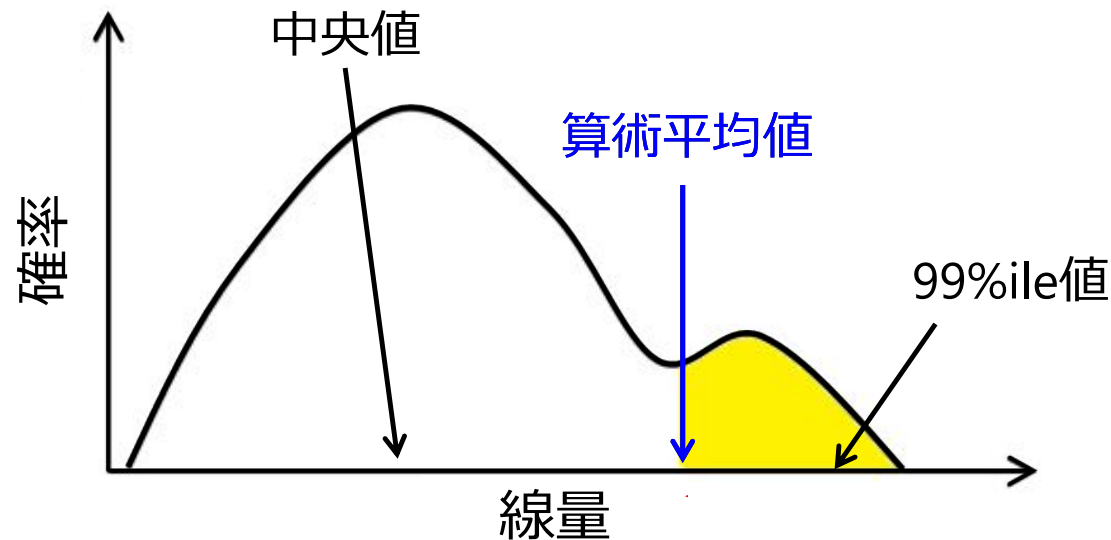


移行経路に依存する  
体内各組織・臓器における  
総壊変数が計算可能

確率論的体内動態法 (Stochastic Biokinetic法)\*

# 確率論的体内動態法(SB法)で得られる結果

- 1回のSB法で得られる線量：1個の確率変数
- SB法を繰り返し実行：線量分布、統計値



算術平均値 = 決定論的手法による評価値

線量の不確かさ

通常の線量評価法ではどの程度過小評価となり得るか

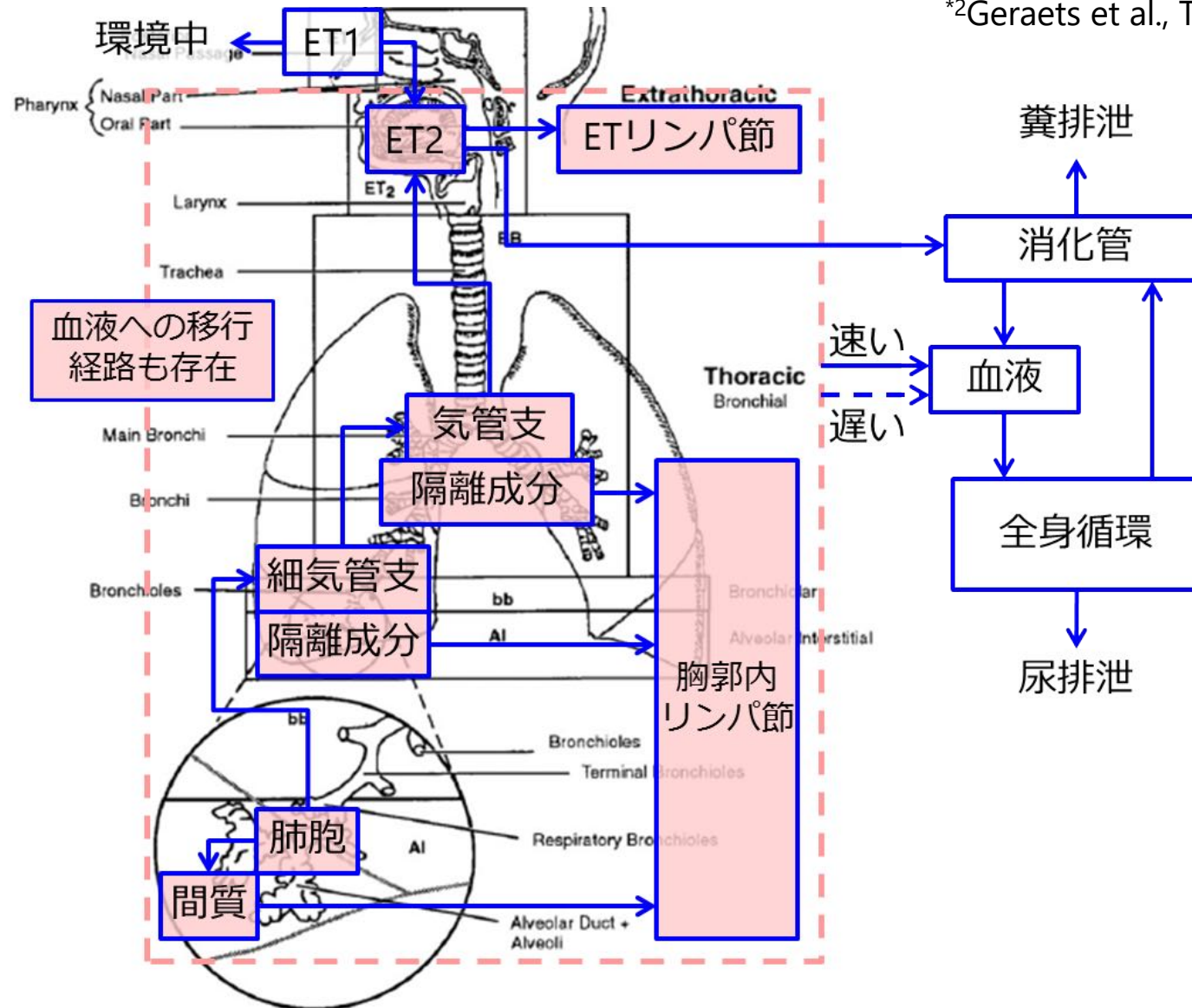
# 放射性微粒子の特徴を考慮した体内移行経路の構築

不溶性、  
大きさ ( $\mu\text{m}$ )

- 呼吸気道の各領域から血液への移行（取込み）は起こらない\*1
- リンパ節を通過した粒子は移行先の組織で捕捉されて動かない\*2
- 消化管から血液への吸収は起きない

\*1ICRP Publ. 66

\*2Geraets et al., Toxicol. Sci. (2012)



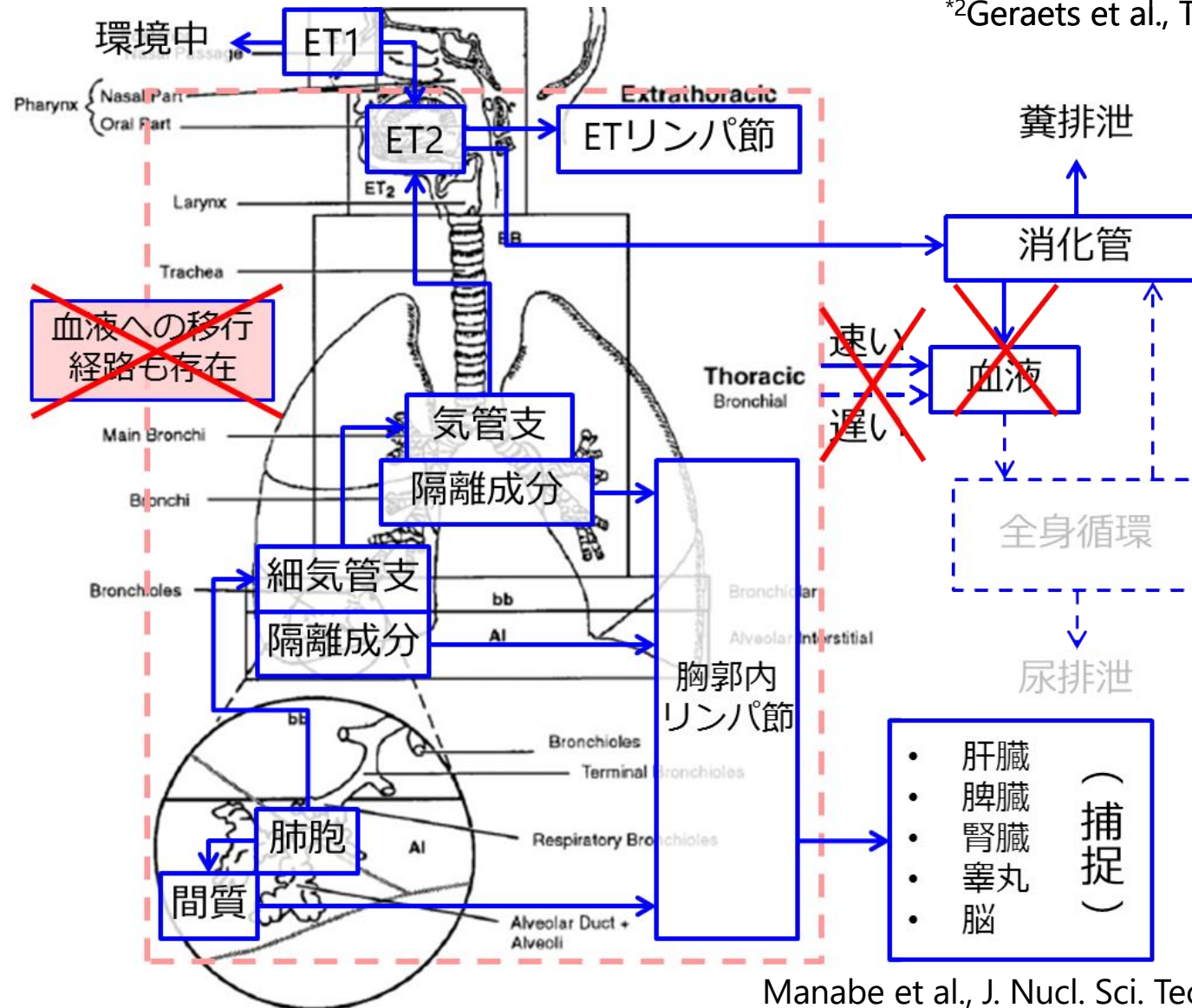
# 放射性微粒子の特徴を考慮した体内移行経路の構築

不溶性、  
大きさ (μm)

- 呼吸気道の各領域から血液への移行（取込み）は起こらない\*1
- リンパ節を通過した粒子は移行先の組織で捕捉されて動かない\*2
- 消化管から血液への吸収は起きない

\*1ICRP Publ. 66

\*2Geraets et al., Toxicol. Sci. (2012)



# 内容

---

- はじめに
- 通常の内部被ばく線量評価法
- 放射性微粒子の吸入による被ばくの特徴
- 放射性微粒子用の線量評価法の構築
- **線量評価結果**
- 今後の課題
- まとめ

# 実効線量計算条件

## 放射性微粒子のパラメータ

- 粒径： 2.0  $\mu\text{m}$
- 密度： 2.0  $\text{g}/\text{cm}^{-3}$
- 形状係数： 1.0 (球状)
- 放射能：  $^{134}\text{Cs}$  0.5 Bq +  $^{137}\text{Cs}$  0.5 Bq (放射平衡の $^{137\text{m}}\text{Ba}$ も含む)

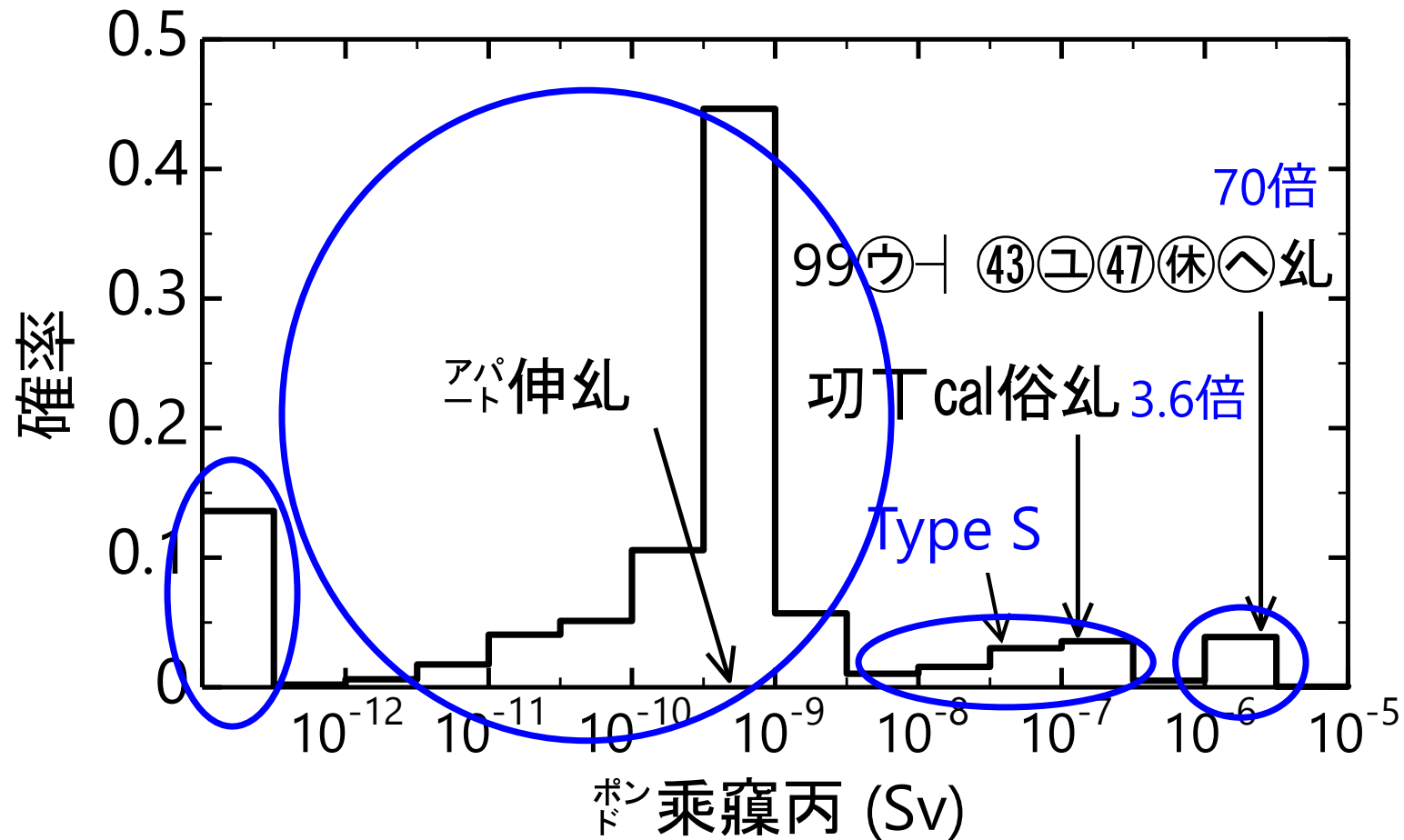
## 呼吸気道沈着確率計算条件

- 評価対象： 成人男性
- 活動レベル： 軽作業
- 呼吸習慣： 鼻呼吸

## 線量評価データ

- 核崩壊データ： ICRP Publ. 107
- 比吸収割合データ： ICRP Publ. 133 (標準成人男性用データ)

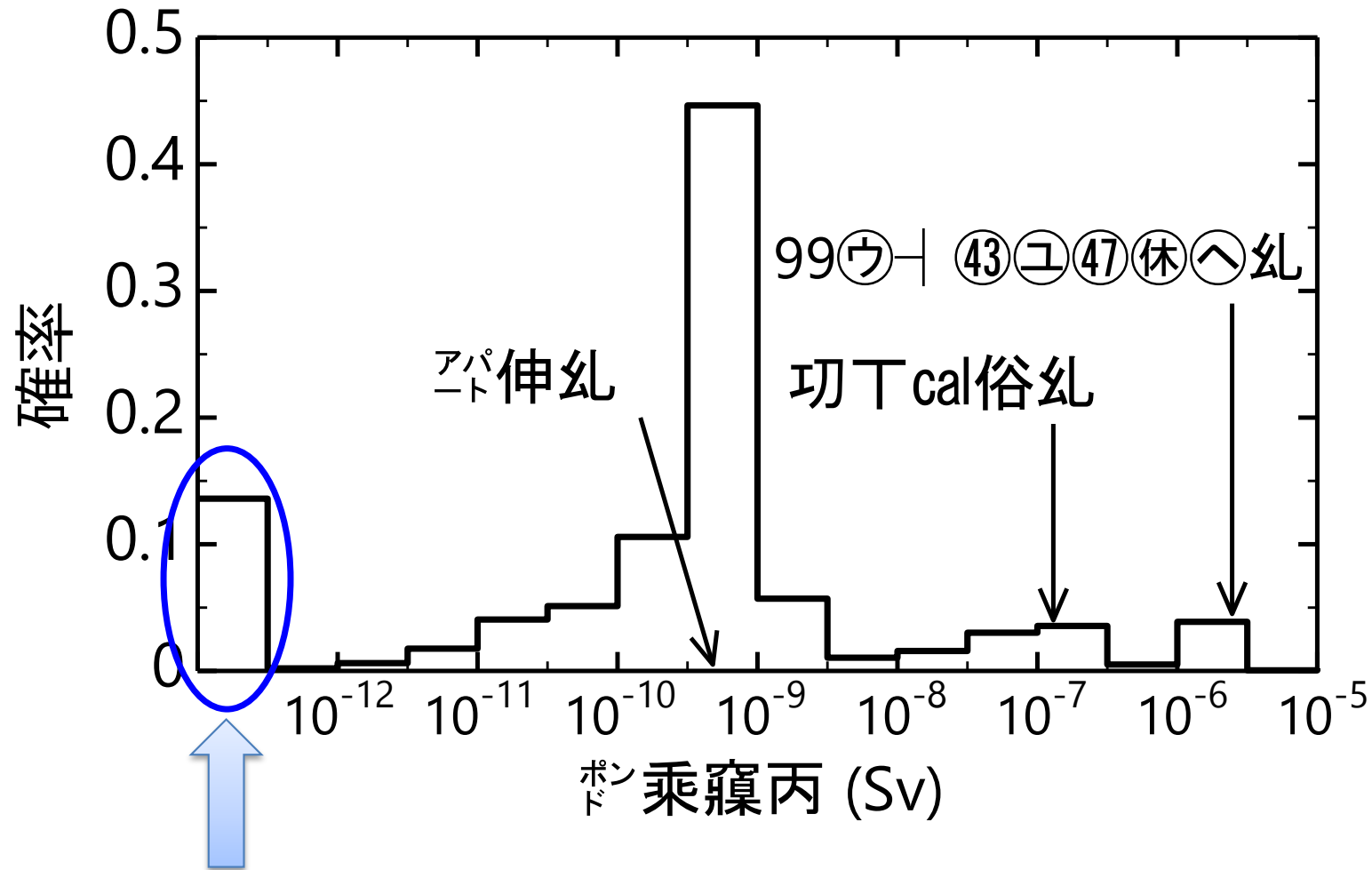
# 実効線量の分布



- 線量は幅広く分布：0 ~  $10^{-5}$  Sv
- 算術平均値と99%ile値は、通常のCsモデルType Sのそれぞれ3.6倍, 70倍

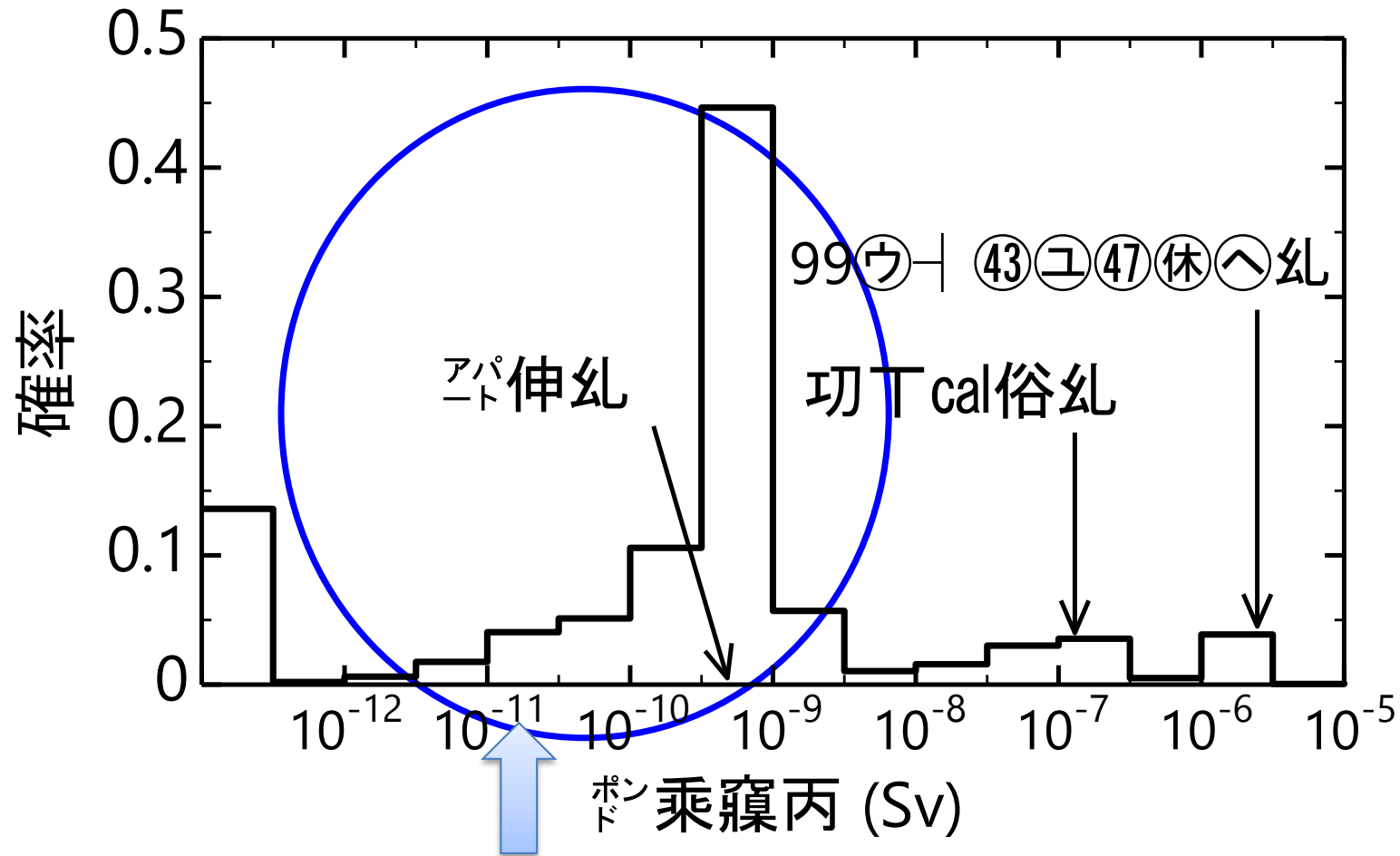


# 実効線量の分布



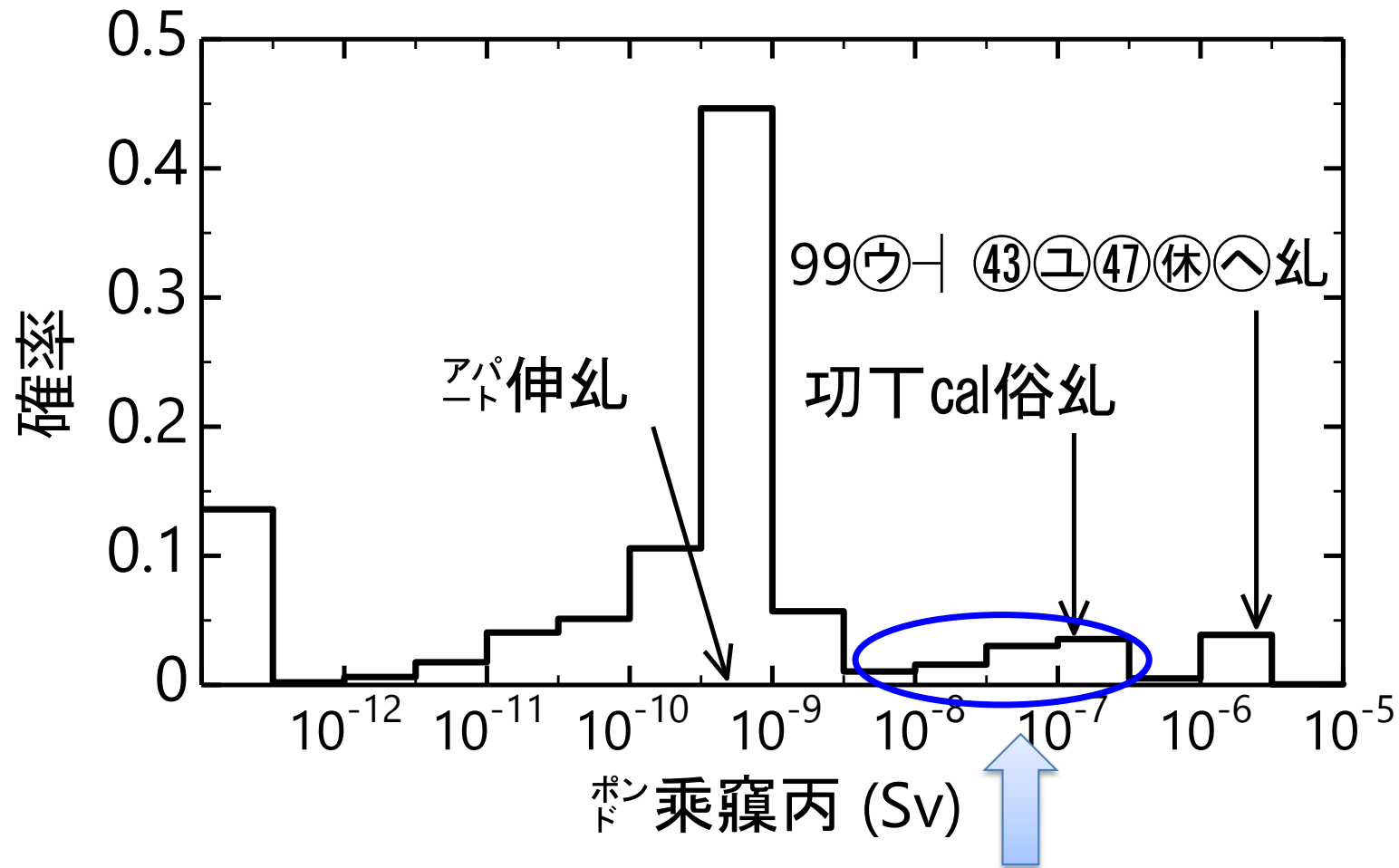
吸入粒子が呼気に含まれて排気され、呼吸気道に沈着せず。  
⇒ 線量はゼロ

# 実効線量の分布



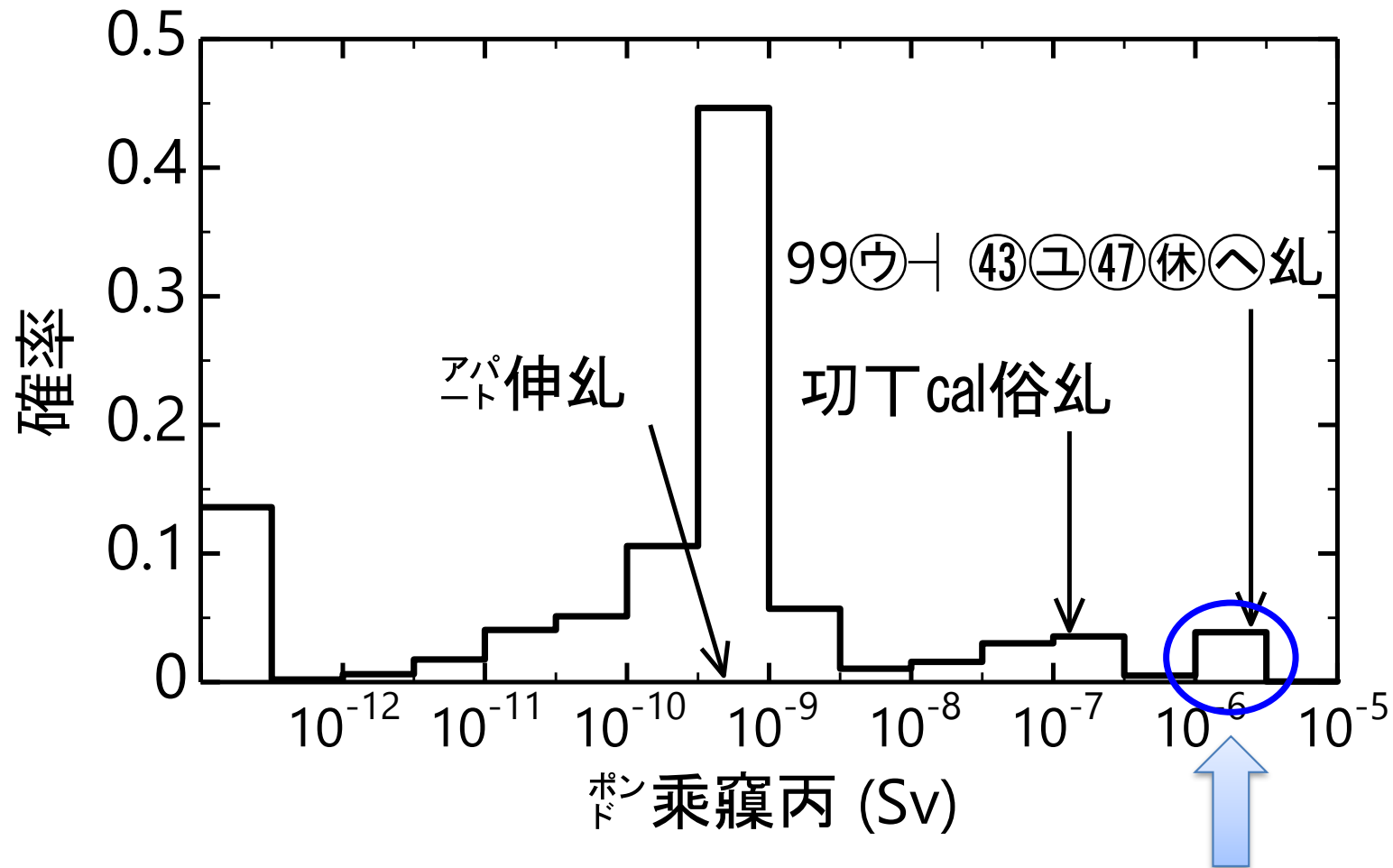
粒子が呼吸気道の上流に沈着し、比較的速く消化管へ移行  
⇒ 線量レベルは低い

# 実効線量の分布



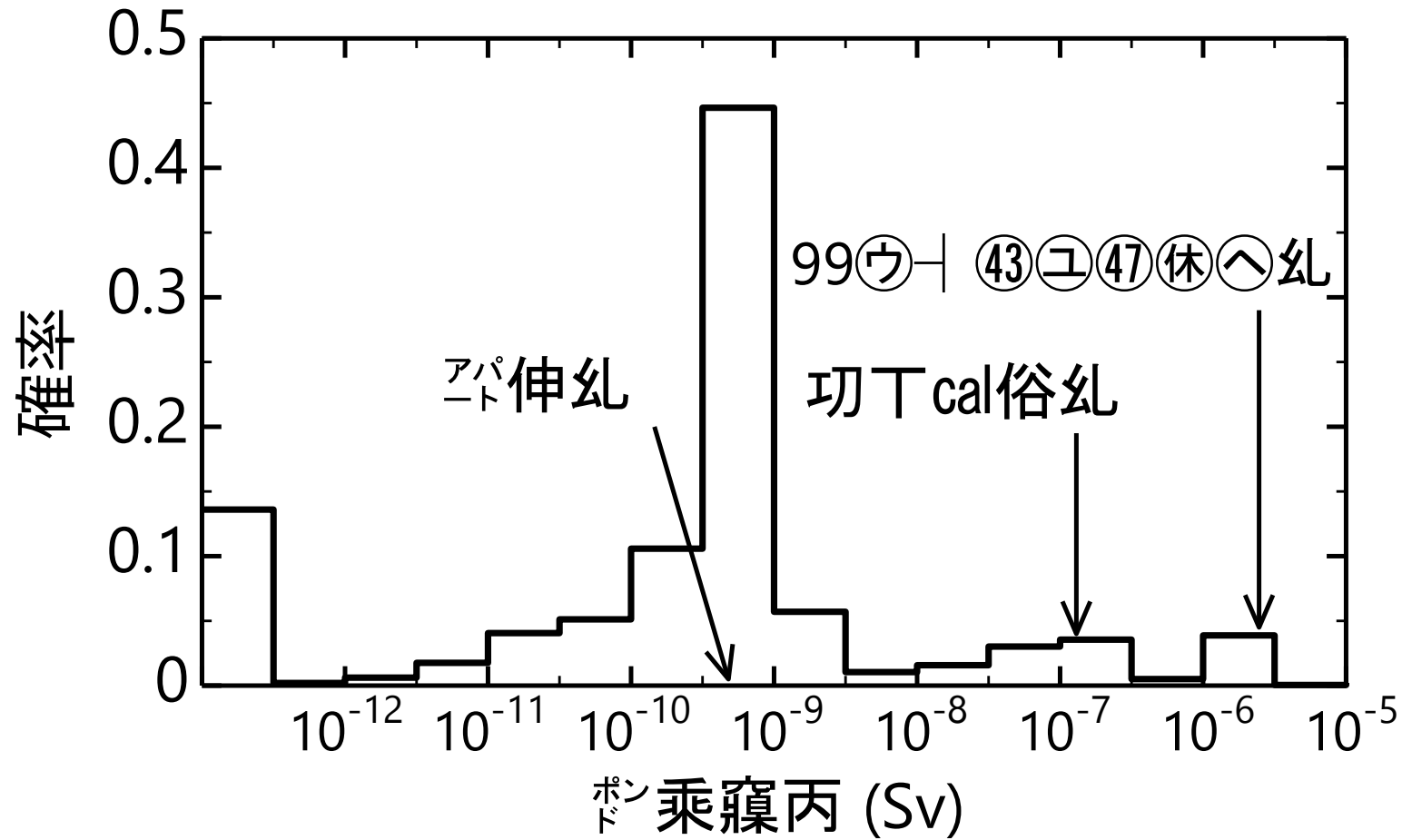
粒子が肺胞に沈着し、比較的緩やかに消化管へ移行  
 ⇒ 線量レベルはやや高め

# 実効線量の分布



粒子が肺胞に沈着して間質に移行後、間質に滞留  
 又はさらにリンパ節→組織に移行後、組織に滞留  
 ⇒ 線量レベルは最も高い

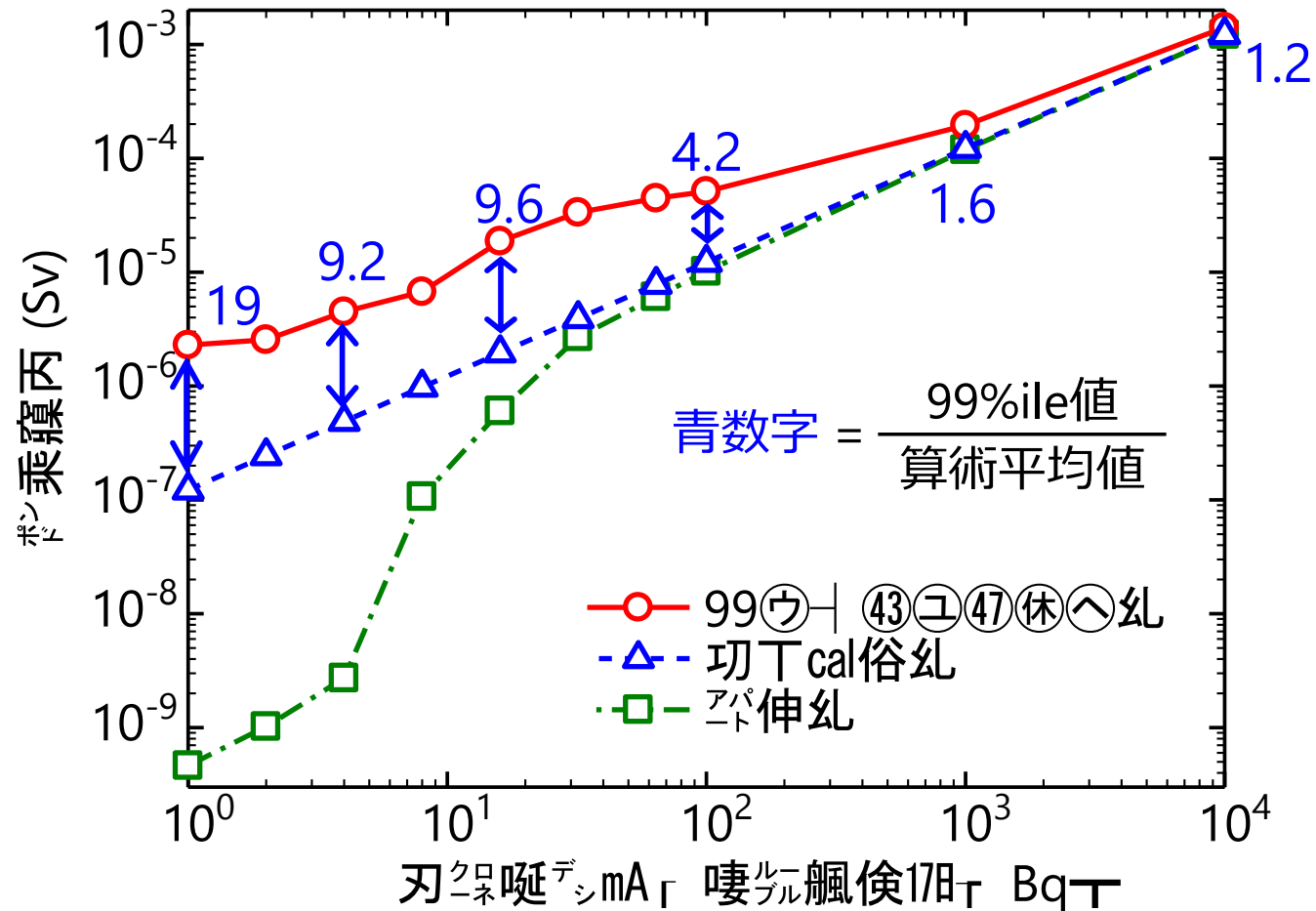
# 実効線量の分布



1個の粒子を吸入した場合

- 線量はかなり幅広い分布を取り得る
- 線量は、**粒子が沈着した領域**に大きく依存する

# 複数個摂取時の実効線量の分布



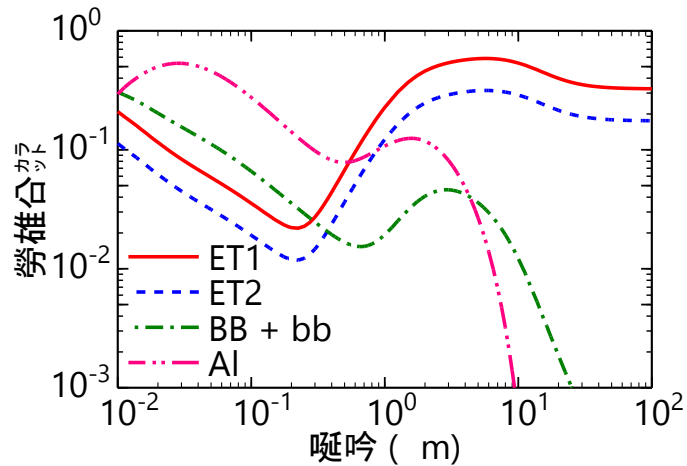
- 摂取個数の増加に伴い、線量の分布幅（不確かさ）は縮小。
- 吸入粒子数が10<sup>3</sup>個以上の場合、放射性微粒子の特徴に起因する不確かさは十分小さい。  
⇒ 多数吸入した場合は通常の内被ばく線量評価法を適用可能

# 内容

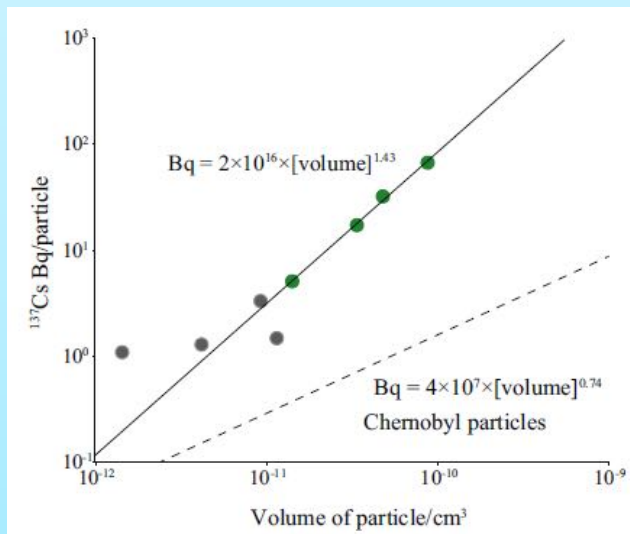
---

- はじめに
- 通常の内部被ばく線量評価法
- 放射性微粒子の吸入による被ばくの特徴
- 放射性微粒子用の線量評価法の構築
- 線量評価結果
- 今後の課題
- まとめ

# 粒径依存性・粒径分布の考慮

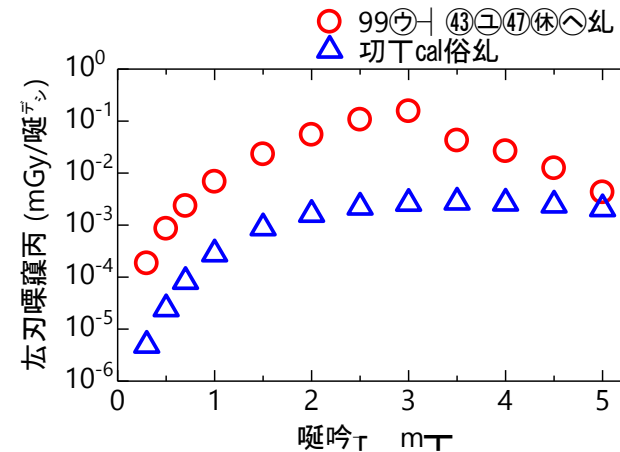
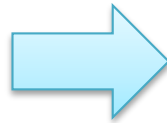


沈着確率の違い



1個あたりの放射能の違い\*1

\*1 Satou et al., Anthropocene (2016)

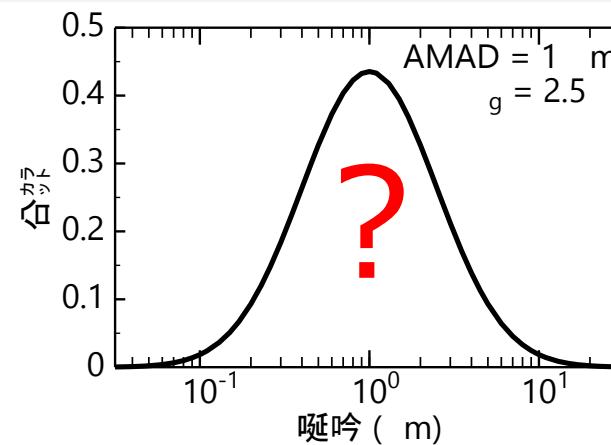


1個摂取時の線量の粒径依存性\*2

\*2 真辺ら, JHPS53 (2020)

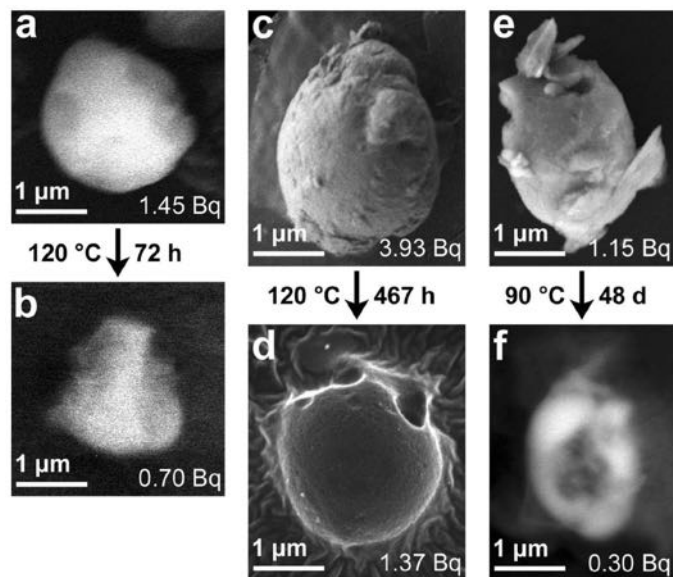
複数個摂取時に粒径分布を考慮したい

粒径分布データが必要



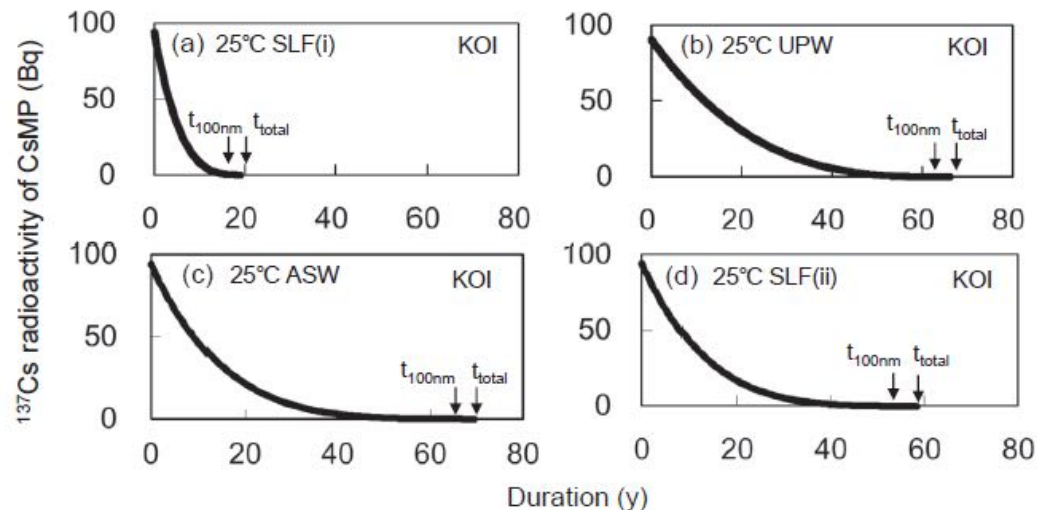


# 溶解性の考慮



純水に溶解する様子\*1

\*1Okumura et al., Sci.Rep. (2019)



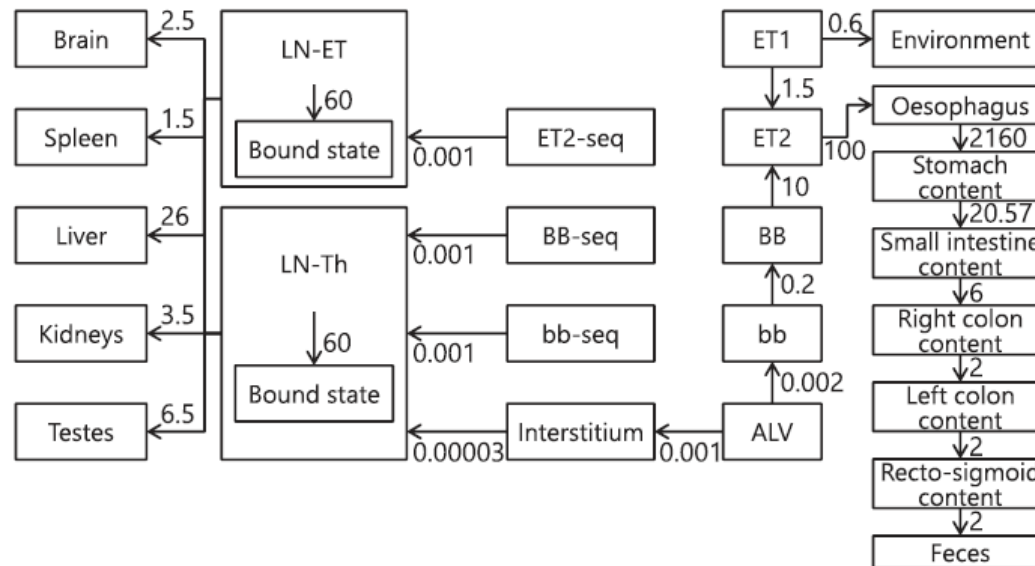
肺模擬液、純水、模擬海水への溶解\*2

\*2Suetake et al., Chemosphere (2019)

- 溶解速度を数式化  
⇒ 体内の各部位における保持時間から溶解量を計算
- 確率論的体内動態法と通常の線量評価法を組み合わせる

被ばく線量としては減少する

# SiO<sub>2</sub>微粒子の体内動態



現状の放射性微粒子用動態モデル\* (移行経路図)

\*Manabe et al., J. Nucl. Sci. Technol. (2019)

- ✓ CeO<sub>2</sub>、Eu<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子の実験結果を基に作成  
⇒ SiO<sub>2</sub>粒子では異なる？
- ✓ 実験では非常に大量の粒子を吸入させている  
⇒ 粒子状のまま捕捉・移行する経路にしきい値？

模擬粒子を用いた実験データが必要

# 内容

---

- はじめに
- 通常の内被ばく線量評価法
- 放射性微粒子の吸入による被ばくの特徴
- 放射性微粒子用の線量評価法の構築
- 線量評価結果
- 今後の課題
- **まとめ**

# まとめ

- 放射性微粒子の吸入摂取では、摂取粒子数が少ない場合、通常の内部被ばく線量評価法を適用することができない。
- 確率論的体内動態法 (Stochastic Biokinetic法) を開発し、被ばく線量を確率分布で表現することを可能とした。
- 放射性微粒子用の体内移行経路モデルを構築した。
  - ✓ 吸入粒子数が1個の場合、粒子の不溶性に起因する線量分布の幅（不確かさ）は非常に大きい。
  - ✓ 吸入粒子数の増加に伴い、線量の不確かさは減少する。
  - ✓ 吸入粒子数が $10^3$ 個以上の場合、線量の不確かさは十分小さい。
  - ✓ 線量分布の算術平均値は、粒子の不溶性、サイズの影響により、従来モデルのType Sの値の数倍となる。
- より確からしい線量を評価するためには、多くの課題が残っている。

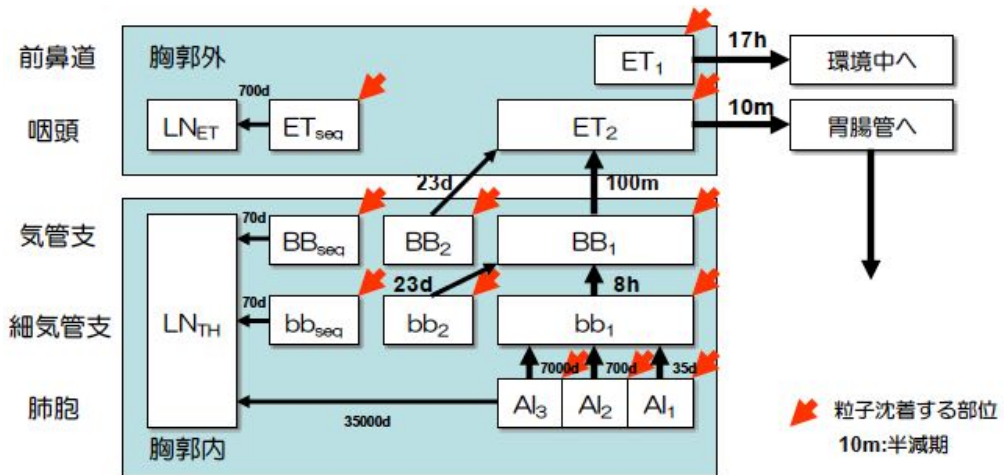
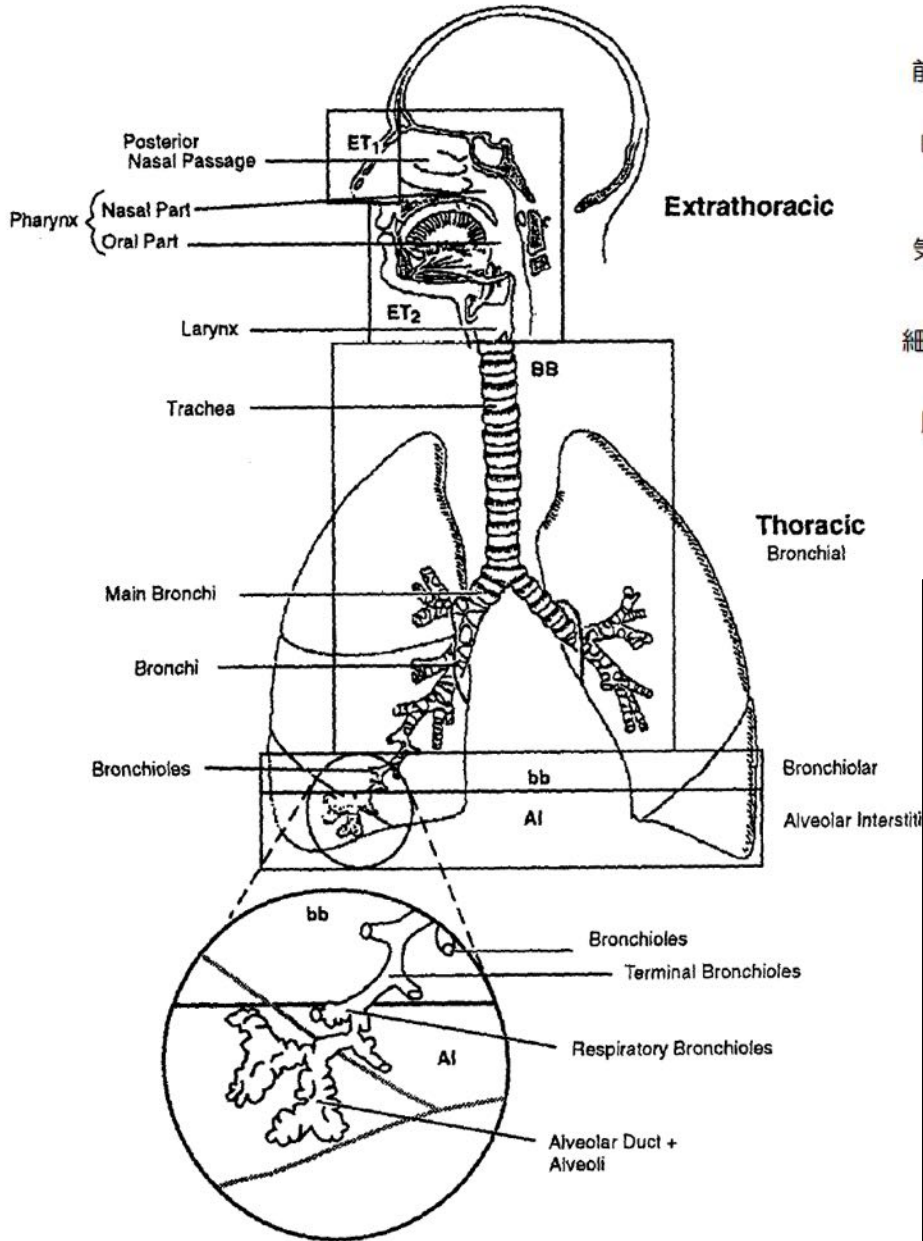
# 不溶性セシウム粒子による細胞影響解析

鈴木正敏<sup>1,2)</sup>, 遠藤暁<sup>3)</sup>, 松谷祐輝<sup>3)</sup>, 二宮和彦<sup>4)</sup>,  
稲葉洋平<sup>1,2)</sup>, 千田浩一<sup>1,2)</sup>, 福本学<sup>5)</sup>

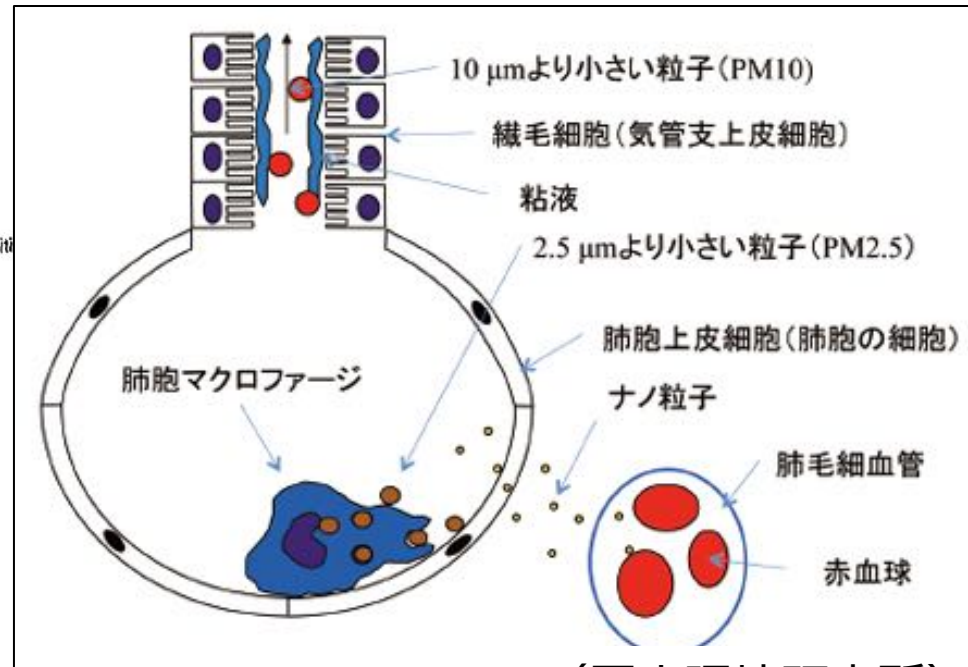
1. 東北大学災害科学国際研究所
2. 東北大学医学研究科
3. 広島大学大学院先進理工科学
4. 大阪大学大学院理学研究科
5. 理化学研究所革新知能統合研究センター



# ヒト呼吸気道モデル (ICRP pub.66)



(JAEA 栗原氏資料より抜粋)



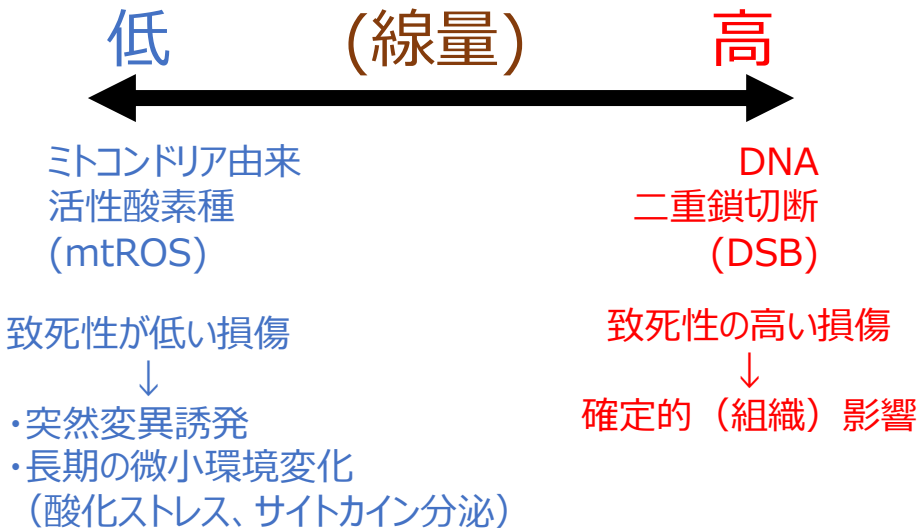
(国立環境研究所)

# 放射性微粒子（ホットパーティクル）

	放射性微粒子		
	核燃料断片 (例：チェルノブイリ原発事故)	不溶性セシウム粒子	
		タイプA	タイプB
粒径 (μm)	< 100	<3	10-500
放射能 (Bq)	30 - 1×10 <sup>6</sup>	<3	10-1,000
主成分	ウラン酸化物	二酸化ケイ素	
沈着部位	鼻腔・気道・肺胞	肺胞	鼻腔・気道
沈着期間	<ul style="list-style-type: none"> <li>・&lt;数日</li> <li>・長期</li> </ul>	長期	<数日
対象細胞	<ul style="list-style-type: none"> <li>・上皮細胞</li> <li>・マクロファージ</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・上皮細胞</li> <li>・マクロファージ</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・上皮細胞</li> </ul>
健康影響	<ul style="list-style-type: none"> <li>・肺がん</li> <li>・肺の繊維化</li> <li>・ガス交換異常</li> </ul>	不明	不明

# 細胞影響への仮説

## 【線量による影響】



## 【粒子の特性による影響】

- ・放射線
- ・シリカ粒子

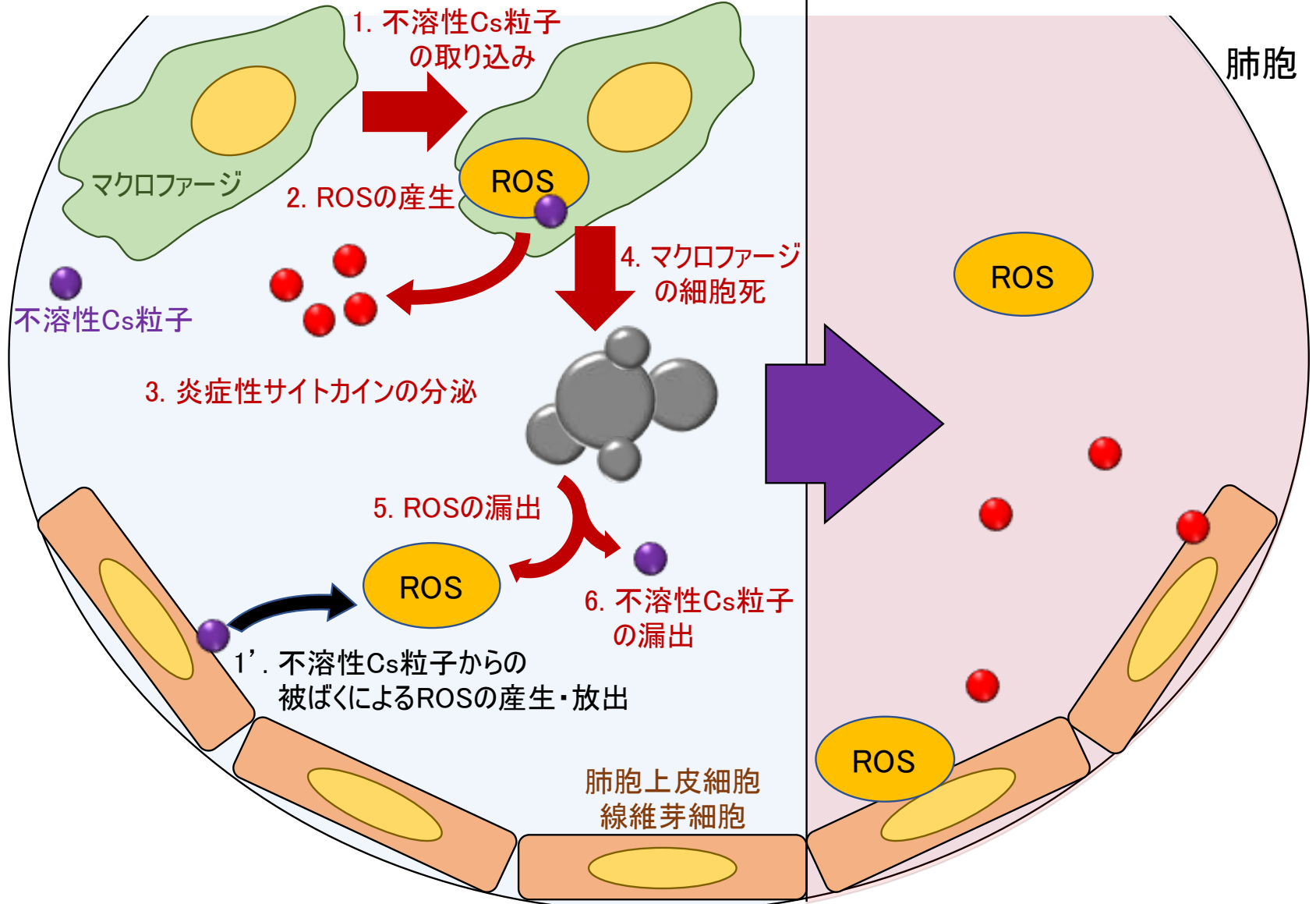
## 【不溶性粒子のマクロファージ取り込みに関する影響】

- ・粒径と取り込み効率：
- ・不溶性粒子取り込み後のマクロファージの運命



# 不溶性Cs粒子による 液性因子の放出

# バイスタンダー効果を介した 非標的細胞への作用



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  
2020年12月24日 オンライン開催

# 放射性不溶性粒子の吸入による生物影響 —動物実験より—

国立研究開発法人 量子科学技術研究開発機構  
放射線医学総合研究所 福島再生支援研究部

山田 裕

# 本日のお話し

1. 粒子状放射性物質の吸入被ばく動物実験例  
酸化プルトニウム吸入実験
2. 粒子状放射性物質の吸入被ばく実験で考慮すべき事項
3. 不溶性放射性セシウム粒子の被ばく

1. 粒子状放射性物質の吸入被ばく動物実験例  
酸化プルトニウム吸入実験

## Materials & Methods

**Animals:** Female Wistar (W/M) strain rats at the age of 100 to 120 days.

**Pu-Exposure:** High-fired (1150 °C)  $^{239}\text{PuO}_2$  aerosols with AMAD of 0.30-0.40  $\mu\text{m}$  and GSD of 2.1-2.3.

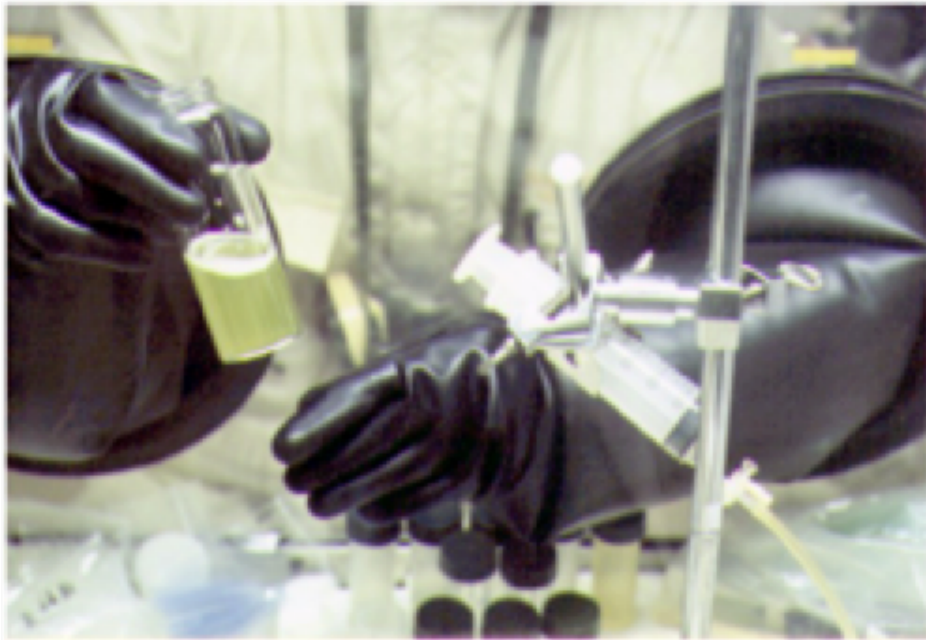
**Dose Estimation:** Initial lung deposition (ILD) determined by whole-body counting of LX-ray (17 keV) on day 7 after the exposure. Cumulative alpha dose calculated at the death by the time integral of ILD and the retention function.

**X-ray Irradiation:** a single dose of X-rays at a dose rate of 0.6 Gy/min by shielding with a lead sheet except for the thorax, for thoracic X-irradiation (ThX).

# Procedures for the Inhalation Experiment of Plutonium 1

## 1) Preparation of plutonium solution

Plutonium hydroxide solution



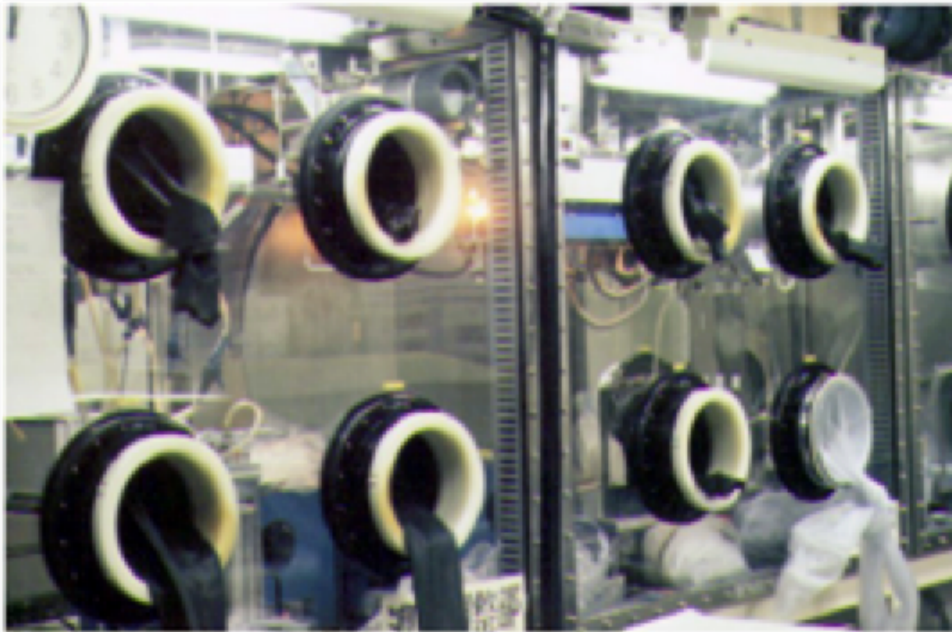
Loading on a nebulizer



# Procedures for the Inhalation Experiment of Plutonium 2

## 2) Generation of plutonium aerosols

Conversion to plutonium dioxide



Control panel of inhalation apparatus





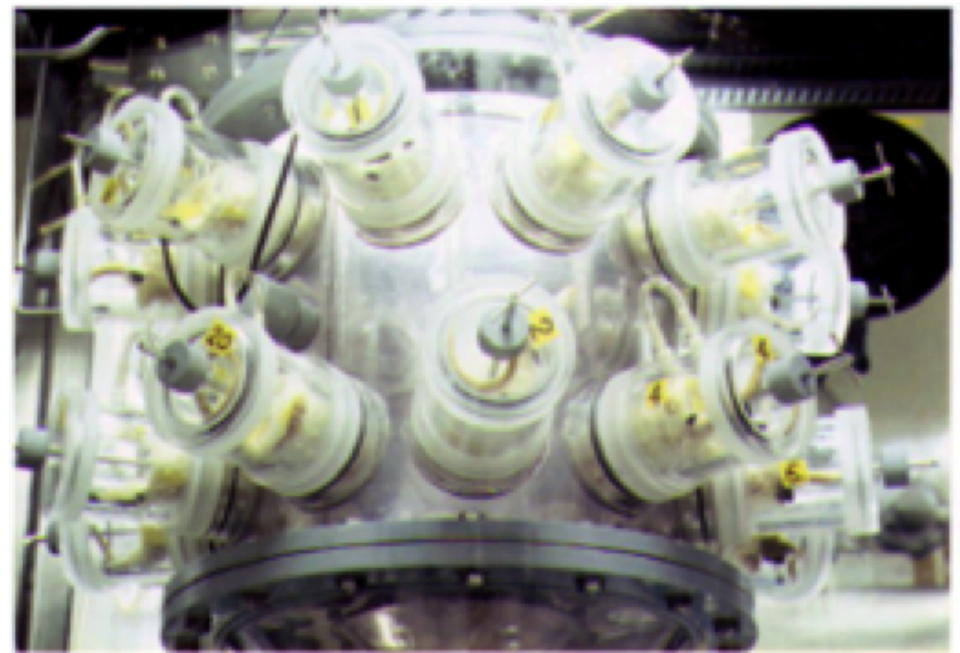
# Procedures for the Inhalation Experiment of Plutonium 3

## 3) Exposure system for small animals

Animal holder for nose exposure



Inhalation chamber

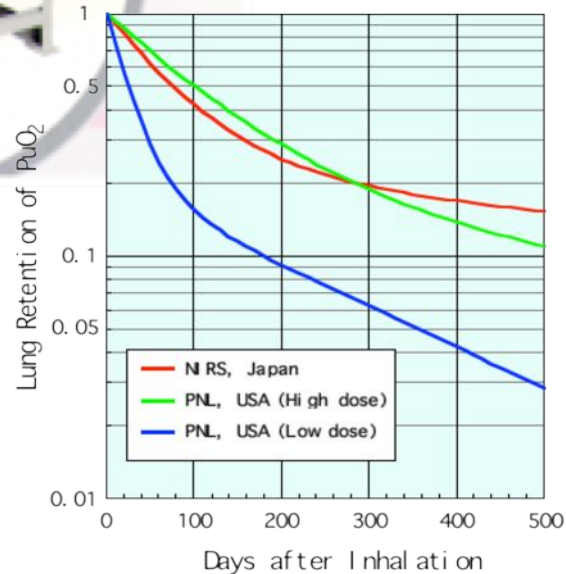
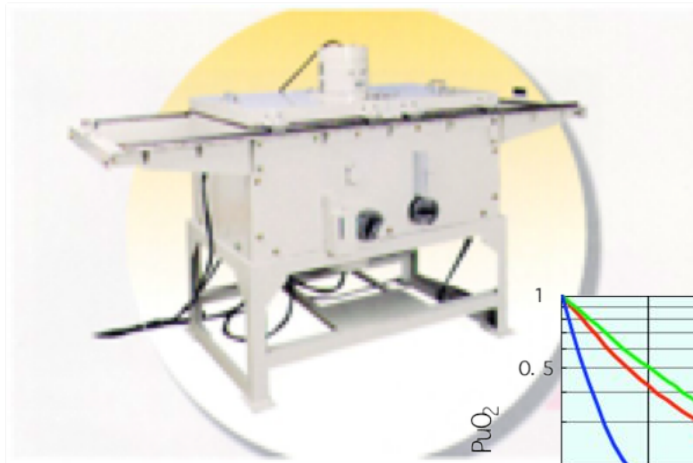




# Procedures for the Inhalation Experiment of Plutonium 4

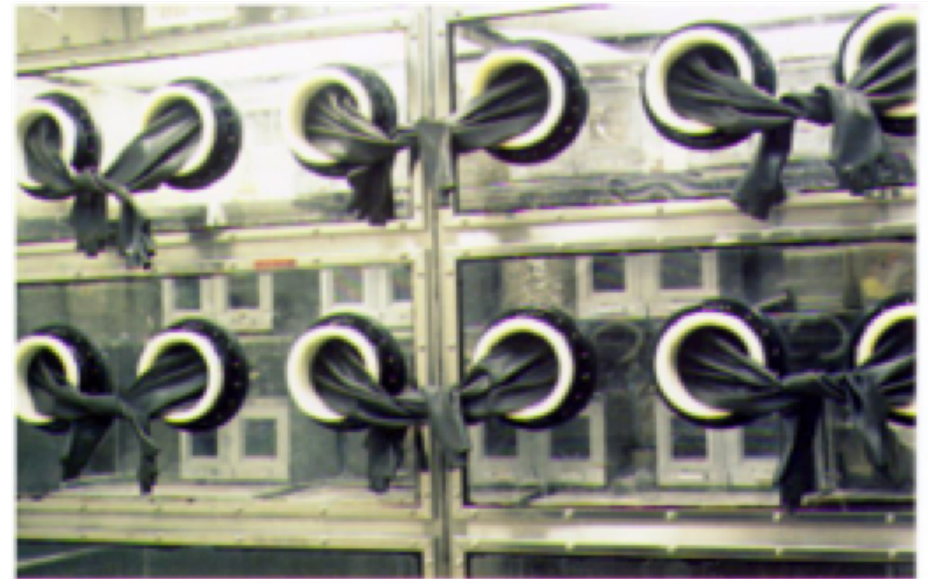
## 4) In vivo measurement of plutonium

Body counter for small animals



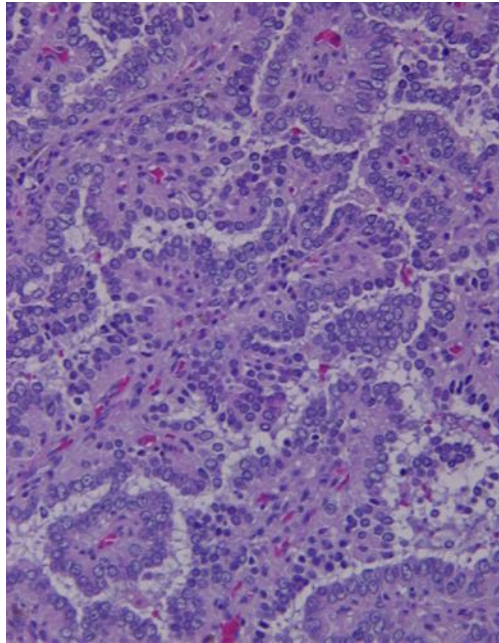
## 5) Life-span animal experiments

a safety hood rack and cages

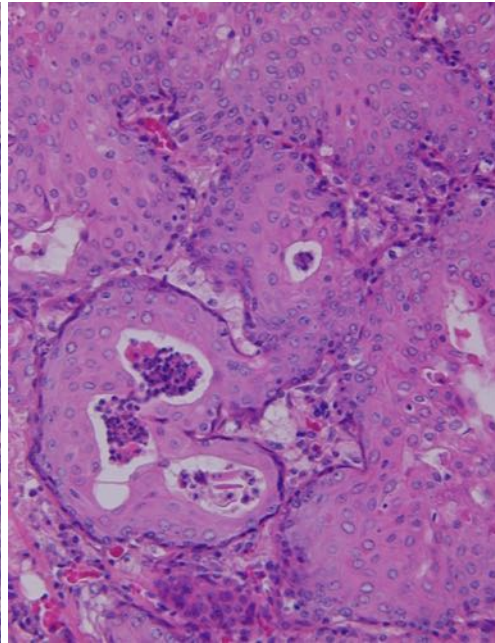


# Histopathological Types of Rat Pulmonary Tumors after Pu- Exposure

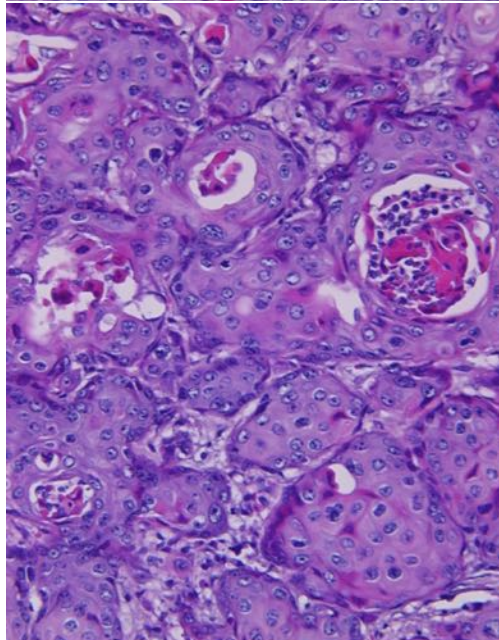
**Adenoma**  
(benign tumor)



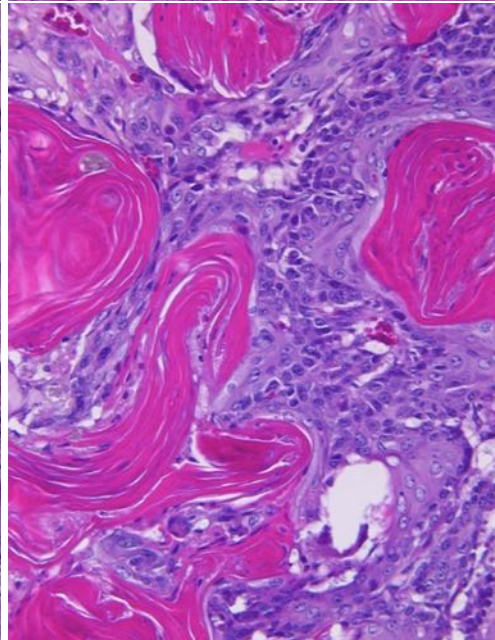
**Adenocarcinoma**  
(malignant tumor)



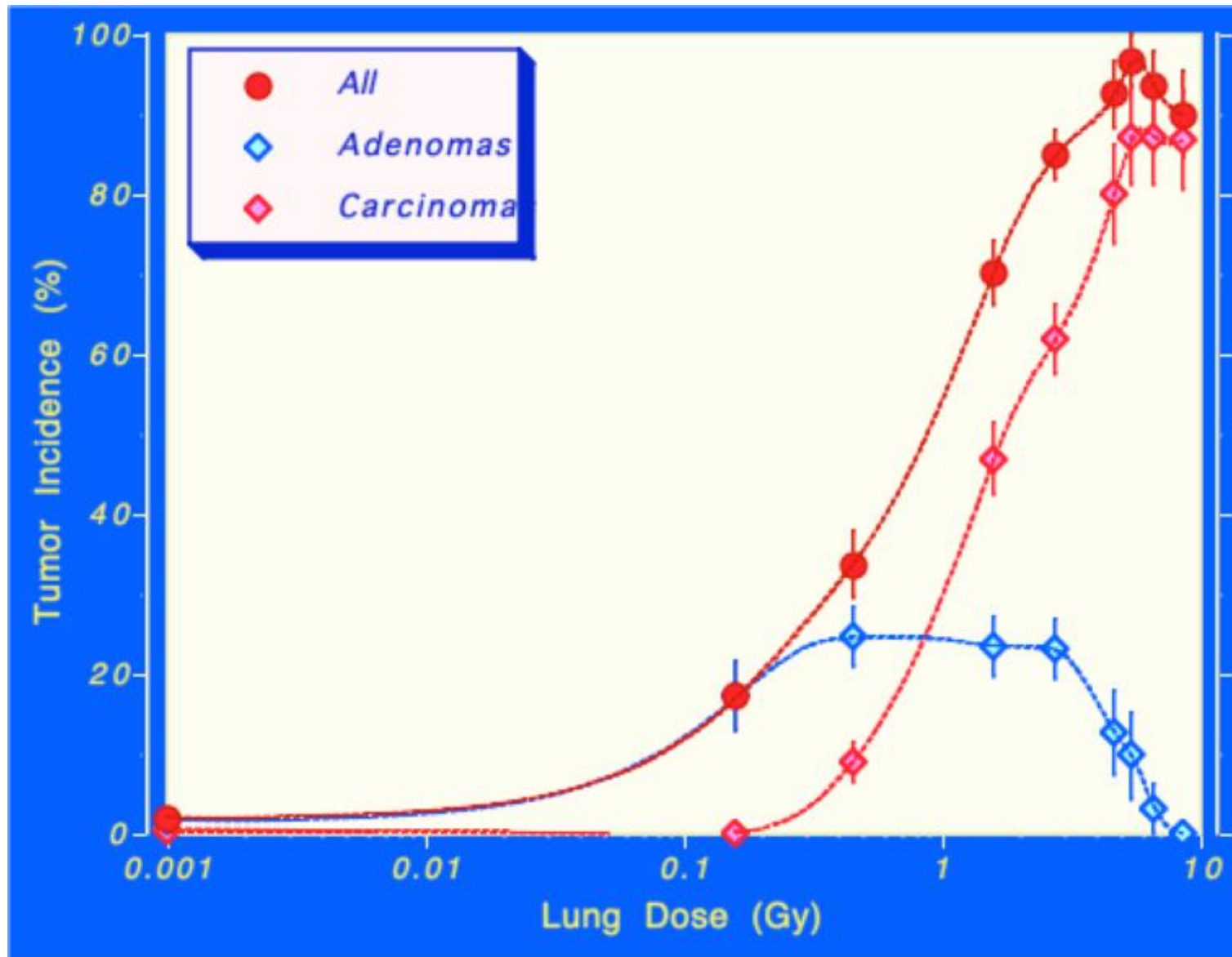
**Adenosquamous  
Carcinoma**  
(malignant tumor)



**Squamous Cell  
Carcinoma**  
(malignant tumor)

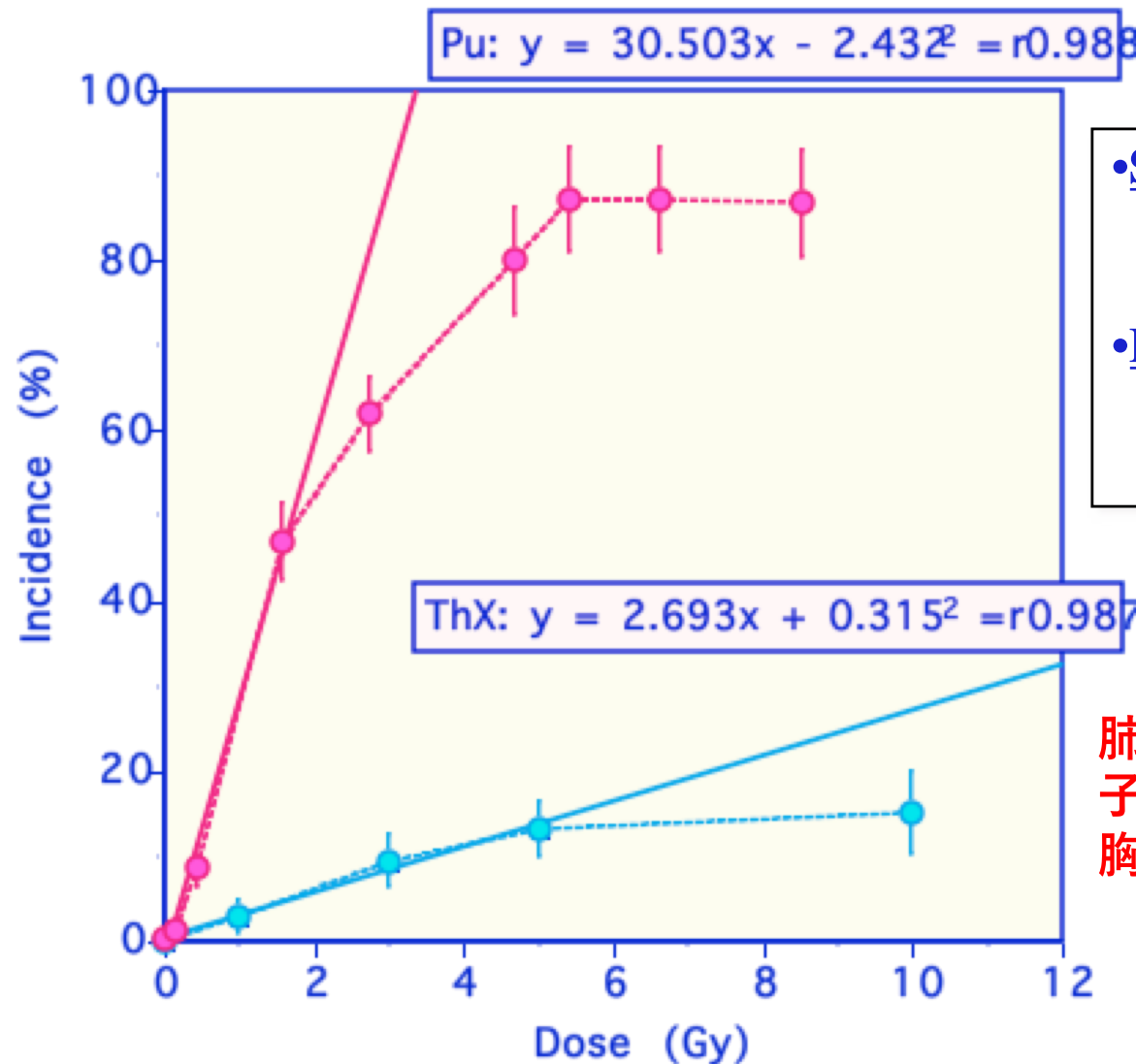


# Dose Responses of Pulmonary Tumor Induction after Pu-Exposure





# Comparisons of Dose Response Curves for Pulmonary Carcinomas between Pu-Exposure and ThX-Irradiation



生物学的効果比(RBE)

- Slope of the equation  
30.5 (Pu) : 2.69 (ThX)  
**11.3-fold**
- Effective dose for 50% incidence  
1.72 Gy (Pu) : 18.4 Gy (ThX)  
**10.7-fold**

肺がん誘発率が酸化プルトニウム粒子吸入では最大9割になるが、X線胸部照射では2割弱にしかない

(Oghiso and Yamada, 2003)

# まとめ 1

## Pulmonary Carcinogenesis by Inhalation of Insoluble Pu Dioxide

1. Dose-dependent survival reduction correlated **with lung carcinomas was observed at doses over 0.45 Gy.**
2. The incidence of lung carcinomas increased over 0.45 Gy, **reaching the maximum of 87% at 6.6-8.5 Gy.** Differential dose responses were noted for types of lung tumors.
3. Comparisons of dose response curves for lung carcinomas between **Pu-exposure and thoracic X ray (ThX)-irradiation showed 11-times difference.**

**線質、被ばくの形態、照射部位等により個体における発がん影響が異なる**

## 2. 粒子状放射性物質の吸入被ばく実験で考慮すべき事項

# 粒子状放射性物質の吸入被ばく実験で考慮すべき事項

## 1) 粒子の物理化学的性状

サイズ、放射活性、核種組成、化学型、生体内での溶解性

## 2) 粒子の呼吸気道内分布

沈着・代謝、**肺胞マクロファージへの取り込み**

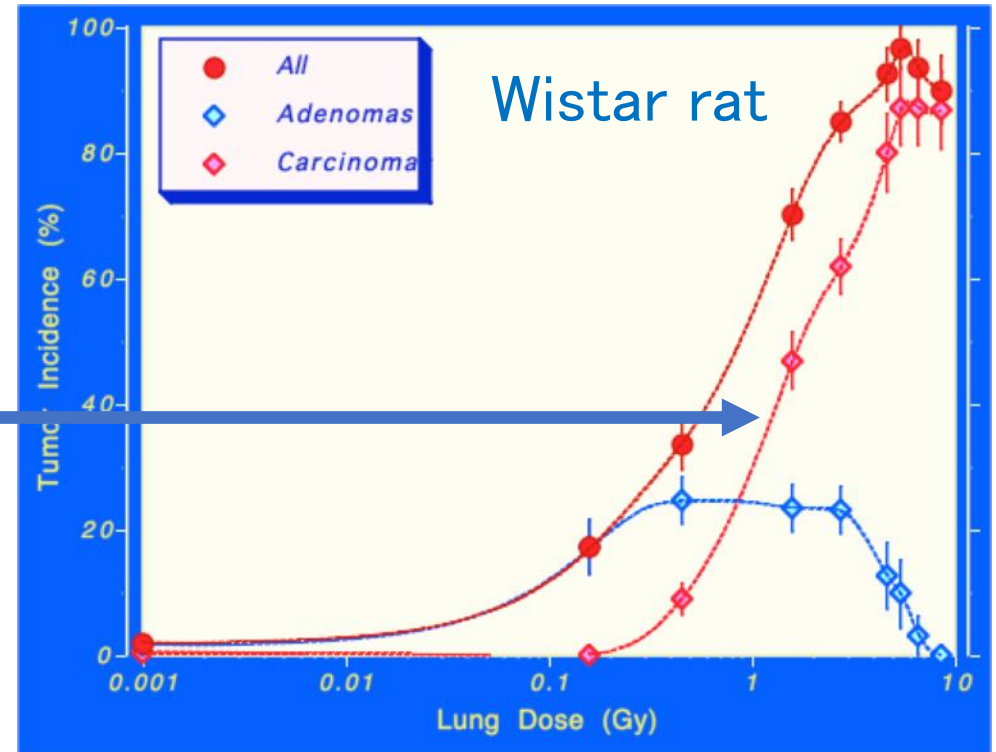
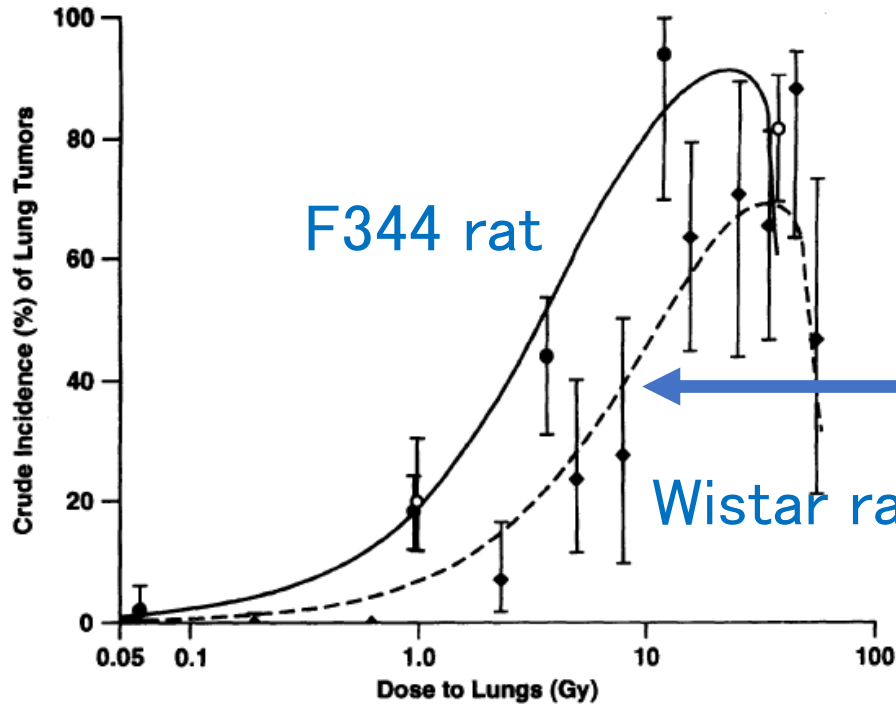
## 3) 発がん標的細胞

呼吸気道の発がん標的細胞、発がんの修飾要因

# 酸化プルトニウム吸入による肺がんの研究所間比較

PNL

NIRS



AMAD 1.5~3.0  $\mu$ m

AMAD 0.3~0.4  $\mu$ m

サイズにより肺がんの線量効果関係が異なる？



## 焼結温度による酸化プルトニウムの代謝の違い

**Table 1.** Cumulative excretions of Pu in rats inhaling PuO<sub>2</sub> calcined at 1150 and 400°C

organ/ excreta	1150°C		400°C	
	1 month <sup>a</sup>	1 year	1 month	1 year
Lung	79.2 ± 6.8 <sup>b</sup>	16.8 ± 2.9	58.3 ± 4.0	8.9 ± 1.8
Feces	19.7 ± 1.5	52.3 ± 2.2	31.5 ± 2.6 <sup>c</sup>	68.4 ± 1.4 <sup>c</sup>
Urine	3.15 ± 0.23	30.8 ± 5.9	3.82 ± 0.73	22.7 ± 2.6 <sup>d</sup>
Total	102.3 ± 7.1	99.7 ± 1.3	93.6 ± 2.7	100.0 ± 1.6

<sup>a</sup> 1 month and 1 year show time after inhalation of PuO<sub>2</sub>.

<sup>b</sup> The values are mean ± SD of 4 rats, and expressed as %IAD. (初期沈着量に対する割合(%))

<sup>c</sup> denotes significant difference from 1150°C at P < 0.005.

<sup>d</sup> P < 0.05.

(Sato, et.al, 1999)

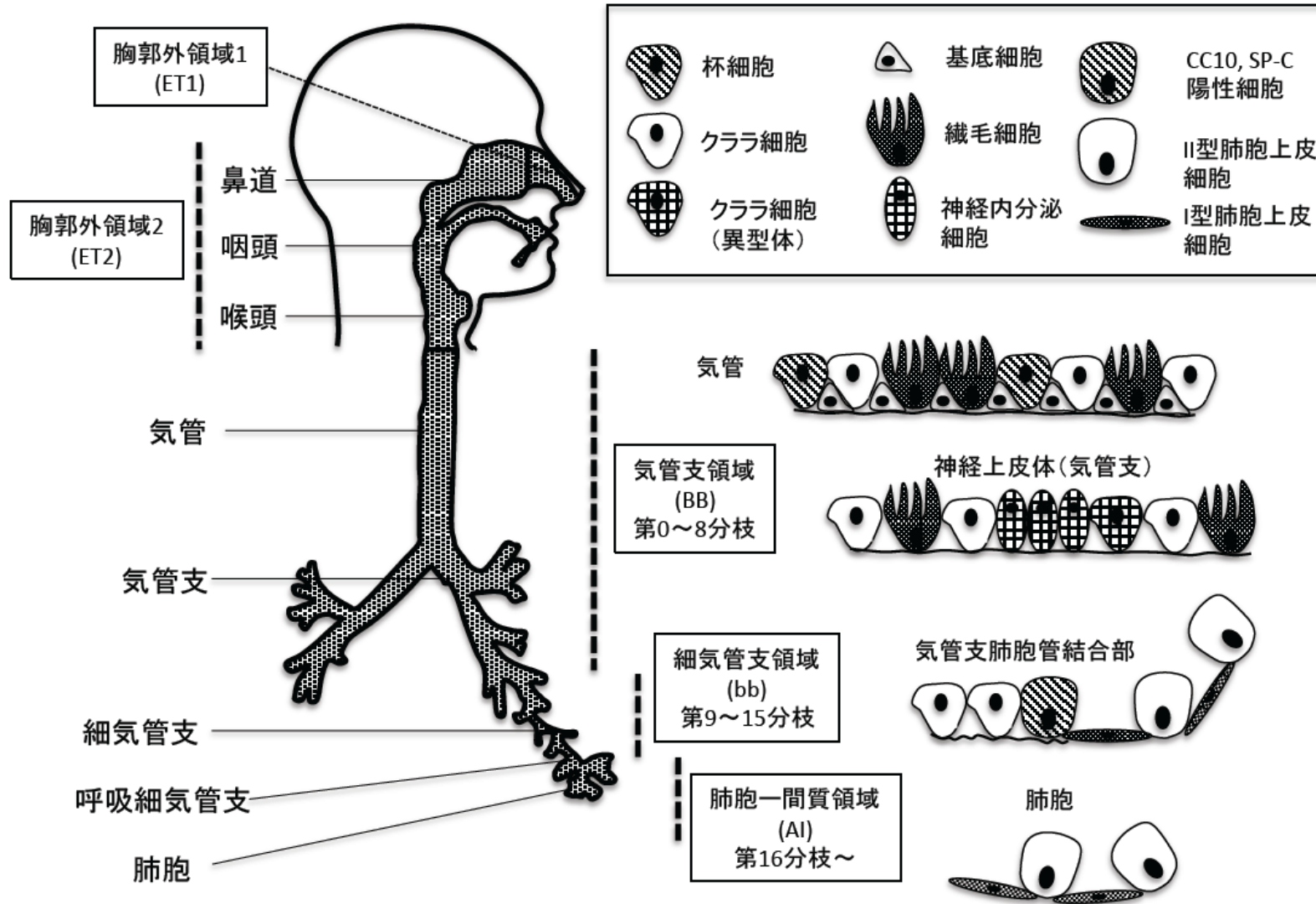
焼結温度が高いと肺内により滞留する

**放射線影響研究において、発がんに関与する細胞を同定することは、線量評価と生物学的観点から重要**

## **発がん標的細胞の定義**

- 1) 体内に沈着した核種により照射を受ける**
- 2) 増殖能をもつ**
- 3) 腫瘍においてみられるタイプの細胞に分化し得る**
- 4) 腫瘍形成に進行し得る細胞に形質転換する**

# 呼吸気道を構成する細胞



## 新呼吸気道モデルにおける胸郭領域の標的細胞

---

### 呼吸気道の分類

### 標的細胞

---

気管支(BB)領域

bronchial region

分泌細胞、基底細胞

secretory cell, basal cell

細気管支(bb)領域

bronchiolar region

分泌（クララ）細胞

secretory (Clara) cell

肺胞－間質(AI)領域

alveolar-interstitial region

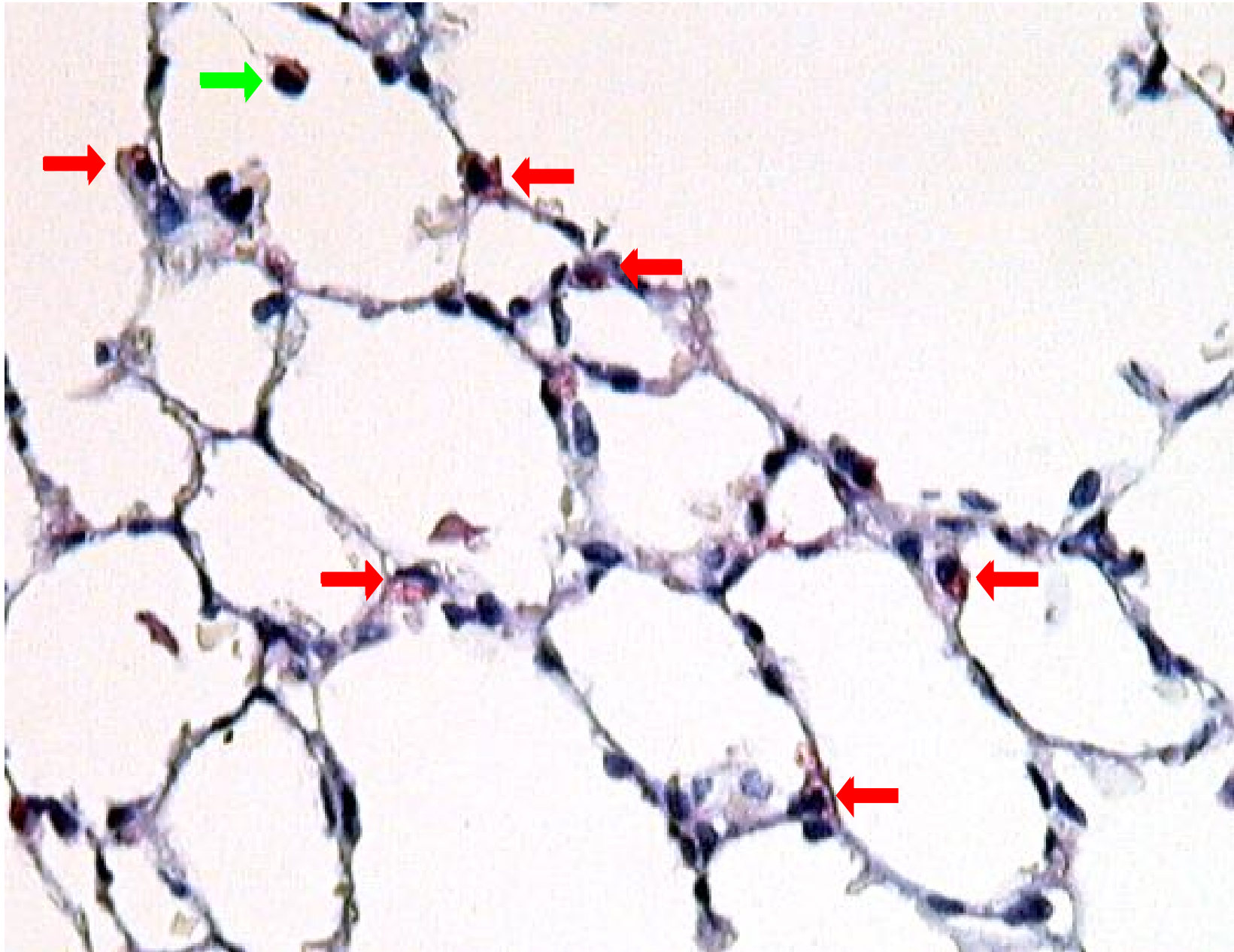
II型上皮細胞、分泌（クララ）細胞

type II cell, secretory (Clara) cell

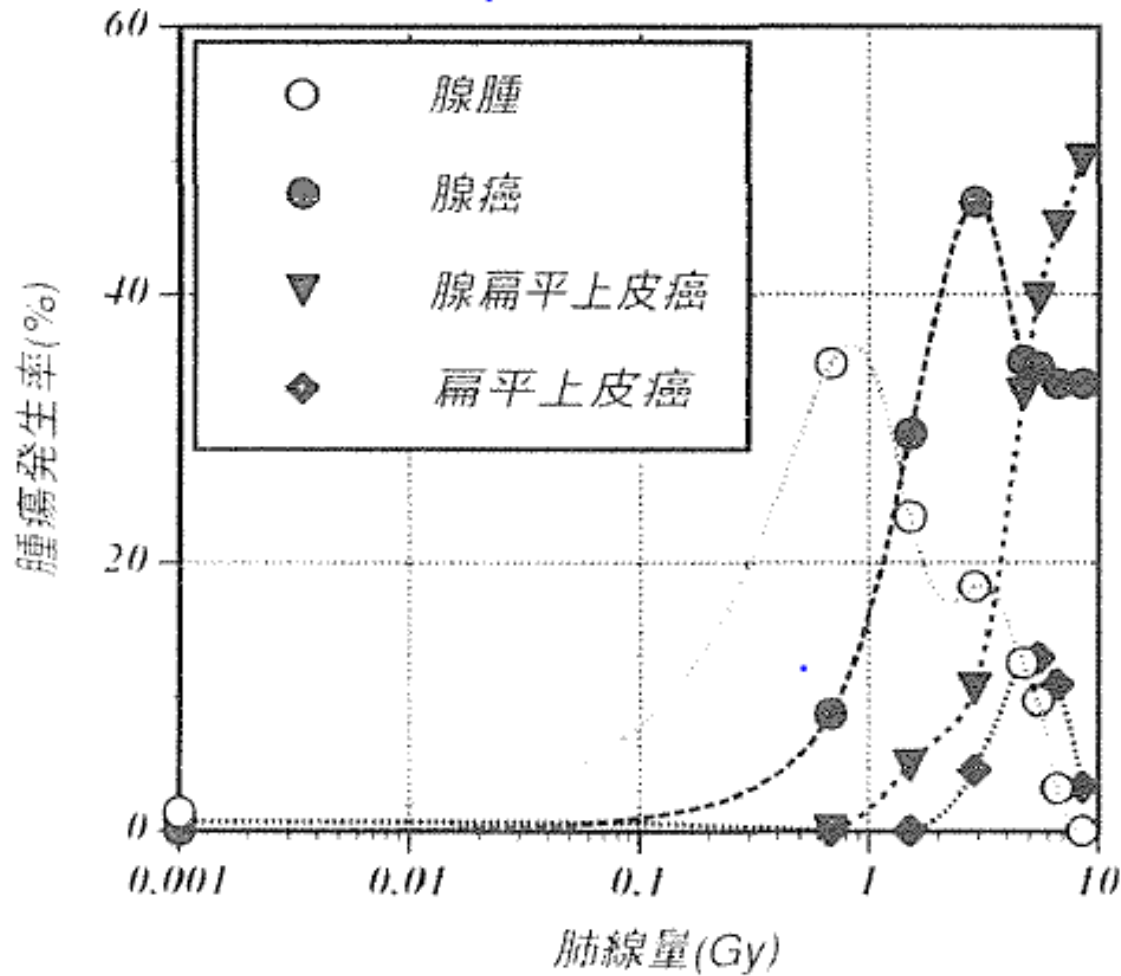
(SP-A) (CC-10)

---

# ラット肺胞におけるSP-A陽性Type II細胞



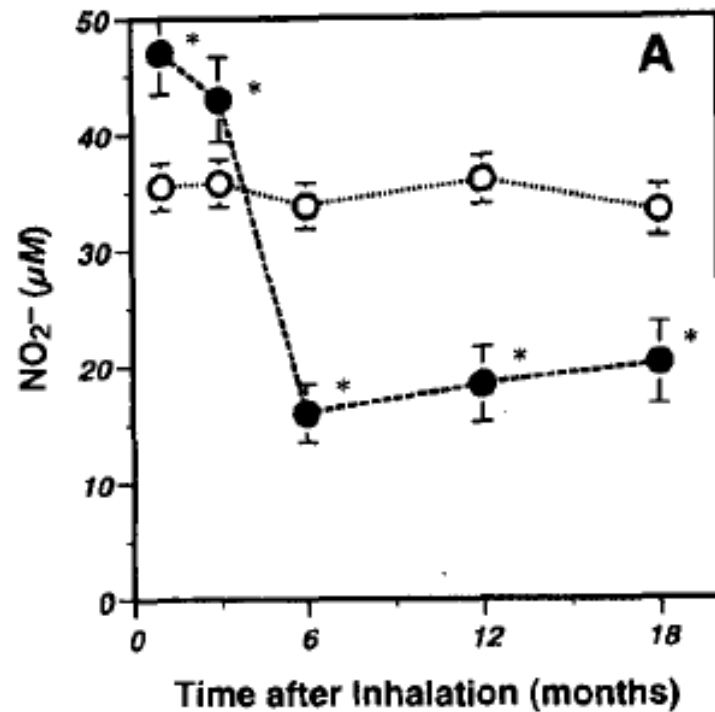
# 酸化プルトニウム吸入被ばくによる肺腫瘍の組織型と線量効果



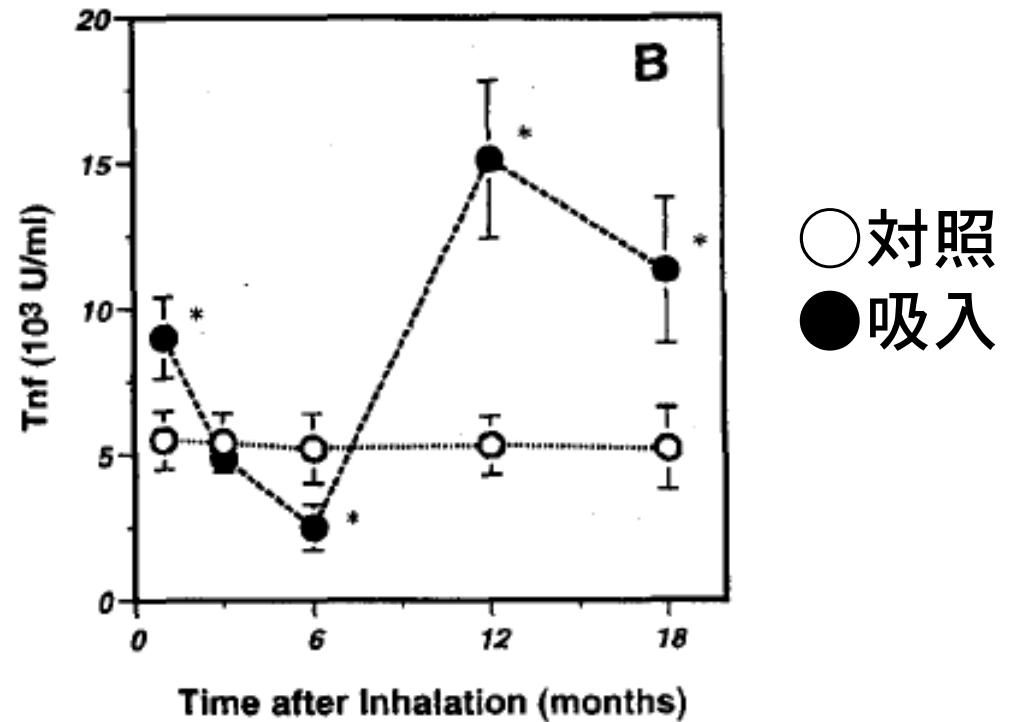
低線量で腺癌が生じ、線量が増えると扁平上皮癌が発生する

# 酸化プラトニウム粒子による肺胞マクロファージの機能変化

## 酸化窒素 (抗バクテリア作用等)



## 腫瘍壊死因子 (抗腫瘍作用)



吸入摂取後月数

(Oghiso and Yamada, 2000)

酸化プラトニウム粒子吸入により、肺胞マクロファージの機能が経時的に変化する。→発がん効果の修飾の可能性

## まとめ 2

### 粒子状放射性物質の吸入被ばく実験で考慮すべき事項

#### 1) 粒子の物理化学的性状

サイズ、放射活性、核種組成、化学型、生体内での溶解性

#### 2) 粒子の呼吸気道内分布

沈着・代謝、**肺胞マクロファージへの取り込み**

#### 3) 発がん標的細胞

呼吸気道の発がん標的細胞、発がんの修飾要因

→線量評価と生体影響に関与



### 3. 不溶性放射性セシウム粒子の被ばく

福島第一原発事故では、不溶性放射性セシウム粒子が放出されていたことがわかった。このような粒子は、これまでの事故では見つかっていない形態であり、**大きさは1から500ミクロン程度**であり、ガラス成分に放射性セシウムが含まれている。

水に溶けないため、環境中に長期間残留するとともに、吸入摂取すると呼吸気道内、特に肺内に長期間沈着し、そこで放射線を出すことにより近傍の細胞を照射し、急性障害やがんなどの晩発影響を起こすことが懸念される。

しかしながら、その影響が従来考えられてきた放射性セシウムの影響と異なるのか否かよく分かっていない。

そのリスクを推定するための手段の一つとして動物実験が有効であり、不溶性放射性セシウム粒子の肺における**分布、動態、線量評価**、および**病理組織変化**について実験動物を用いて調べることが重要である。

放射線健康管理・健康不安対策事業  
(放射線の健康影響に係る研究調査事業) 環境省

## 不溶性セシウム粒子による生物影響の解明に向けた 分野横断的共同研究

主任研究者	鈴木 正敏	東北大学 (細胞影響解析)
分担研究者	二宮 和彦	大阪大学 (粒子作製)
分担研究者	遠藤 暁	広島大学 (線量評価)
分担研究者	山田 裕	量子科学技術研究開発機構 (動物実験)

# 吸入された不溶性粒子の体内動態

	大部分	1%未満
呼吸気道から除去される機序	線毛運動クリアランス	肺胞マクロファージにより貪食され長期間滞留（一部溶解）
呼吸気道から除去された後の挙動	嚥下により消化管に入り糞便排泄	マクロファージごとリンパ節を通じて各組織へ移行し長期間滞留（溶解後の核種は血中に入り排泄）
体内滞留時間	短い	長い

- ・ 影響に関与するのは体内滞留が長い成分
- ・ 不溶性粒子の体内動態については十分なデータが無い
- ・ ICRP Publ.137 Cs吸入摂取タイプSモデルの妥当性

## THREE-YEAR RETENTION OF RADIOACTIVE CAESIUM IN THE BODY OF TEPCO WORKERS INVOLVED IN THE FUKUSHIMA DAIICHI NUCLEAR POWER STATION ACCIDENT

T. Nakano\*, K. Tani, E. Kim, O. Kurihara, K. Sakai and M. Akashi

Research Program for Radiation Dosimetry, National Institute of Radiological Sciences, 4-9-1 Anagawa Inage-ku, Chiba-shi 263-8555, Japan

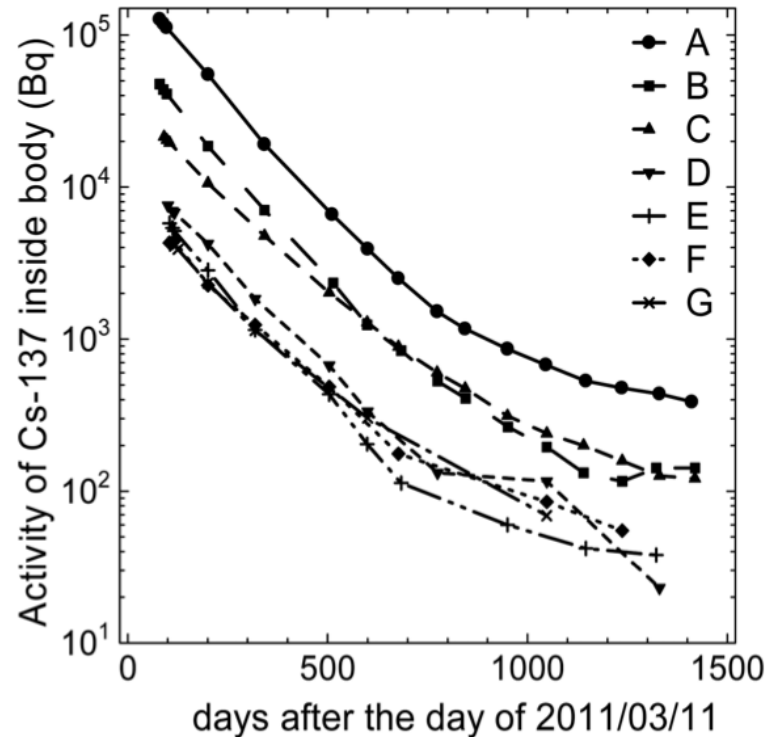


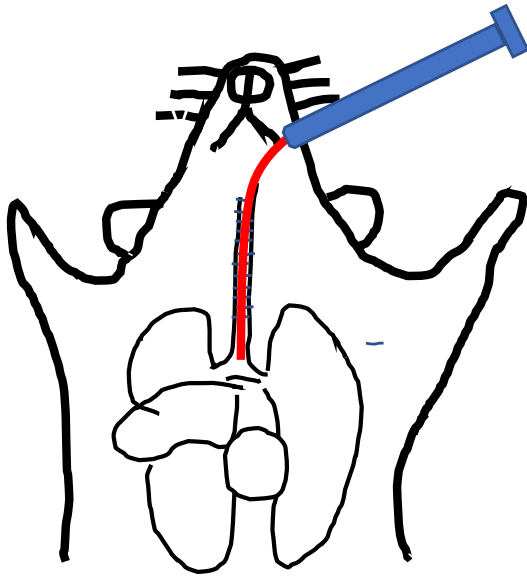
Figure 6. Body contents of <sup>137</sup>Cs as a function of time after the day of 11 March 2011.

- ・ 作業者のセシウム体内量を継続的にWBCで測定した結果、長期に残留する成分が観察される。  
(ただし、割合としてはごく少ない)
- ・ 最初の800日の半減期116日 (平均)。
- ・ 長期に残留している成分は、胸部に留まっていることが示唆される。

# 不溶性セシウム粒子の動物実験

## 1) 気管内投与

麻酔下で頸部皮膚切開し、気管を露出して気管内投与器具を挿入し、肺に人工的に作製した粒子懸濁液（非放射性、放射性）を直接噴霧して投与。



投与液をエアロゾル状に噴出するタイプのゾンデ（スプレーゾンデ）をシリンジに装着して使用。  
MicroSprayer (Penn-Century, Inc., Wyndmoor, PA)

### 検討項目

投与器具：スプレーゾンデ

投与用量・濃度・液量：10～200mg/kg体重、10～100mg/ml、1.0～2.0ml/kg体重

投与回数：一回

麻酔法：三種混合（腹腔内投与）、イソフルラン（吸入投与）

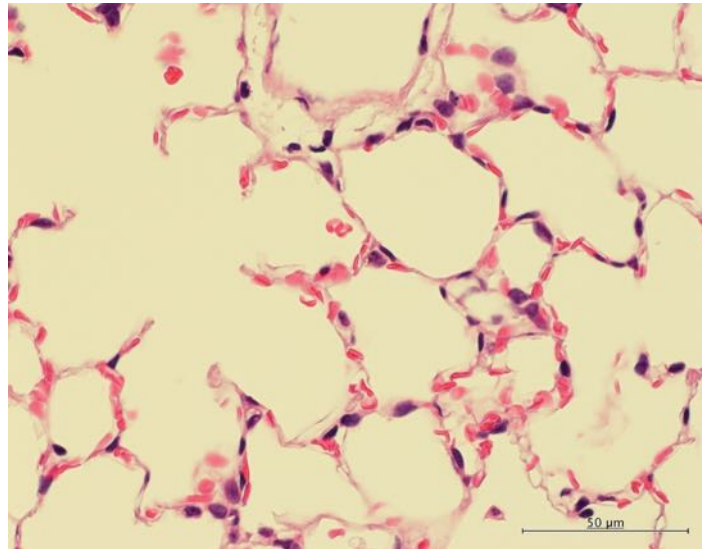
使用動物：Wistar 雌、8週齢（体重200～300g）

観察期間：気管内投与後、3、7、14、28、56日

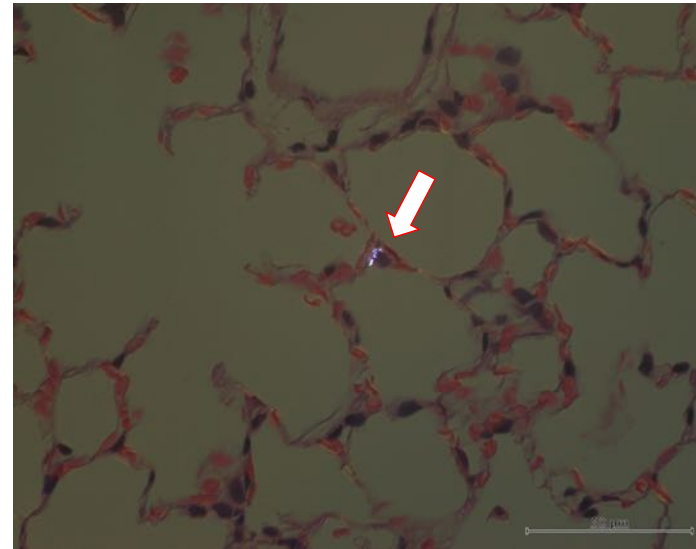
病理組織学的検査：全肺葉（左葉、右前葉、右中葉、右後葉、中間葉）

主要な気管支を含む面で組織切片標本を作製する

## 2) 不溶性セシウム粒子の肺における分布、動態



不溶性粒子投与 1 週間後の肺の組織標本を作製  
肺胞領域の組織像  
(ヘマトキシリン・エオジン染色)

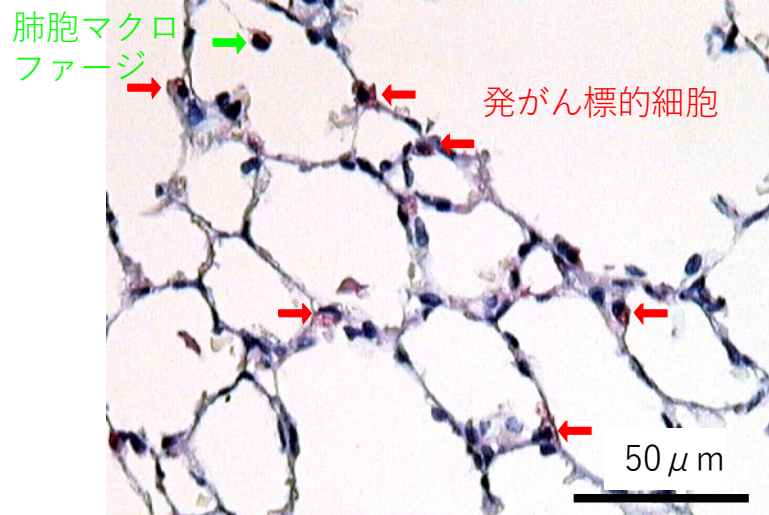


不溶性粒子を貪食した肺胞マクロファージ (矢印)  
(偏光顕微鏡写真)

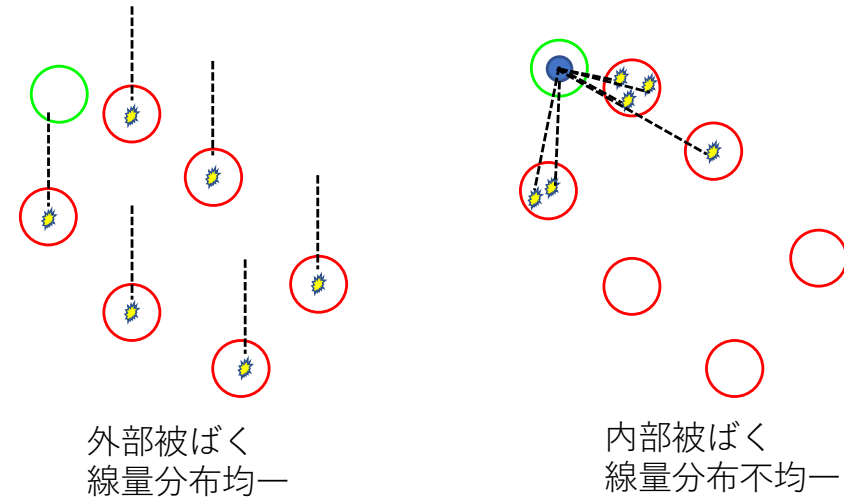
### 3) 不溶性放射性セシウム粒子の肺における線量評価

#### 肺胞領域の細胞

ラット肺胞におけるSP-A陽性TypeII細胞



#### 外部被ばくと内部被ばくの線量分布の違い



- ・ 放射性不溶性粒子による内部被ばくでは肺胞マクロファージが線源になる
- ・ 肺胞ではII型上皮細胞が発がん（腺腫・腺癌）の標的細胞である
- ・ 臓器での平均線量評価と細胞レベルでの微視的な線量評価の比較

### 4) 不溶性放射性セシウム粒子の発がん影響

- ・ 肺発がんのリスク分析に用いるモデル動物として有用なA/Jマウスを用いて中期発がん性試験をおこなう。短期間(16週間)で実施可能。
- ・ 放射性不溶性粒子気管内投与群、外部照射 (X線) 群、および化学発癌剤(NNK)によるイニシエート群を設定。
- ・ 線量効果関係



## まとめ 3

# 不溶性セシウム粒子の動物実験における課題

1. 肺内への摂取における分布、動態  
肺胞マクロファージの関与: 貪食や炎症反応の影響
2. 臓器、組織での線量評価  
臓器での平均線量か、細胞レベルでの微視的な線量か
3. 晩発影響の線量・効果関係  
肺がんの発生リスク  
外部被ばくと内部被ばくで、平均線量が同じであれば、  
リスクも同じか？

→研究継続中

ご清聴感謝いたします。

# エアロゾルと土壌放射性セシウム微粒子の比較、およびそれらの分布と運命

○唐 鵬<sup>1</sup>、畑中 恒太郎<sup>1</sup>、北 和之<sup>1</sup>、佐藤 志彦<sup>2</sup>、二宮 和彦<sup>3</sup>、  
篠原 厚<sup>3</sup>、足立 光司<sup>4</sup>、木名瀬 健<sup>4</sup>、五十嵐 康人<sup>1,5</sup>



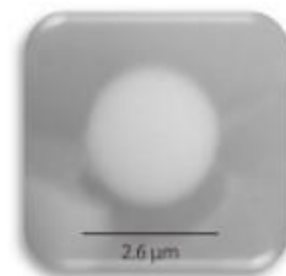
\*Corresponding author:

Kazuyuki Kita; E-mail: kazuyuki.kita.iu@vc.ibaraki.ac.jp; Tel: (81)29 228 8400

# 内 容

- 1 はじめに (Cs微粒子)
- 2 実験 (サンプリング/分離)
- 3 結果と考察 (土壌Cs微粒子の大気再飛散)
- 4 結論

# ▶はじめに：不溶性のCs含有粒子（タイプA）



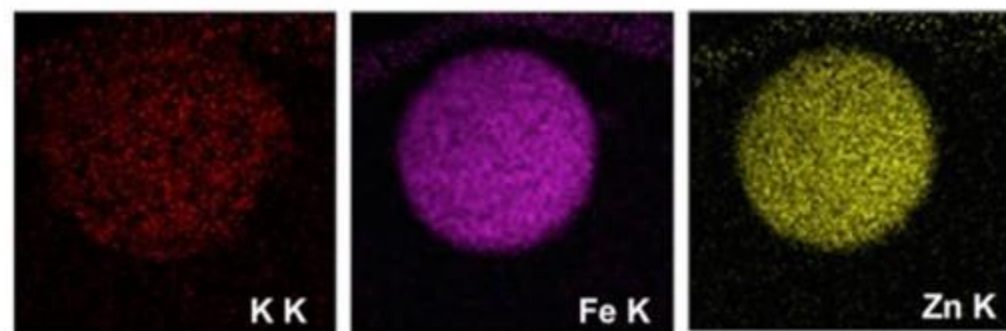
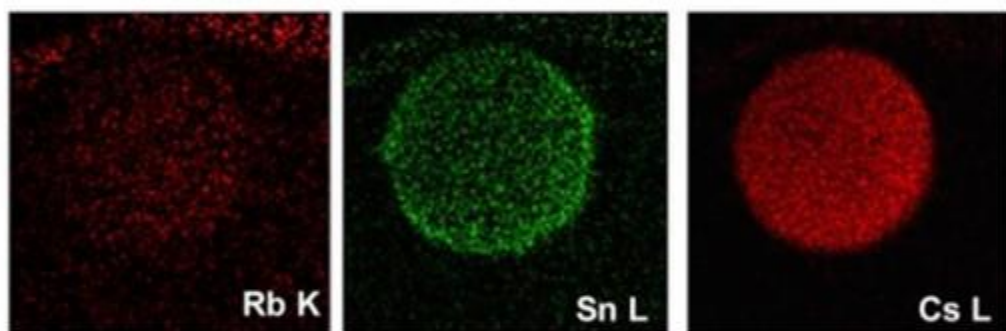
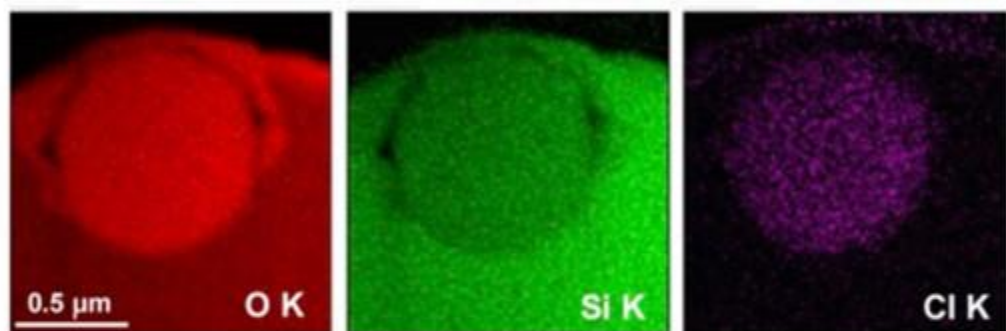
Adachi et al. 2013

水に触れる前

水にさらされた後



変化なし



- 1) Cs粒子
- 2) 不溶性
- 3) 別の物理化学的性質

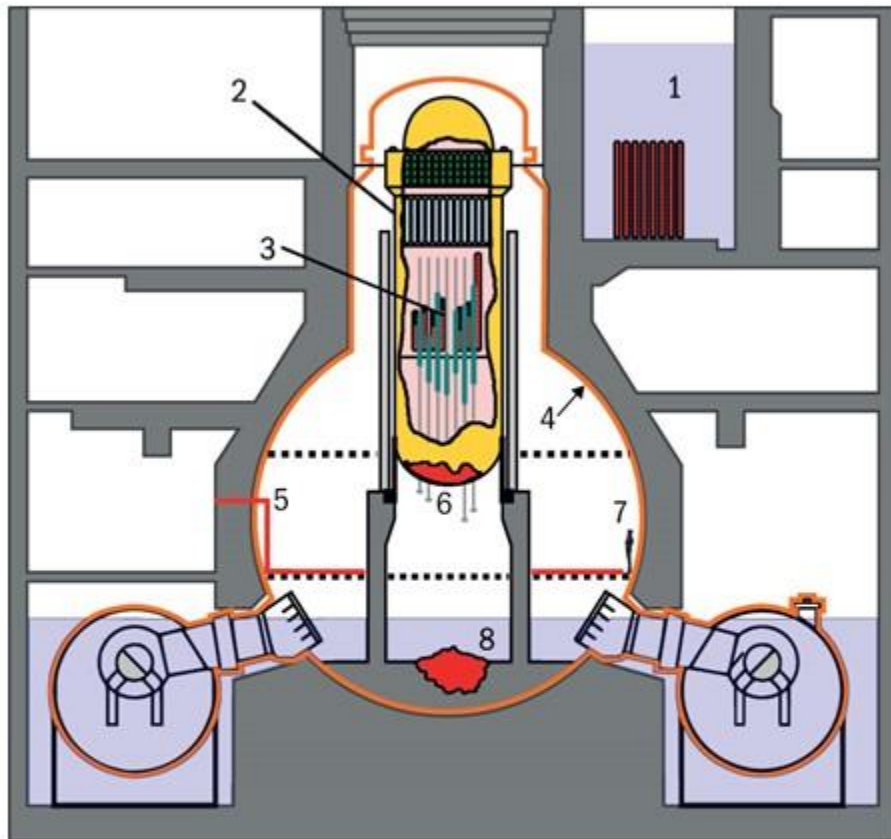
## Characteristics of Type A and Type B particles (Satou et al. 2018)

Characteristic	Particle type	
	Type A	Type B
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 (1 2 5Sb)
Distribution	wide	limited (North)
Suspected emission date	March 15, 2011	March 12, 2011
Source reactor(s)	Unit 2 or 3	Unit 1
Specific radioactivity	high	Low
Cs detection method of	SEM-EDS	synchrotron X-ray
Elements contained	Fe, Sn, Cl	Na, Mg, Ca, Ba
Elements in common		Si, O, Zn

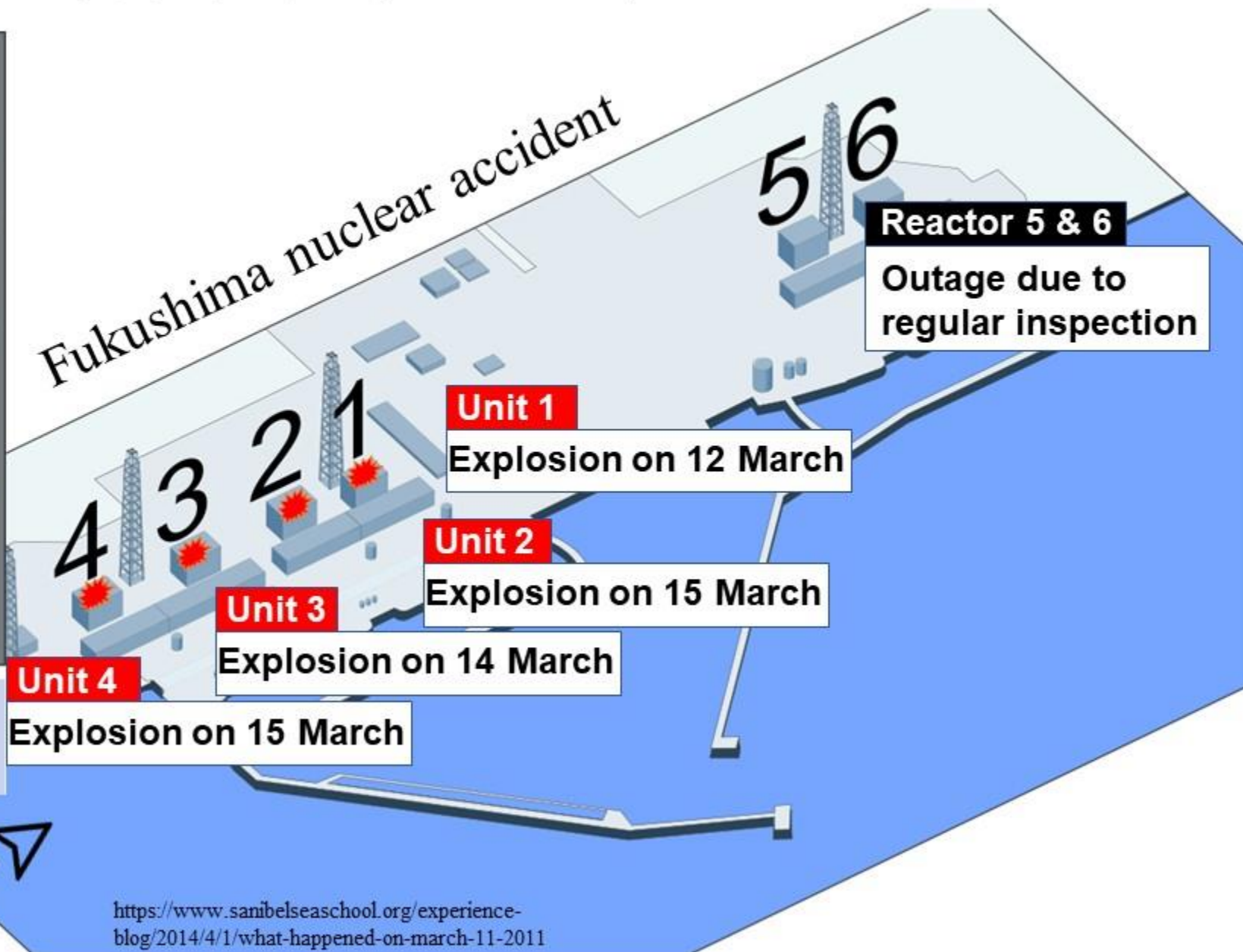
(Kogure et al. 2016)



▶はじめに：不溶性のCs含有粒子（タイプA）

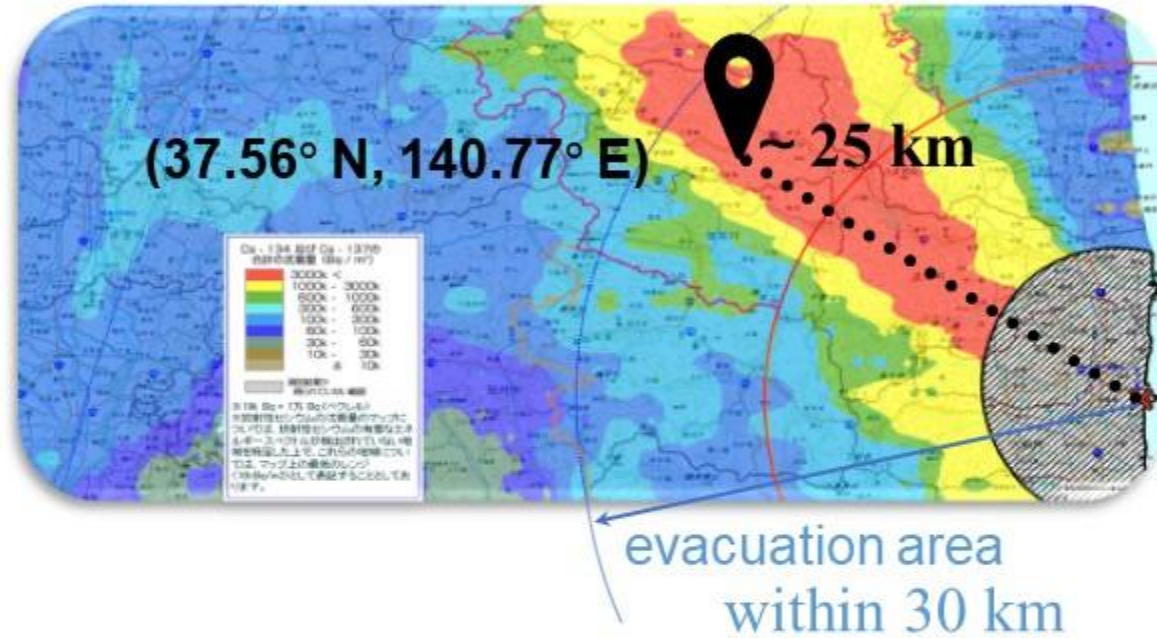


- |                                     |   |
|-------------------------------------|---|
| 1: Spent fuel pool                  | 5: Path of Hitachi shape-changing robot |
| 2: Reactor pressure vessel (RPV)    | 6: Damaged control rod drives           |
| 3: Damaged core assembly            | 7: Person for scale                     |
| 4: Primary containment vessel (PCV) | 8: Fuel debris/corium on basement floor |



# ▶ 実験 I : サンプルング (エアロゾル)

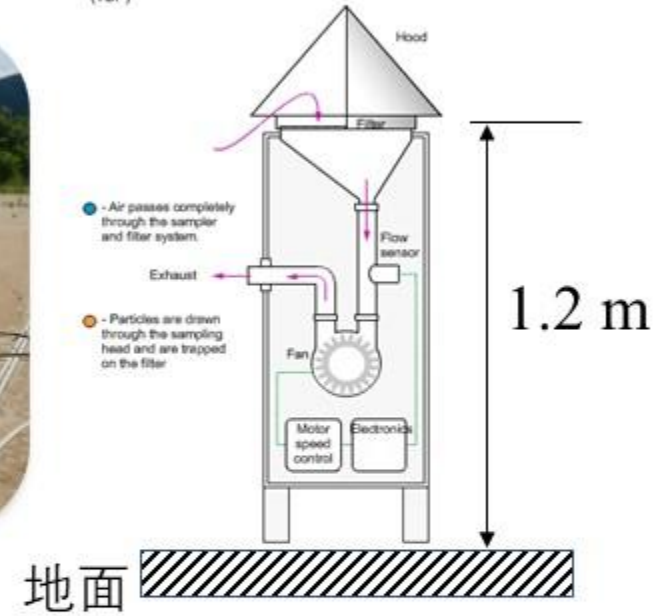
## サンプルング場所



## サンプルング装置



High volume sampler for Total Suspended Particulates (TSP)



## エアロゾルサンプラー

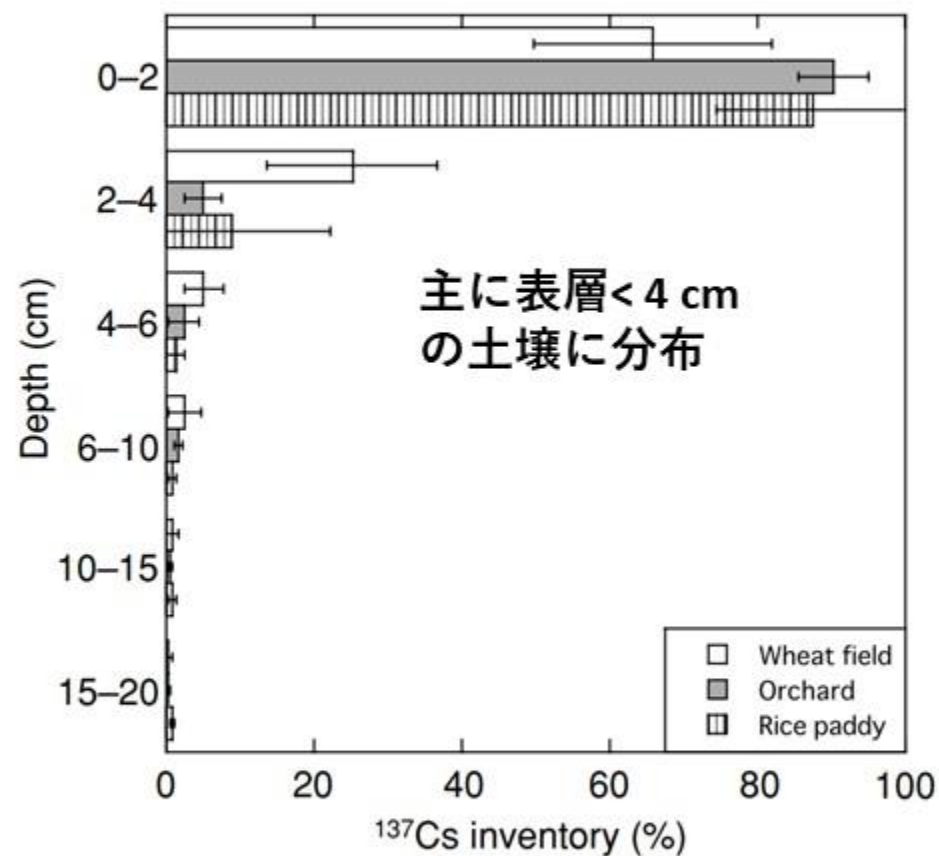
(120 SL, 柴田科学株式会社, HV-1000 R/F; 設定流量: ~ 0.7 m<sup>3</sup>/min)

石英繊維フィルター (2500QAT-UP, Pallflex, USA).

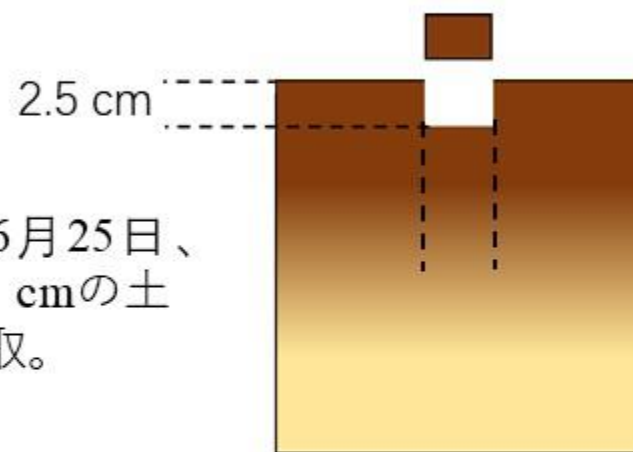
回収週期: 2日 - 4週 (2012年1月-2019年9月)



## ▶ 実験 I : サンプルング (表層土壌)



2016年6月25日、  
表層2.5 cmの土  
壌を採取。

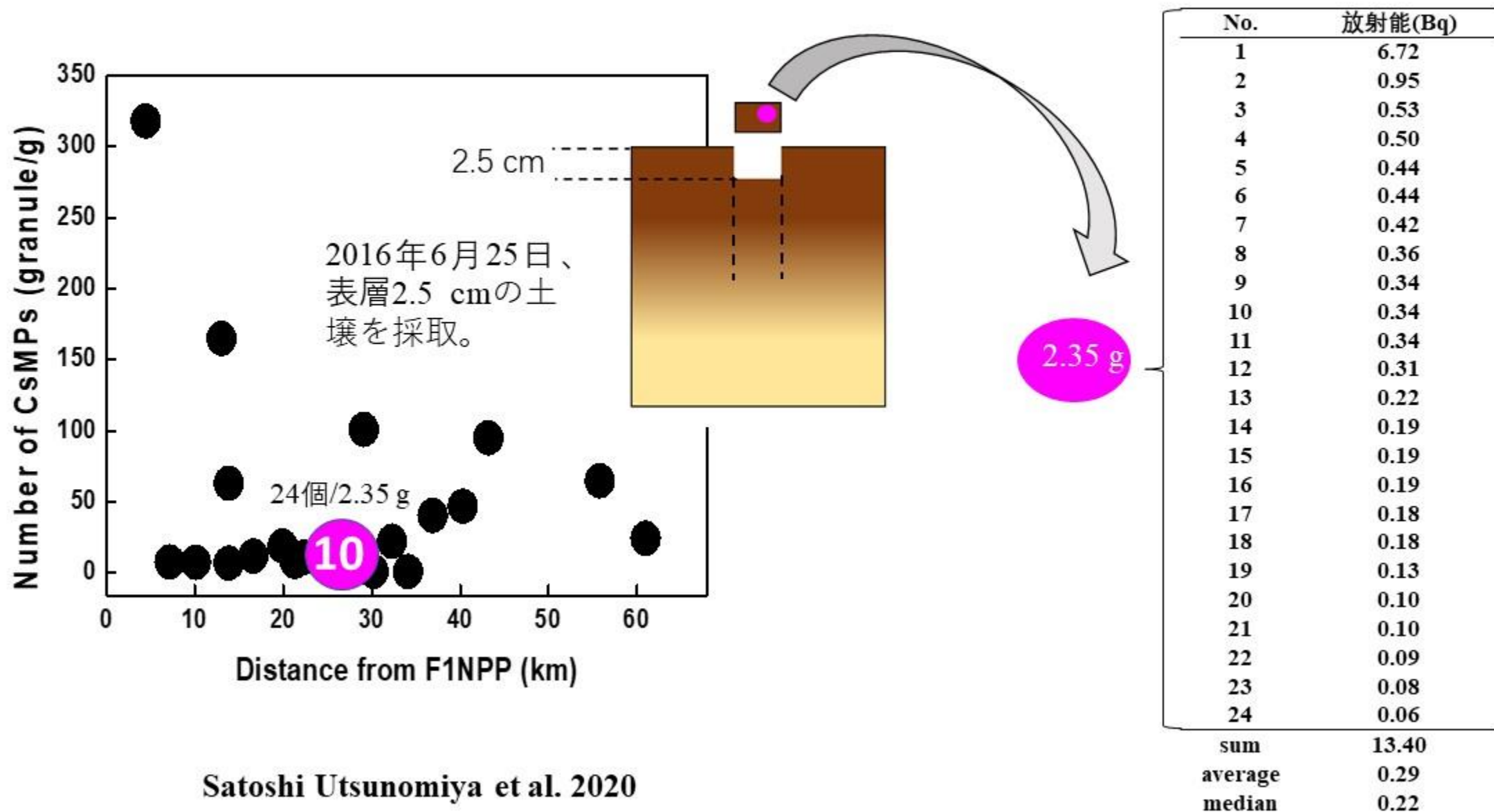


**Radiocesium concentration profiles in the soil**

**Shiozawa et al. 2011**

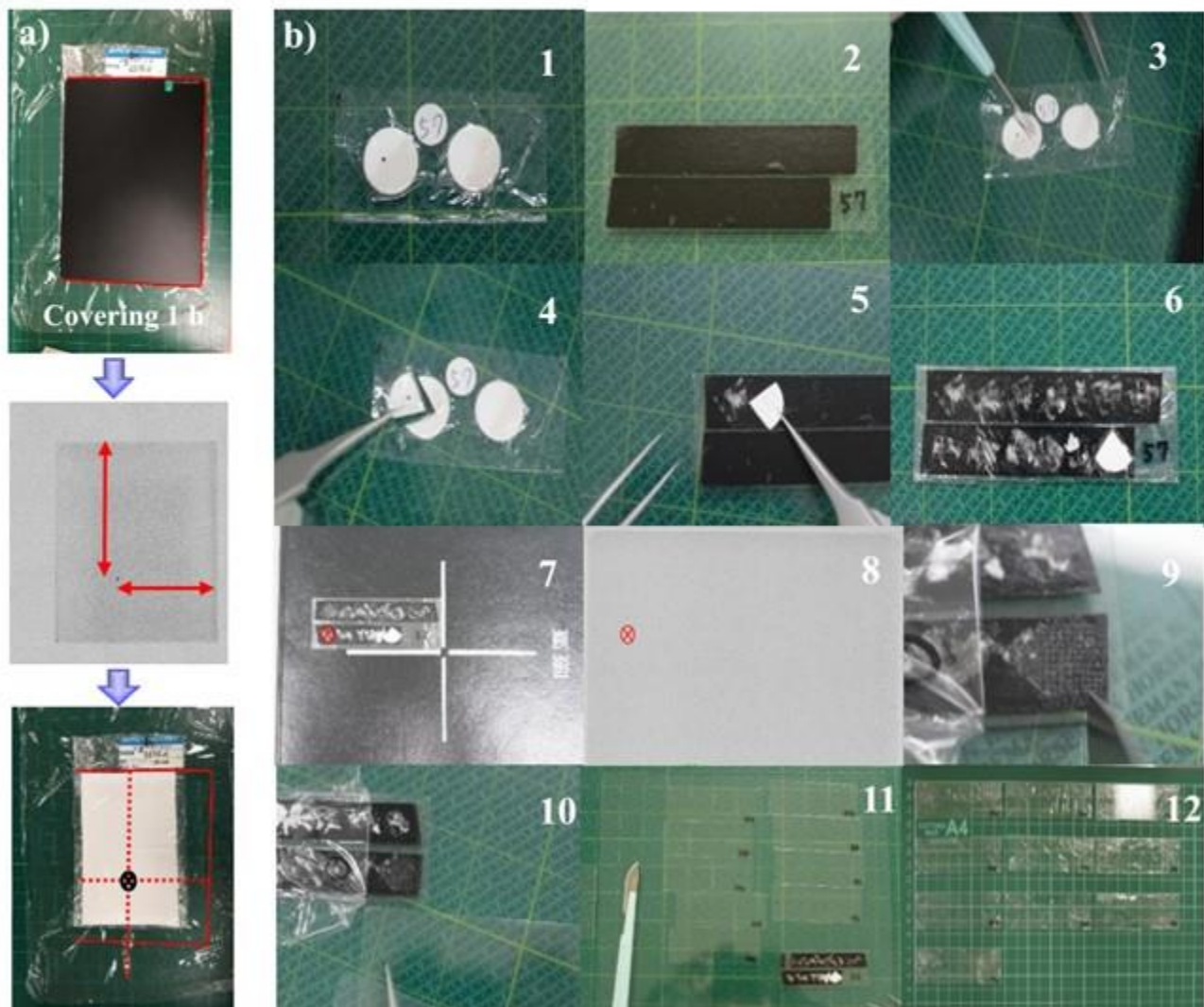


# ▶ 実験 I : サンプルリング (表層土壌)



# ▶ 実験 II : 分離/放射性検出/走査型電子顕微鏡SEM+元素分析EDS

## 1) 分離プロセスと放射能検出



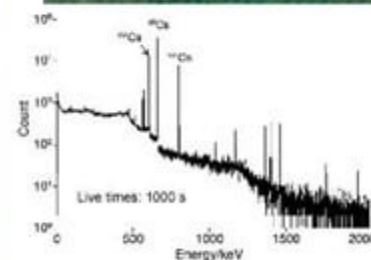
## 2) SEM+EDS observation

**形態**  
(サイズ+形状)  
**元素組成**  
(Cs/Si/O/Fe/Zn/U)



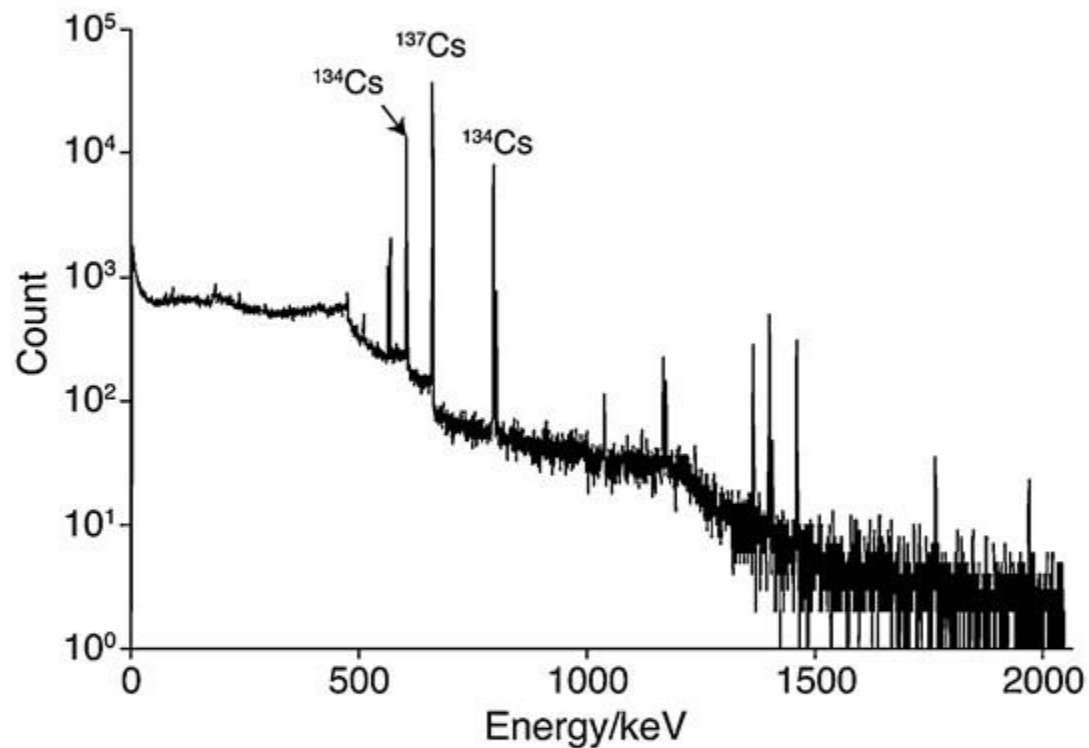
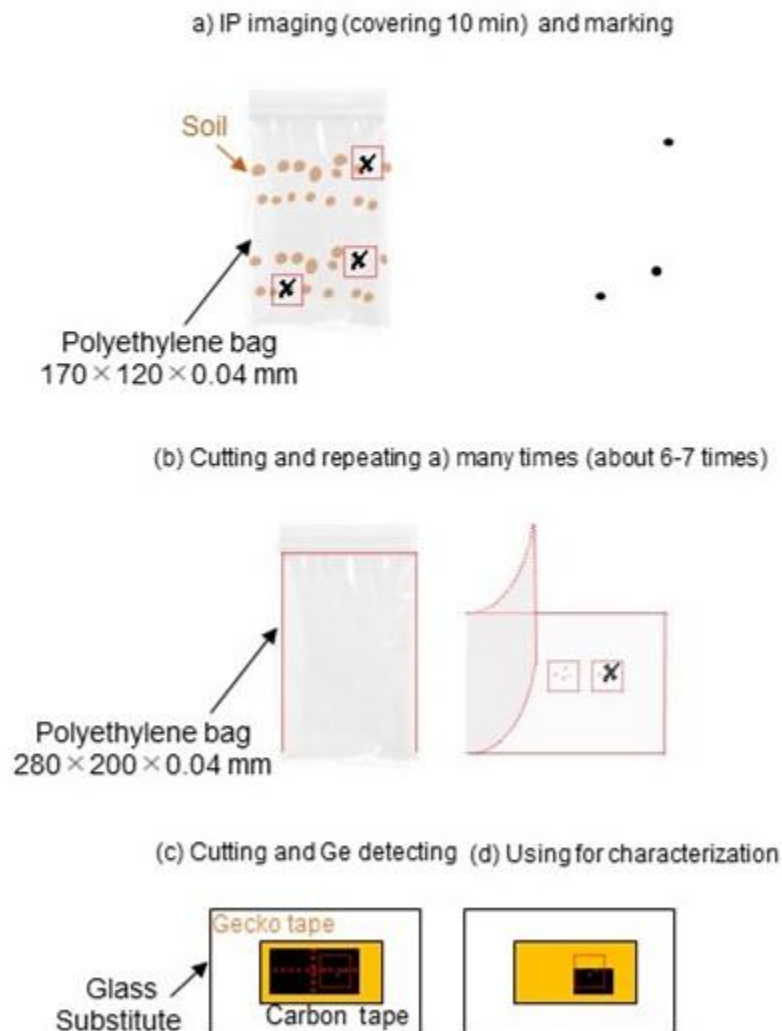
Figure 1 SEM分析前の放射性粒子分離。

- a) フィルターのIP画像取得
- b) フィルターのカットとカーボンテープ上での展開
- c) マニピュレータによる分割  
放射性粒子のあるフィルター分画は、各分画の放射能をGe検出器を使用して検出し、選別する



# ▶ 実験 II : 分離/放射性検出/走査型電子顕微鏡SEM+元素分析EDS

## 1) 土壌Cs含有粒子分離プロセス



$^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の放射能は、  
604.6 keVと661.6 keVで  
ガンマ線ピーク強度から特定



# ➤ 結果と考察 I : Cs放射性粒子の物理化学的特性

1) 形態    2) 平均直径  $D=1.8 \pm 0.5 \mu\text{m}$     3) 平均放射能 $^{137}\text{Cs}$  ( $0.35 \pm 0.23 \text{ Bq/個}$ ), Type A

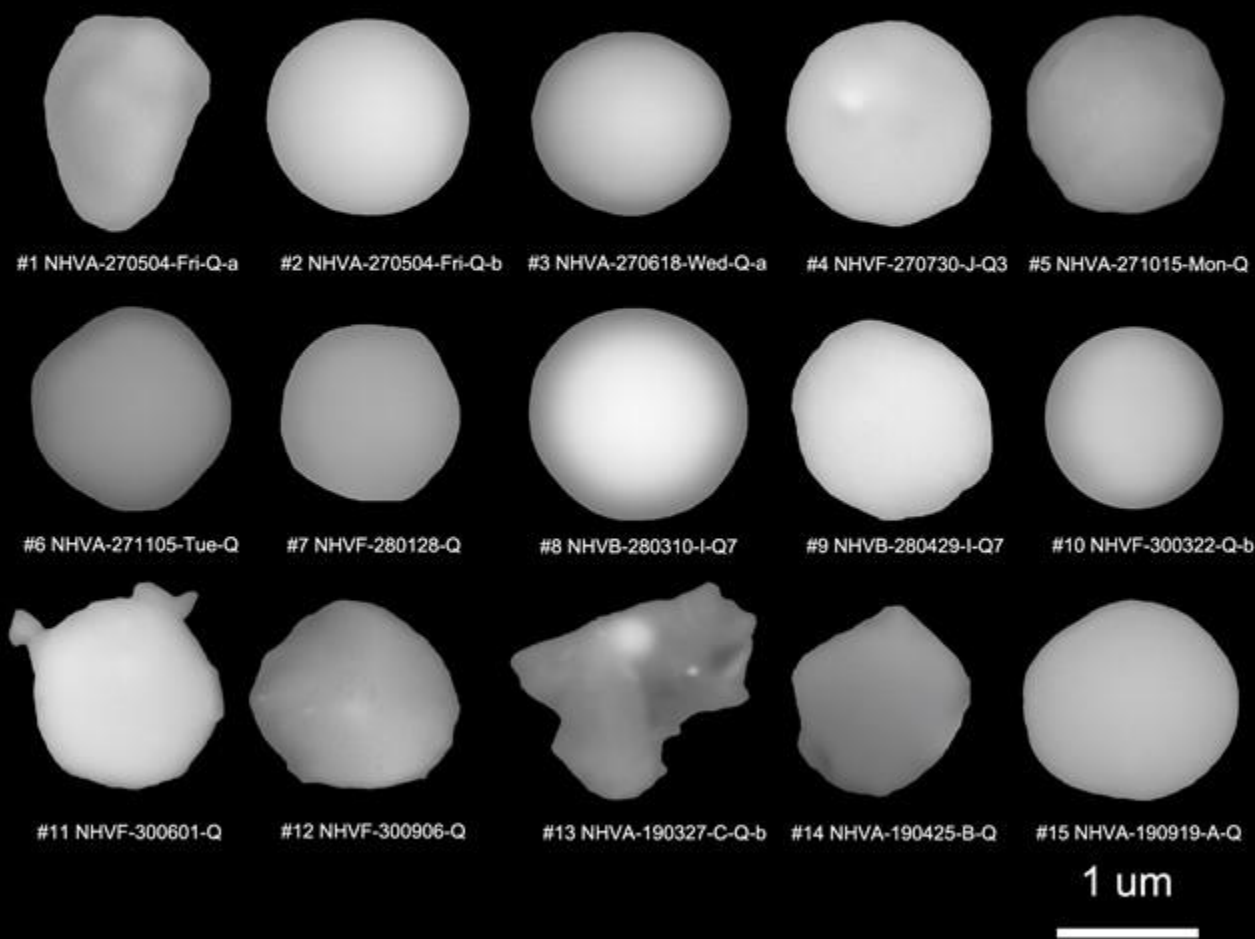


Figure 2 エアロゾルフィルターサンプルから分離された15個の単一のCs放射性粒子のSEM画像

4) 元素組成: Si/O/Fe/Zn/Cs/U

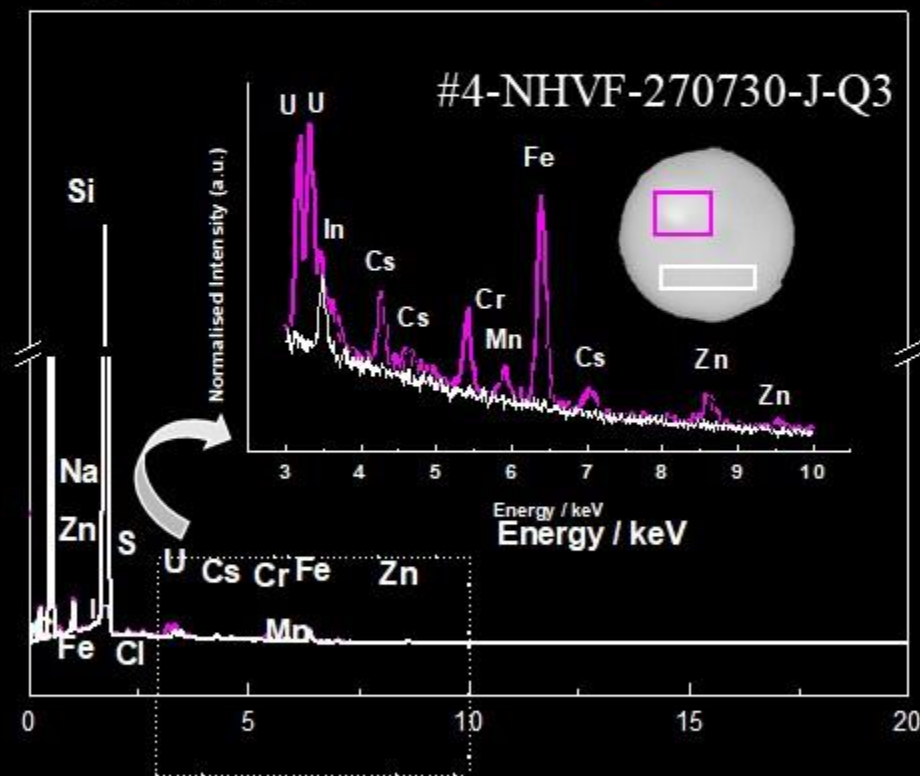


Figure 3 #4-NHVF-270730-J-Q3のEDS.  
(紫色の領域はウランの存在を確認)

# ➤ 結果と考察 II：エアロゾルと土壌放射性Cs放射性粒子の比較

1) 形態 2) 平均直径  $D=1.8 \pm 0.5 \mu\text{m}$  3) 平均放射能 $^{137}\text{Cs}$  ( $0.35 \pm 0.23 \text{ Bq/個}$ ), Type A

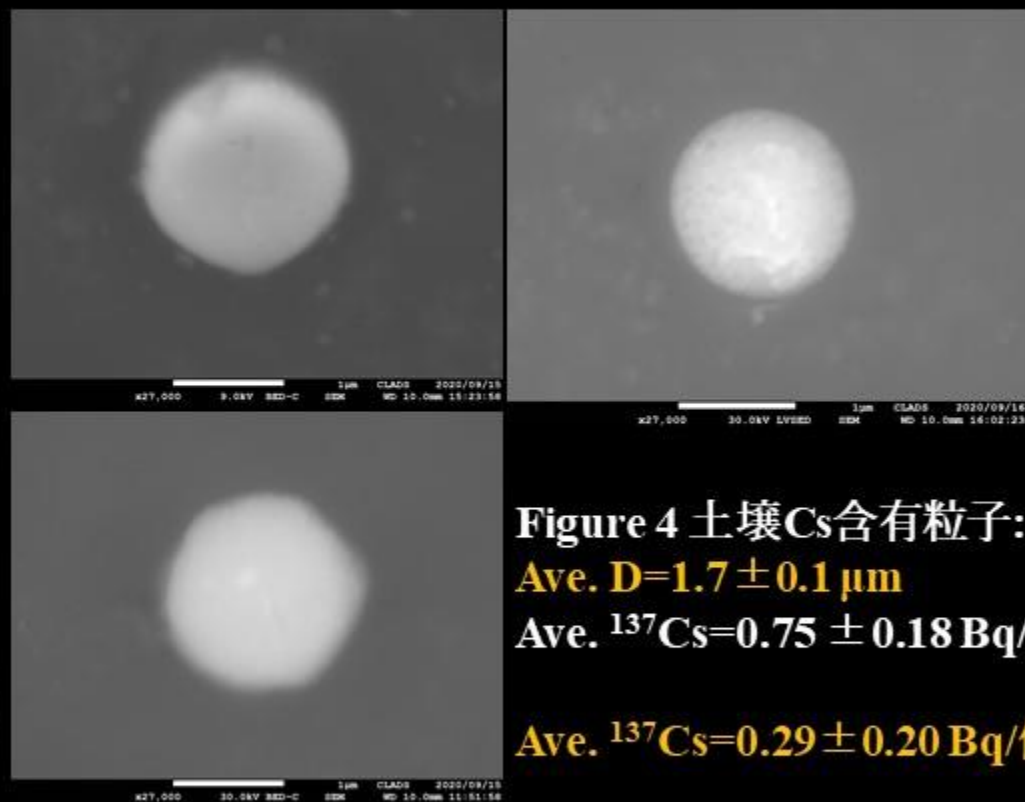
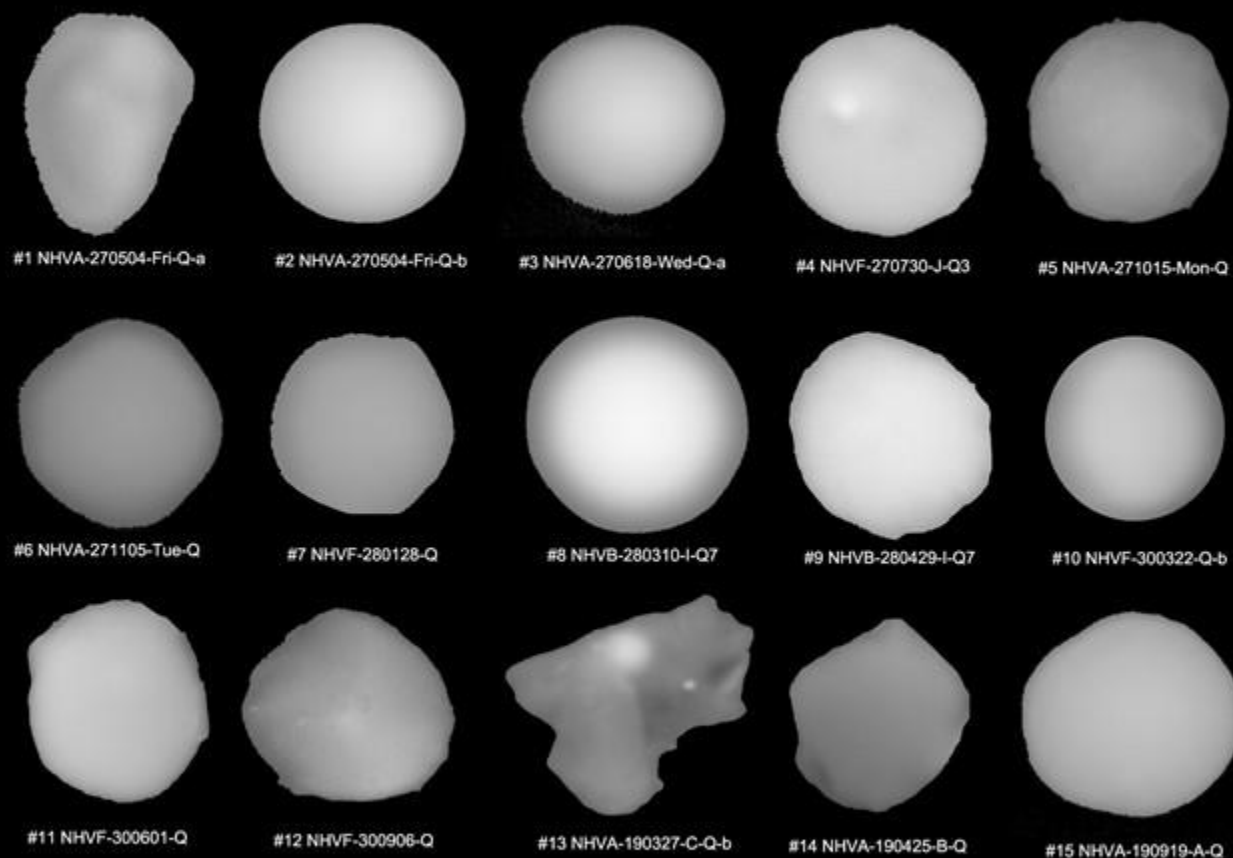


Figure 4 土壌Cs含有粒子:  
Ave.  $D=1.7 \pm 0.1 \mu\text{m}$   
Ave.  $^{137}\text{Cs}=0.75 \pm 0.18 \text{ Bq/個}$ (3個)  
Ave.  $^{137}\text{Cs}=0.29 \pm 0.20 \text{ Bq/個}$ (24個)

Figure 2 エアロゾルフィルターサンプルから分離された15個の単一のCs放射性粒子のSEM画像

エアロゾルCs粒子は、土壌Cs粒子の大気再飛散によって生成される



# ➤ 結果と考察 III：Cs放射性粒子の直接大気再飛散



福島第一原子力原発

Adachi et al. 2013;  
Abe et al. 2014

Katsumi Hirose 2012

この研究

Figure 5 Cs放射性粒子の直接大気再飛散

本研究では、無人状態でのサンプリングかつダスト放出イベントの報告されていない期間でも大気粒子中にCs粒子を検出→自然に起こった再飛散

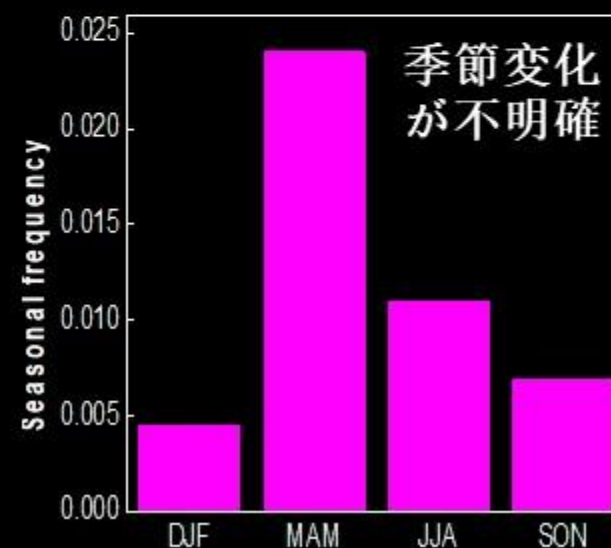
➤ 結果と考察 III：放射性Cs粒子の再飛散の寄与率 =  $\frac{[^{137}\text{Cs per particle}]}{[^{137}\text{Cs in filter}]} \times 100\%$

表 1. 15個の分離された不溶性の放射性Cs粒子の情報

No.	Sample name	<sup>137</sup> Cs [Bq] per particle	<sup>137</sup> Cs [Bq] in filter	Contribution ratio of resuspension	D / μm
1	NHVA-270504_Fri-Q-a	0.18	2.03	8.7%	1.2
2	NHVA-270504_Fri-Q-b	0.41	2.03	20.1%	2
3	NHVA-270618_Wed-Q-a	0.13	1.53	8.6%	1.7
4	NHVF-270730-J-Q3	0.38	2.44	15.7%	1.2
5	NHVA-271015_Mon-Q	0.36	1.77	20.5%	2.5
6	NHVA-271105_Tue-Q	0.13	1.61	8.3%	1.9
7	NHVF-280128-Q	0.17	0.84	20.6%	1.8
8	NHVB-280310-I-Q7	0.67	1.36	49.5%	1.4
9	NHVB-280429-I-Q7	0.52	1.91	27.0%	1.8
10	NHVF-300322-Q-b	0.17	1.16	15.0%	1.5
11	NHVF-300601-Q	0.87	1.73	<b>50.6% 最大値</b>	2
12	NHVF-300906-Q	0.18	3.55	<b>5.0% 最小値</b>	1.4
13	NHVA-190327-C-Q-b	0.17	0.65	25.6%	3
14	NHVA-190425-B-Q	0.60	1.36	43.9%	2
15	NHVA-190919-A-Q	0.36	0.90	39.2%	1.2
Average value		0.35	1.67	23.9% 平均値	<b>1.8</b>
Median		0.36	1.61	20.5%	<b>1.8</b>

## ➤ 結果と考察 III：再飛散の季節及び年次変動

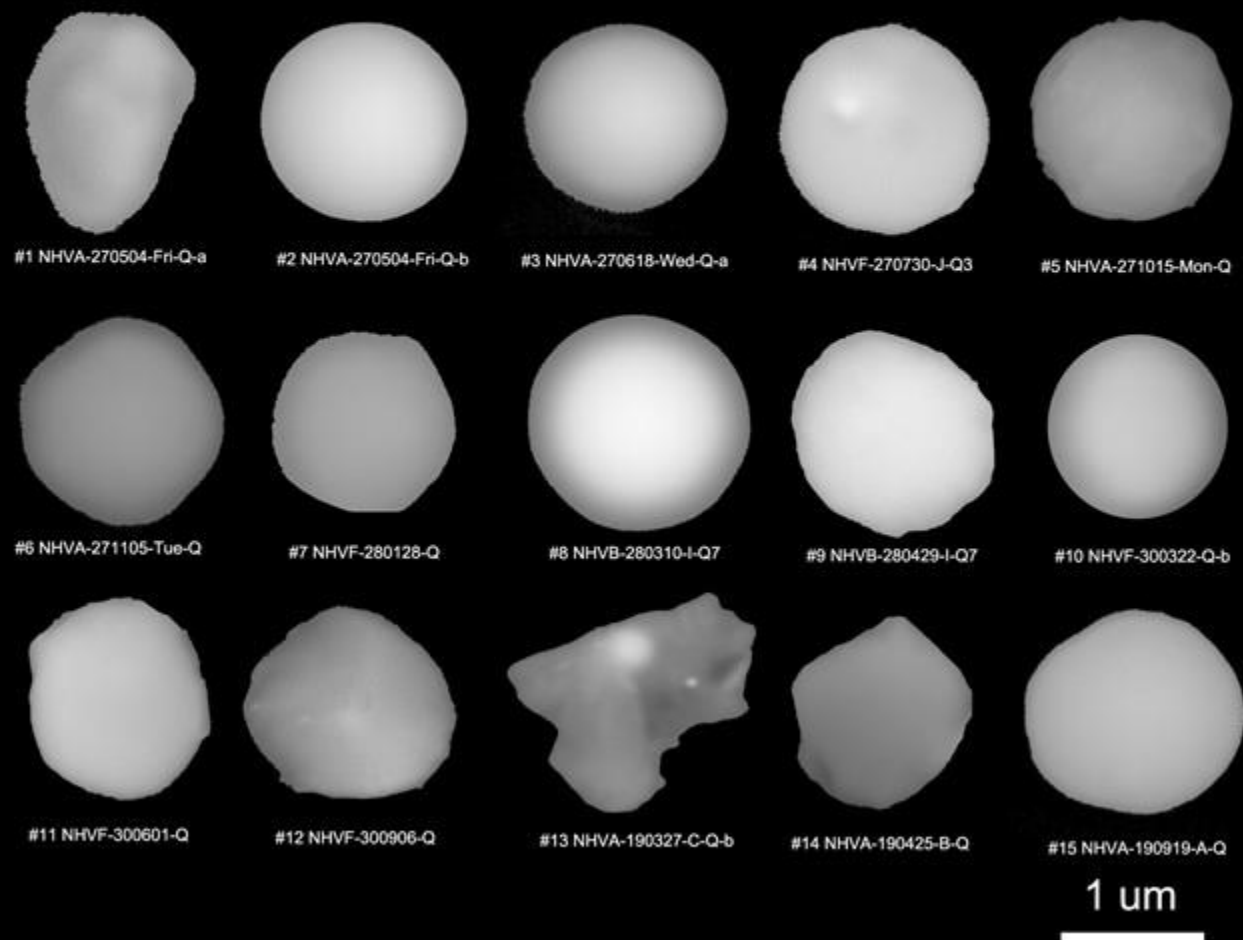
		Jan.	Feb.	Mar.	Apr.	May.	Jun.	Jul.	Aug.	Sep.	Oct.	Nov.	Dec.	Total	yearly frequency	
2015	Number of CsMPs	0	0	0	0	2	1	1	0	0	2	0	0	6	$2.1 \times 10^{-2}$ granule·day <sup>-1</sup>	
	Sampling period/days	18	0	14	14.5	31	30	31	31	30	31	29	31	290.5		
2016	Number of CsMPs	1	0	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	3		$8.5 \times 10^{-3}$ granule·day <sup>-1</sup>
	Sampling period/days	31	29	31	30	31	30	31	31	30	31	30	17.5	352.5		
2018	Number of CsMPs	0	0	1	0	1	0	0	1	0	0	0	0	3	$8.7 \times 10^{-3}$ granule·day <sup>-1</sup>	
	Sampling period/days	12.5	28	31	30	31	30	31	31	30	31	30	31	346.5		
2019	Number of CsMPs	0	0	1	1	0	0	0	1	0	0	0	0	3		$1.3 \times 10^{-2}$ granule·day <sup>-1</sup>
	Sampling period/days	23.5	0	30.5	30	31	30	31	31	18.5	0	0	0	225.5		
Dec.-Feb. (DJF)	Number of CsMPs	1													$4.5 \times 10^{-3}$ granule·day <sup>-1</sup>	
	Sampling period/days	221.5														
Mar.-May (MAM)	Number of CsMPs	8														$2.4 \times 10^{-2}$ granule·day <sup>-1</sup>
	Sampling period/days	335														
Jun.-Aug. (JJA)	Number of CsMPs	4													$1.1 \times 10^{-2}$ granule·day <sup>-1</sup>	
	Sampling period/days	368														
Sep.-Nov. (SON)	Number of CsMPs	2														$6.9 \times 10^{-3}$ granule·day <sup>-1</sup>





# ➤ ディスカッションI：Cs粒子の長距離移行の可能性

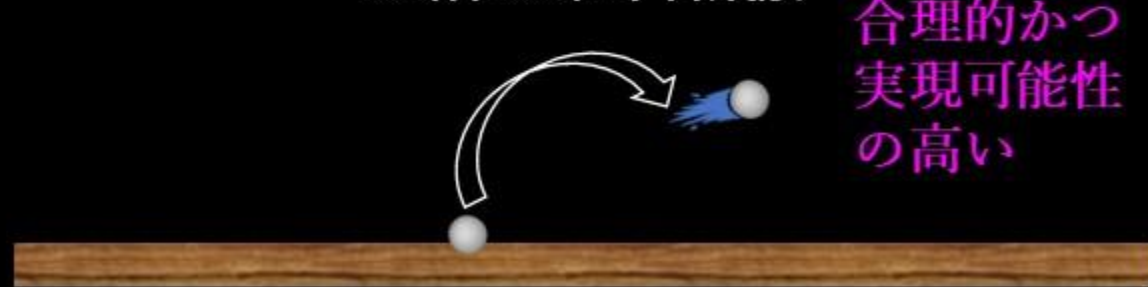
平均直径  $D=1.8 \pm 0.5 \mu\text{m}$



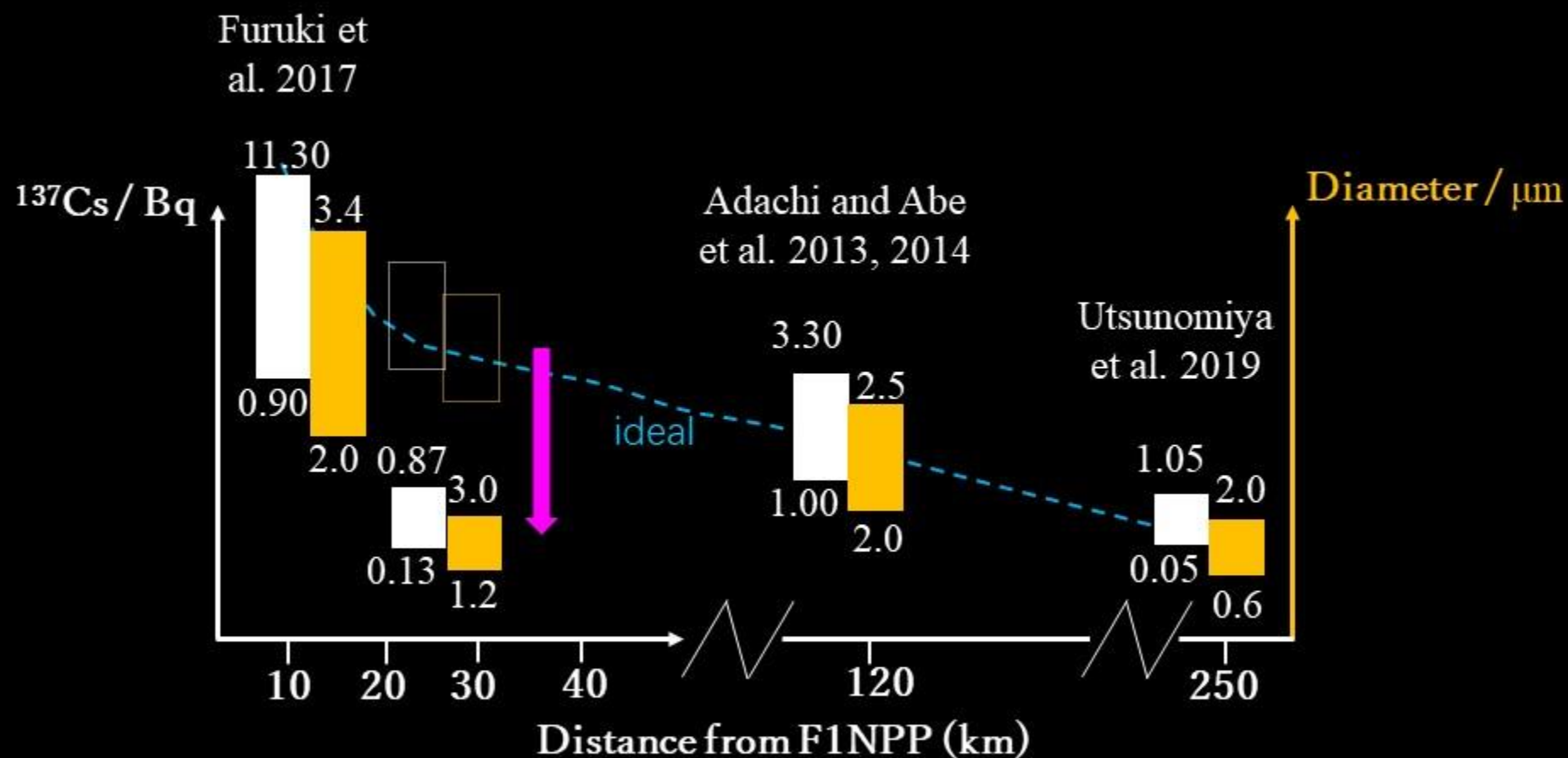
Hudson による土粒子の運搬距離 (Hudson, 1973)

土粒子の直径 (mm)	運搬距離
0 - 1	数メートル
1-0.125	1-1.5 km
0.125-0.0625	数キロメートル
0.0625-0.0312	300 km 以上
0.0312-0.0156	1 500 km 以上
<b>0.0156以下</b>	<b>無限長</b>

放射性Cs粒子再飛散



## ➤ ディスカッションII:自然環境におけるCs粒子の崩壊(環境運命)



自然環境におけるCsMPsの崩壊は重要なプロセスであるはずであり、それを明らかにするにはさらなる研究が必要であると考えています。

## ➤ 結論

1-i) **15個**のエアロゾルCs粒子の取得に成功:

平均直径:  **$D=1.8 \pm 0.5 \mu\text{m}$** ,

$^{137}\text{Cs}$ の平均放射能:  **$0.35 \pm 0.23 \text{ Bq/個}$**

すべての粒子は **Type A**

1-ii) 現在**3個**の土壤Cs粒子のSEM-EDS:

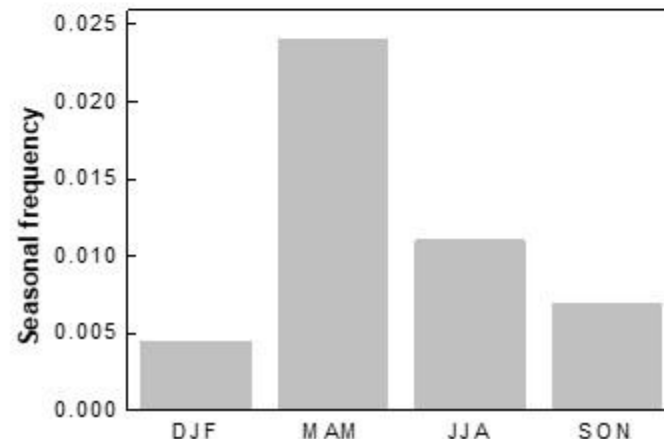
平均直径:  **$D=1.7 \pm 0.1 \mu\text{m}$** ,

$^{137}\text{Cs}$ の平均放射能:  **$0.29 \pm 0.20 \text{ Bq/個 (24個)}$**

すべての粒子は **Type A**

2) 大気中の放射性Csの変化が不溶性の土壤Cs粒子の**自然な**再飛散に起因する可能性があることが**初めて確認された**。

3) 不溶性放射性Cs粒子による大気中の $^{137}\text{Cs}$ の再飛散の平均寄与率は、 **$\sim 23.9\% \pm 15.3\%$** と推定された。



季節変化が有意か明確でないが、主な粗大エアロゾルが土壤粒子である春季 (**Kinase et al., 2018**) に、Cs粒子の飛散検出が多い。



Thank you

2020年12月24日(木)  
京都大学複合原子力科学研究所 専門研究会  
「福島原発事故で放出された放射性物質の多面的解析」

# 1号機由来放射性粒子と プルーム軌跡の探索

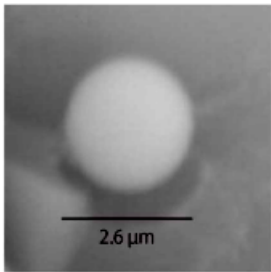
東京慈恵会医科大学  
アイソトープ実験研究施設

箕輪はるか

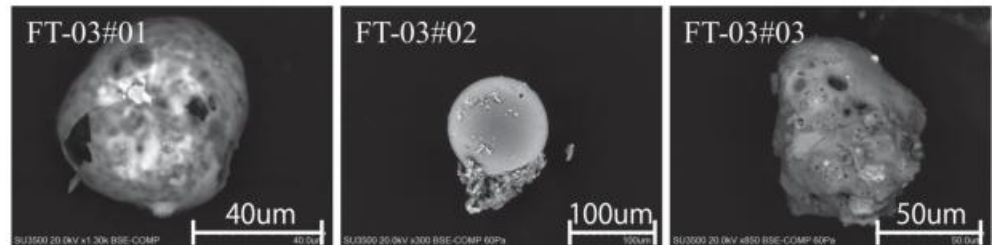
吉川英樹

# 不溶性放射性粒子

- 放射性物質を高濃度で含む不溶性の粒子(いわゆる“セシウム・ボール”)
- 事故時に原子炉内あるいは原子炉建屋内で生成し、環境中に放出された。
- 事故の初期(2011年3月12~15日頃)に放出されたと考えられる。
- セシウム同位体比を精密に測定することにより、1号炉( $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} < 1$ )または、2か3号炉( $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} > 1$ )の起源原子炉の区別が可能である。



Type A Adachi K., et. al,  
Scientific Report 2013



Type B Satou Y., et.al,  
Geochemical Journal 2018

## 事故時のセシウム同位体比

1号炉  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = 0.94$

2号炉  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = 1.08$

3号炉  $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} = 1.04$

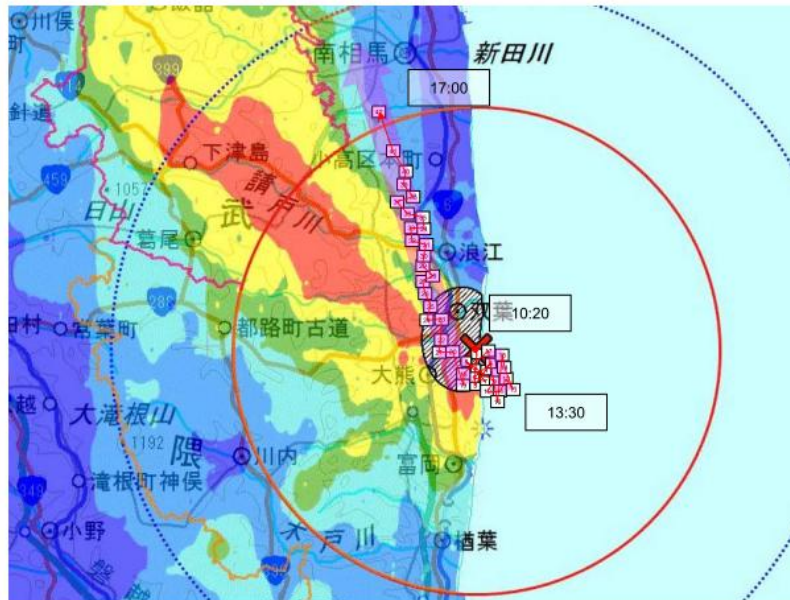
核燃料の燃焼期間から推定された  
それぞれの原子炉内生成核種の存在量

Nishihara et. al., 福島第一原子力発電所の燃料組成評価  
JAEA-Data/Code2012-018, 2012



# 1号機由来プルーム

1号炉由来の比較的大きい(>数10 $\mu\text{m}$ 、>100Bq)粒子の起源として、3月12日に原発の北北西に流れた1号機由来のプルームが考えられる。



3月12日 午前10時頃～  
1号機起源プルーム

放射性物質放出要因  
14時過ぎ ベント  
15:36 建屋爆発

別図2-1 3月12日 10時過ぎに放出されたプルームの軌跡

「福島第一原子力発電所事故における放射性物質の大気中への放出量の推定について(平成24年5月 東京電力株式会社)」

本研究では、この1号機由来プルームの軌跡を追って、福島原発の北北西方向、3km圏内を調査し、放射性物質含有粒子を採取した。

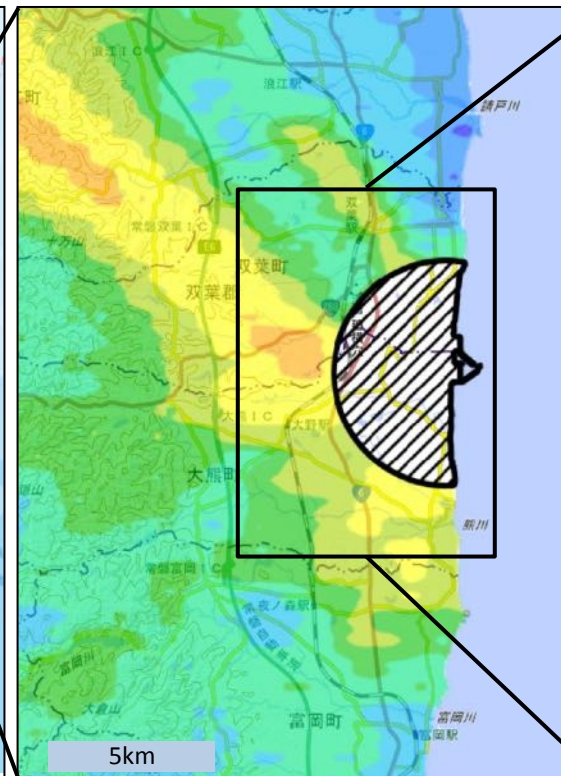
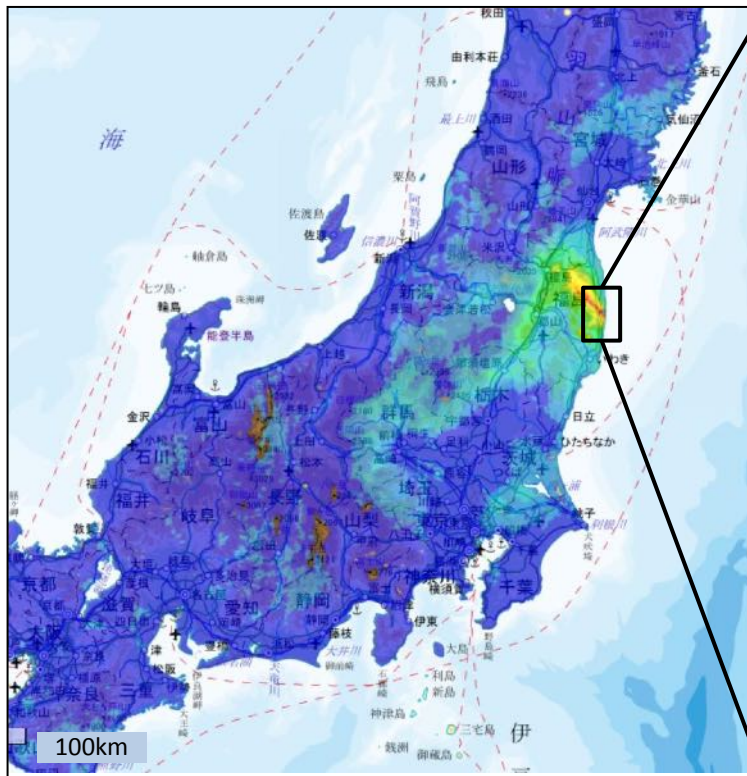
現在の粒子の分布を把握し、事故当時の拡散状況を推測し、原子炉から放出された後の環境中での粒子の状態変化・移動状況を推定することを目的とした。

# 調査地域

福島第一原子力発電所より北北西方向  
約3km圏内  
「中間貯蔵施設」建設地

# 調査年月日

2019年12月22日  
2020年1月5日  
2020年1月26日  
2020年2月23日  
2020年3月15日



航空機モニタリング結果 空間線量率  
平成24年5月31日時点  
放射線量等分布マップ拡大サイト/地理院地図

航空機モニタリング結果 空間線量率  
令和元年11月02日時点

航空機モニタリング結果  
(無人ヘリコプター) 空間線量率  
平成30年10月16日時点



# 調査地域



福島第一原子力発電所敷地



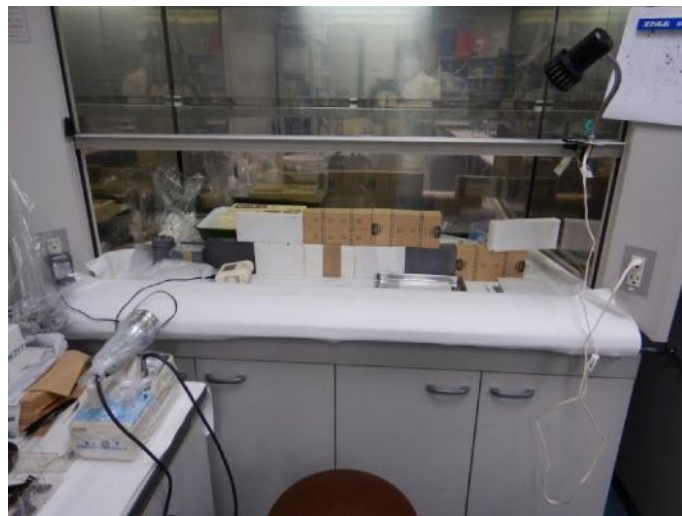
# 試料採取

道路路肩やコンクリート上の土壌試料





# 粒子の単離1



チャック袋に小分け  
(300g → 100g → 30g)



IP測定



粒子のある分画を選別



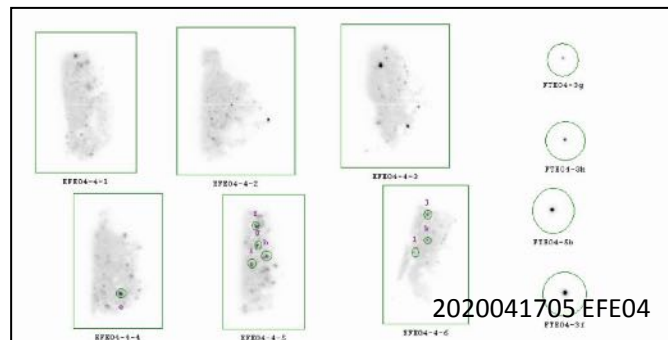
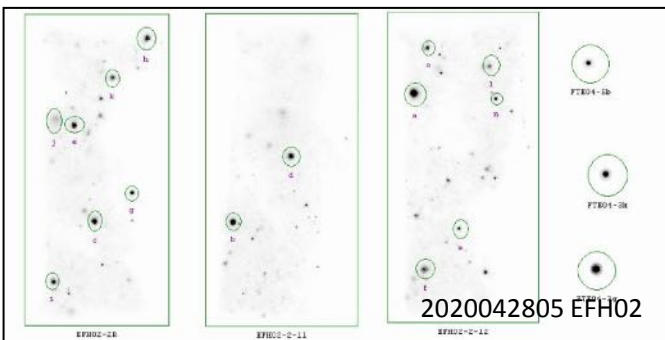
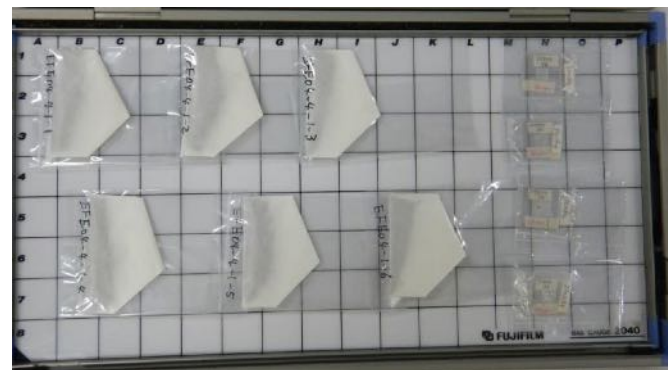
薬包紙に小分け  
(10g → 5g → 1g)



IP測定

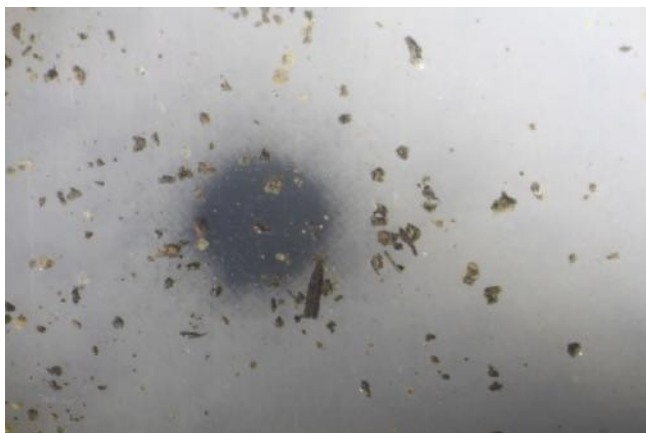


粒子のある分画を選別

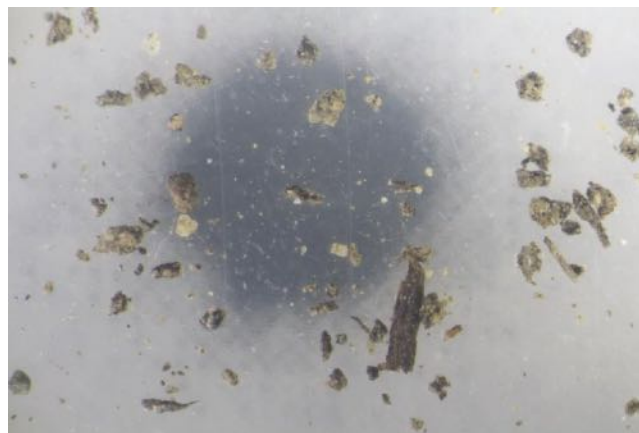


# 粒子の単離2

パラフィルム上に撒く→IP測定→顕微鏡下で粒子を拾う



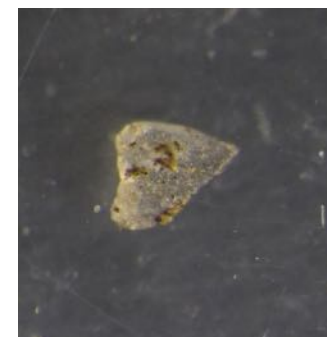
EFE04-2-1-28



EFE04-2b



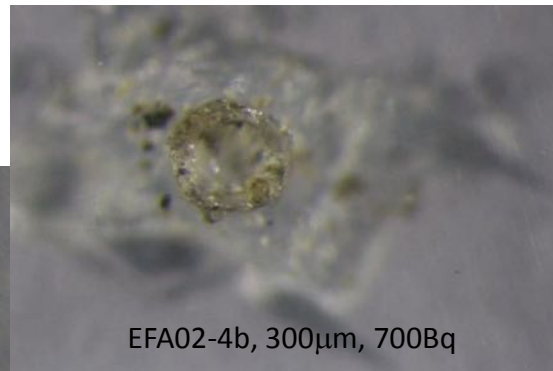
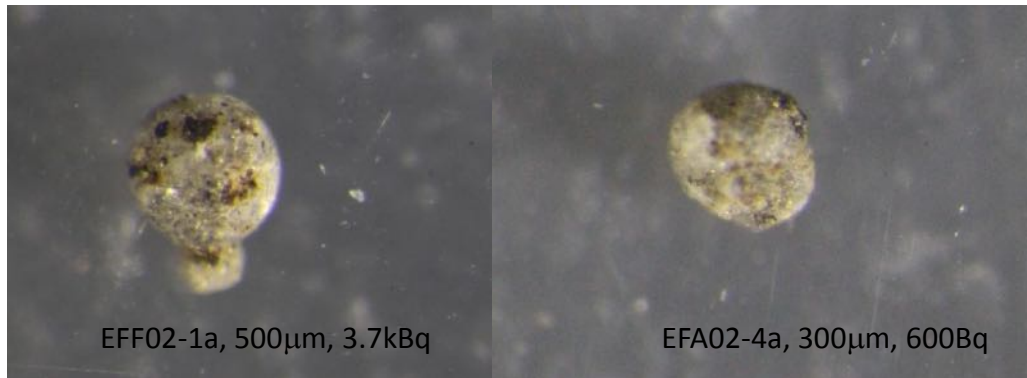
EFH02-2-52



EFH02-2a

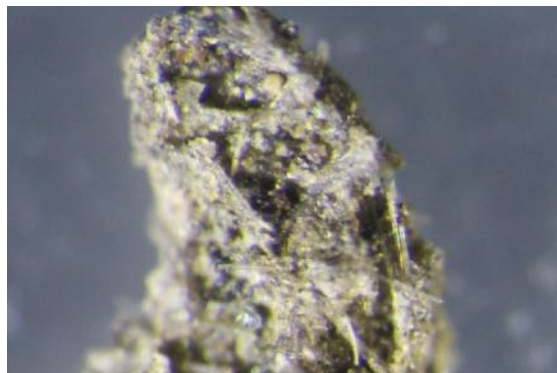
# 粒子の形状(実体顕微鏡画像)

## 球



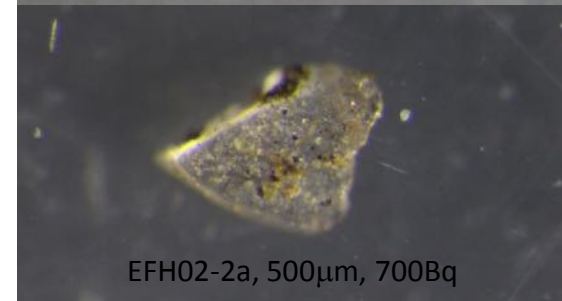
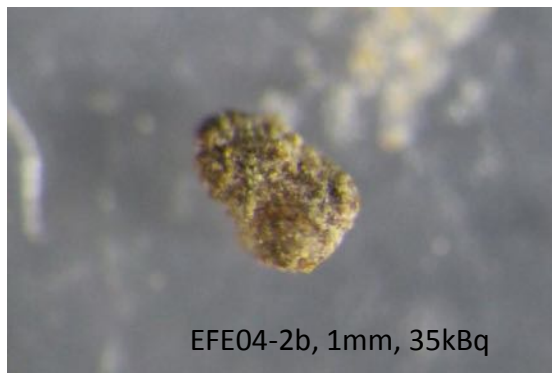
破片

## 繊維状



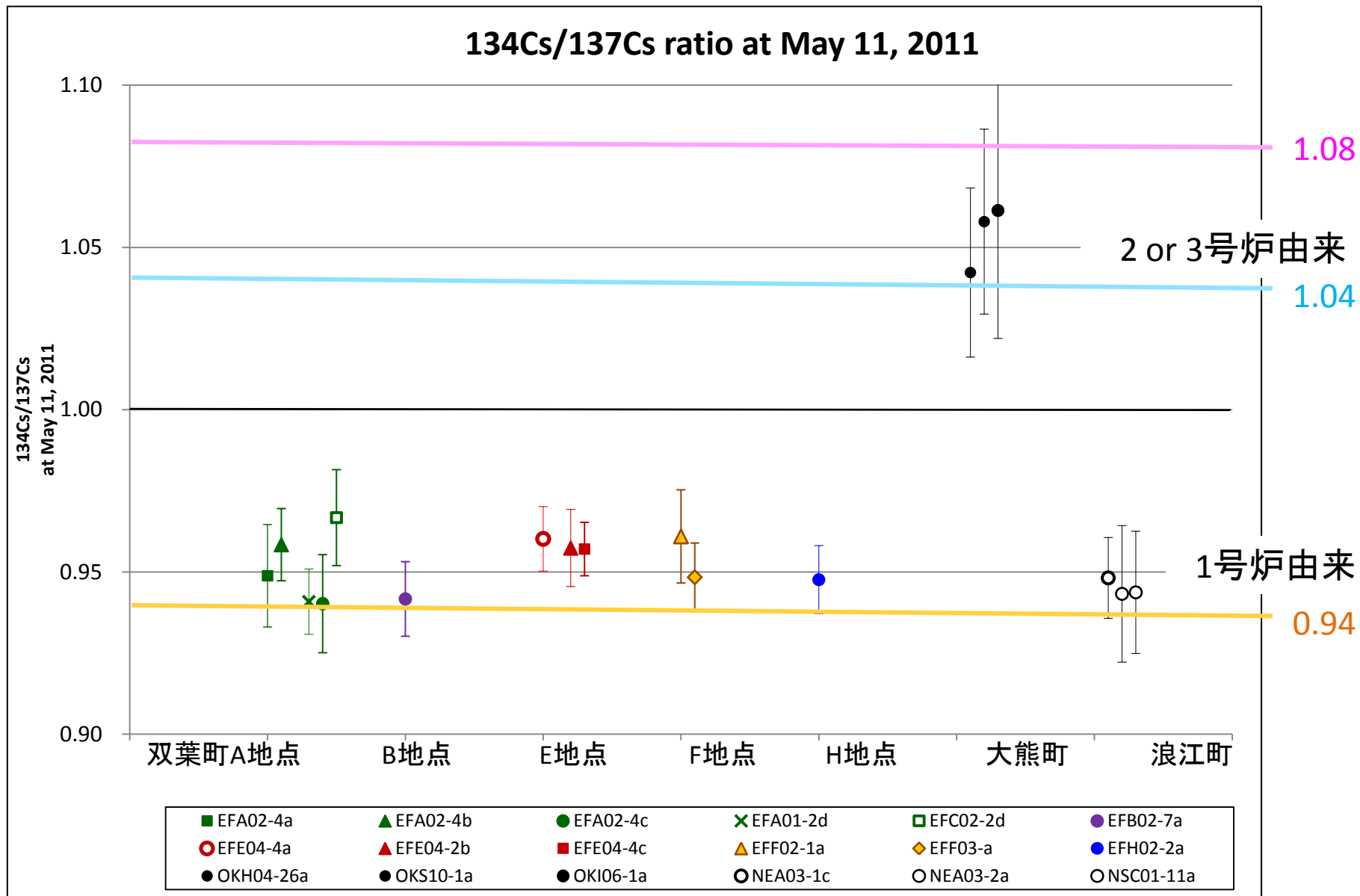
EFC02-2a, 1.5mm, 1.7kBq

## 塊





# 粒子のCs同位体比



# 空間線量率 測定結果

福島県双葉郡双葉町  
長塚・新山・郡山

調査年月日

2019年12月22日

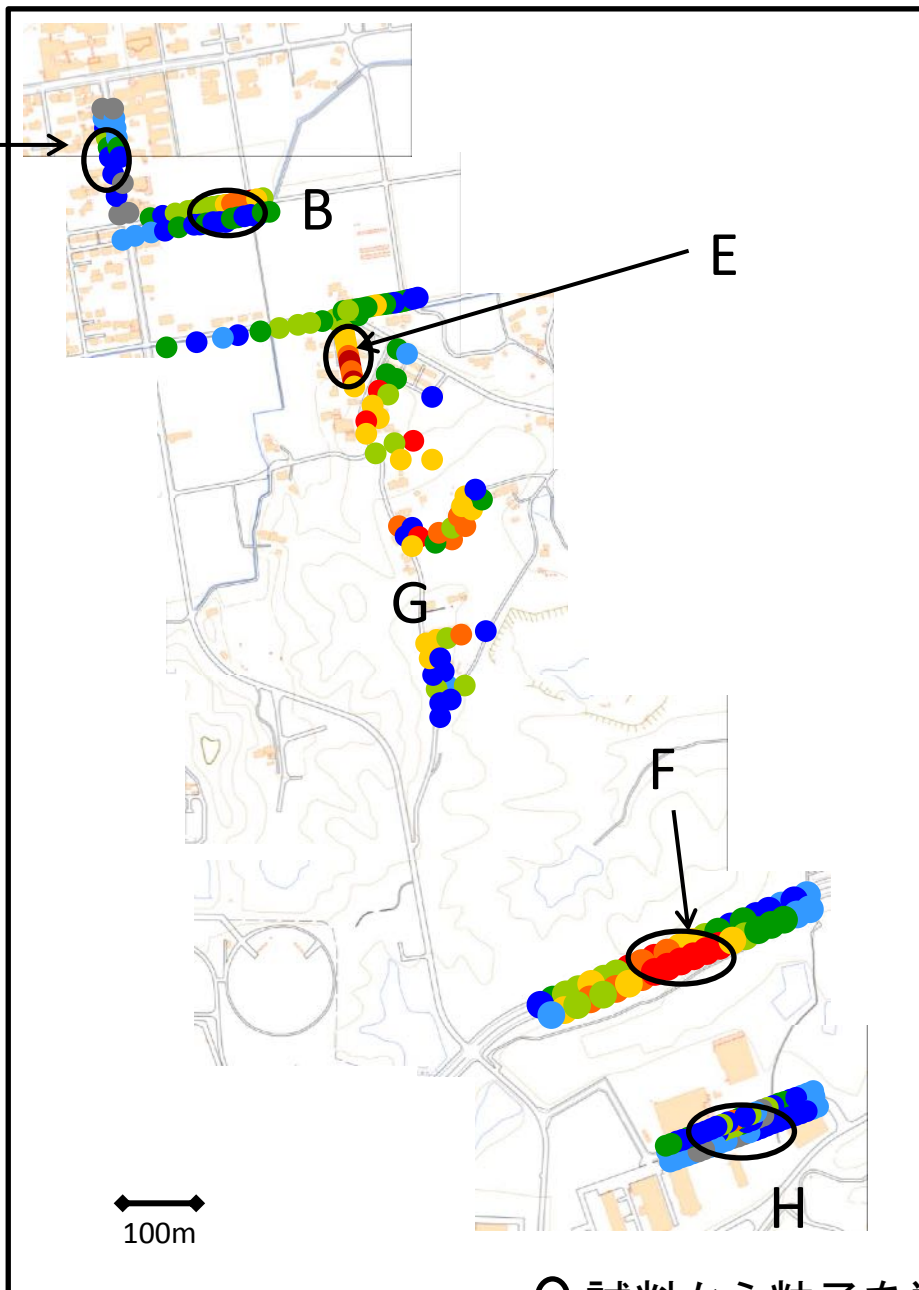
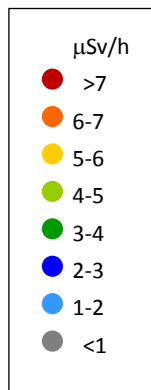
2020年1月5日

2020年1月26日

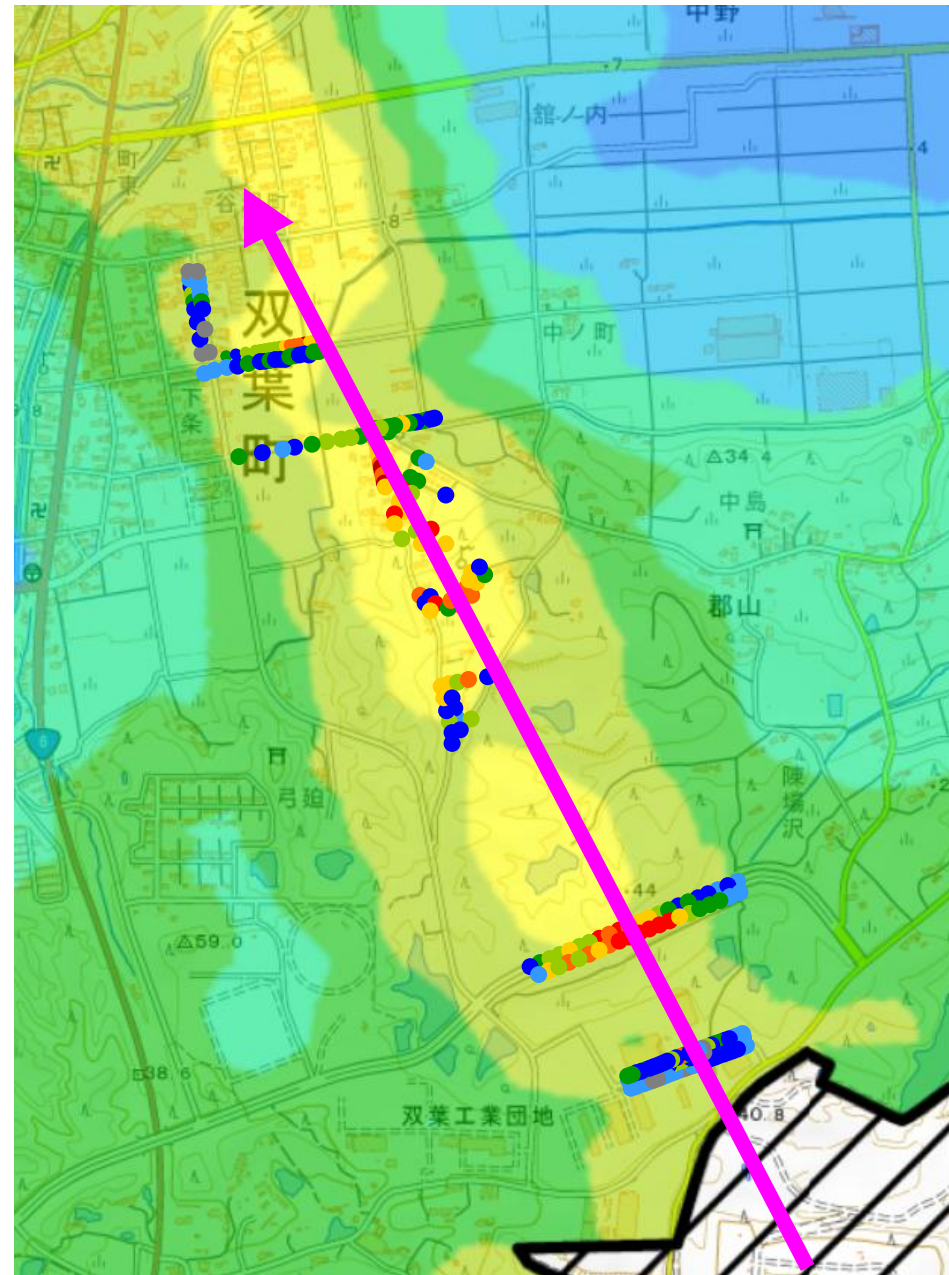
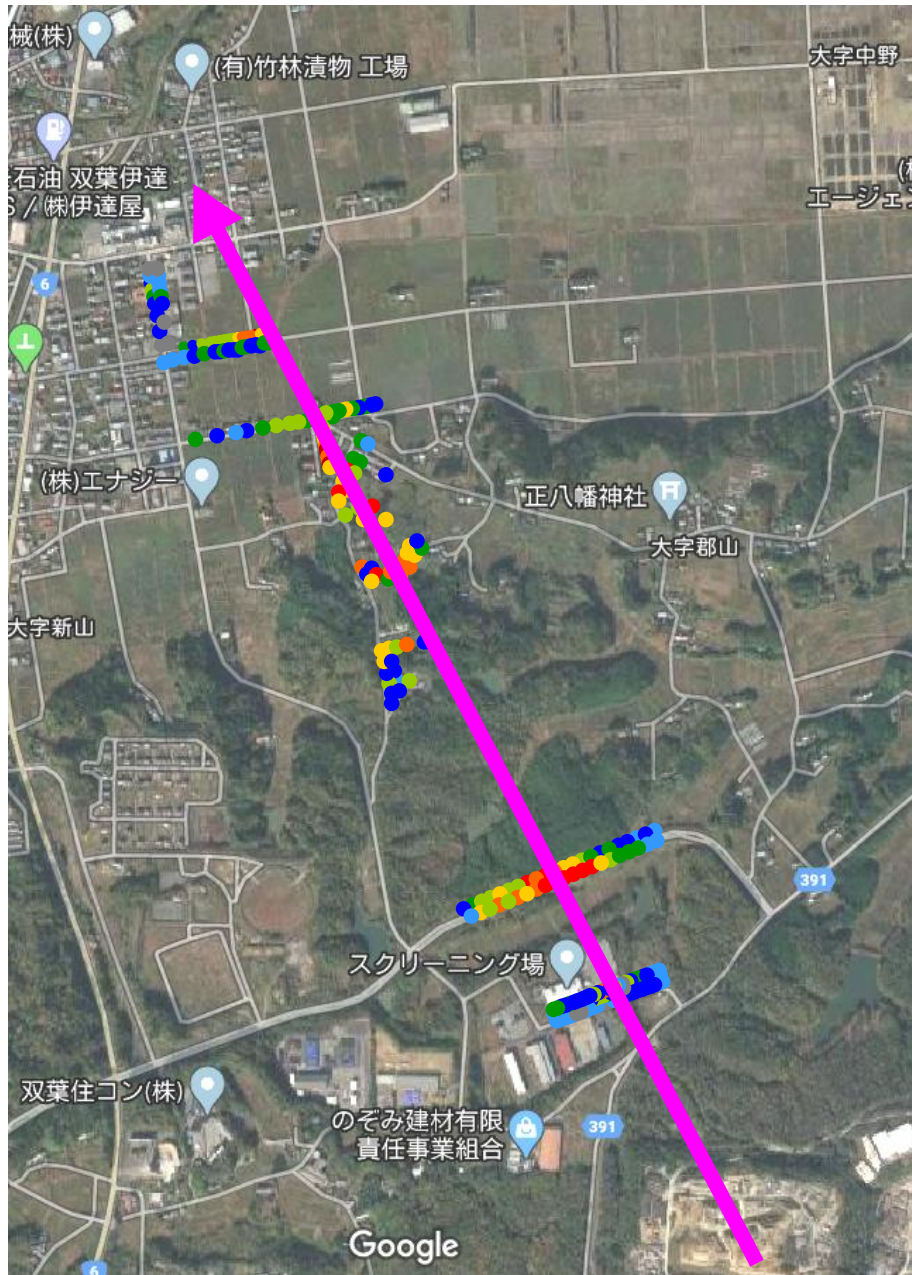
2020年2月23日

2020年3月15日

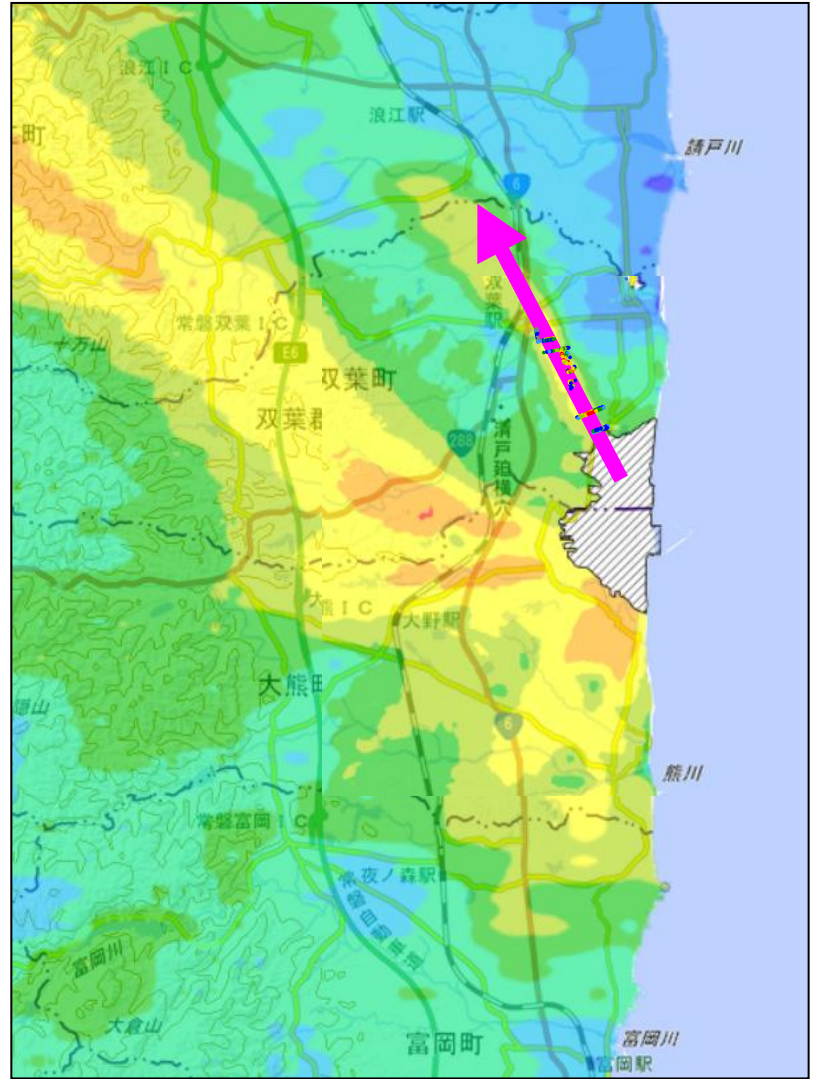
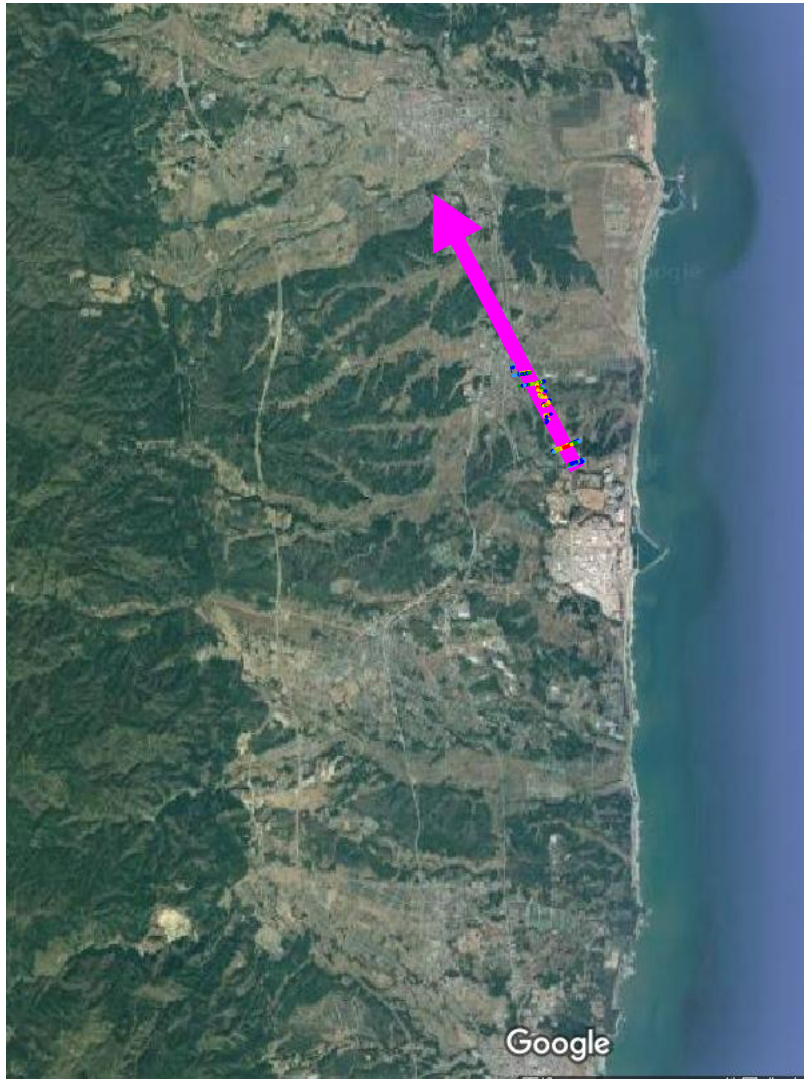
空間線量率



○ 試料から粒子を単離できた場所







# まとめ

- 2019年12月-2020年3月に、福島第一原発の北西～北北西3km圏を調査し、空間線量の測定と土壌試料の採取をした。
- 空間線量の比較的高い領域が、数10m～100m程度のごく狭い範囲にみられた。この領域は3月12日の1号機由来プルームの軌跡と一致した。
- 採取した土壌から、数百～数千Bq/個の粒子を12個単離した。最大35kBq/個 ( $^{37}\text{Cs}$ 事故時)であった。
- これらの粒子は球、破片、繊維状、塊などの形状を示し、1号機由来のCs比を持つことを確認した。
- 今後、これらの粒子の分析を行なう予定である。





大野  
Ono

# 不溶性放射性粒子の蛍光による検出実験

茨城大学 北 和之、PENG TANG、畑中恒太郎

東京電機大 阿部善也 大阪大 二宮和彦、篠原 厚

JAEA 佐藤志彦、京都大・茨城大 五十嵐康人

# 放射性C<sub>S</sub>微粒子に係る茨城大Gの目標

- 放射性C<sub>S</sub>微粒子の大気再飛散の検出・確認
  - 大気飛散しやすい放射性C<sub>S</sub>微粒子の物性
  - 放射性C<sub>S</sub>微粒子の大気飛散する(気象)条件
    - 飛散リスク検討に寄与する知見
- 大気飛散する放射性C<sub>S</sub>微粒子の効率的検出手法の検討
  - 放射性C<sub>S</sub>微粒子およびバックグラウンド粒子の蛍光特性
  - 蛍光による放射性C<sub>S</sub>微粒子検出の模擬実験
    - 飛散検出手法の提案



# 放射性 $C_s$ 微粒子の大気再飛散の検出・確認

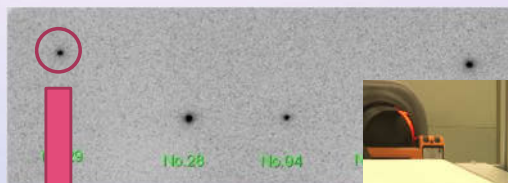
2015,16,18,19に捕集された**186**サンプルから、**20**個の検出  
⇒ **15**個の単離に成功



2015/08/05-08/08 高校グラウンド試料



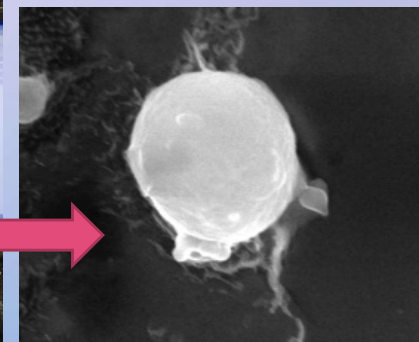
2018/3/14撮像 24時間 測定結果



単離作業

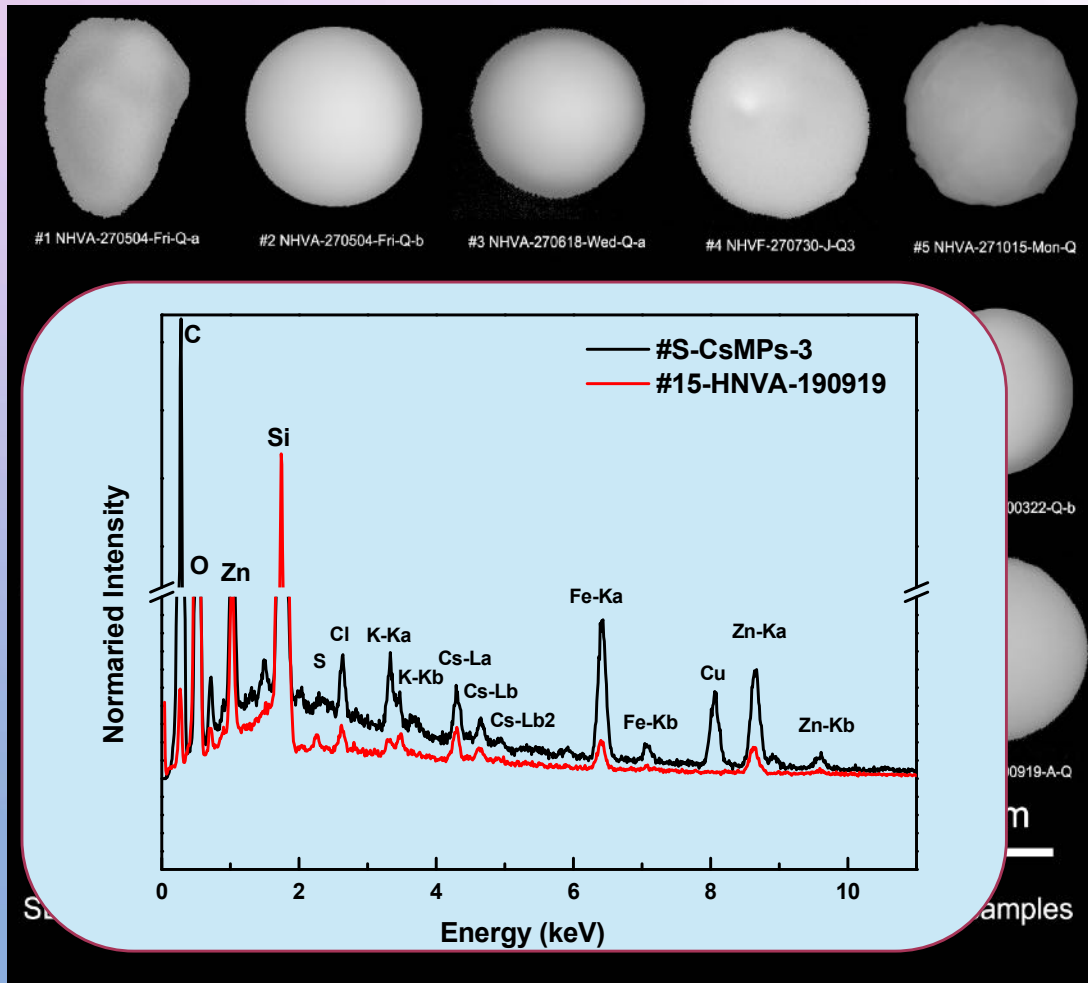


SEM観察



HV  
サンプリング

# 大気粒子試料から単離された放射性Cs<sub>s</sub>微粒子と観測サイト周辺の表土からの放射性Cs<sub>s</sub>微粒子の比較



← 大気

表土 ↓



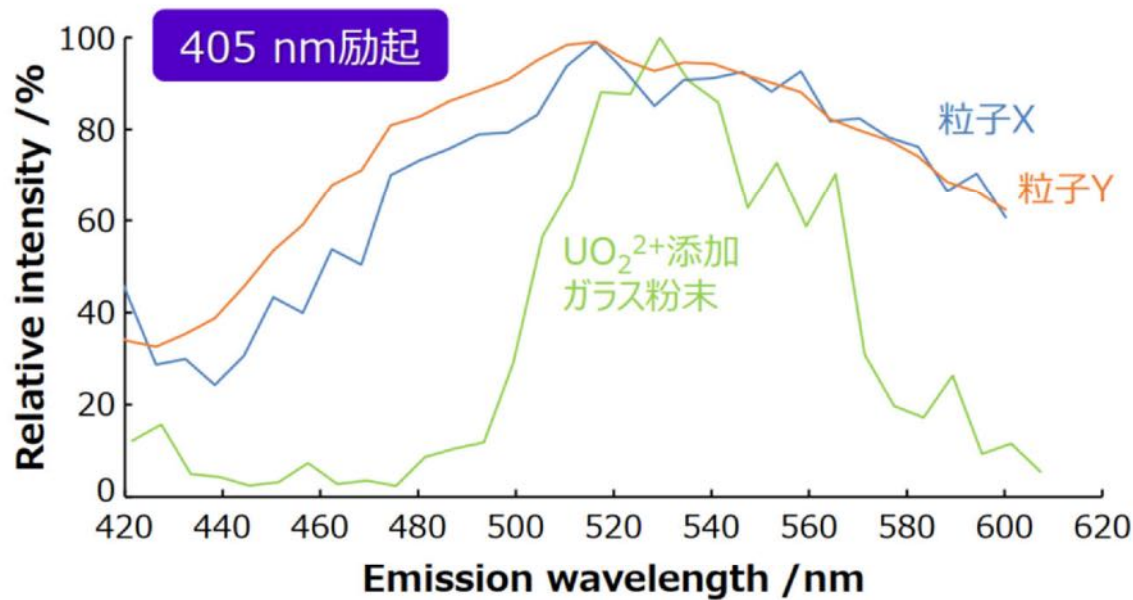
粒子の形状・大きさ、構成元素 (EDS分析)、Cs137放射能は大部分で一致する。



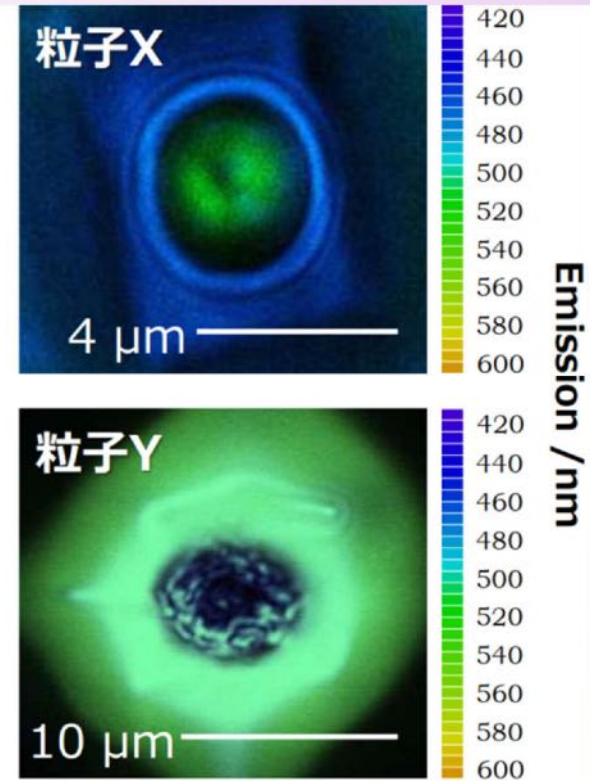


# UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>イオンを含む放射性C<sub>s</sub>微粒子の蛍光

粒子X, Yについて, 多光子励起顕微鏡を用いて  
**1粒子レベルの蛍光発光スペクトル**を測定



粒子X・YおよびUO<sub>2</sub><sup>2+</sup>添加ガラスの  
蛍光発光スペクトルの比較

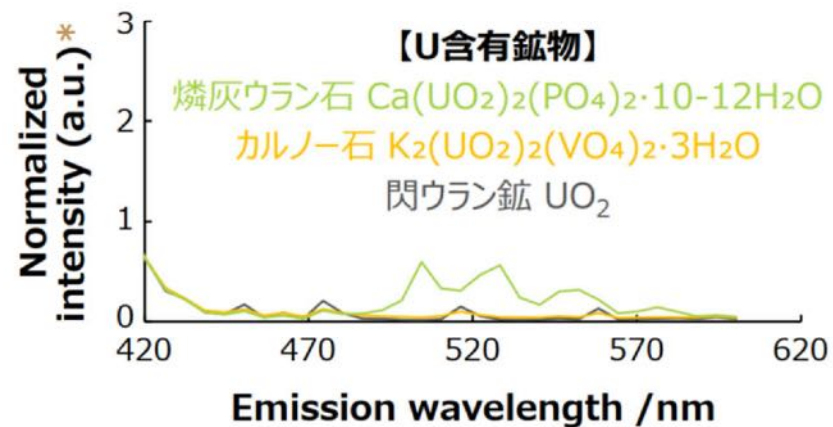
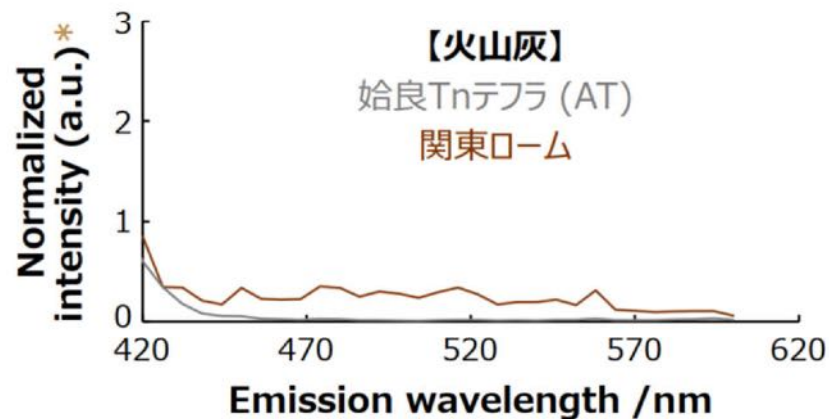
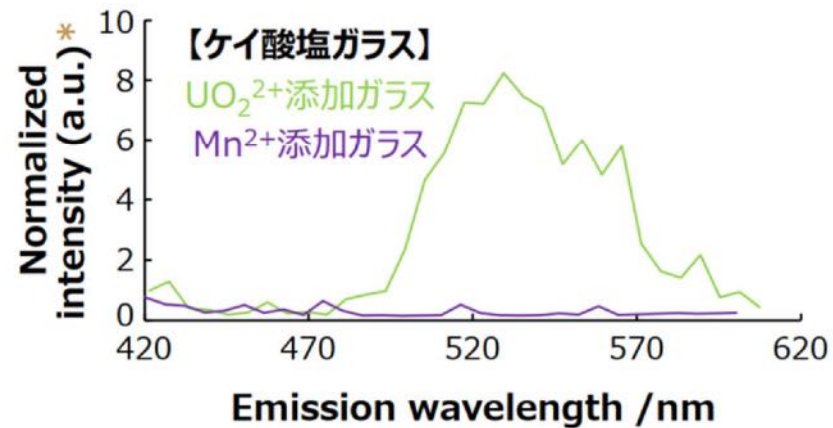
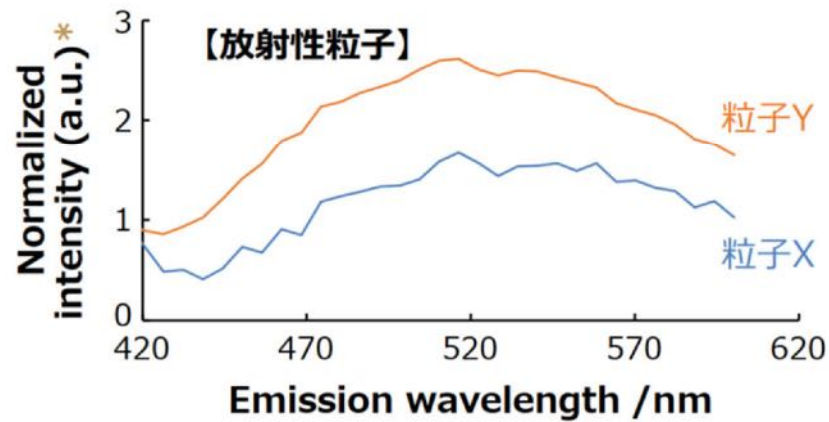


蛍光イメージング

(阿部先生資料より)

- ◆ スペクトルのピークトップはUO<sub>2</sub><sup>2+</sup>添加ガラスと類似 (~530 nm)
- ◆ CsMPのスペクトルは全体的にブロード ⇒ UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>に加えて, 複数の蛍光化学種が寄与?

# 405NM励起光に対する蛍光の比較

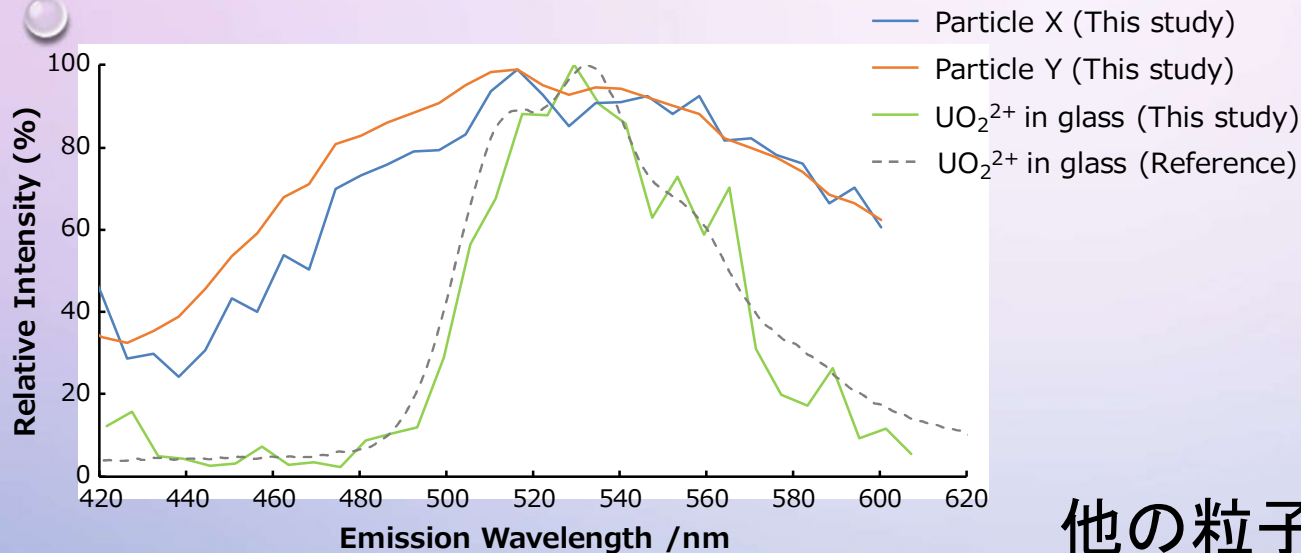


多光子励起顕微鏡で得られた蛍光発光スペクトルの比較 (阿部先生資料より)

放射性微粒子の蛍光特性は環境中では特異的



# 蛍光を利用した大気飛散する放射性Cs<sub>s</sub>微粒子の効率的検出手法の検討



405nm励起による520nmピークの蛍光・・・UO<sub>2</sub><sup>2+</sup>イオン含有の場合のみ（阿部先生の結果）



他の粒子についても、特有の蛍光を励起波長260nm～380nmで探索する



ウランガラスを模擬粒子として、大気浮遊する放射性Cs<sub>s</sub>粒子の検出装置を提案

# 大気中の放射性C<sub>s</sub>微粒子の検出手法

## (a) フィルタ捕集による方法

励起光源  
UV

利点: ハンドリングが簡単  
フィルタ上に粒子を集積  
→ 感度向上

欠点: ダストの干渉による感度低下  
その場で分離できない

(RGBセンサなど)

エアポンプ

テープフィルタ

## (b) ミスト捕集による方法

空気取  
ミス

利点: ダストの干渉は少なくできる  
その場での分離も可能

欠点: やや装置が大掛かりで  
水の補給必要  
蛍光検出が高感度の必要

励起光源  
UV or 405nm LED

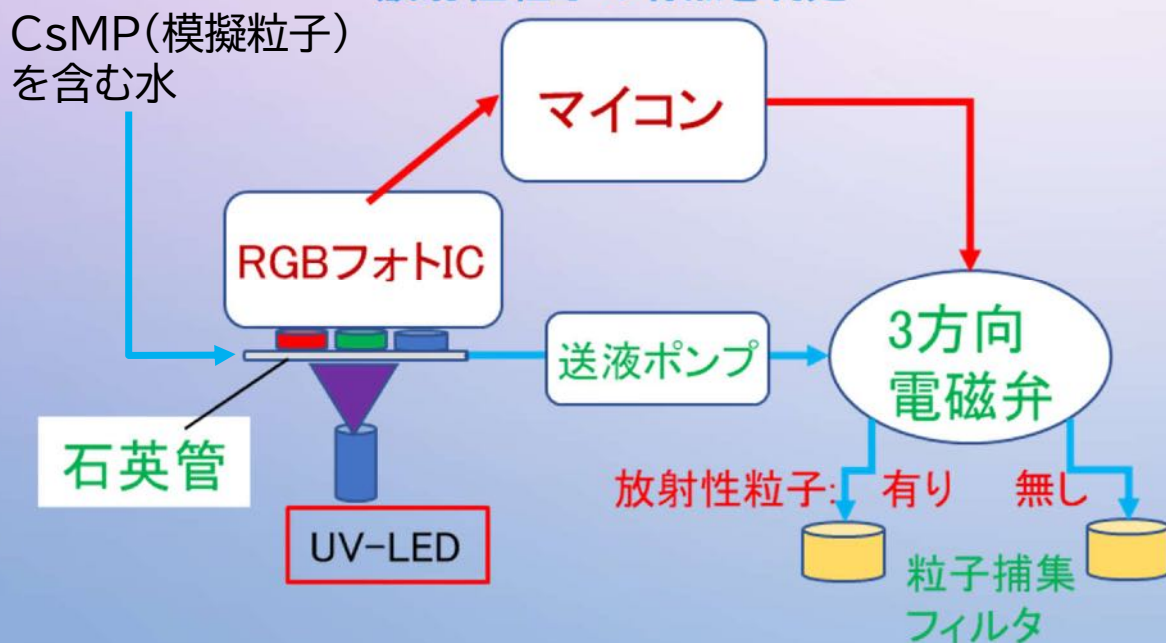
蛍光検出部  
(RGBセンサなど)

# ミスト捕集の場合の蛍光検出手法

## (a) 専用光学系による方法

## (b) 蛍光顕微鏡による方法

蛍光スペクトル(RGB強度)から、  
放射性粒子の有無を判定



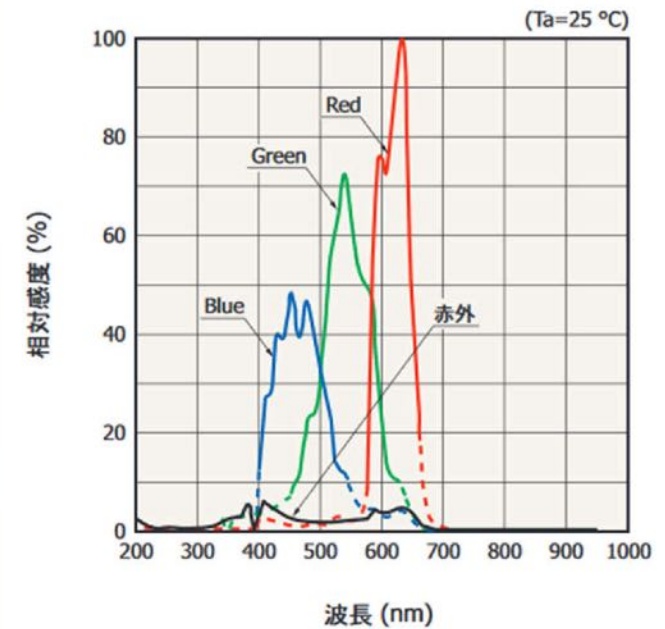
# 試作装置

## RGBフォトIC

浜松フォトニクス  
S11059-02DT



分光感度特性 (代表例)



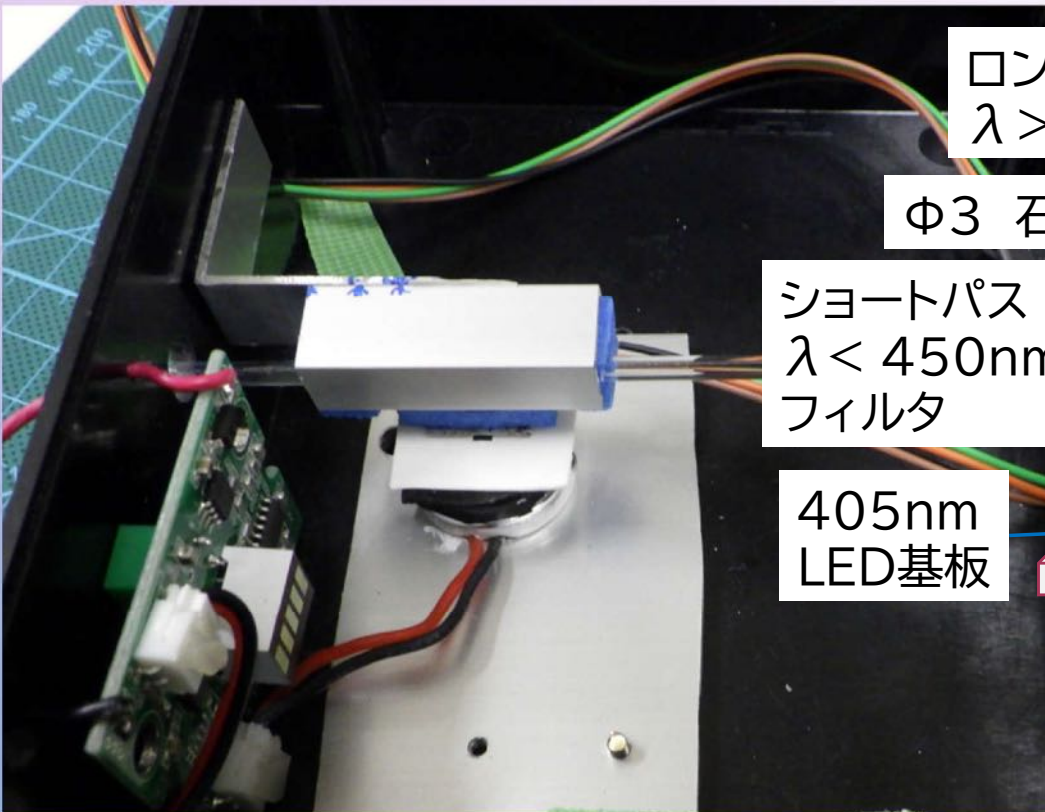
ロングパス  
 $\lambda > 450\text{nm}$  フィルタ

$\phi 3$  石英管

ショートパス  
 $\lambda < 450\text{nm}$   
フィルタ

405nm  
LED基板

アルミ板ヒートシンク

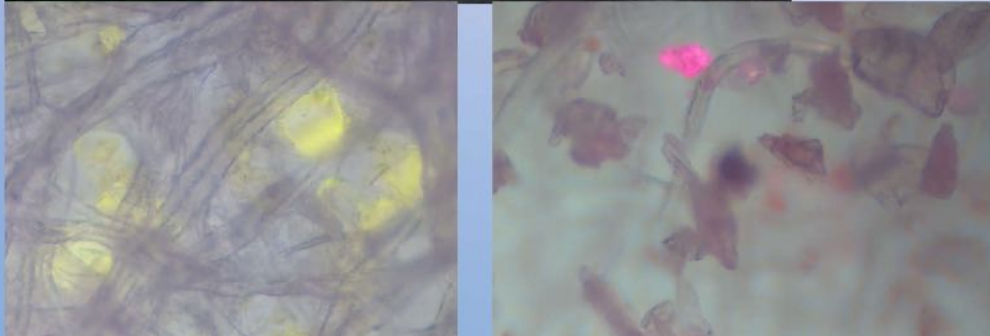
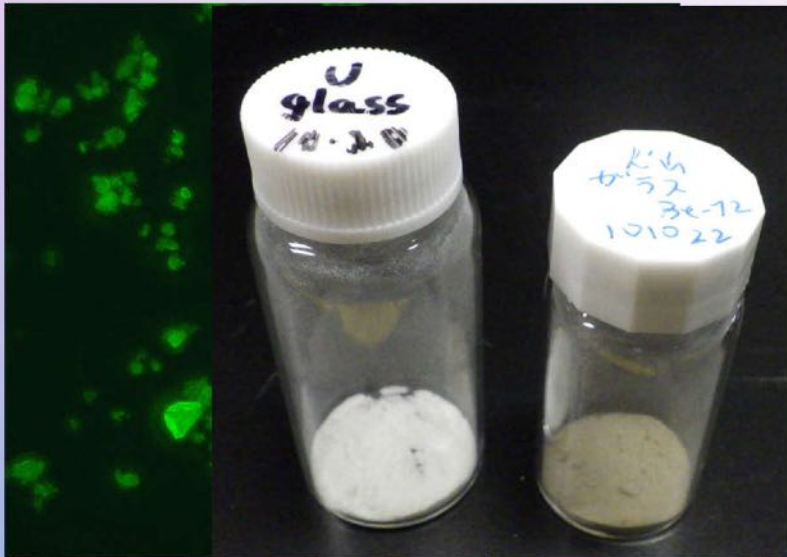




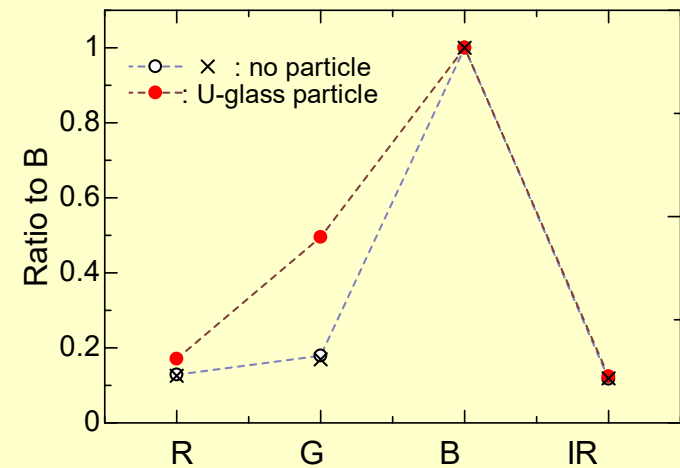
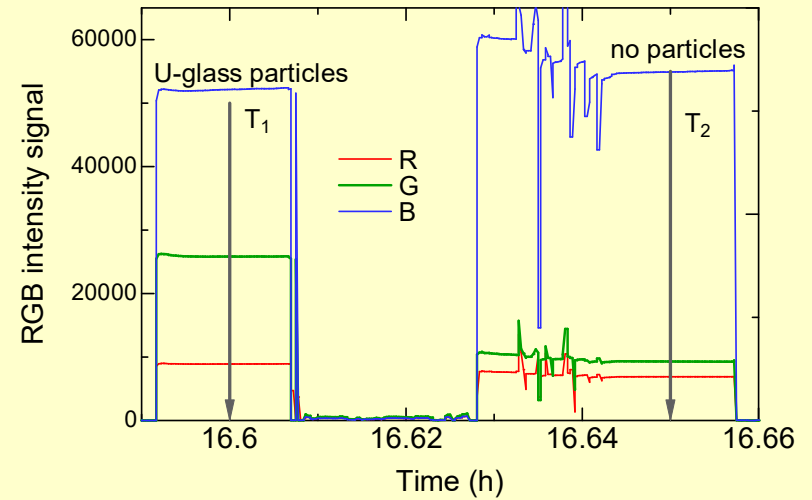
# 模擬粒子とその蛍光検出

## 模擬粒子

ウランガラス粉末と火山ガラス



## U-ガラス粒子の有無によるRGBフォトIC信号出力の違い



# 初期結果

今回の試作装置では

Dec.22 (RGB2012011729.log)

①各色センサが405nmの励起光にも感度を持ち、バックグラウンド信号強度が高い ⇒ 紫外LEDへの変更

②RGBフォトICの感度が不足で、type-A粒子を1個単位で検出することは難しい ⇒ 感度の高い光検出器の使用

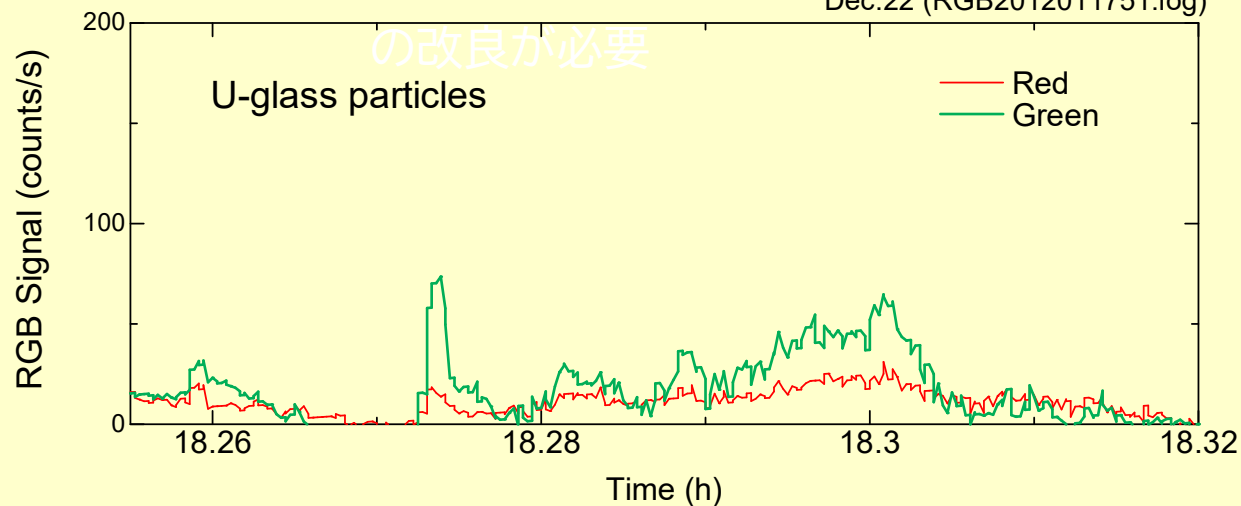
火山ガラス粒子の場合

G(緑色)の有意な増大無し

変動は励起光強度の揺らぎor粒子による散乱

の改良が必要

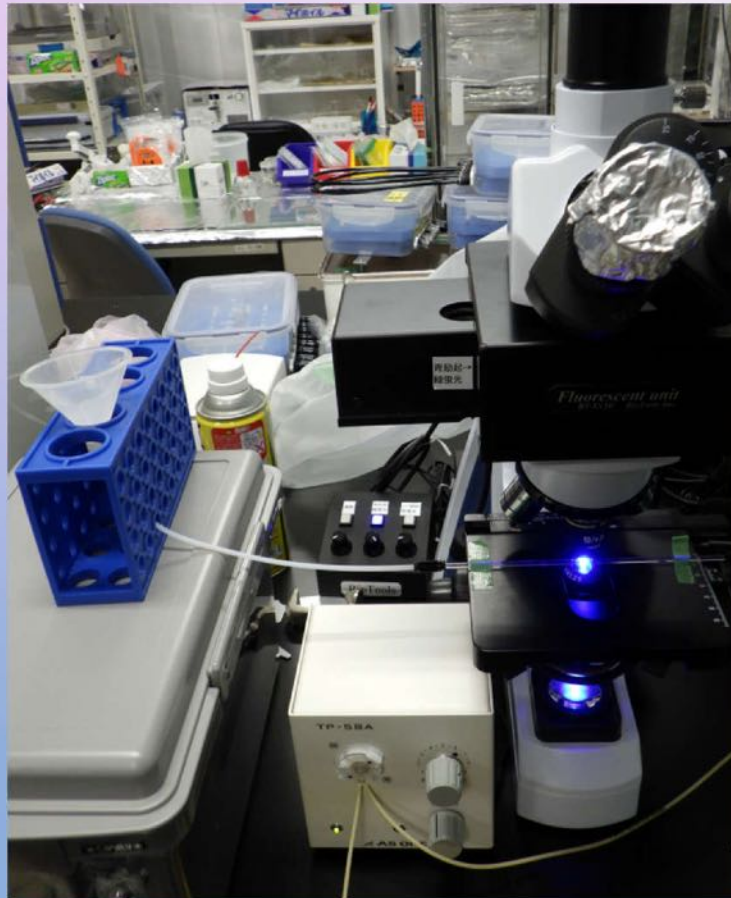
Dec.22 (RGB2012011751.log)



Uガラス粒子の場合

G(緑色)の有意な増大が検出できる

# 蛍光顕微鏡を使っての検出実験



## まとめ(現状報告)

- 放射性CS粒子の中には、 $\text{UO}_2^{2+}$ イオンを含み520NM付近にピークを持つ特有の蛍光を発するものがあり、それを利用してリアルタイムで検出・分離できる可能性がある。
- 405NM LEDを励起光源に、RGBフォトICにより緑色蛍光を検出する装置を試作し、U-ガラス模擬粒子を検出できた。1個1個の粒子を検出するには、より高感度で励起光に感度をもたない検出器が必要。
- 蛍光顕微鏡を励起光源＋光学系として使用した場合、模擬粒子1個1個の検出が可能であることを示す結果が得られた。
- $\text{UO}_2^{2+}$ イオンを含まない放射性CS粒子の蛍光による検出可能性の検討のため、今後様々な波長のUV光で励起し蛍光を探索する。

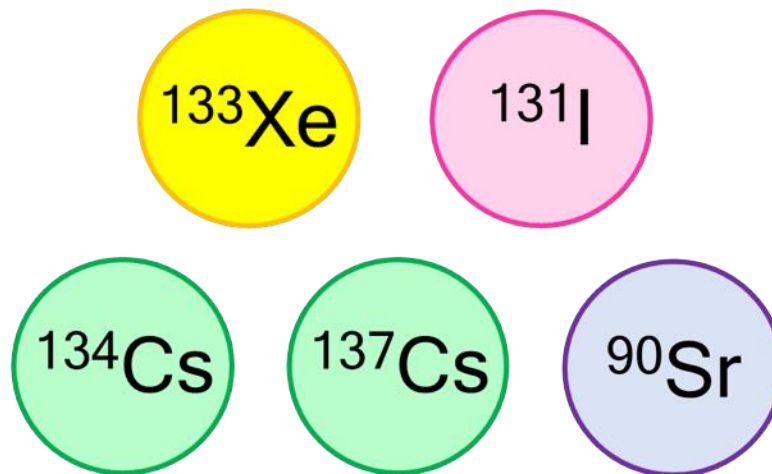
# ICP-MSを用いた 放射性粒子の多元素定量分析

筑波大学大学院  
数理物質科学研究科 化学専攻M2  
横山 大輝



# はじめに

2011年3月 福島第一原発事故  
大量の放射性物質が環境中へ放出



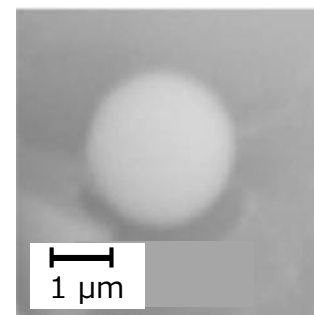
# 放射性粒子について

大気浮遊塵や土壌中から**放射性粒子**が確認[1]

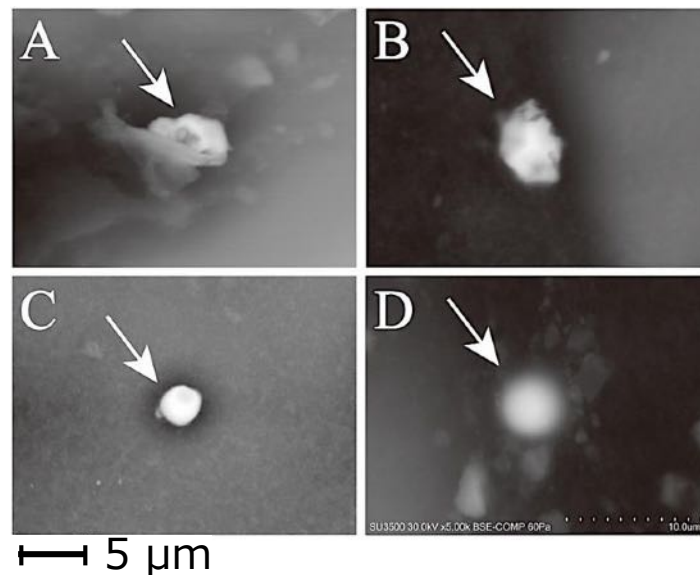
## 放射性粒子の主な特徴

- **水に不溶**[1]
- **放射性Cs**が放射線源[1]
- 主成分が**ケイ酸ガラス質**[2]

原子炉から飛来していると考えられ  
**原子炉内の状態を保存**



大気浮遊塵中[1]



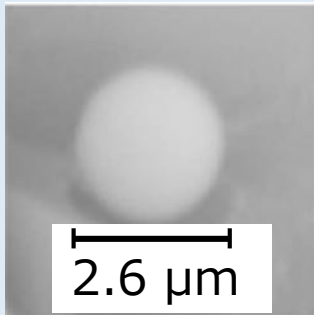
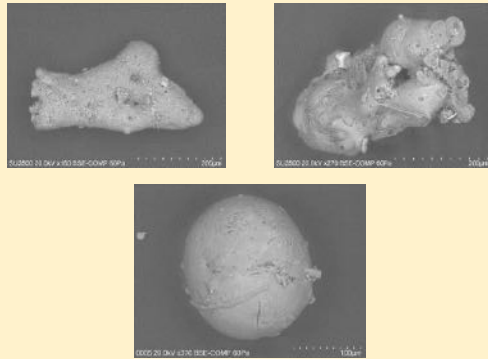
土壌中[2]

[1] K. Adachi et al. Sci. Rep. (2013).

[2] Y. Satou et al. Anthropoceme. (2016).

# 放射性粒子の分類

Type-AとType-Bの2種類に分類<sup>[3]</sup>

	Type-A (2, 3号機)	Type-B (1号機)
粒径	数 $\mu\text{m}$	数百 $\mu\text{m}$
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比	$\sim 1.04$	$\sim 0.93$
体積あたりの放射能	大きい	小さい
形状	球形  <sup>[1]</sup>	不定形 

[1] K. Adachi et al. Sci. Rep. (2013).

[3] Y. Satou et al. Geochem. J. (2018).

- SEM-EDS: 表面の元素分布
  - 放射光実験
    - BL37XU
      - XRF: 内部の元素分布
      - XANES: 内部の元素化学形
    - BL22XU
      - HAXPES: 表面(Cs)の化学形
- etc...

主要元素から極微量元素まで幅広く定量分析を行った報告例が少ない

# ICP-MSを用いるメリット

誘導結合プラズマ質量分析法

(**I**nductively **C**oupled **P**lasma **M**ass **S**pectrometry)

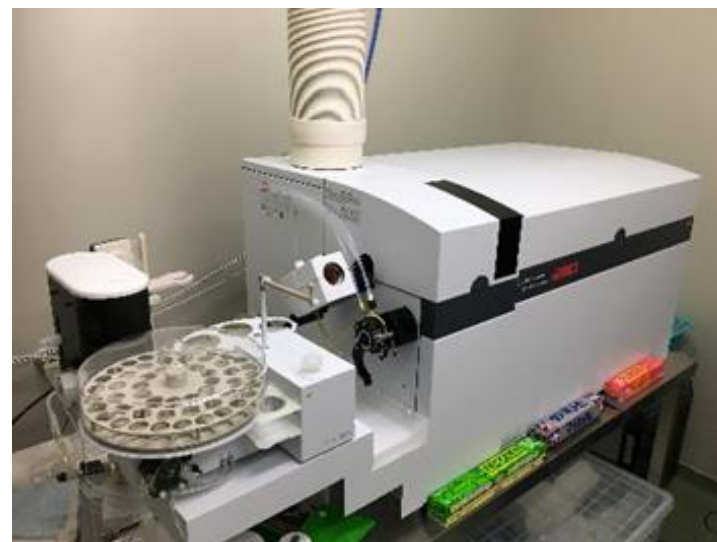
- 多元素の同時測定が可能

- 測定時間が短い

1試料当たり5分程度

- ダイナミックレンジが広い

数百ppmからサブpptオーダーまで幅広い濃度での測定が可能



放射性粒子の主要元素から**極微量元素**まで  
様々な元素の同時測定が可能



## 放射性粒子の性状分析から 事故当時の炉内状況再現への寄与

### そのために…

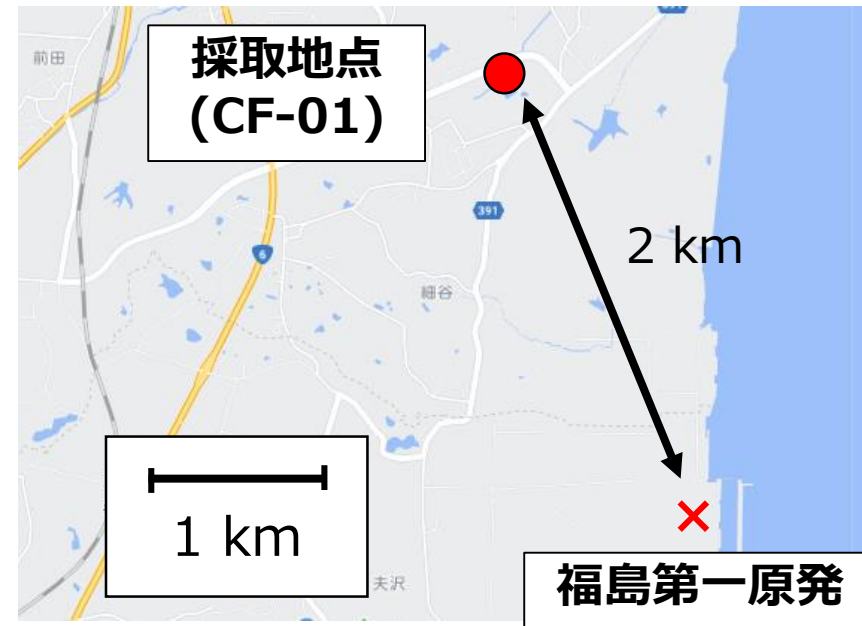
誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) を用いた  
Type-B粒子に含まれる元素の定量分析  
Type-B粒子の原料や生成過程の手がかりを得る

福島第一原発から北北西に2 km離れた工場敷地で採取した  
ダスト試料からType-B粒子を抽出

$\gamma$ 線測定、SEM-EDS分析を実施

粒径は $> 100 \mu\text{m}$

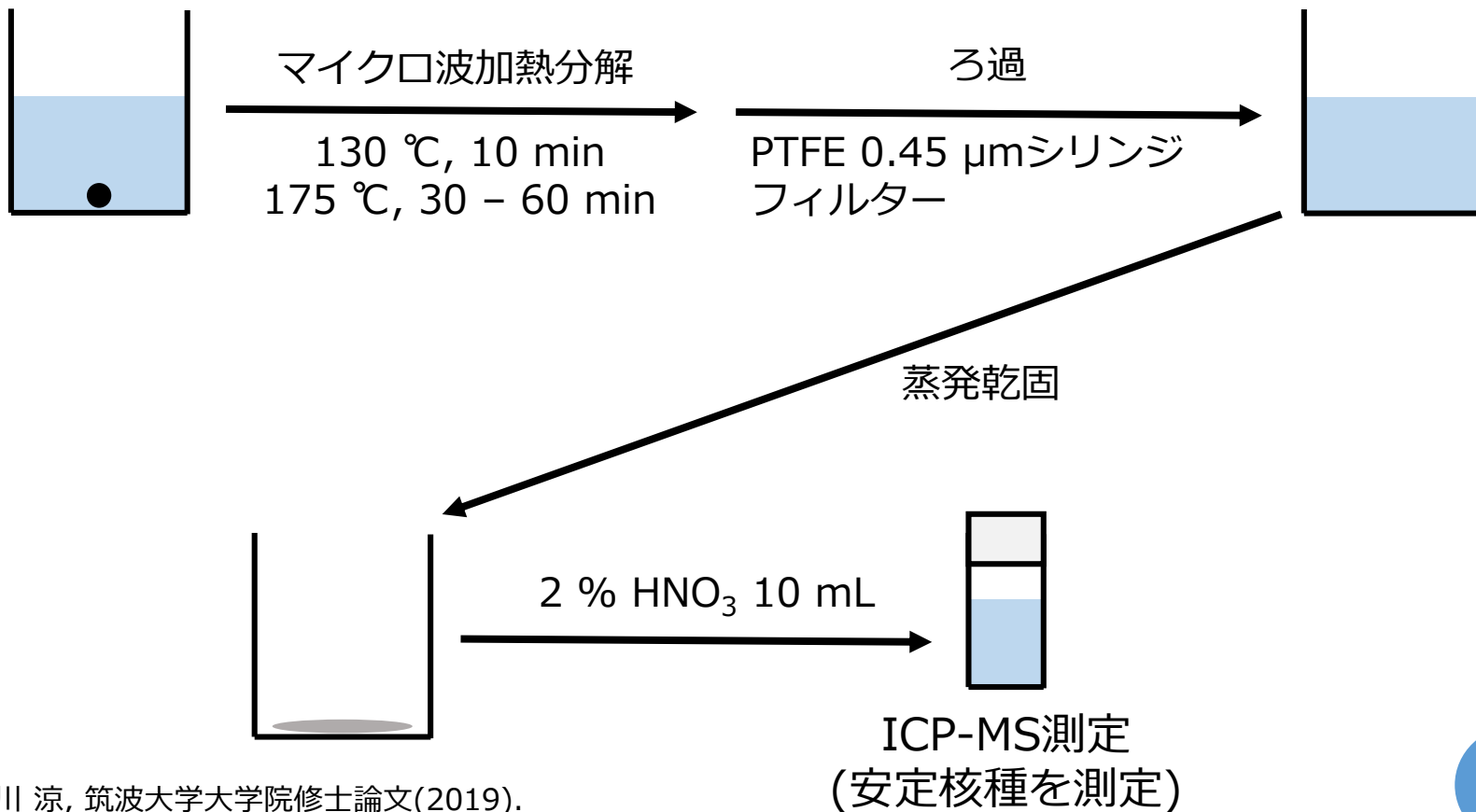
$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は $\sim 0.90$



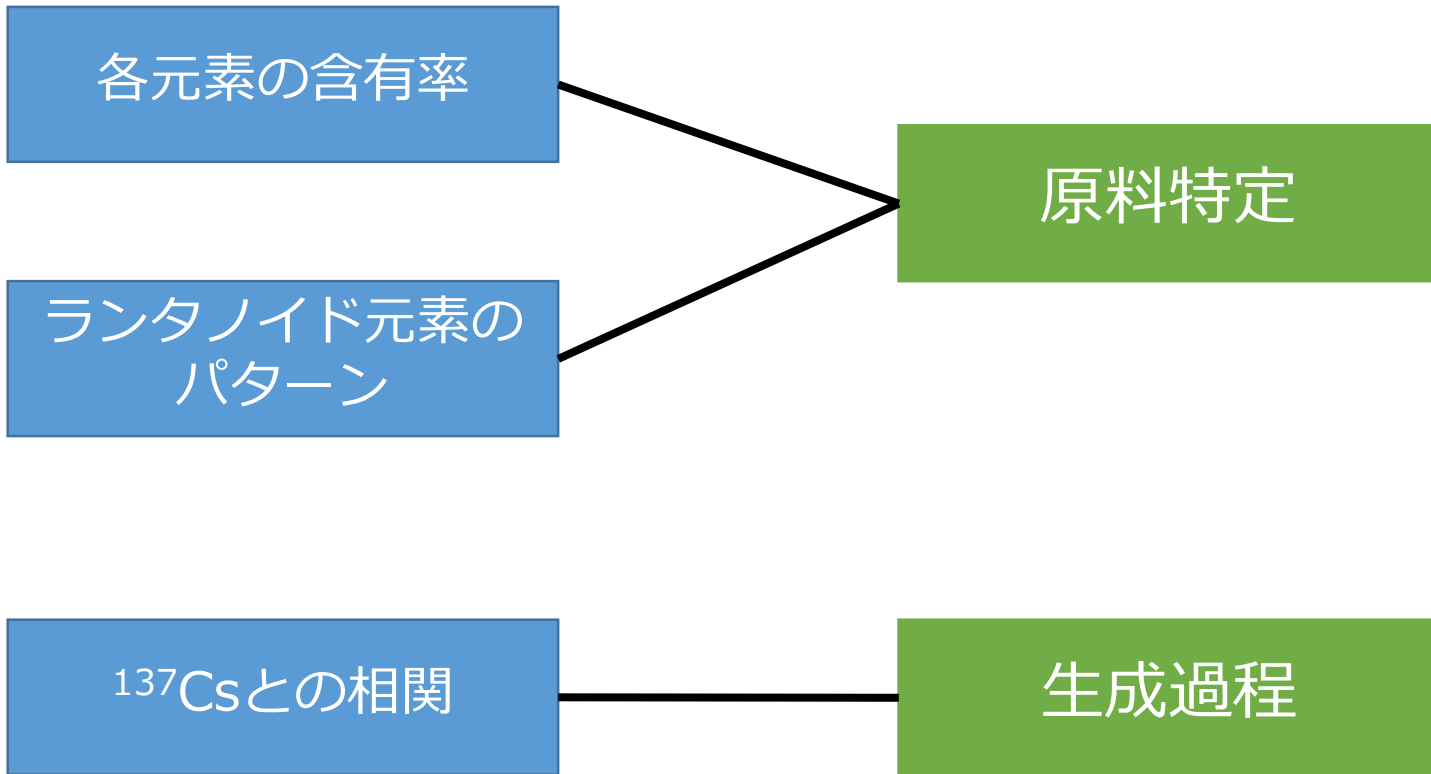
# 放射性粒子の分解

$\text{HNO}_3$  :  $\text{HF}$  = 3 : 2 (体積比) の混酸で溶解<sup>[4]</sup>  
全20試料を分解 (うち10試料は<sup>[4]</sup>より)

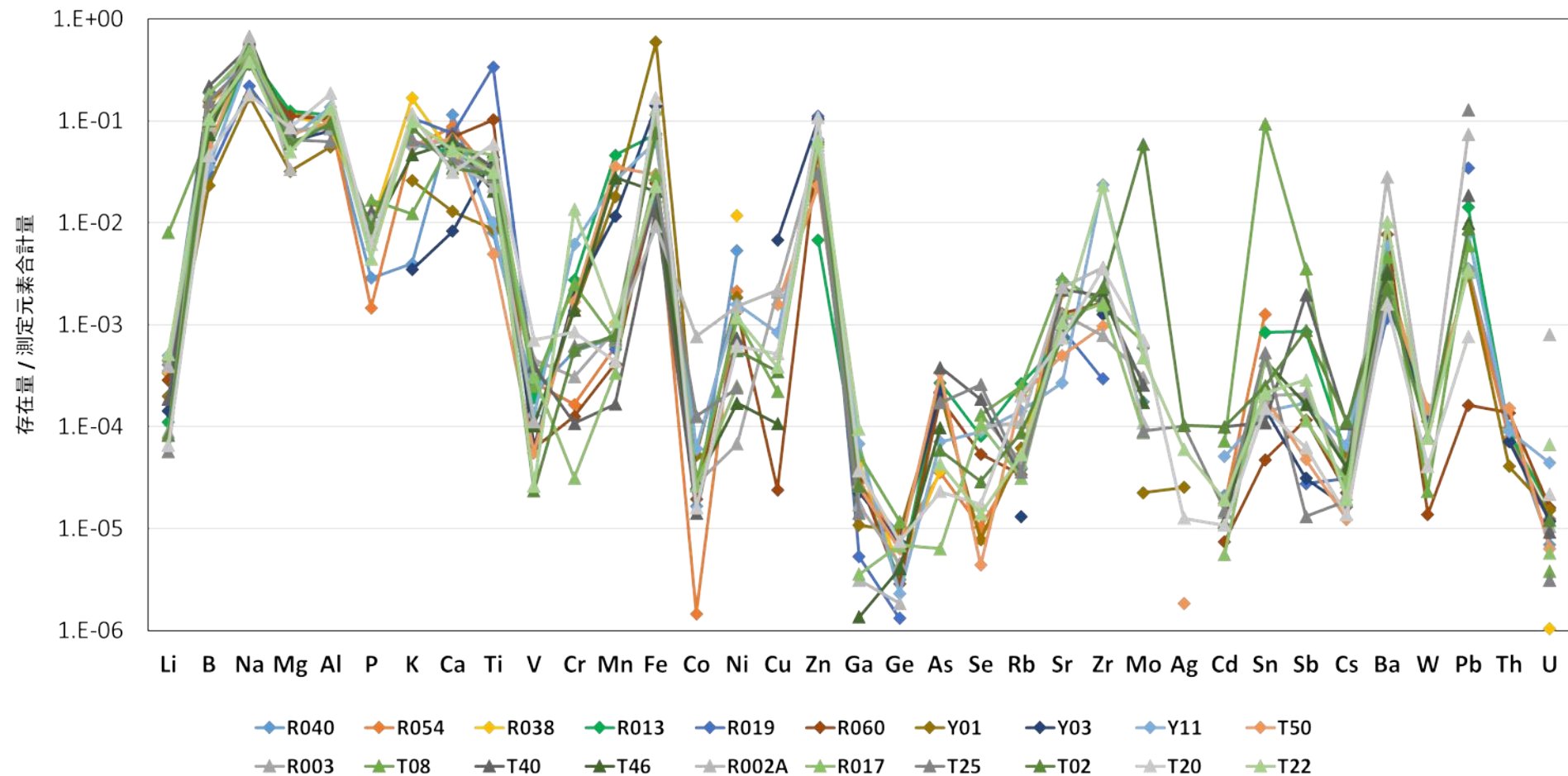
放射性粒子  
70 %  $\text{HNO}_3$  3 mL  
 $\text{HF}$  2 mL



[4] 長谷川 涼, 筑波大学大学院修士論文(2019).



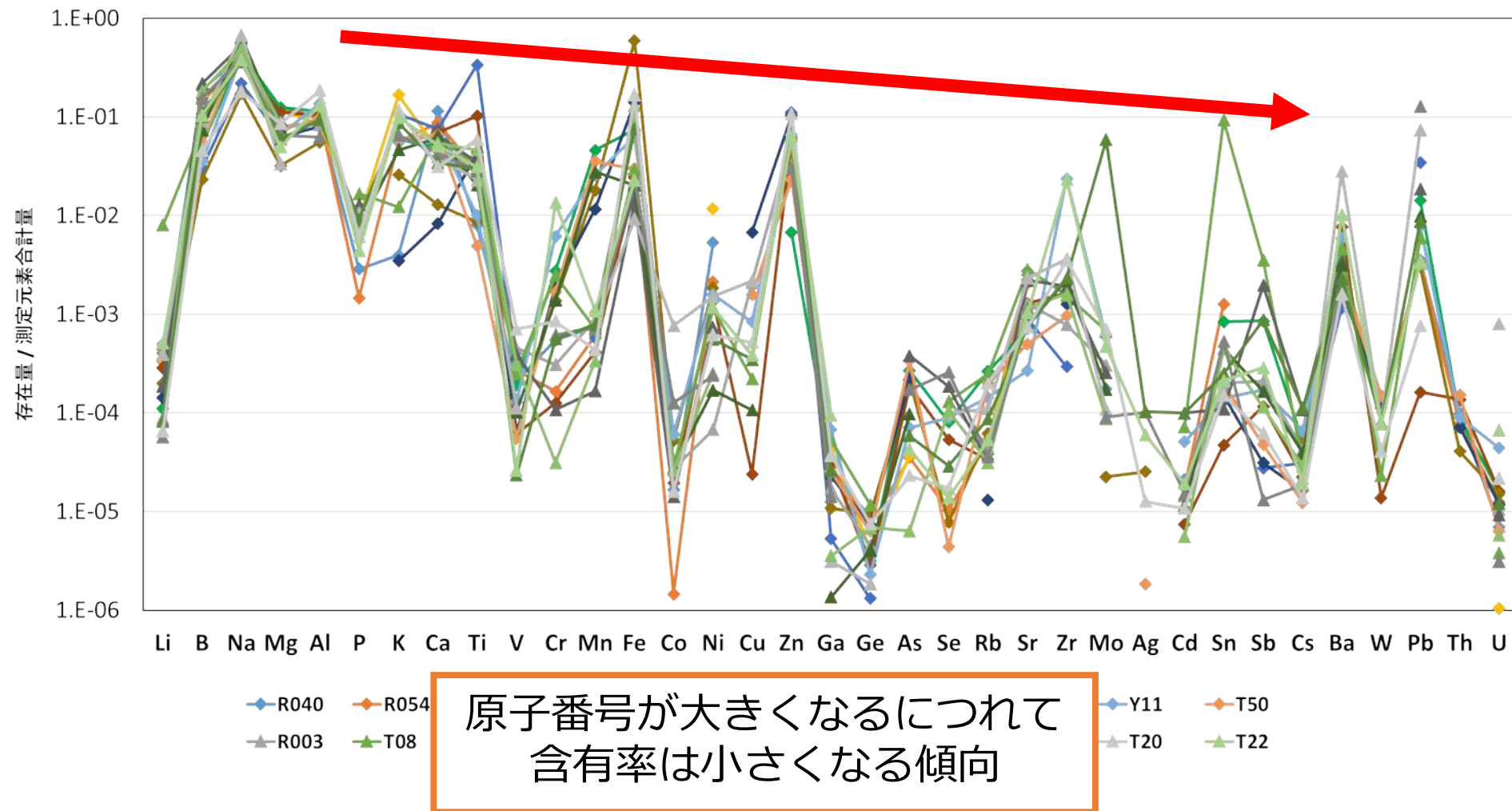
# 各元素の含有率



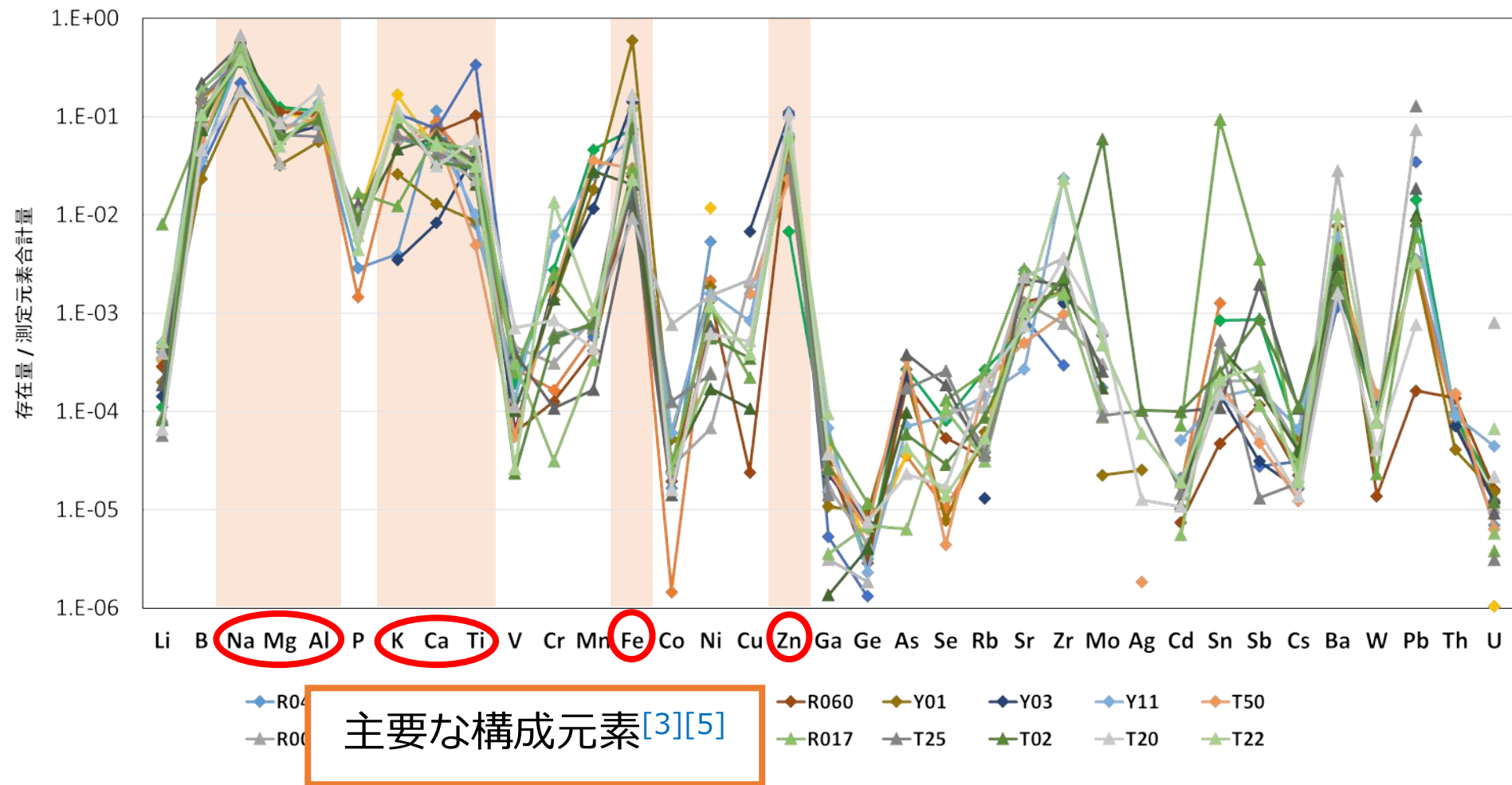
R003~T22は[4]より



# 各元素の含有率



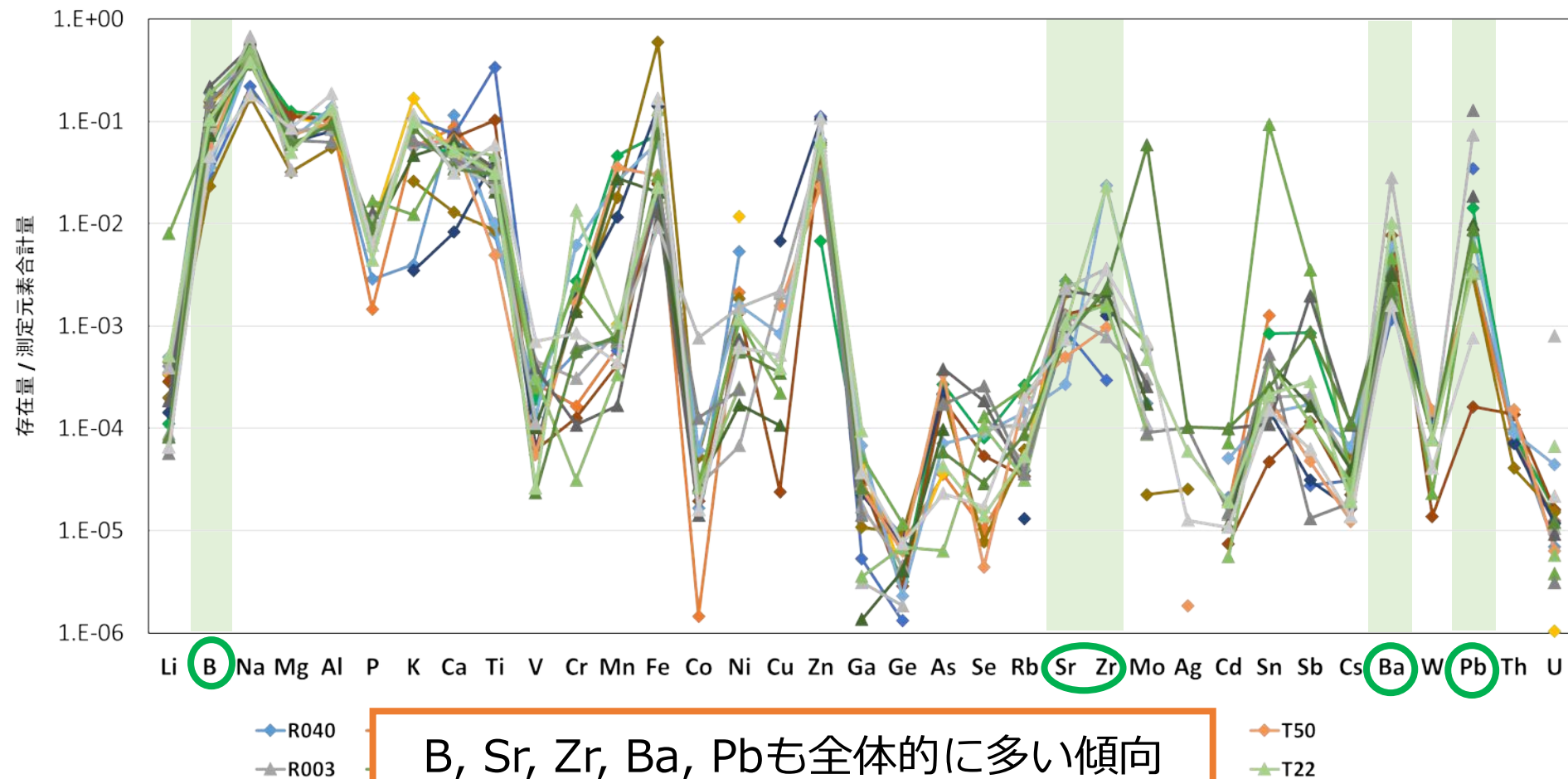
# 各元素の含有率



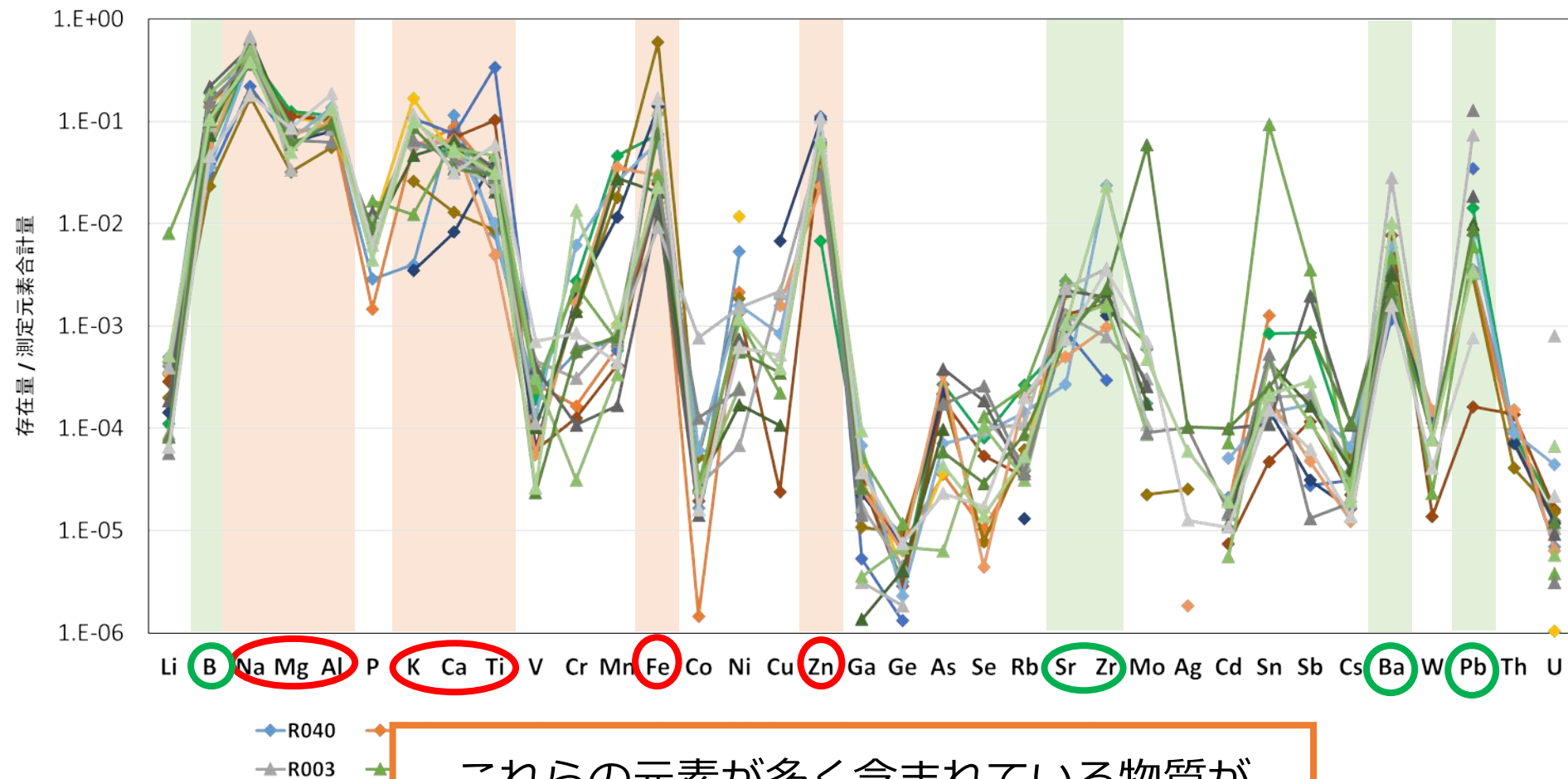
[3] Y. Satou et al. Geochem. J. (2018).

[5] 小野ら, 分析化学 (2017).

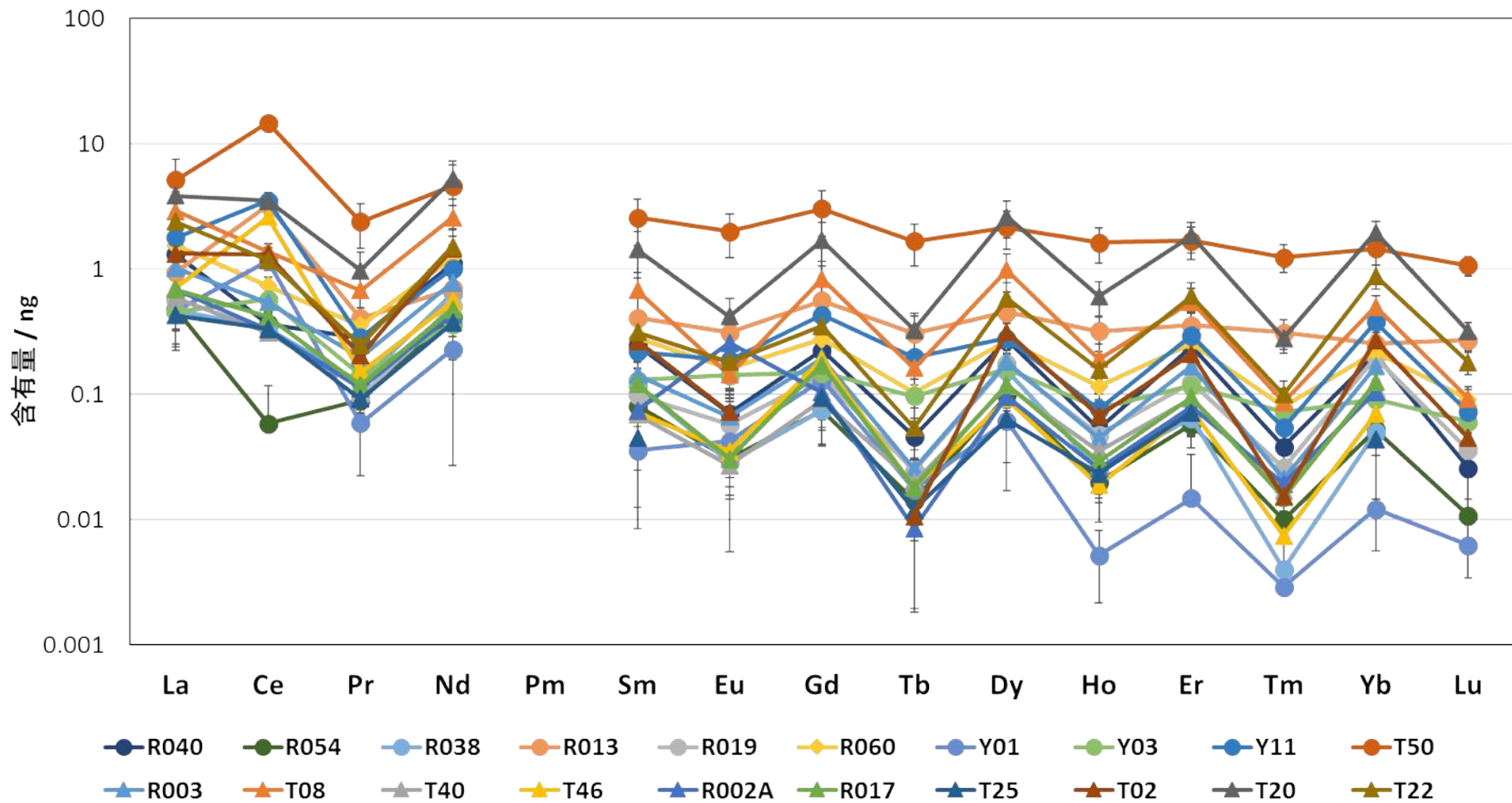
# 各元素の含有率



# 各元素の含有率



# 粒子中のランタノイド元素



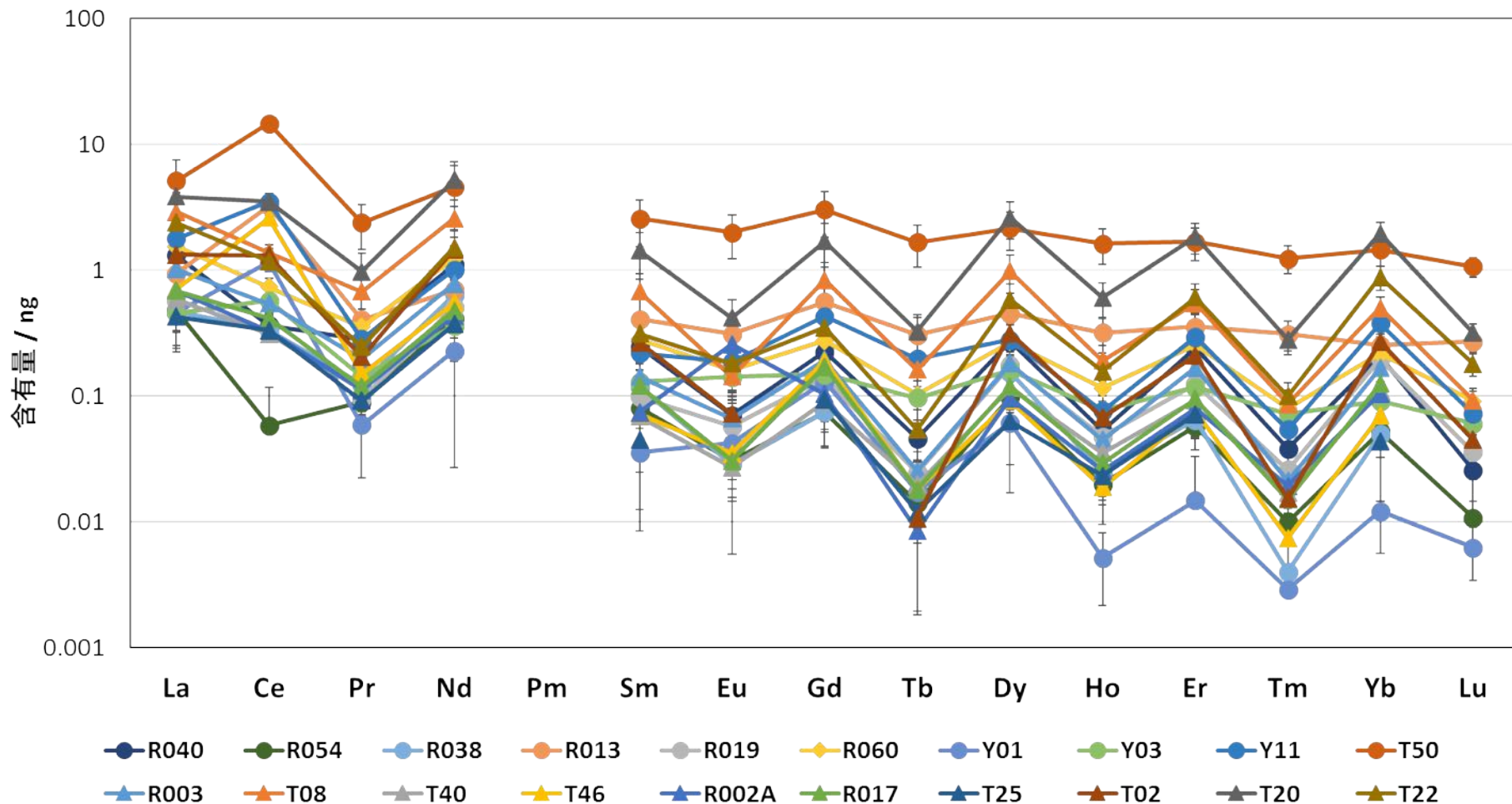
R003~T22は[4]より

天然中のランタノイドの存在度 (Oddo-Harkins則)

原子番号偶数の元素が奇数の元素よりも多い



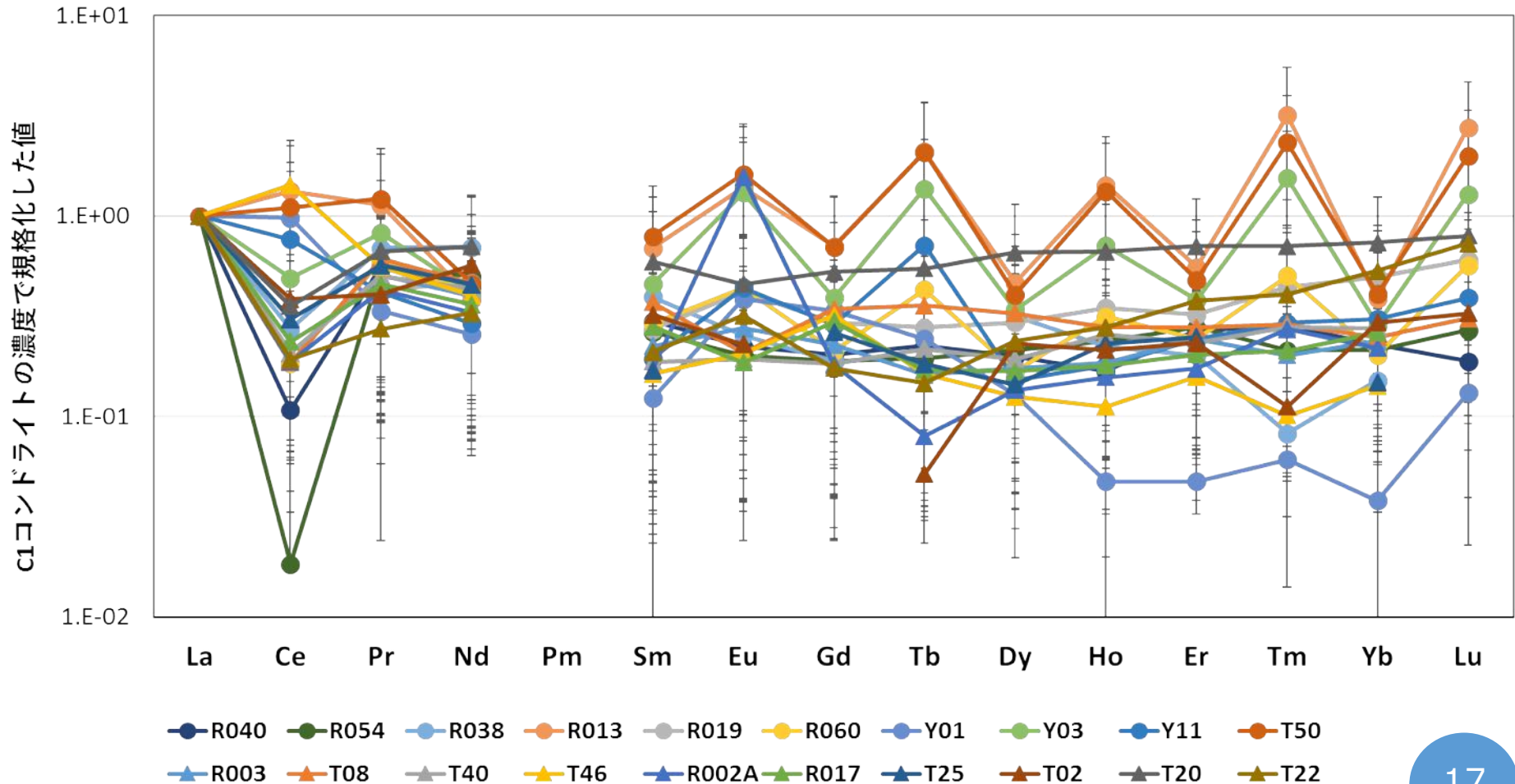
# 粒子中のランタノイド元素



Oddo-Harkins則を満たす  
ランタノイド元素は核燃料由来ではないと推測

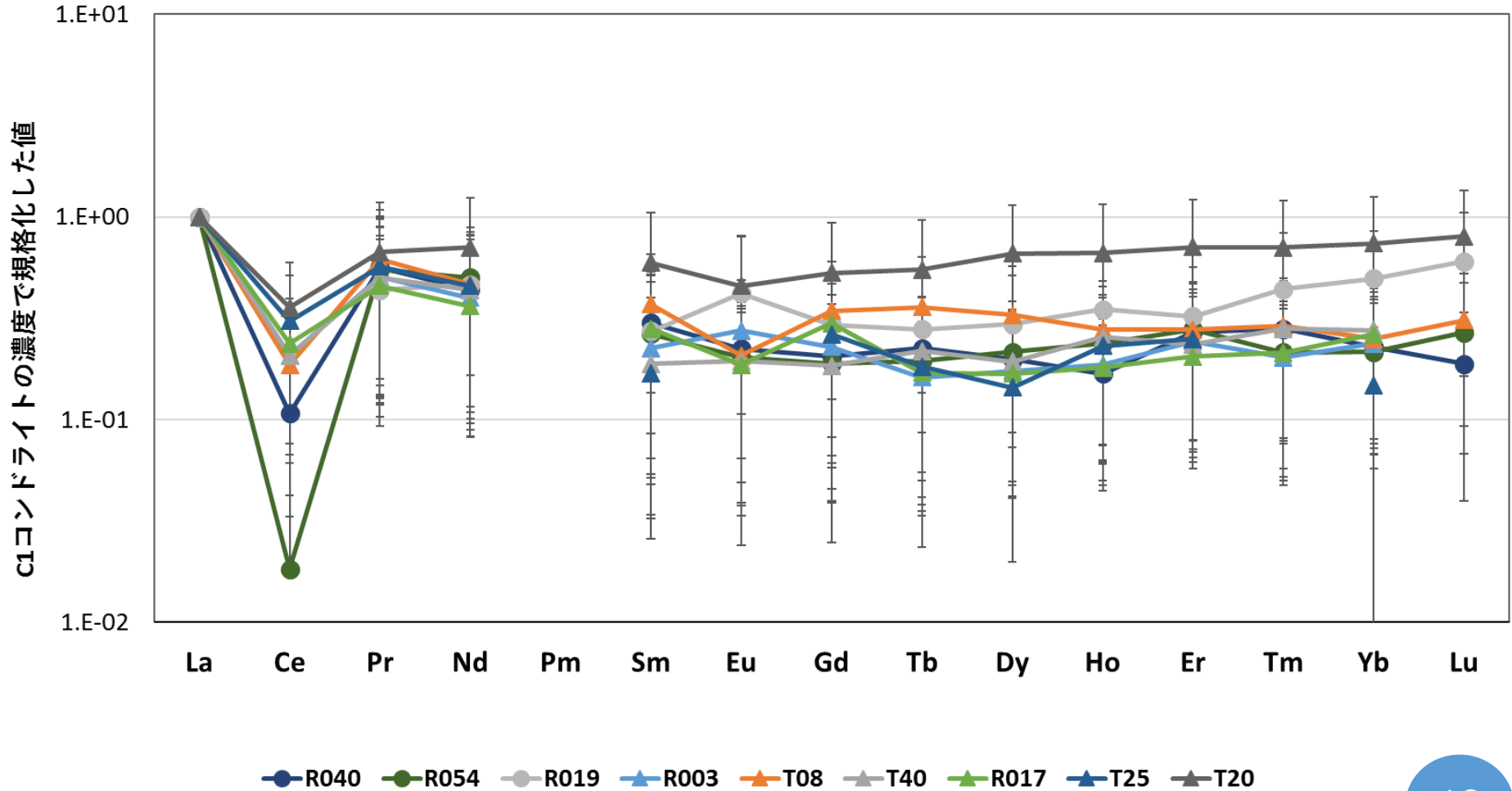
# ランタノイド元素のパターン

C1コンドライト（太陽系の始原始的な隕石）中の濃度で規格化<sup>[1]</sup>  
岩石試料によって異なる傾向を示す



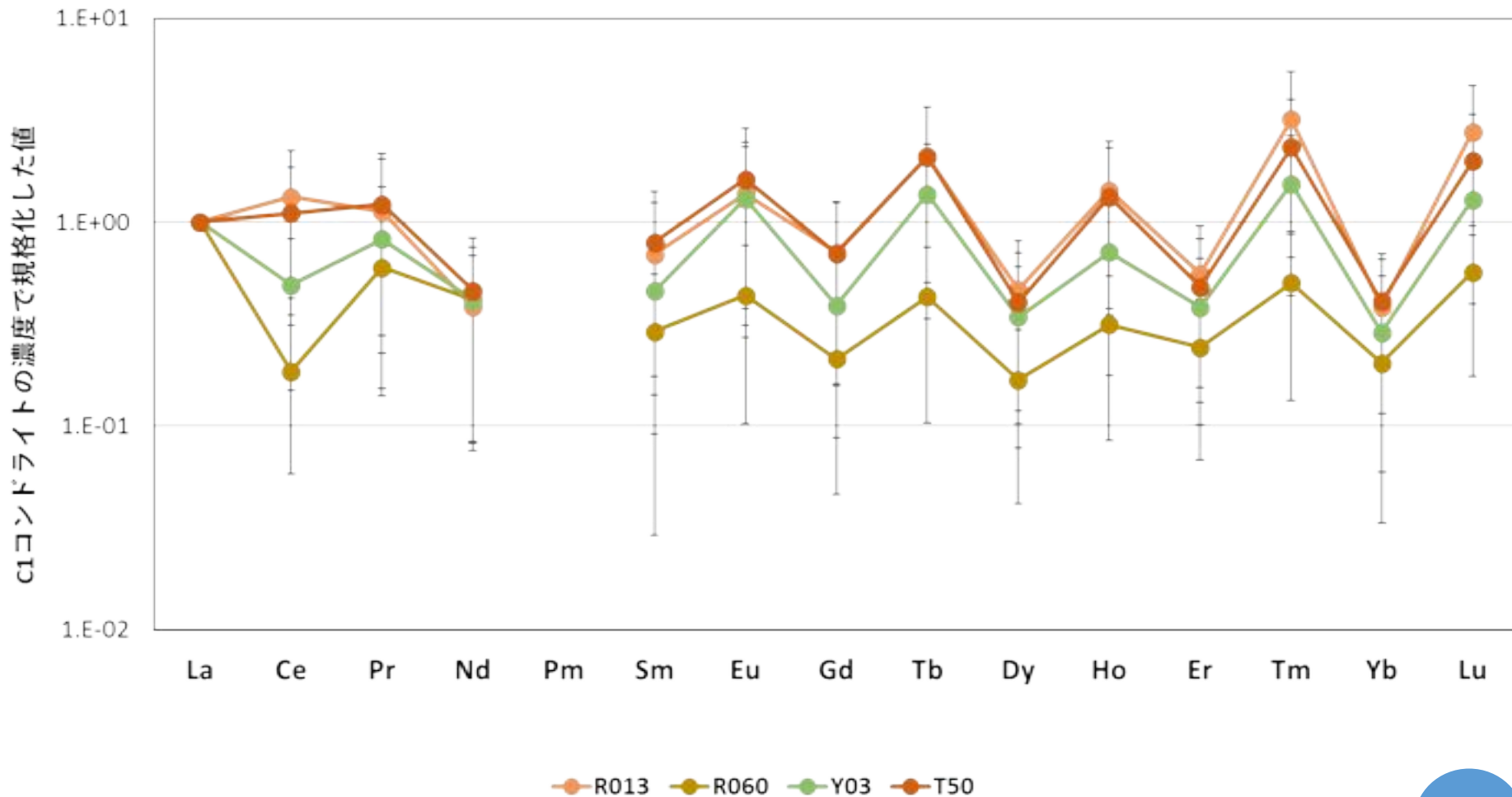
# ランタノイド元素のパターン

## パターン1: Sm~Luが滑らかになるパターン

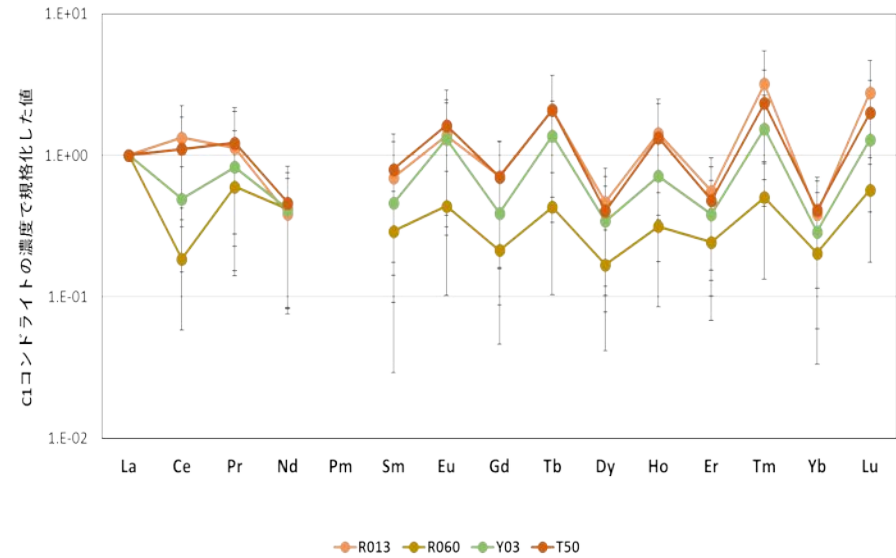
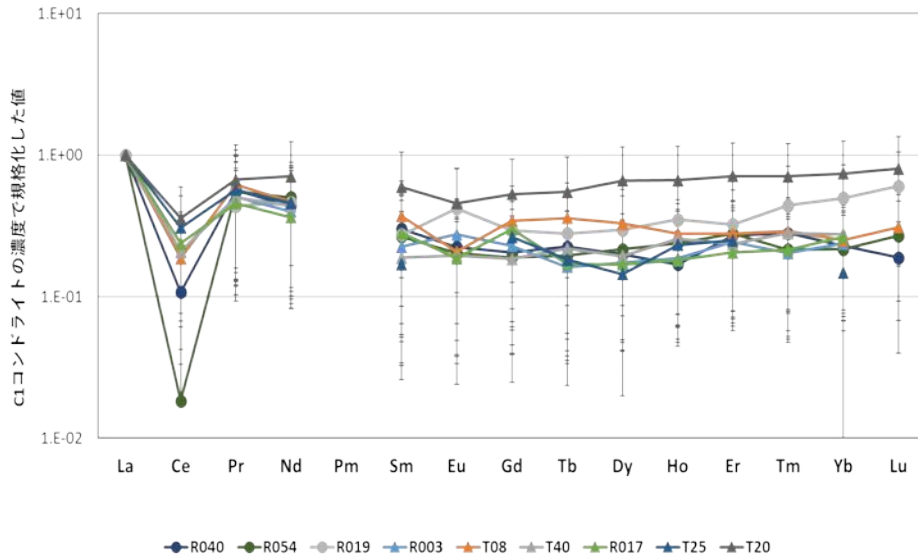


# ランタノイド元素のパターン

## パターン2: 全体に凹凸があるパターン



# ランタノイド元素のパターン

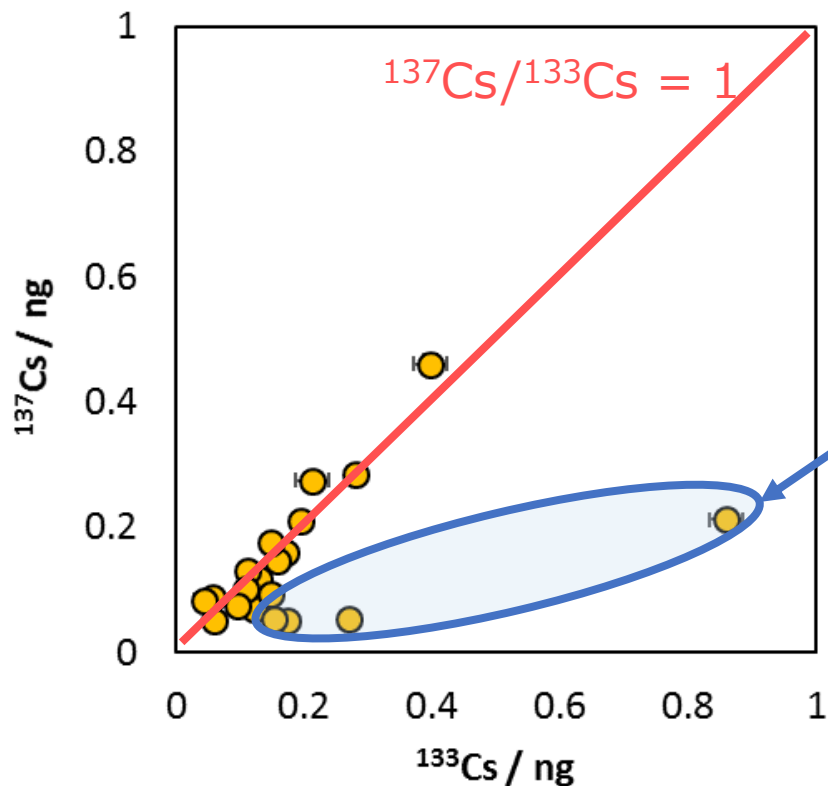


ランタノイドのパターンが複数確認  
原料となる物質が複数存在する可能性



- Na, Mg, Al, K, Ca, Ti, Fe, Znが主な成分であり、B, Sr, Zr, Ba, Pbも含有率が高い物質
- 1つの物質に限らず、複数の物質が原料として存在
- C1コンドライト中の濃度で規格化したときのランタノイド元素のパターンが滑らかになるものと、全体がジグザグになるものが原料である可能性

# $^{137}\text{Cs}$ と $^{133}\text{Cs}$ との関係



1号機炉内推定値[6]

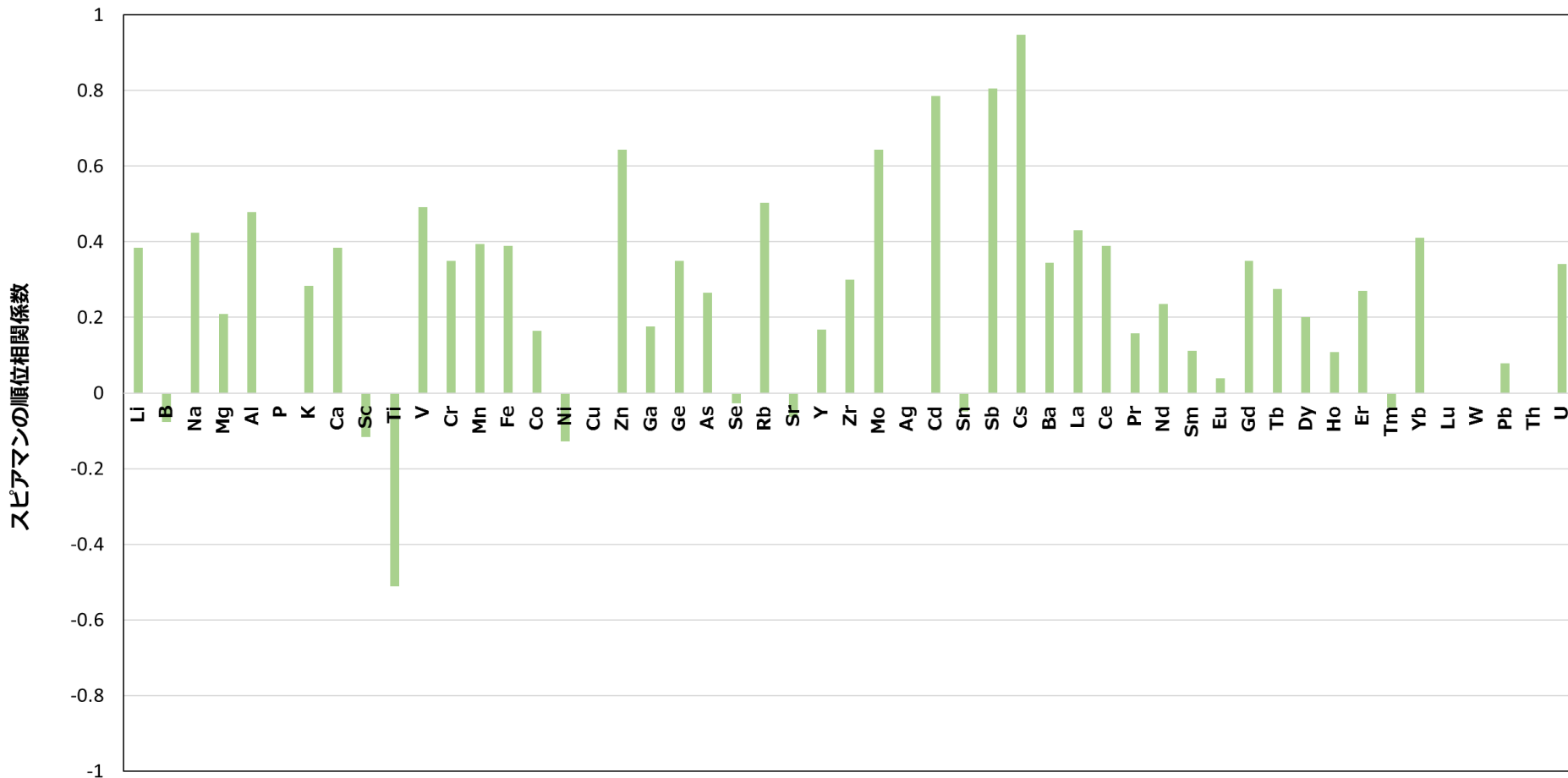
$^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs} \sim 1$

$^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 比が明らかに低い粒子  
天然由来 $^{133}\text{Cs}$ が混ざった？

[6] 西原ら, 福島第一原子力発電所の燃料組成評価 (2012).

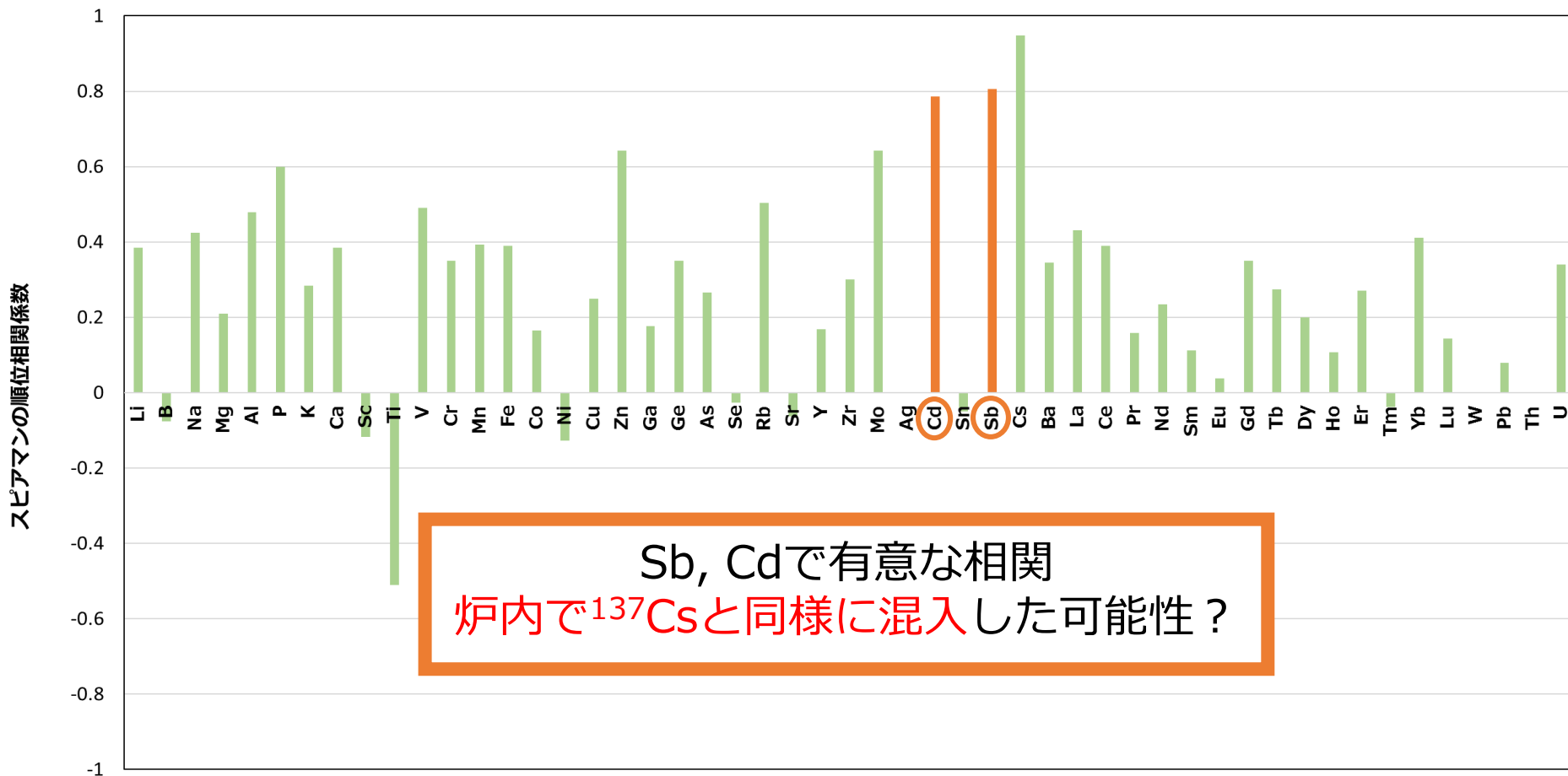
# $^{137}\text{Cs}$ と各元素の相関

天然由来の $^{133}\text{Cs}$ の混入が少ない粒子 ( $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs} \sim 1$ ) に注目  
(14試料が該当)

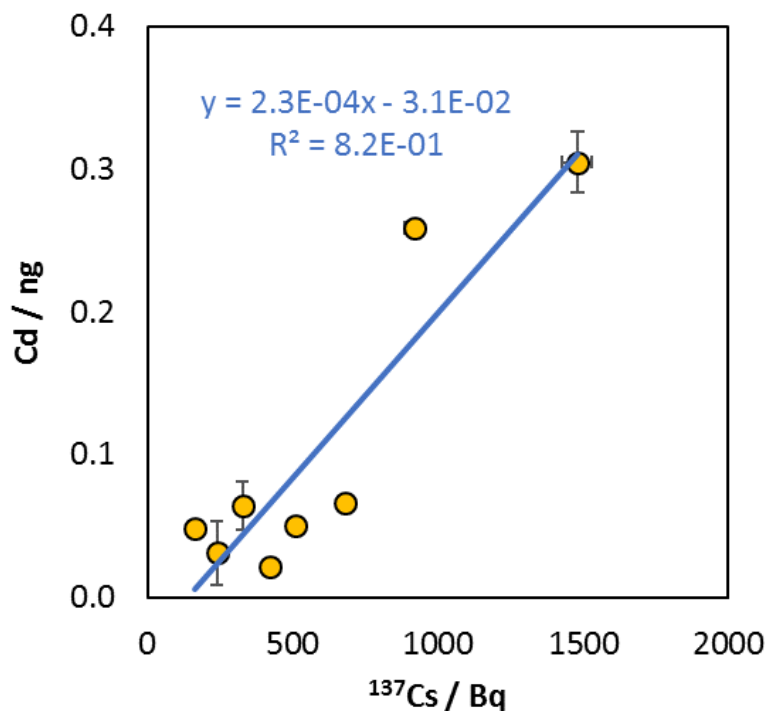


# $^{137}\text{Cs}$ と各元素の相関

天然由来の $^{133}\text{Cs}$ の混入が少ない粒子 ( $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs} \sim 1$ ) に注目  
(14試料が該当)



# $^{137}\text{Cs}$ とCdの関係



- $^{137}\text{Cs}$ は $\text{Cs}_2\text{O}$ や $\text{CsI}$ として存在  
800 °C付近にて揮発[7]
- カドミウムの沸点: 767 °C

$^{137}\text{Cs}$ とCdがともに**気体として**  
**粒子に混入**した可能性

$^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs} \sim 1$ の14粒子のうち  
Cdが検出できたのは8粒子



- 一部の粒子に天然由来 $^{133}\text{Cs}$ の混入
- $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 質量比は原子炉内の推定値に近い粒子では $^{137}\text{Cs}$ とSb, Cdとの間に有意な相関が見られ、これらの元素が $^{137}\text{Cs}$ と同様の過程で混入した可能性
- $^{137}\text{Cs}$ とCdが気体として粒子内に混入した可能性

# 本発表のまとめ

- 本研究ではType-B粒子を酸分解し、ICP-MSによる幅広い元素の定量分析を行った。
- Na, Mg, Al, K, Ca, Ti, Fe, Znといった主要元素に加え、B, Sr, Zr, Ba, Pbの含有率が全粒子で高い傾向にあり、これらの元素が原料に含まれていると推測された。
- 粒子中のランタノイド元素は核燃料由来ではないと示唆されたが、C1コンドライト中の濃度で規格化すると複数のパターンが確認され、Type-B粒子は原料物質として複数の物質が考えられることが示唆された。
- 天然由来の $^{133}\text{Cs}$ が粒子中に混入したと考えられる粒子が確認された。 $^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 質量比が1号機核燃料の推定値に近い粒子に関して、 $^{137}\text{Cs}$ とSb, Cdとの間に有意な相関が見られた。特にCdとの関係は直線関係に近く、 $^{137}\text{Cs}$ とCdがともに気体として混入した可能性が示唆された。

# ご静聴 ありがとうございました

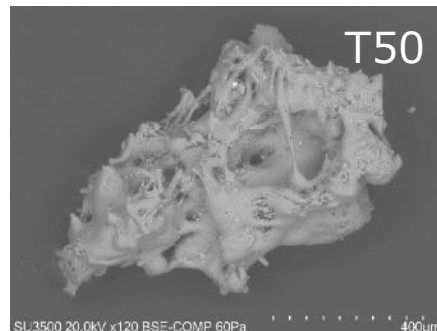
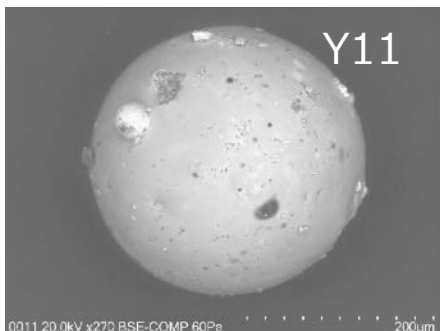
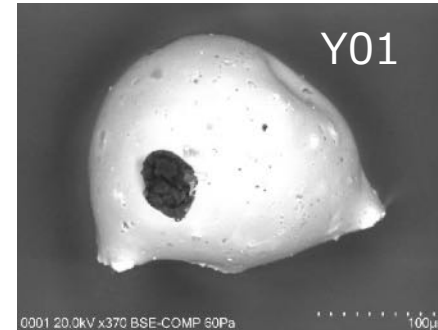
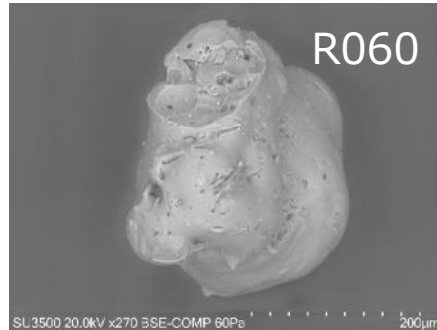
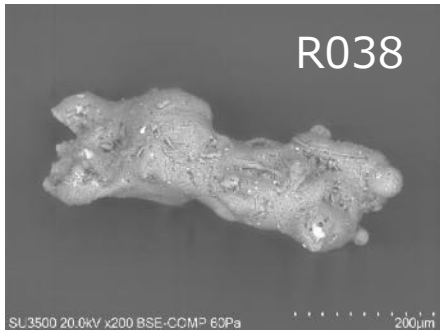
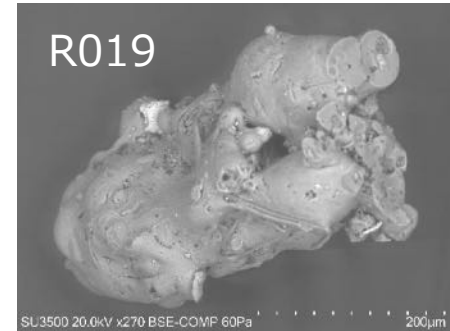
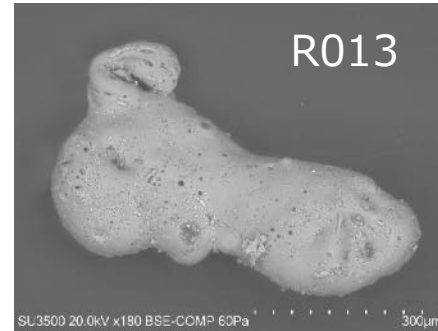
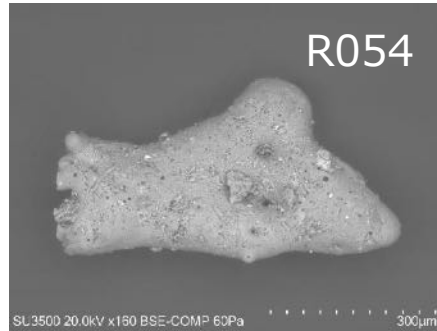
## 謝辞

本研究で使用したダスト試料は、日本原子力研究開発機構 吉川 英樹様、  
並びに慈恵会医科大学 箕輪 はるか様のご協力で採取されました。

また、SEM-EDSは気象研究所のものをお借り致しました。  
ご協力いただいた皆様にこの場を借りて御礼申し上げます。

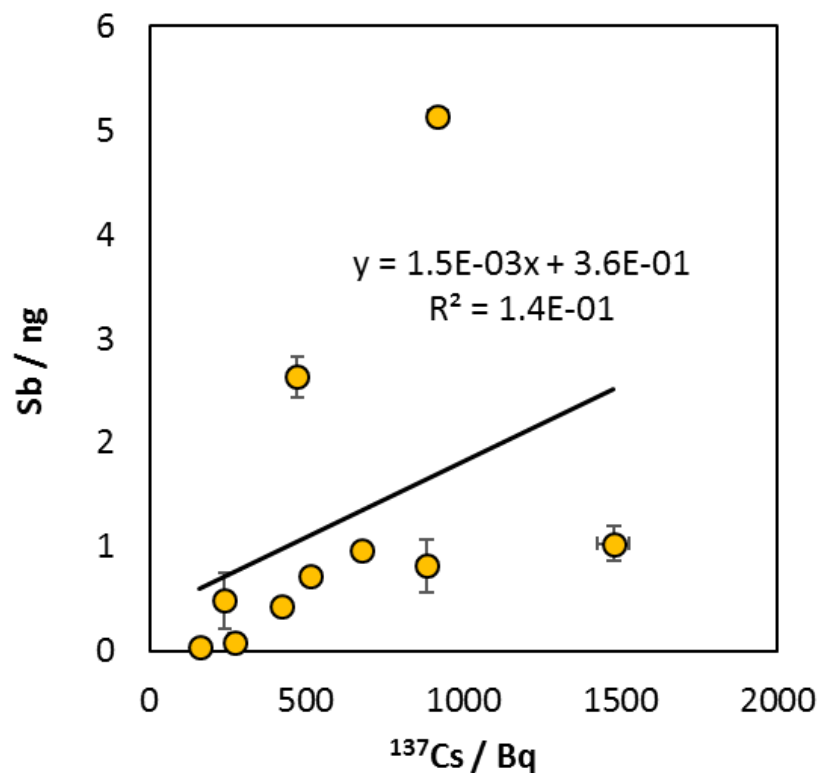


# 分解した放射性粒子





# $^{137}\text{Cs}$ とSbの相関



$^{125}\text{Sb}$ と $^{137}\text{Cs}$ の間に正の相関あり[8]

Sbは揮発性が比較的高い  
揮発後は1  $\mu\text{m}$ 以下の粒子として浮遊[9]

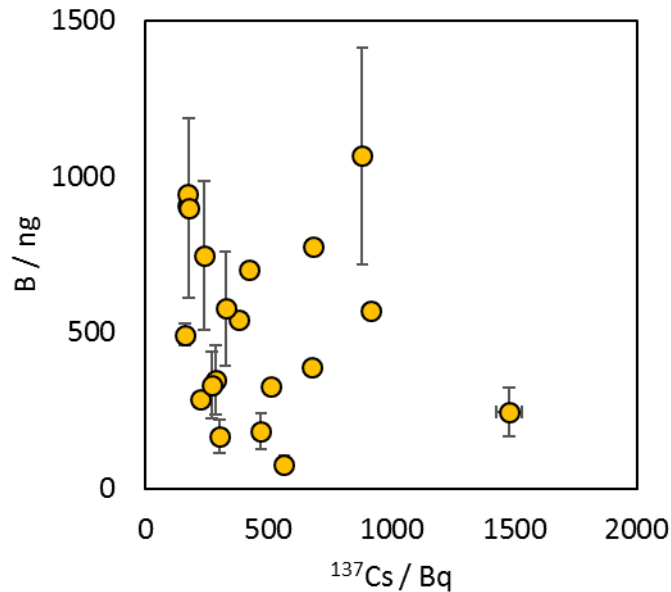
$^{137}\text{Cs}/^{133}\text{Cs}$ 質量比  $\sim 1$ の粒子を抜粋  
(10粒子)

[8] 松尾 一樹, 筑波大学化学類卒業論文 (2017).

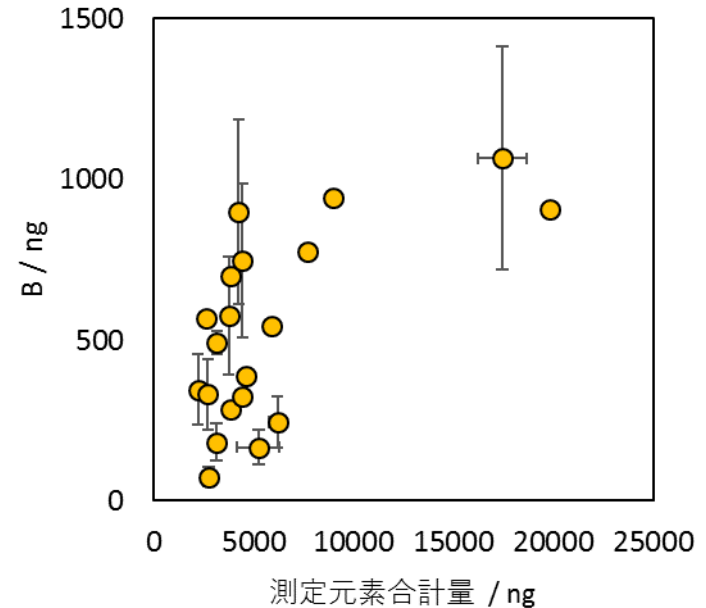
[9] 新エネルギー・産業技術総合開発機構 (2008)

[https://www.nite.go.jp/chem/chrip/chrip\\_search/dt/pdf/CI\\_02\\_001/hazard/hyokasyo/No-132.pdf](https://www.nite.go.jp/chem/chrip/chrip_search/dt/pdf/CI_02_001/hazard/hyokasyo/No-132.pdf).

# ホウ素について



$^{137}\text{Cs}$  vs. B (全20粒子)  
Spearmanの順位相関係数: -0.20  
有意な相関は見られず



測定元素合計量 vs. B (全20粒子)  
Spearmanの順位相関係数: 0.48  
有意な相関あり

ホウ素は原料由来の可能性

2020.12.24

KUR 専門研究会

# 放射性微粒子に含まれるプルトニウム 同位体分析

(阪大院理<sup>1</sup>、量研<sup>2</sup>、原子力機構<sup>3</sup>、北京大物理<sup>4</sup>、慈恵医大<sup>5</sup>、筑波大院数理物質<sup>6</sup>)

○五十嵐淳哉<sup>1</sup>、鄭建<sup>2</sup>、張子見<sup>1</sup>、二宮和彦<sup>1</sup>、佐藤志彦<sup>3</sup>、福田美保<sup>2</sup>、倪有意<sup>2,4</sup>、  
青野辰雄<sup>2</sup>、箕輪はるか<sup>5</sup>、吉川英樹<sup>3,5</sup>、末木啓介<sup>6</sup>、篠原厚<sup>1</sup>

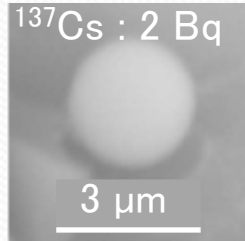
# 研究背景

## 放射性Csを含む不溶性粒子の存在

SiO<sub>2</sub>を主成分とし、放射性Csが濃集した水や酸に不溶な微粒子

性質の異なる複数種類の不溶性粒子の存在が指摘

### タイプA



タイプAのSEM像

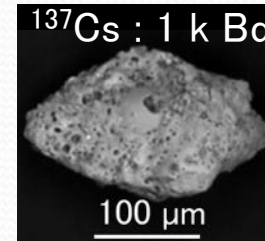
$^{134}\text{Cs} / ^{137}\text{Cs} \doteq 1.0$

Unit2 or 3由来

2, 3号機由来  
の小さな粒子

K. Adachi et.al. Sci. Rep. (2013) 3, 2554

### タイプB



タイプBのSEM像

$^{134}\text{Cs} / ^{137}\text{Cs} \doteq 0.9$

Unit1由来

1号機由来  
の大きな粒子

Y. Satou. et al. Geochem. J. (2018) 52, 0514

原子炉から直接放出され、水や酸に不溶であることから  
放出時の物理化学状態を保持

組成元素分析により事故時の炉内状況の把握が期待される



# 研究背景

## 不溶性粒子の生成過程

揮発したガス状のCsやUが炉内のSiO<sub>2</sub>源に取り込まれ生成[1,2,3]

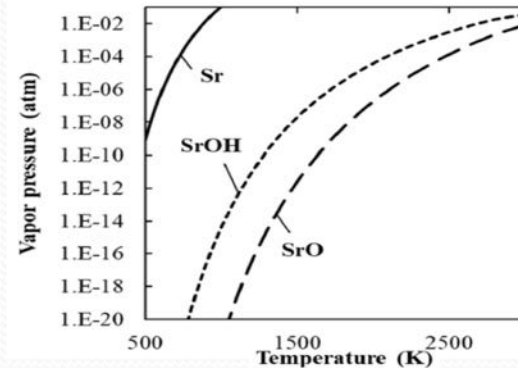
U-Zr酸化物のフラグメントが炉内のSiO<sub>2</sub>源に取り込まれた[4]

揮発した放射性核種のSiO<sub>2</sub>源への取り込みは  
炉内の温度や酸化還元雰囲気依存

## 揮発化による放射性核種の挙動

### 核燃料の揮発グループ分け [5]

グループ	核種	揮発性: 大
FP ガス	Kr, Xe	
揮発性FP	Cs, I, Te, Sb	
半揮発性FP	Mo, Ba, Pd	
低揮発性FP	Sr, Ru, Ce, La	
アクチノイド	U, Pu	



Srの各化学状態による  
核燃料からの放出率の違い[6]


燃料由来のSr/CsやPu/Csからや炉内温度や酸化還元雰囲気の解明が期待



# 研究目的と発表内容

## 本研究の目的

- ・Sr/Cs, Pu/Csの違いから粒子生成時の炉内環境を検討

 放射化学的手法とICP-MS分析により不溶性粒子に含まれるSr, Pu同位体を定量

## 内容:

1. 実験 – 環境試料の採取
  - 不溶性粒子の単離・分類(形状・主要元素分析、 $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ )
  - 不溶性粒子のSr, Pu分析( $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ の定量)
2. 結果 – 不溶性粒子の分類
  - 不溶性粒子に含まれるSr, Pu
3. 考察 – Pu同位体比( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ )
  - 揮発化での放出過程との比較: Sr/Cs
  - 揮発化での放出過程との比較: Pu/Cs
  - 粒子生成時の炉内環境の検討

# 1.実験：環境試料の採取

## ・採取地点1

：福島県双葉郡双葉町  
原発から北方向へ3 km

2015年1月

工場跡地のダスト(DP)を採取

## ・採取地点2

：福島県双葉郡双葉町  
原発から北方向へ6 km

2020年1月

表層土壌(SP)を採取

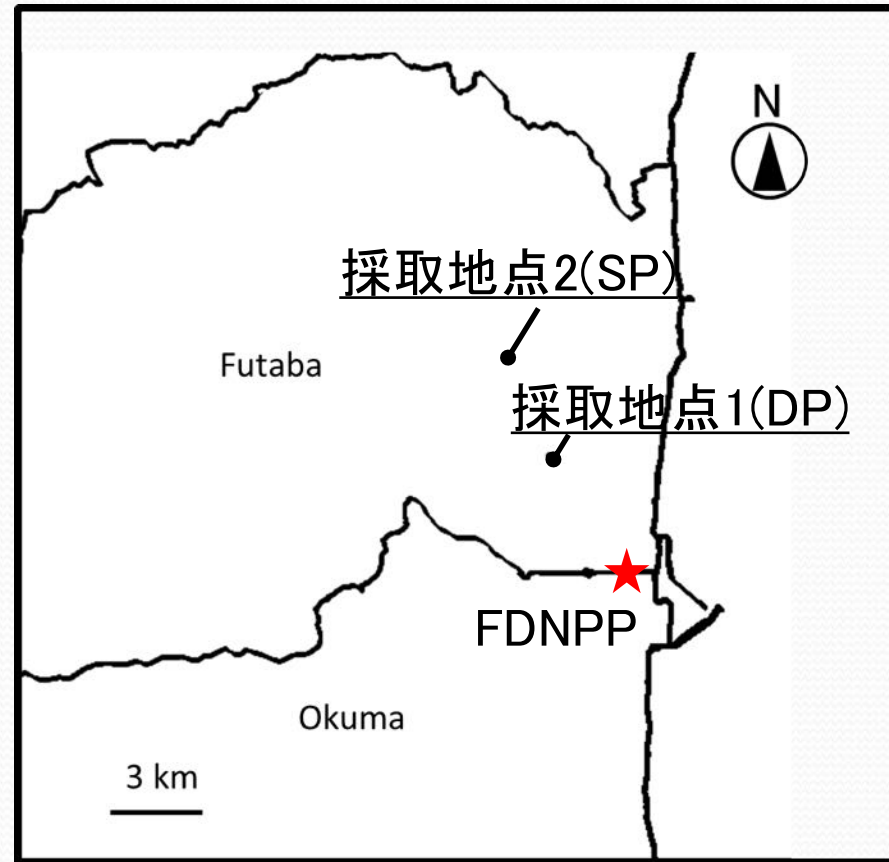


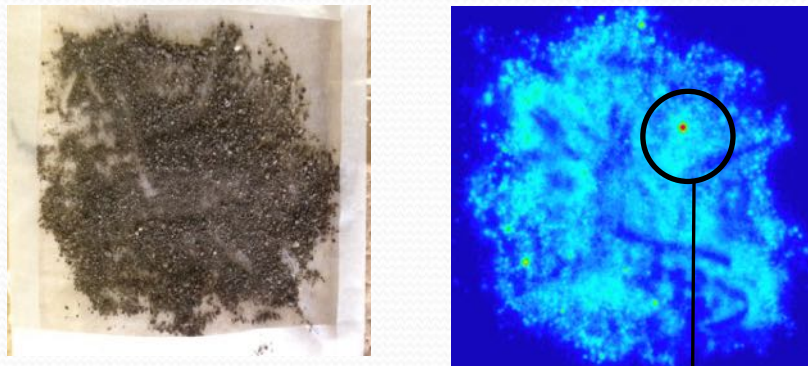
Fig. 環境試料の採取地点



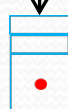
# 1.実験：不溶性粒子の単離・分類

## 不溶性粒子の単離

IP画像取得による強放射能点把握

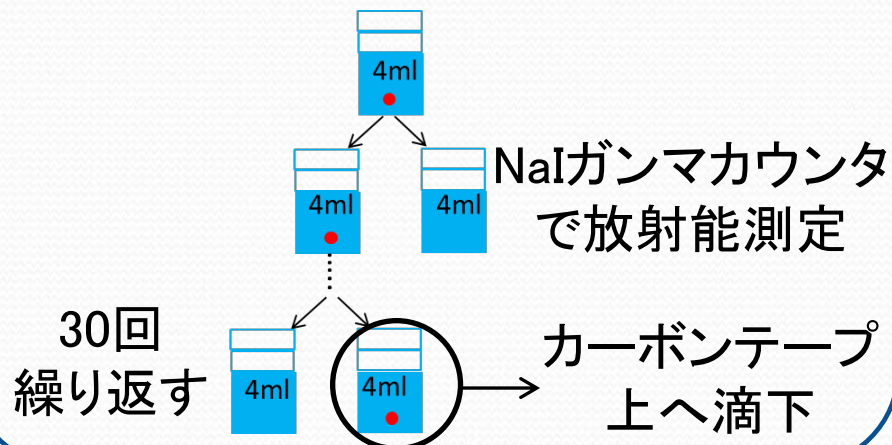


強放射能点を含むフラクション  
を分取しバイアル中へ



湿式分離法による不純物成分低減

H. Miura. et al. *Geochem. J.* (2018) 52, 145-154.



30回  
繰り返す

カーボンテープ  
上へ滴下

## 不溶性粒子の分類

・SEM-EDS分析

形状を観察  
主要元素を分析



電子顕微鏡 (SEM) - 蛍光X線元素分析  
(EDS) 機器 KEYENCE, VE-9800

・ $\gamma$ 線測定

$^{134}\text{Cs}$  (604 keV),  
 $^{137}\text{Cs}$  (661 keV)  
を定量



Ge半導体検出機器  
ORTEC, GEM 40-76-HJ

# 1.実験：不溶性粒子の Sr, Pu分析

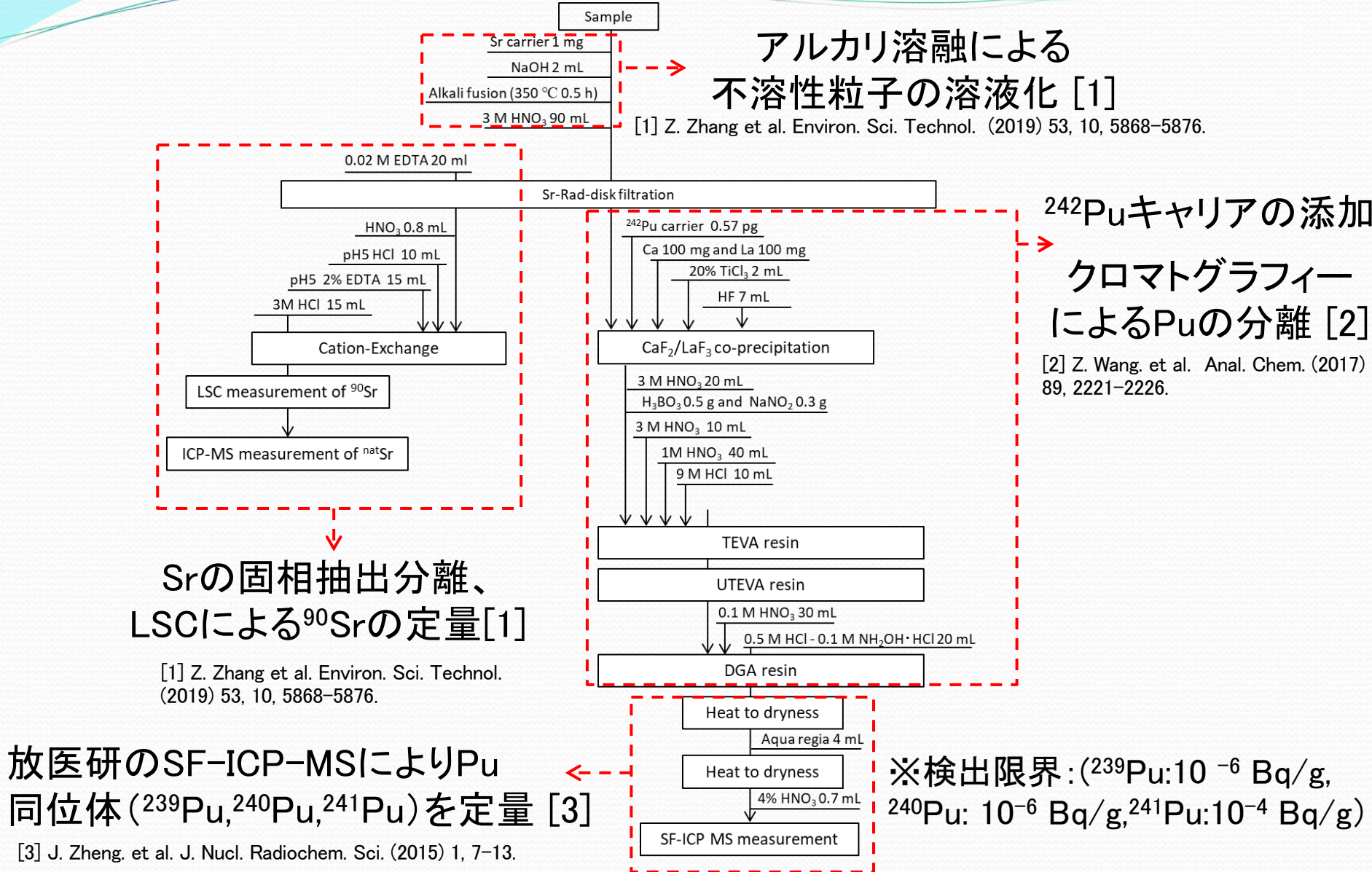


Fig. 不溶性粒子中のSr, Pu分析スキーム



## 2.結果：不溶性粒子の分類

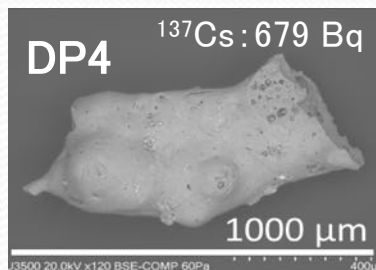


Fig. DPから単離した不溶性粒子のSEM像

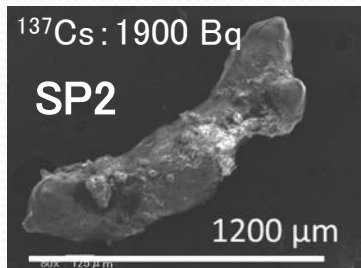
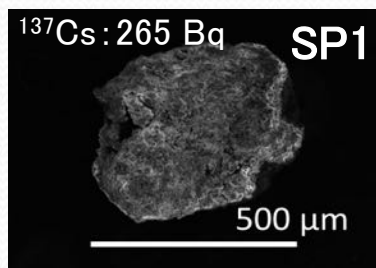


Fig. SPから単離した不溶性粒子のSEM像

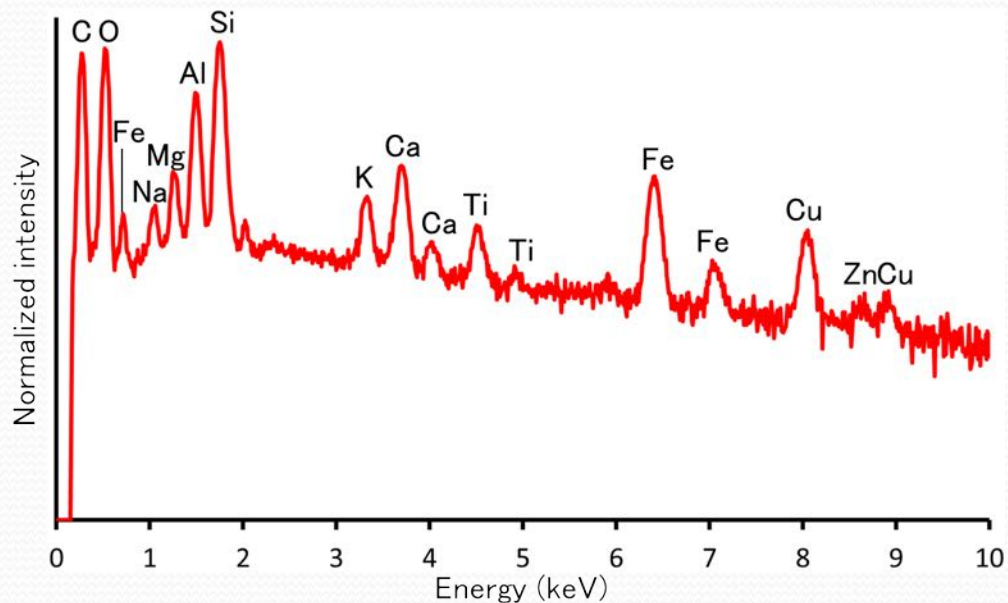


Fig. SP1のEDSスペクトル

DP, SPから単離した  
不溶性粒子の特徴

- ・いびつな形状
- ・粒径：500–1200 μm
- ・放射能：300–2000 Bq
- ・ $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs} \doteq 0.9$
- ・主成分は $\text{SiO}_2$
- ・低比放射能

水素爆発により放出されたUnit1由来のタイプB



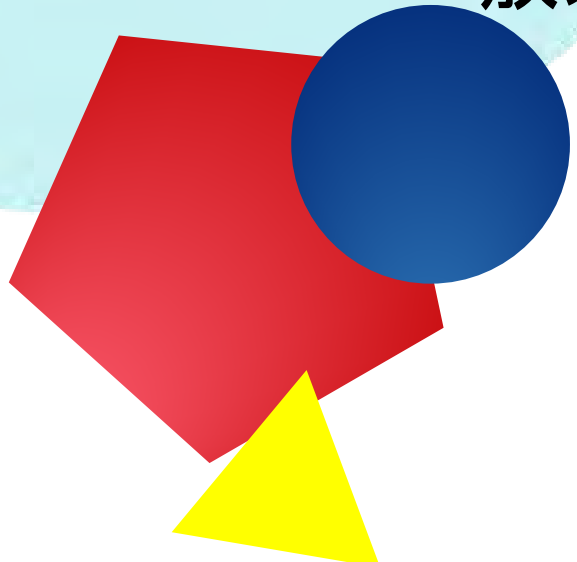
### 3.考察:Pu同位体比

	$^{240}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu} / ^{239}\text{Pu}$
Radioactive particles (In this work)	$0.375 \pm 0.034$ (Average value)	$0.174 \pm 0.014$ (Average value)
Calculated value of inventory core [1]	0.344 (Unit1)	0.192 (Unit1)
	0.320 (Unit2)	0.192 (Unit2)
	0.356 (Unit3)	0.183 (Unit3)

# 4.まとめ

- ✓ 1号機由来のタイプB粒子に含まれるSr( $^{90}\text{Sr}$ ),Pu同位体( $^{239}\text{Pu}$ , $^{240}\text{Pu}$ , $^{241}\text{Pu}$ )の定量を行った。
- ✓ 不溶性粒子の分析により、福島原発事故由来の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ が $0.375 \pm 0.034$ 、 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ が $0.174 \pm 0.014$ と決定された。この値は炉内インベントリーの平均値とわずかに異なっていることがわかった。

本研究は、科学研究費補助金(JP16H01777、JP17K00537)、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」、および福島県放射線医学研究開発事業「放射性物質環境動態調査事業」の助成を受けたものです。



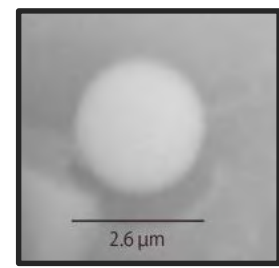
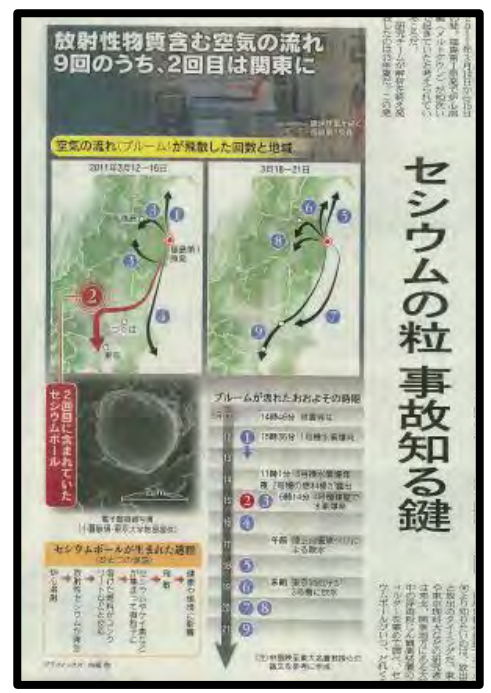
# KPFM法を用いた 放射性Cs微粒子の帯電状態の解明

慶應義塾大学 理工学部 応用化学科  
新家雪実・奥田知明

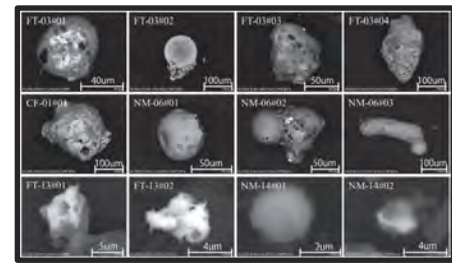




## 福島第一原発事故によって 放射性Cs微粒子 (CsMP:radiocesium-bearing microparticles)が飛散



Type A



Type B

数μmから数十μmと大きさはさまざま

**CsMPは不溶性**  
 →体内にとどまり悪影響を与え続ける

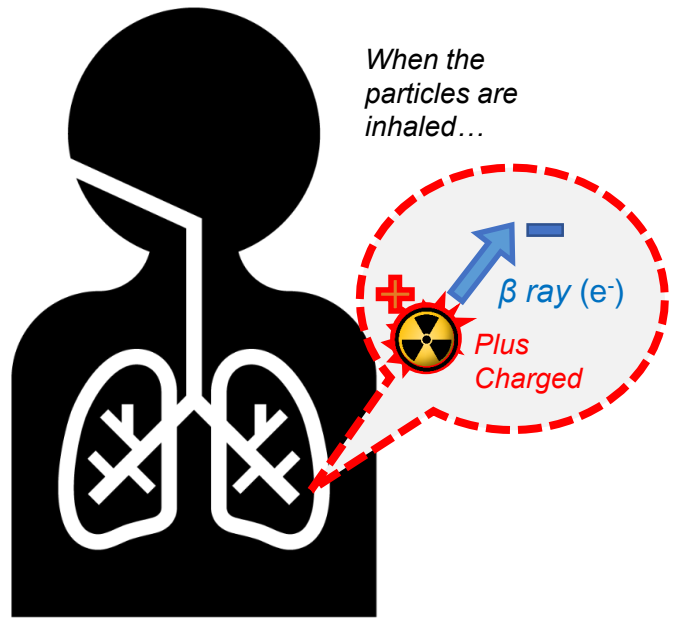
\*日本経済新聞 2017年8月11日

\*\*Adachi, K. et al. (2013) *Sci. Rep.*, 3, 2554

\*\*\*Satou, Y. et al. (2018) *Geochem. J.*, 52, 137-143



# 本研究の背景



放射性エアロゾルは  
**β崩壊**により**自家帯電**する\*



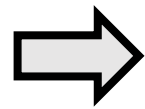
**エアロゾルが帯電**  
→気道内部に  
沈着しやすくなる\*\*  
*Aerosol Deposition :*  
$$\frac{\text{Charged Particle}}{\text{Uncharged Particle}} = 6.2$$



粒子放射能



粒子帯電による沈着の促進



人体への想定以上の  
悪影響の可能性

\*Gensdarnes, F. et al (2001) *J. Aerosol Sci.* **32**, 1437-1458

\*\*Cohen, B.S. et al. (1998) *Health Phys.*, **74**(5), 554-560





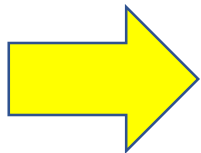
## 1. 既往研究について

- ・実環境中から採取された粒子個々の詳細な帯電状態を測定する手法は未確立
- ・原発事故に由来する粒子の帯電状態は未知

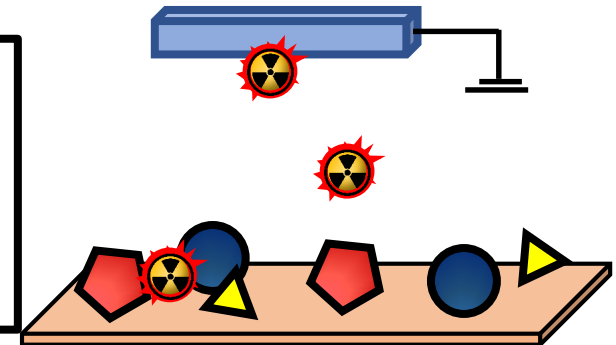


## 2. 本研究の目的

- ・個別粒子の帯電状態の解明方法を確立する
- ・KPFM法を用いて、CsMPの帯電状態を調べる



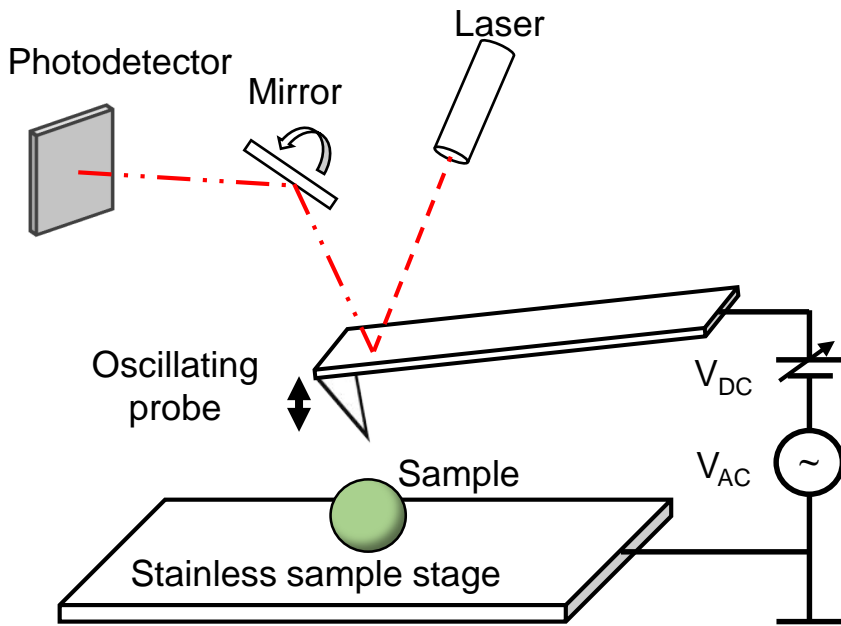
廃炉作業への貢献  
粒子除去技術の考案  
人体への有害性評価





# KPFM : Kelvin Probe Force Microscopy

KPFMは原子間力顕微鏡 (AFM) の一種



振動するプローブを  
サンプルに近づける



振動周期の変化を検出

原子間力による  
振動周期の変化

静電気力による  
振動周期の変化

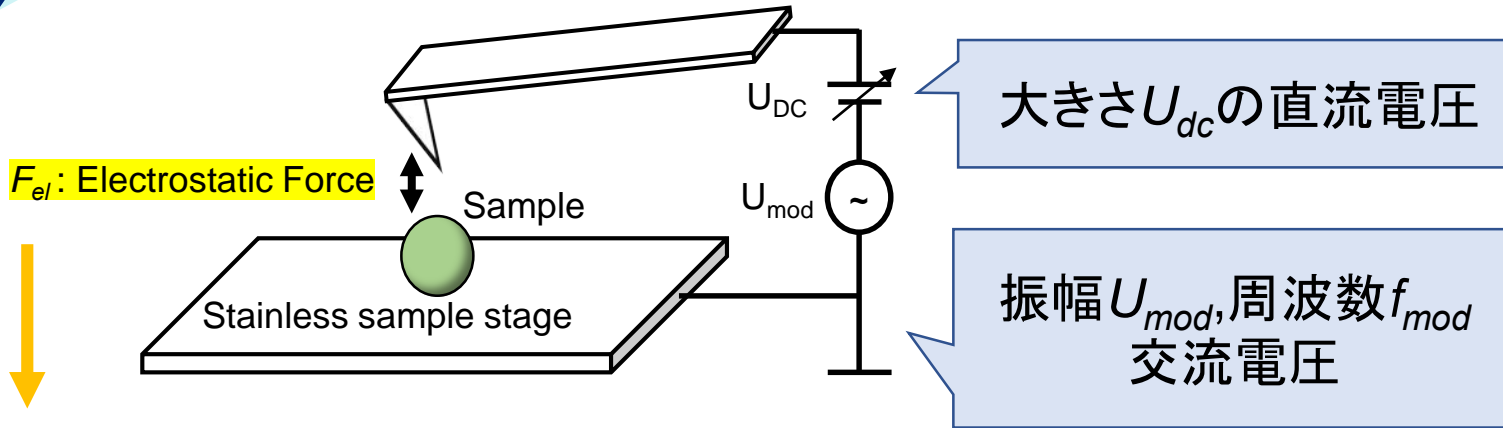


高さ像を得る

表面電位像を得る



# KPFM法の原理



$$F_{el} = \frac{1}{2} \frac{\partial C}{\partial z} U^2 \text{ with}$$

$$U = U_{dc} - \frac{\Delta\phi}{e} + U_{mod} \cos(2\pi f_{mod}t)$$

$$F_{el} = \frac{1}{2} \left[ \left( U_{dc} - \frac{\Delta\phi}{e} \right)^2 + \frac{1}{2} U_{mod}^2 \right] \frac{\partial C}{\partial z} \quad \left. \vphantom{F_{el}} \right\} \text{静的部分}$$

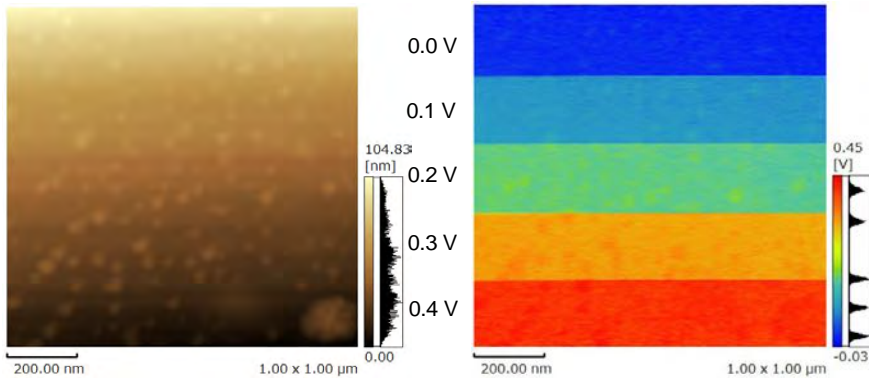
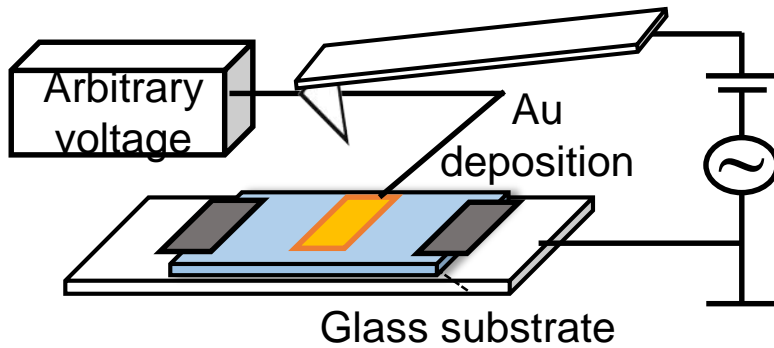
$$+ \frac{\partial C}{\partial z} \left( U_{dc} - \frac{\Delta\phi}{e} \right) U_{mod} \cos(2\pi f_{mod}t) \quad \left. \vphantom{F_{el}} \right\} \text{動的部分}$$

$$+ \frac{1}{4} \frac{\partial C}{\partial z} U_{mod}^2 \cos(2 \times 2\pi f_{mod}t).$$



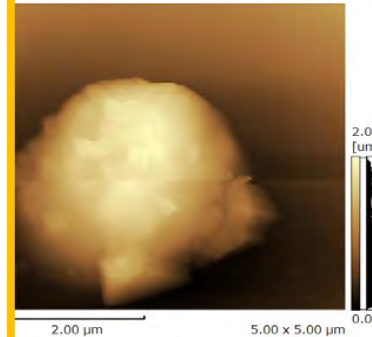
# 去年までの主な研究

## 電位の測定値の妥当性

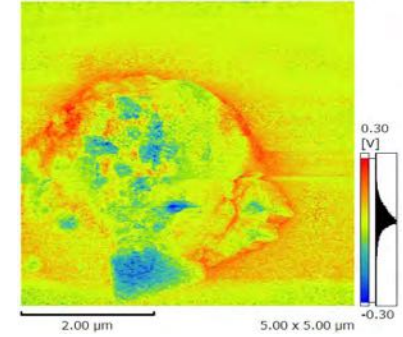


## CsMPのKPFM測定

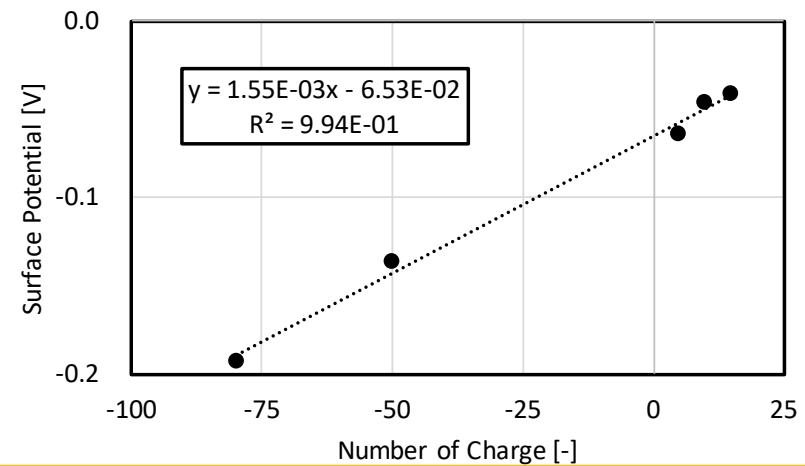
高さ像



電位像



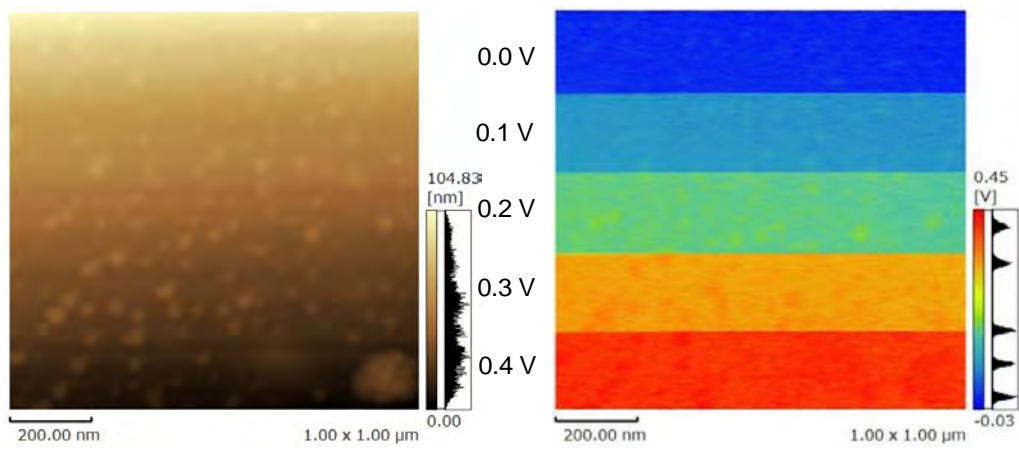
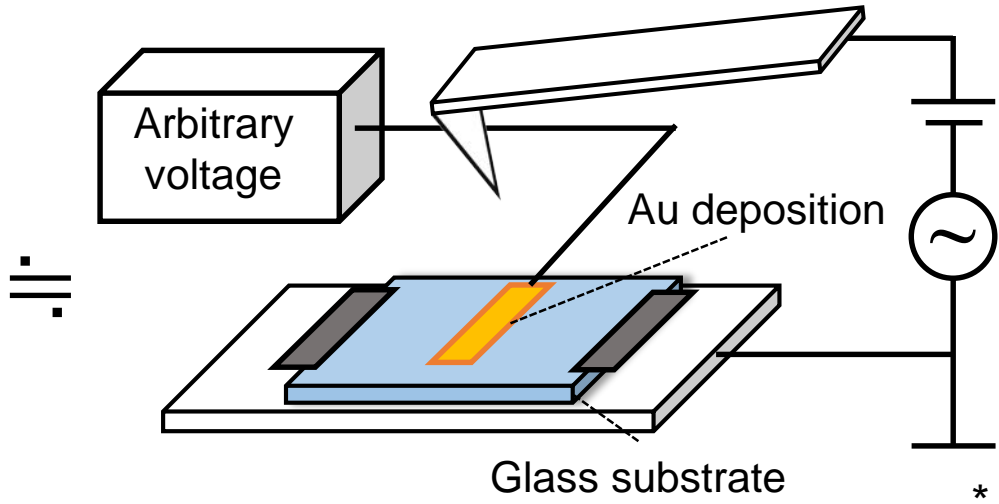
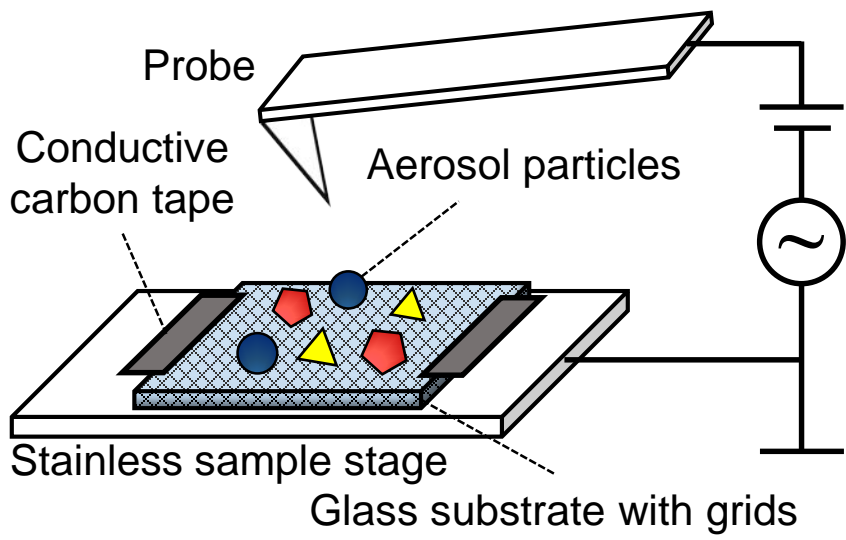
## 荷電数と表面電位間の線形性(NaClについて)





# 去年の研究成果 - 測定値の妥当性の確認

## ガラス基板上のKPFM測定の確認



ガラス基板の上にAuを塗布し電圧を印加  
→0.1 V程度の分解能で測定◎

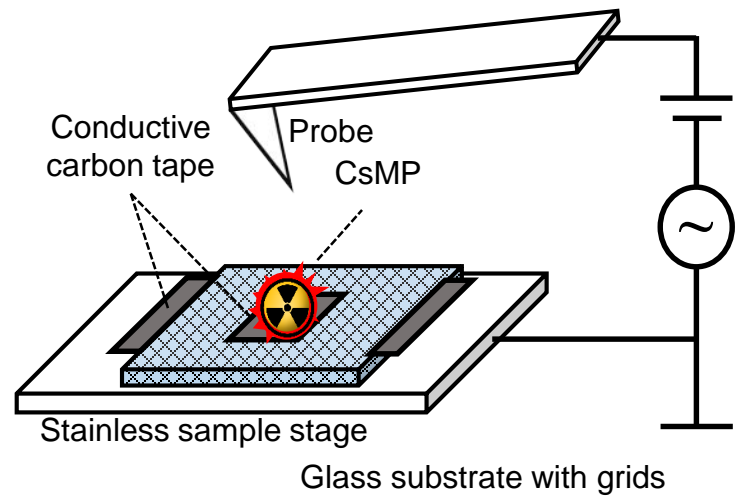
\*黒澤景一.(2020) KPFM法を用いた放射性Cs微粒子の電気的特性の解明, 慶應義塾大学大学院理工学研究科開放環境化学専攻修士論文



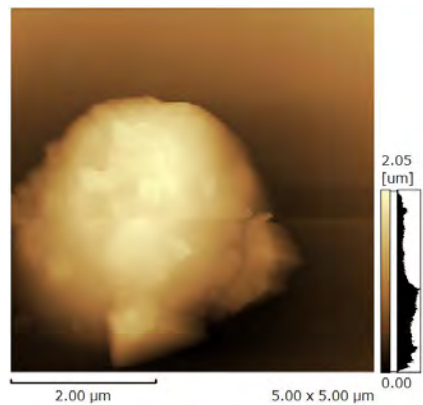


# 去年の研究成果 – CsMPの測定

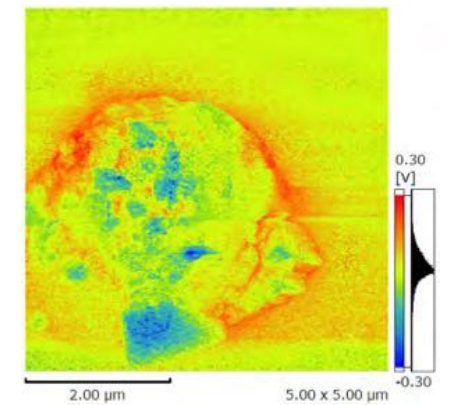
## CsMPのKPFM測定結果



高さ像



電位像\*

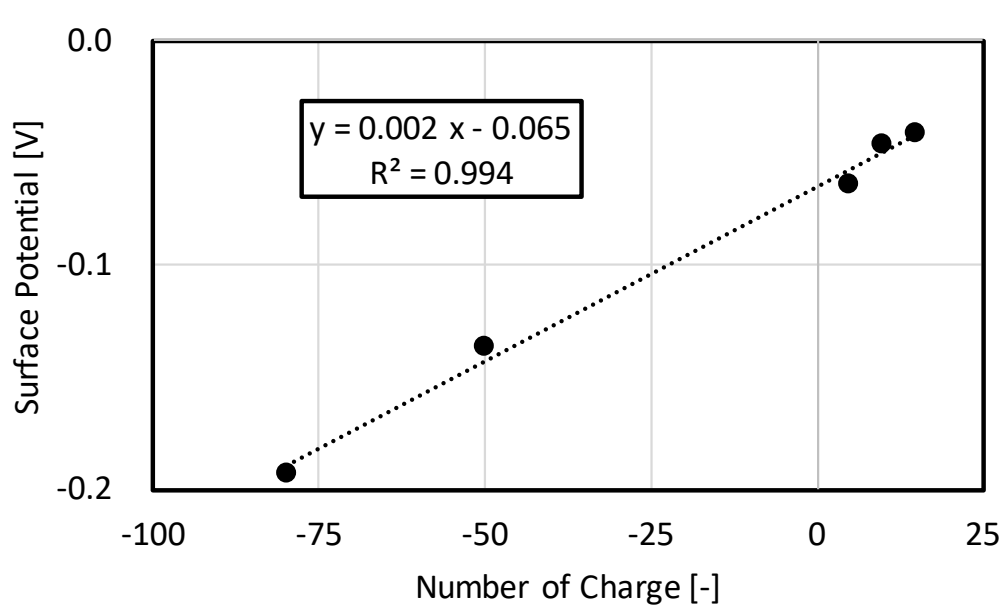


約 -0.3 V ~ +0.3 Vの範囲で  
粒子表面に電位の偏りが見られた

\*黒澤景一.(2020) KPFM法を用いた放射性Cs微粒子の電気的特性の解明, 慶應義塾大学大学院理工学研究科開放環境化学専攻修士論文



# 去年の研究成果-荷電数と表面電位の関係



傾き: 0.0016 V/[-]  
切片: 0.0653 V

塩化ナトリウム粒子について、  
KPFMによる表面電位から粒子状物質の荷電数が算出可能

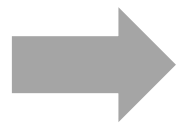


# 本研究の最終目標

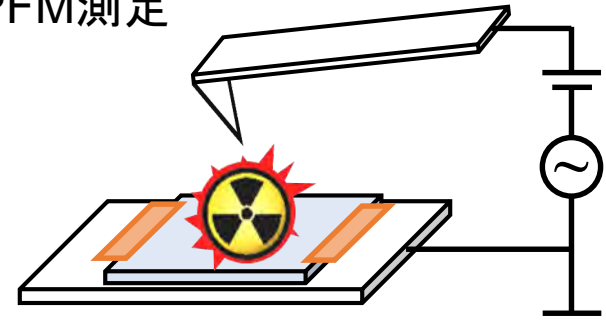
KPFMによる電位の測定値から荷電数を求め

る。

?  
?  ?  
帯電状態不明  
CsMP



KPFM測定



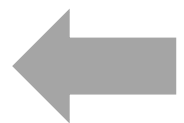
表面電位  $y$  [V]

表面電位 [V]

放射性セシウム  
の測定困難

表面電位から  
荷電数を算出

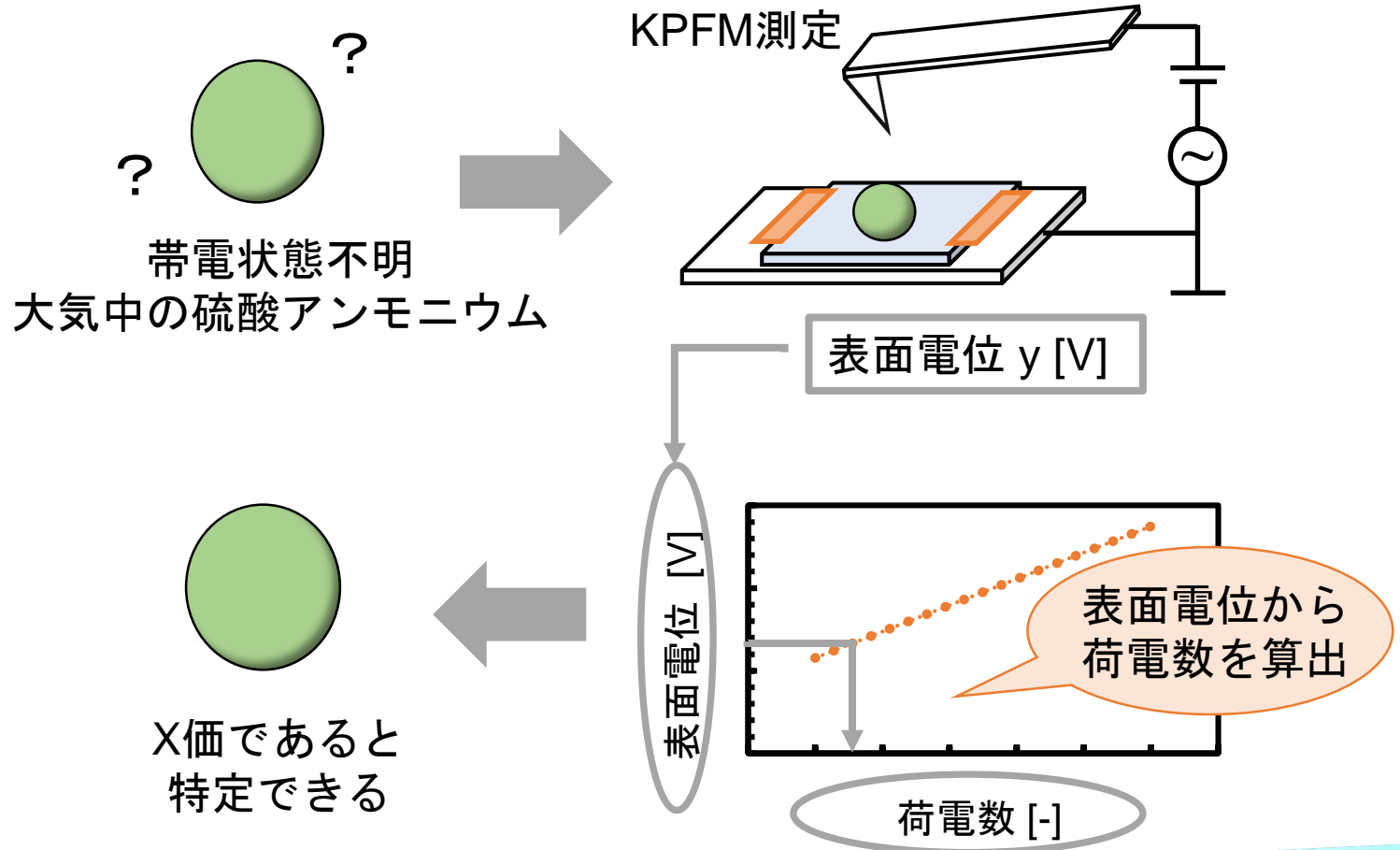
荷電数 [ ]



  
X価であることが  
特定できる



KPFMによる電位の測定値から荷電数を求める方針を示す。





1. 荷電数と表面電位の検量線の作成
  - －塩化ナトリウム
  - －硫酸アンモニウム
  - －塩化セシウム
2. 同一視野内の粒子の帯電状態の比較
3. 帯電した粒子の時間経過による変化の確認
4. 京都大学 大槻先生からお預かりした粒子の測定



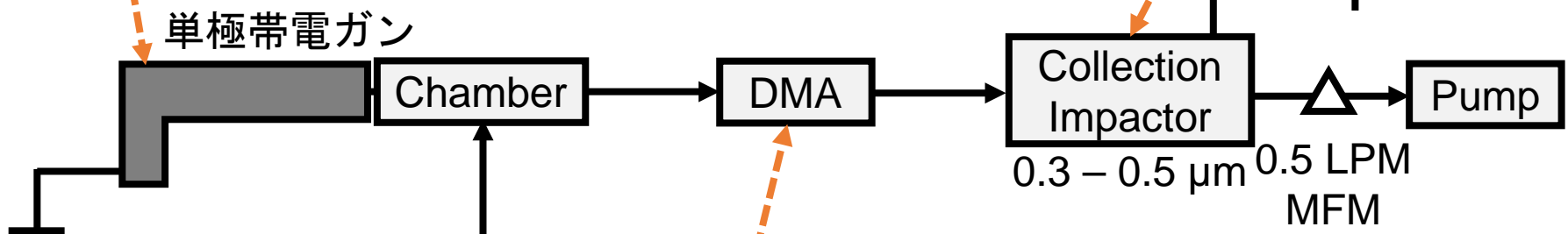
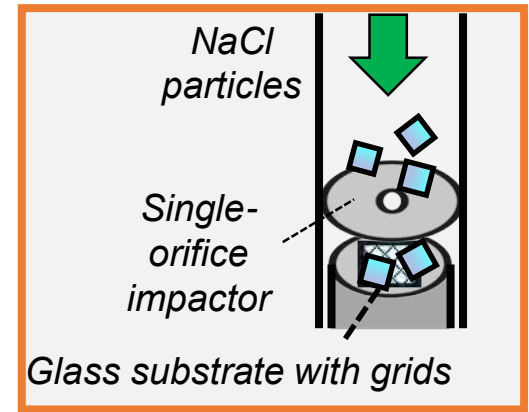


# 既知の荷電数の粒子のKPFM測定：方法

\*



コロナ放電により、  
マイナスのイオンを大量に発生



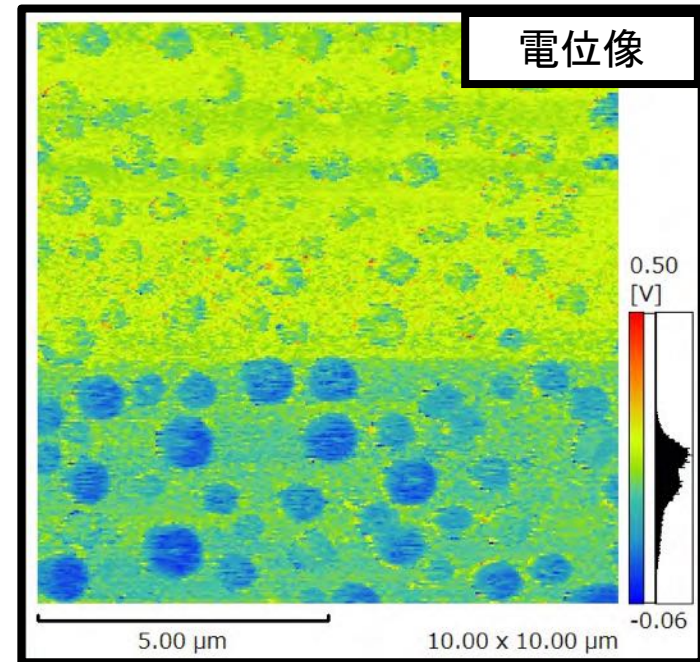
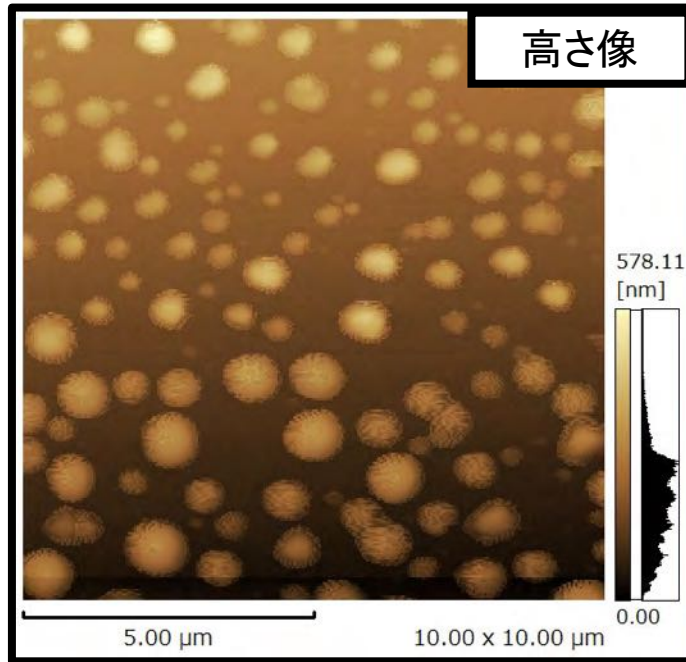
DMA (Differential Mobility Analyzer)  
電圧を印加し、特定の粒径・価数の粒子を取り出す

\*株式会社グリーンテクノ <https://www.greentechno.co.jp/power/gc25b.html>

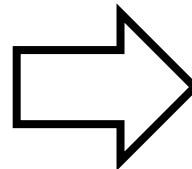


# 既知の荷電数の粒子の測定結果

塩化セシウム -10価 400 nm



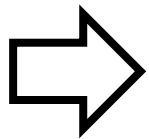
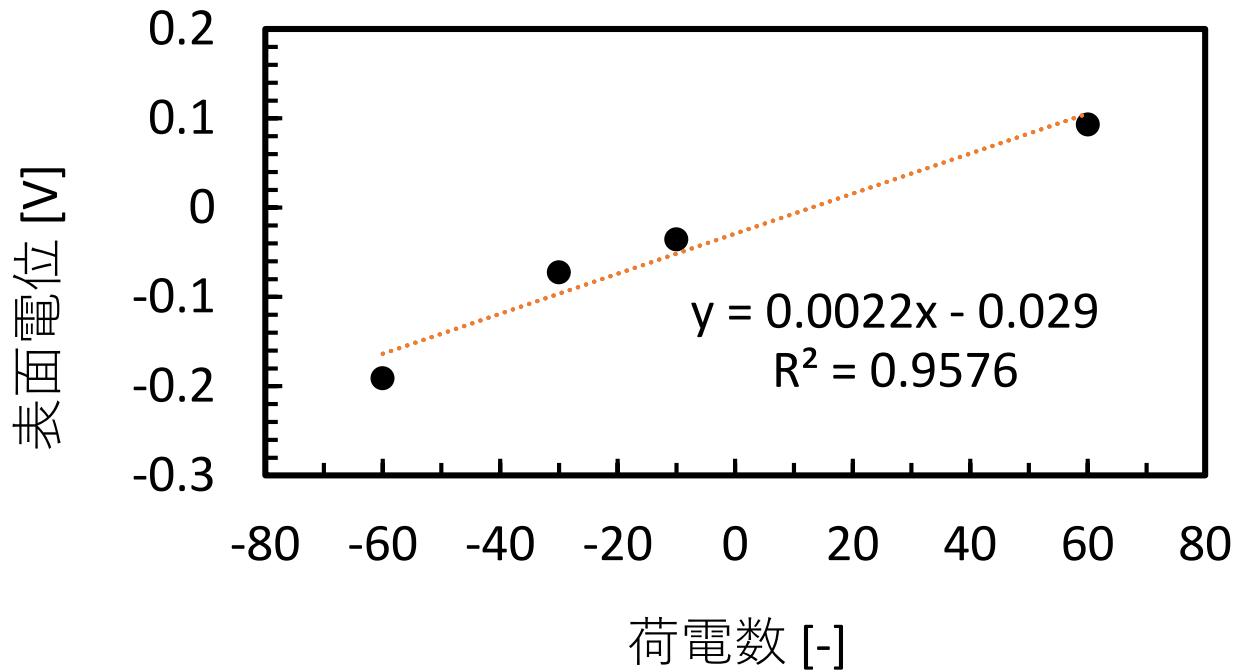
粒径360 nm- 440 nmの  
粒子を選択



平均粒径:  $0.39 \pm 0.01 \mu\text{m}$   
平均表面電位:  $-0.067 \pm 0.018 \text{ V}$



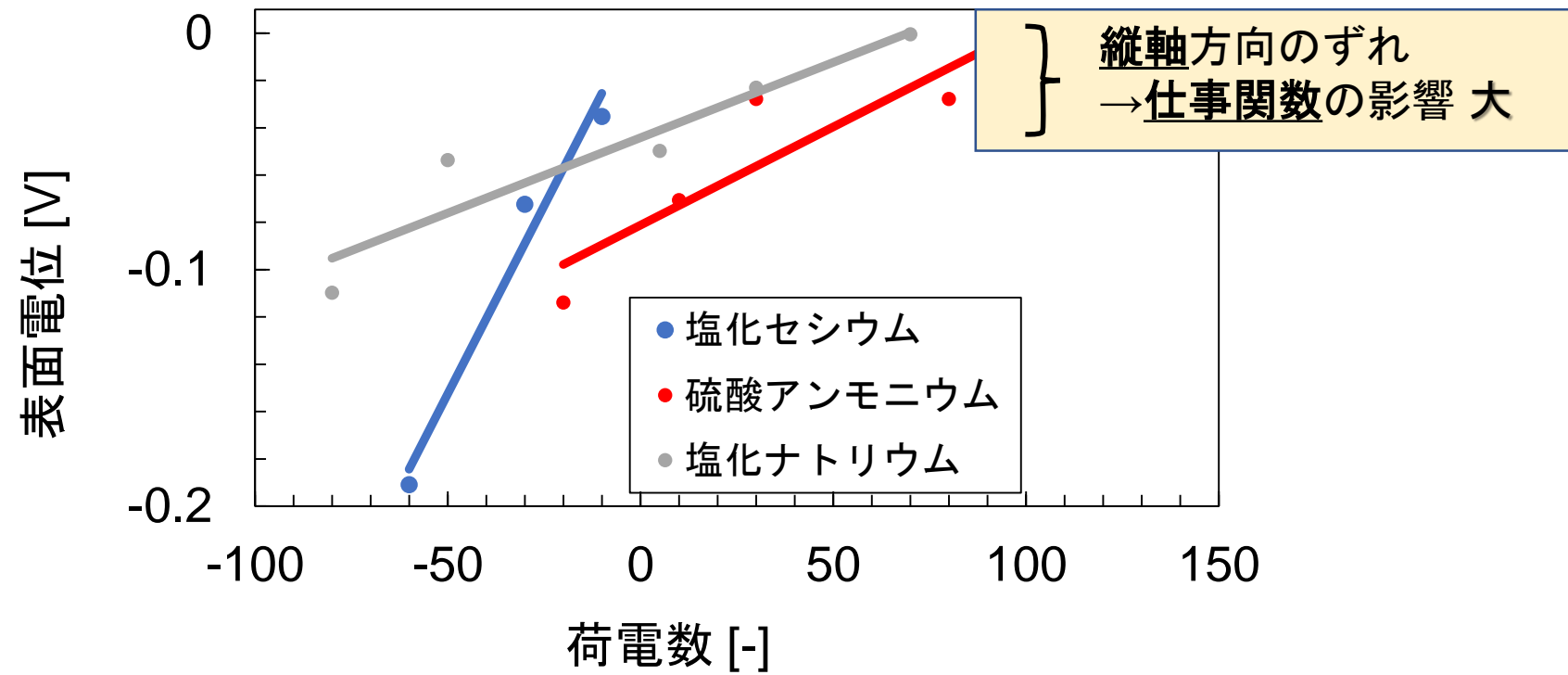
# 塩化セシウムの荷電数と電位の関係



塩化セシウム粒子に関しても、  
KPFMで測定された表面電位から荷電数が算出可能である



# 3種類の物質の検量線の比較



塩化セシウムの検量線の傾きが大きい  
→荷電数の小さな変化を区別をしやすい

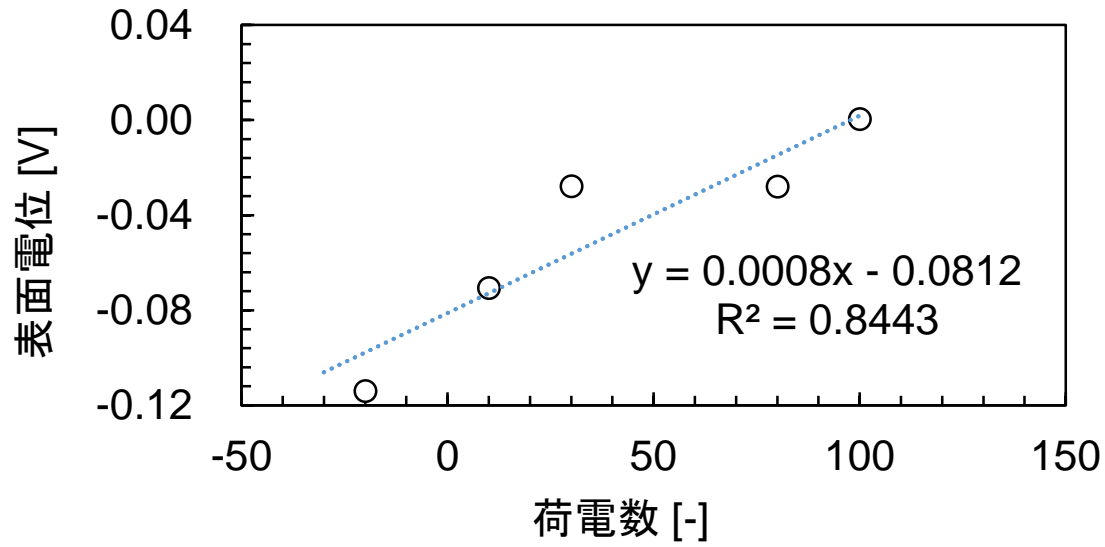


1. 荷電数と表面電位の検量線の作成
  - ー塩化ナトリウム
  - ー硫酸アンモニウム
  - ー塩化セシウム
2. 同一視野内の粒子の帯電状態の比較
3. 帯電した粒子の時間経過による変化の確認
4. 京都大学 大槻先生からお預かりした粒子の測定





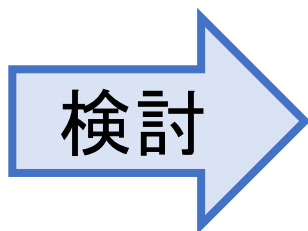
# 同一視野内の粒子の帯電状態の違い



硫酸アンモニウムの検量線

懸念

荷電数の違う粒子について別々の視野で比較してきたが、測定誤差による違いではないのか？



検討

測定誤差が相殺されていると考えられる、同一視野内の粒子の電位を比較する



# 同一視野内の粒子の帯電状態の違い



$$Z_p = \frac{qC}{3\pi\mu D_p}$$

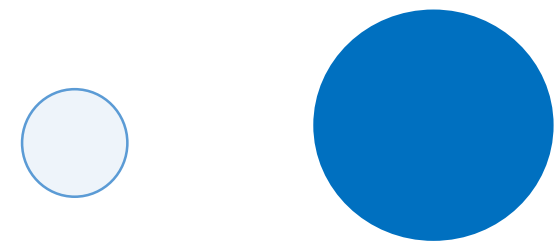
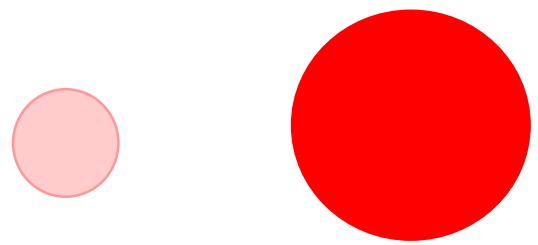
$\mu$ : ガス粘度  
 $C$ : カニンガム補正係数  
 $D_p$ : 粒子径  
 $q$ : 粒子の帯電量

$$q = \frac{3\pi\mu D_p Z_p}{C}$$

粒径が大きいほど  
 帯電量が多い

正に帯電している粒子

負に帯電している粒子



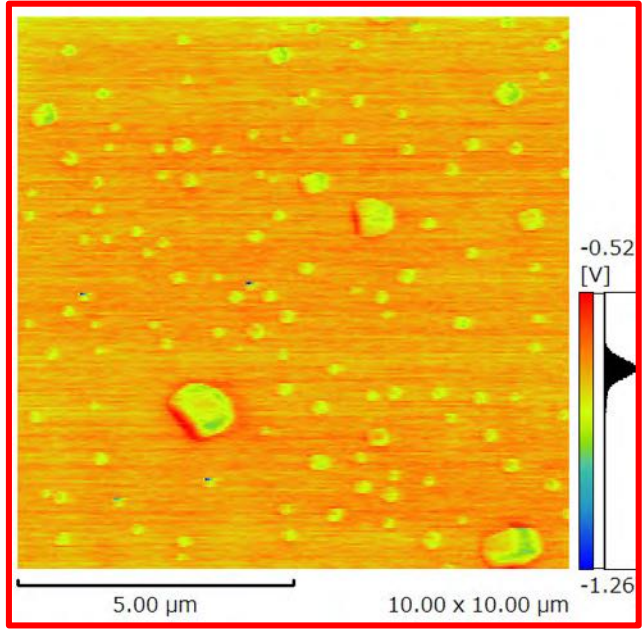
粒径が大きいものほど電位が高い

粒径が大きいものほど電位が低い

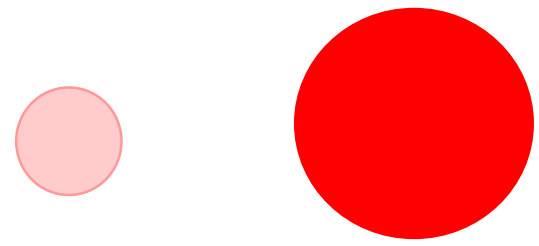


# 同一視野内の粒子の帯電状態の違い

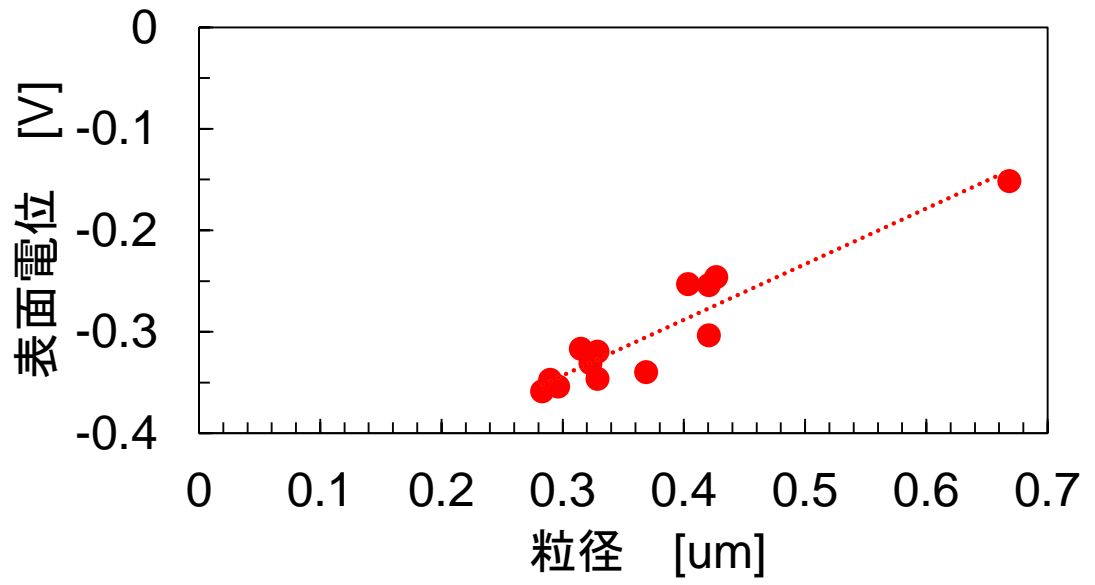
NaCl +15価 400 nm



正に帯電している粒子



粒径が大きいものほど電位が高い

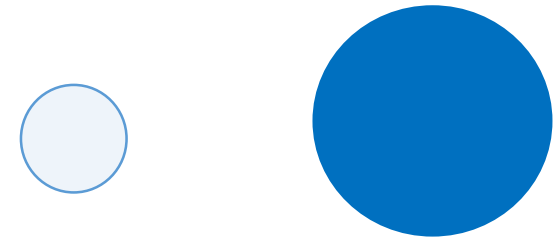
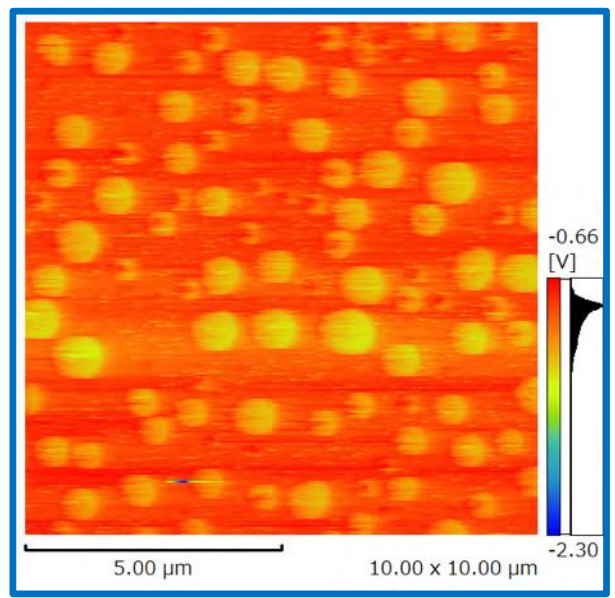




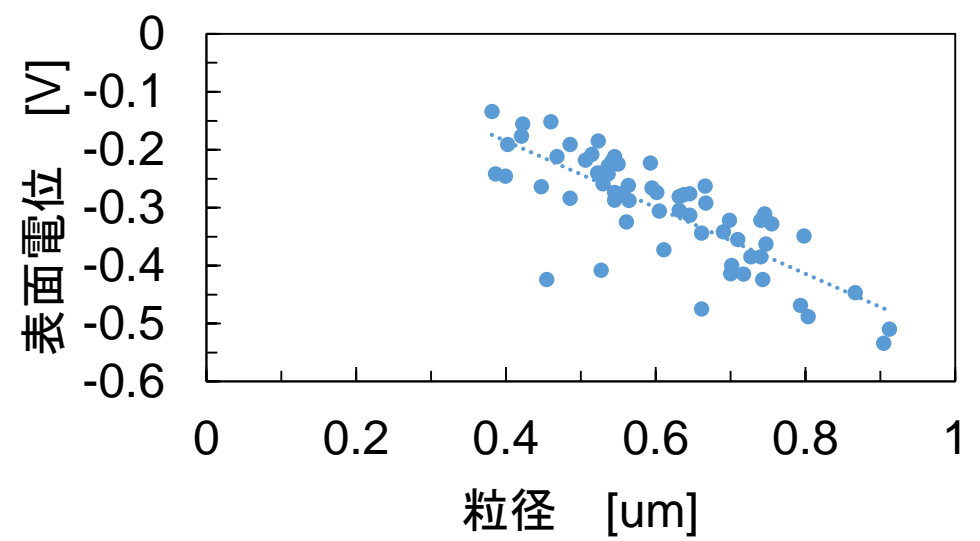
# 同一視野内の粒子の帯電状態の違い

負に帯電している粒子

CsCl -60価 400 nm



粒径が大きいものほど電位が低い

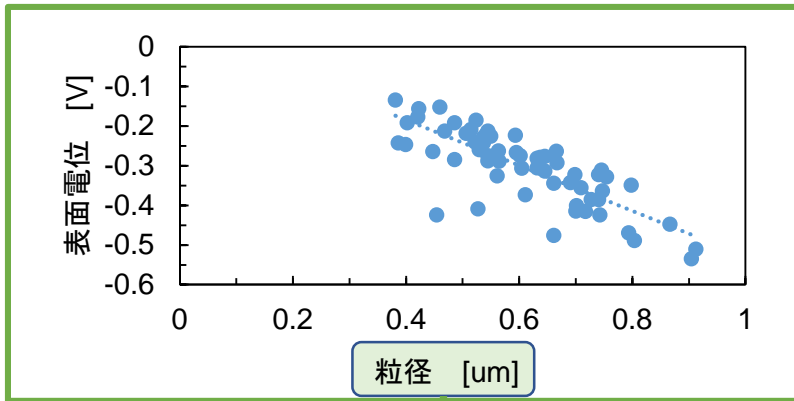


同じ視野内の粒子についても、帯電状態の違いを検出できている。



# 荷電数と帯電状態の比較

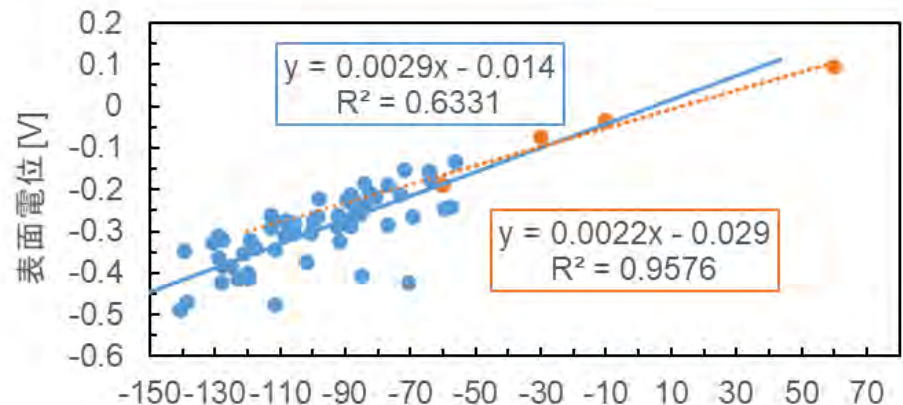
-60価, 400nmと同じ電気移動度をもつ  
CsCl粒子の粒径と電位の関係



プロットに用いた粒子が

- 同一視野内で様々な粒径のもの
- 異なる視野の統一された粒径のもの

電気移動度を用いて  
粒径から荷電数を計算



電位の測定値の違いは、  
帯電状態の違いを表したものだと考えられる。

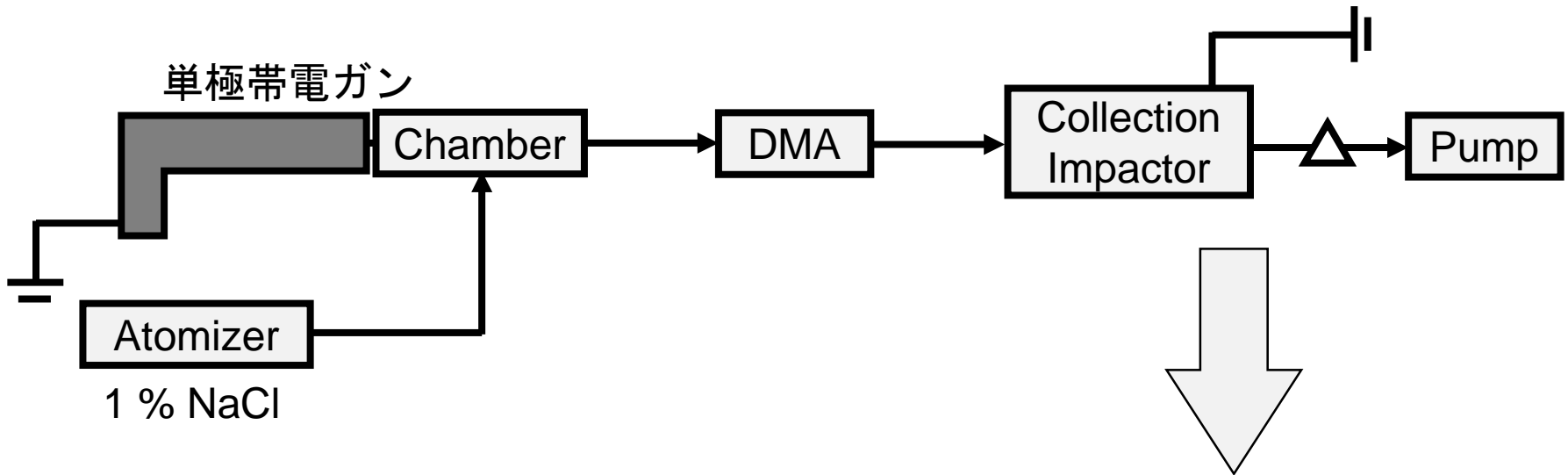




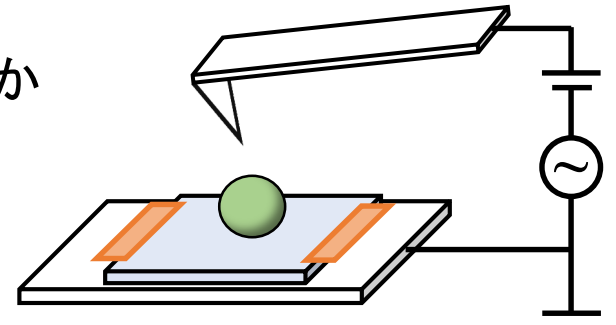
1. 荷電数と表面電位の検量線の作成
  - 塩化ナトリウム
  - 硫酸アンモニウム
  - 塩化セシウム
2. 同一視野内の粒子の帯電状態の比較
3. 粒子の帯電状態の時間経過による変化の確認
4. 京都大学 大槻先生からお預かりした粒子の測定



# 粒子の帯電状態の時間経過による変化

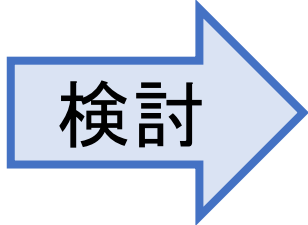


KPFM測定



懸念

測定をしている間に帯電状態が変化しているのではないかと

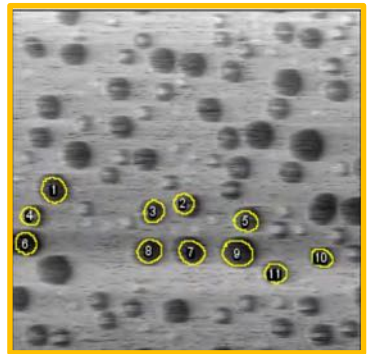


同じ粒子を測定し続け、表面電位の時間変化を確認

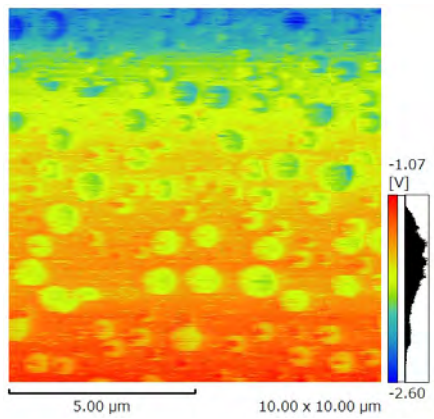


# 粒子の帯電状態の時間経過による変化

CsCl -60価 400 nm

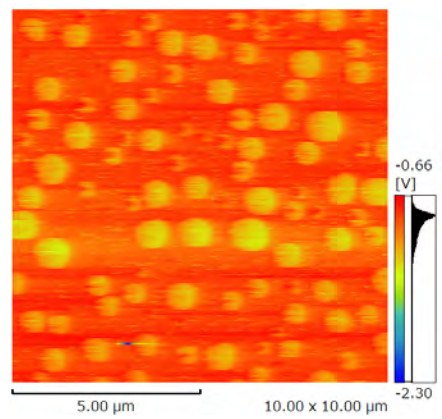


11個の粒子の電位の  
平均値を見ると...



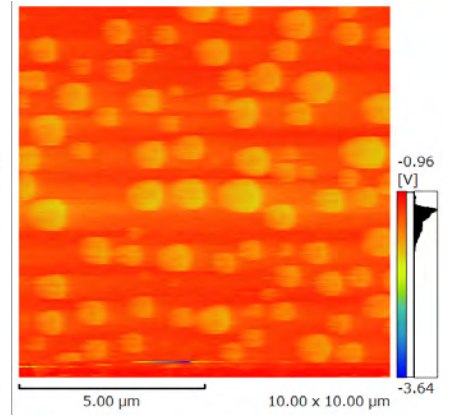
🕒 捕集から30分後

-0.236 V



🕒 1時間30分後

-0.230 V



🕒 2時間30分後

-0.238 V

→捕集後数時間で  
粒子の帯電状態はあまり変化しない

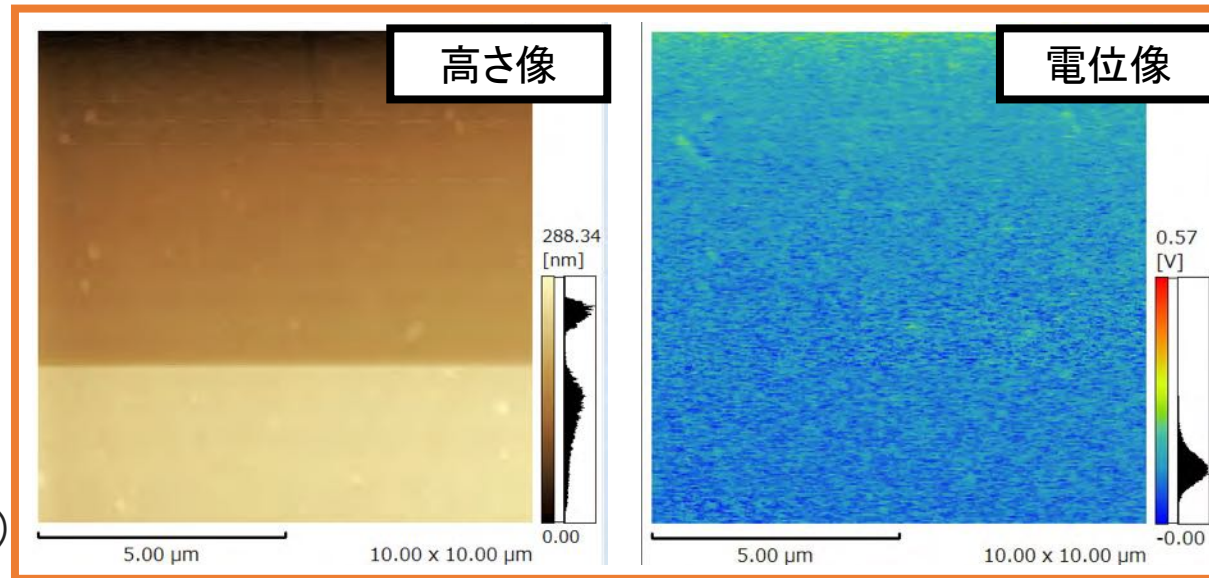


1. 荷電数と表面電位の検量線の作成
  - －塩化ナトリウム
  - －硫酸アンモニウム
  - －塩化セシウム
2. 同一視野内の粒子の帯電状態の比較
3. 粒子の帯電状態の時間経過による変化の確認
4. 京都大学 大槻先生からお預かりした粒子の測定



# 大槻先生からお預かりした粒子の測定

京都大学 複合原子力科学研究所  
大槻先生から粒子をお預かりしました



原料：珪藻土, CsCl (非放射性)  
粒径 1 μm 程度

非放射性粒子では、特徴的な電荷の偏りは見られなかった。  
→1月に、放射化した後の粒子を測定し、変化を確認する予定。





- ・塩化ナトリウム・硫酸アンモニウム・塩化セシウムについて、荷電数と電位の関係を表す検量線が得られた。
- ・同じ電気移動度の粒子について、粒径による帯電状態の違いをKPFMで検出できた。
- ・粒子を帯電させたとき、その帯電状態は数時間は変化しないことが分かった。
- ・非放射性の粒子について、粒子が帯電している様子は見られなかった。



- ・KPFM測定について、  
0.01 V程度の分解能があるか確認する。
- ・未知試料である大気中の硫酸アンモニウム粒子の測定をする。
- ・放射化した粒子の電位を測定する。

# 不溶性放射性微粒子の 模擬生成実験

○稲垣誠<sup>1</sup>、佐藤諒<sup>2</sup>、関本俊<sup>1</sup>、高宮幸一<sup>1</sup>、沖雄一<sup>1</sup>、大槻勤<sup>1</sup>

<sup>1</sup> 京都大学複合原子力科学研究所

<sup>2</sup> 京都大学大学院工学研究科

京都大学



# 福島第一原子力発電所事故

- 福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射性物質が環境中に放出
- 気体・エアロゾル・微粒子など様々な形態
- 特徴的なものとして、水や酸に不溶な放射性微粒子が環境中から発見

本研究の対象

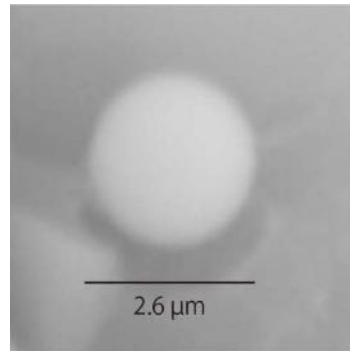


事故時の福島第一原発1～4号機の様子  
[https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Fukushima\\_I\\_by\\_Digital\\_Globe\\_B.jpg](https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Fukushima_I_by_Digital_Globe_B.jpg)

# 不溶性の放射性微粒子

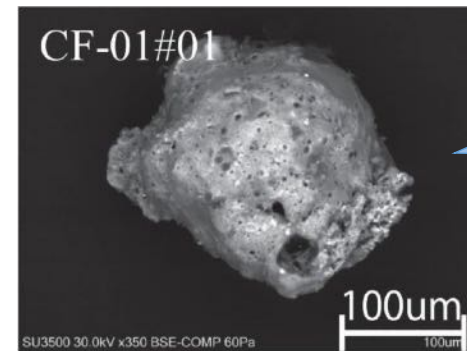
- 水に不溶な放射性微粒子が環境中から発見

主に2つのタイプ



タイプA 粒子

K. Adachi *et al.*, *Sci. Rep.* **3**, 2554 (2013).



タイプB 粒子

Y. Satou *et al.*, *Geochem. J.* **52**, 137 (2018).

今回はこちらの  
粒子を扱う

- エアロゾル等と異なり水に不溶 → 放出時の形態が残存

この微粒子は、それが生成した環境、すなわち事故時の炉内環境の情報を残している



# 模擬微粒子生成による炉内環境の推定

## 目的

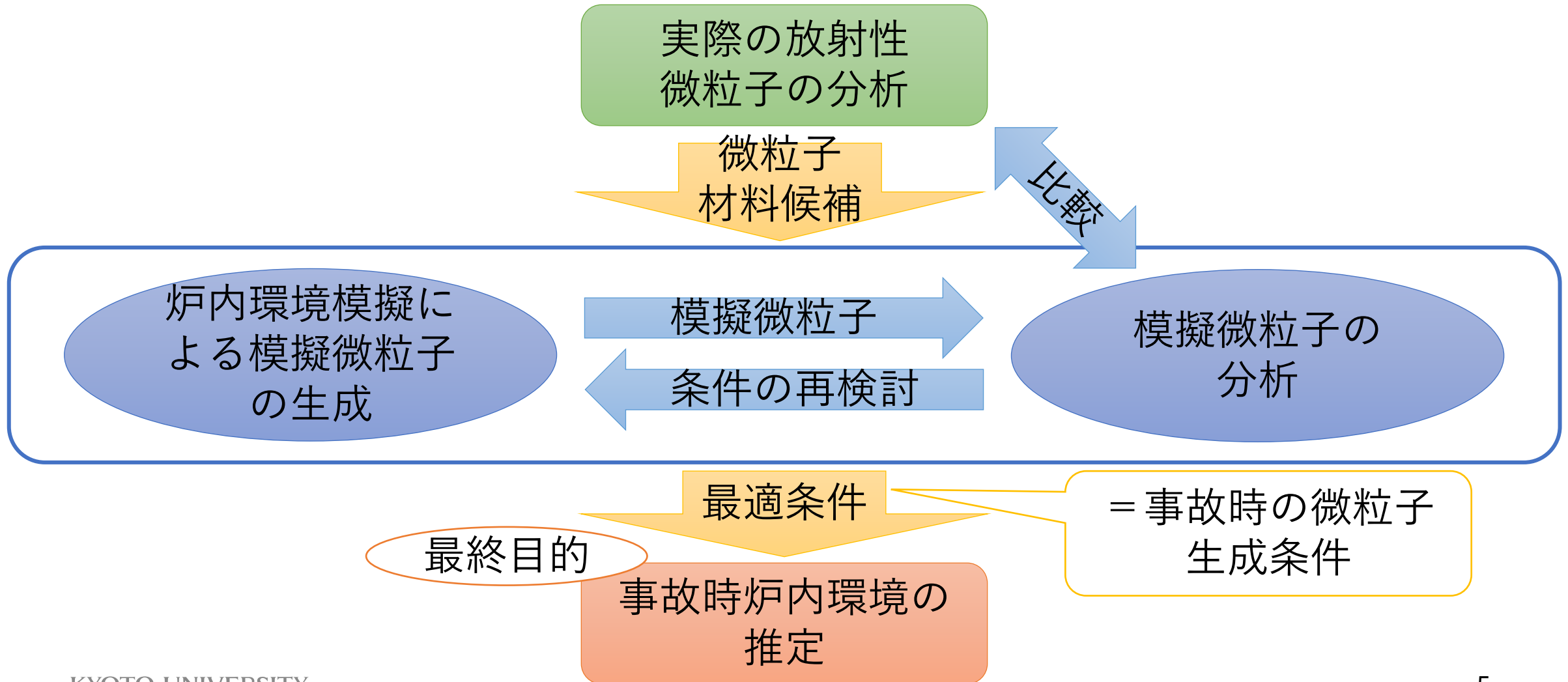
放射性微粒子を調べることで、事故時の炉内環境についての情報を得る

- 放射性微粒子の先行研究（分析）：  
含まれる放射性核種、主成分がケイ酸塩ガラスであることなど
- 炉内環境に迫るには、分析のみではなく粒子生成過程の情報が必要



事故時の炉内を想定した環境で模擬的に微粒子を生成し、模擬微粒子と実際の放射性微粒子との比較から事故時の炉内環境を推定する

# 模擬微粒子生成による炉内環境の推定



① 実際の放射性微粒子の分析

② 模擬微粒子生成実験と分析

# 実際の放射性微粒子（実粒子）の分析

## 概要

実際の放射性微粒子（実粒子）を、走査型電子顕微鏡／エネルギー分散型蛍光X線分析（SEM/EDS）により、外観観察と組成分析を行った。

## 装置

Thermo Fisher Scientific社製 Phenom ProX 卓上SEM

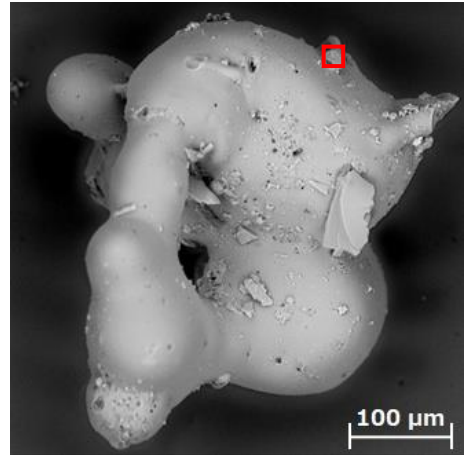
## 試料

タイプB粒子 4個

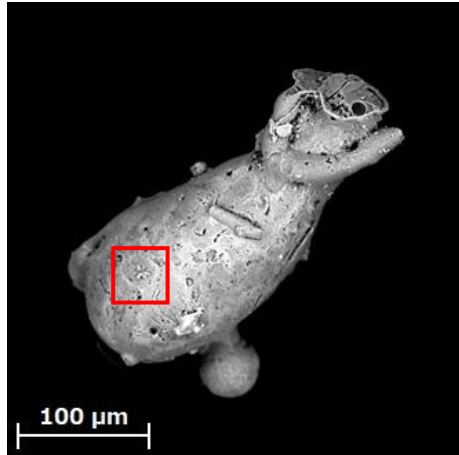
- 福島第一原発から北北西におおよそ 2 km の地点で塵埃中から採取  
（筑波大学提供）

# 実粒子の分析：SEM（外観）

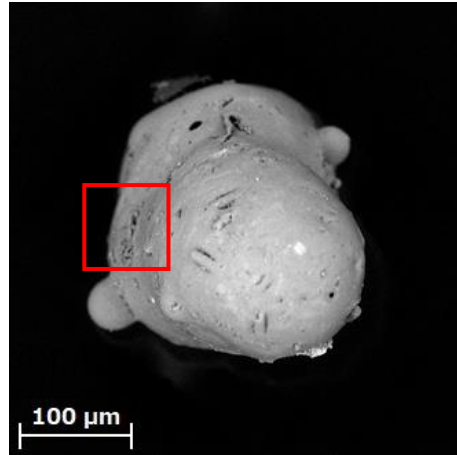
粒子全体のSEM像



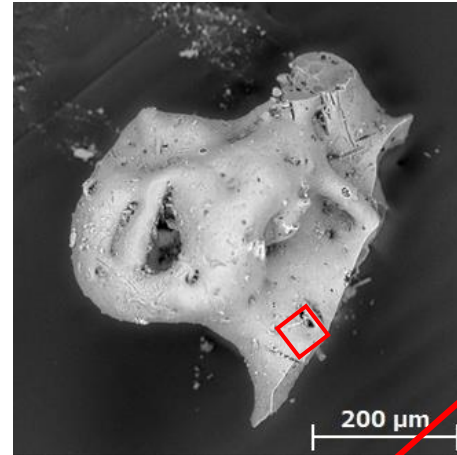
No. 1



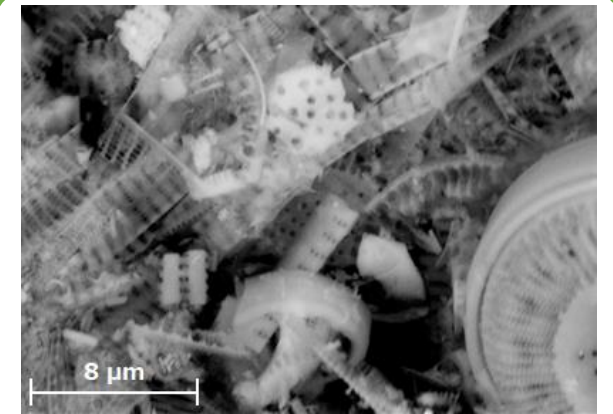
No. 2



No. 3

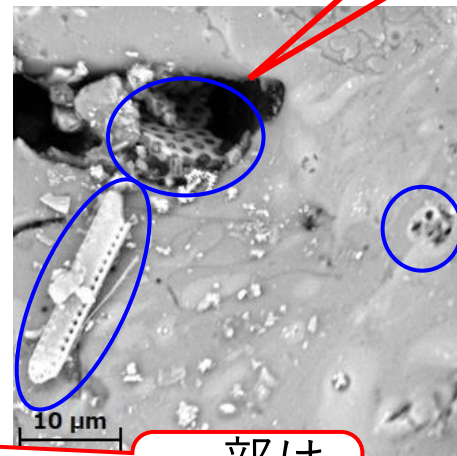
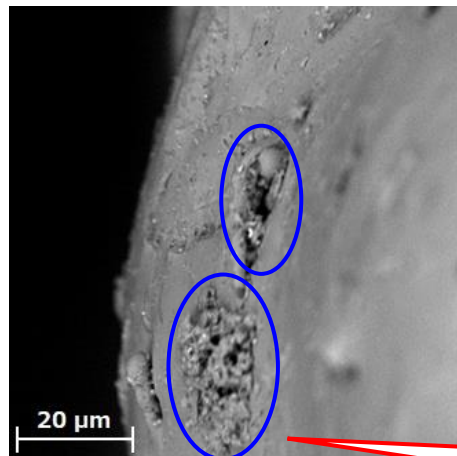
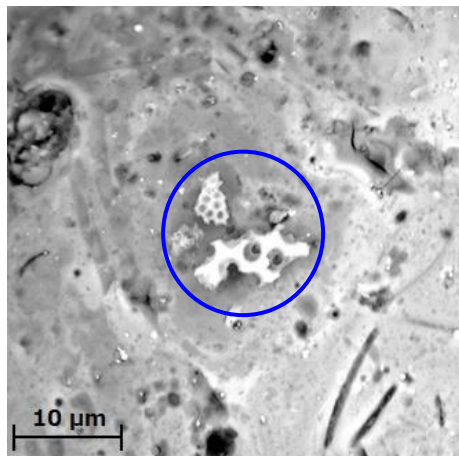
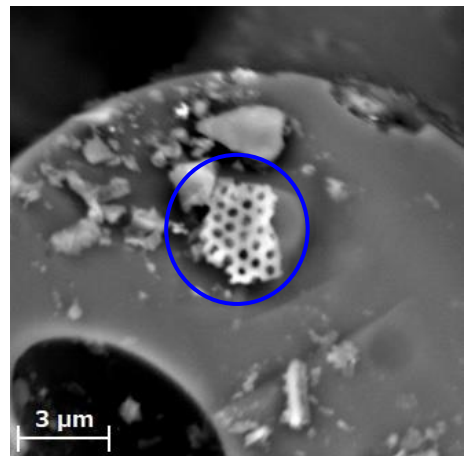


No. 4



市販の珪藻土のSEM像

タイプB粒子の  
表面に珪藻土が  
存在する



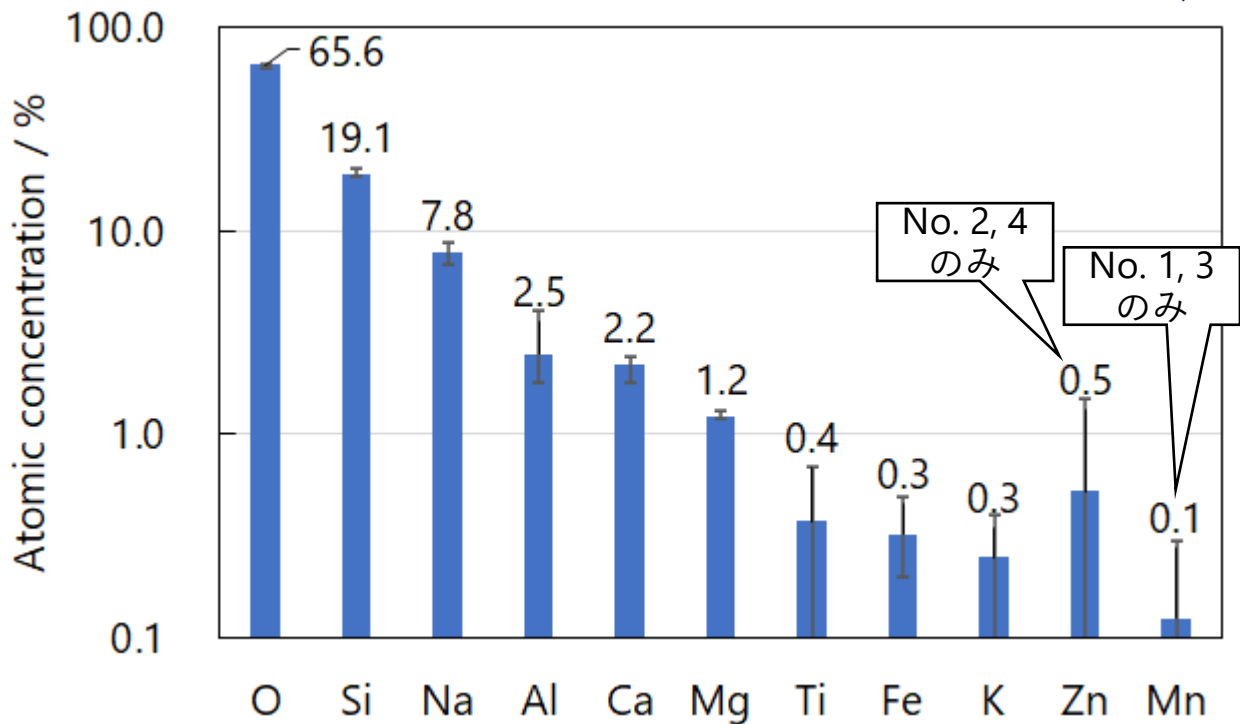
粒子の一部を拡大したSEM像（上図赤枠部）

一部は  
溶融？

- 珪藻(藻類)の化石からなる堆積岩
- 主成分は $\text{SiO}_2$
- 海底などに多く存在



# 実粒子の分析：EDS（元素分析）

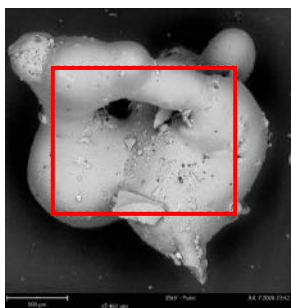


- O, Si, Naが主成分  
→ ケイ酸塩ガラス
- Al, Ca, Mgが1～3%、その他微量成分

主にSiO<sub>2</sub>とNa、+微量成分

SiO<sub>2</sub>質物体（珪藻土など）  
+ 海水（Na, Ca, Mg）  
が原料と推定

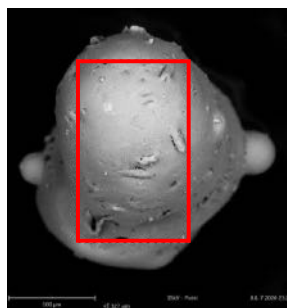
実粒子のEDS分析結果（4個平均、誤差範囲は最大値と最小値）



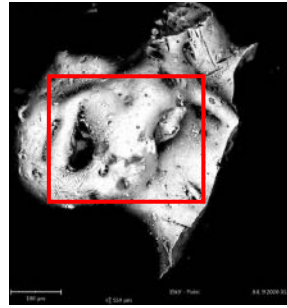
No. 1



No. 2



No. 3



No. 4

□：分析領域

① 実際の放射性微粒子の分析

② 模擬微粒子生成実験と分析

# 模擬微粒子生成実験：概要

- ▶ SiO<sub>2</sub>質物体と海水を電気炉で加熱することで炉内環境を模擬
- ▶ 材料を高温条件で均質に溶融することにより、組成の妥当性を検討  
(形状は考慮しない)

## 実験の流れ



想定する  
材料を混合



るつぼに入れ  
電気炉で加熱



均質に溶融した  
試料を砕いて  
取り出し

蒸留水で  
洗浄

SEM/  
EDS測定

実粒子と  
比較

# 模擬微粒子生成実験：方法

## 試料

SiO<sub>2</sub>質材料1.5 g、人工海水1.5 g（乾燥重量）、蒸留水15 mLを混合  
（①～④の4パターン）

- SiO<sub>2</sub>質材料

- ① 珪藻土（和光 化学用）：実粒子分析結果より
- ② 玄武岩（産総研 JB-1b）：玄武岩系コンクリートを想定
- ③ 玄武岩＋セメント（セメント協会 化学分析用）：同上（混合比 3：1）  
以下、「モルタル」
- ④ グラスウール（和光一級）：断熱材を想定

- 人工海水：ダイゴ人工海水SP（日本製薬）

# 模擬微粒子生成実験：方法

## 装置

日陶科学 小型電気炉 NHK-170AF（最高温度1250 °C）

## 温度

1250 °Cまで昇温50分、1250 °Cを3時間維持、その後放冷

## 分析

生成した物体を砕き、SEM/EDSで分析（Phenom ProX 卓上SEM）



# 模擬微粒子生成実験：外観



① 珪藻土  
+ 海水



② 玄武岩  
+ 海水



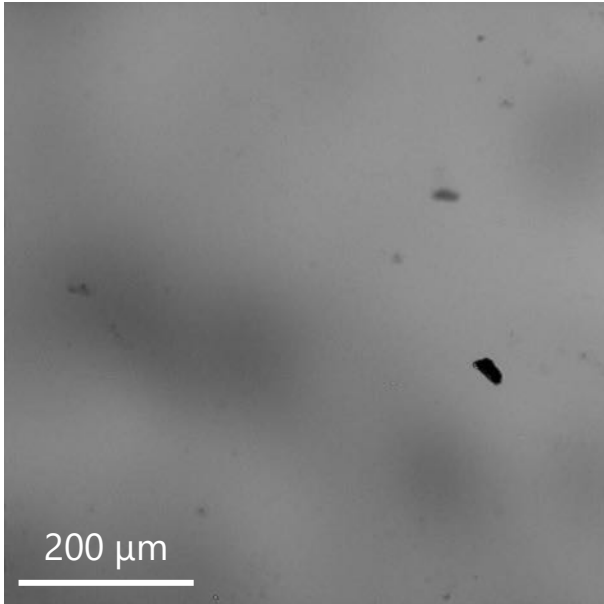
③ モルタル  
+ 海水



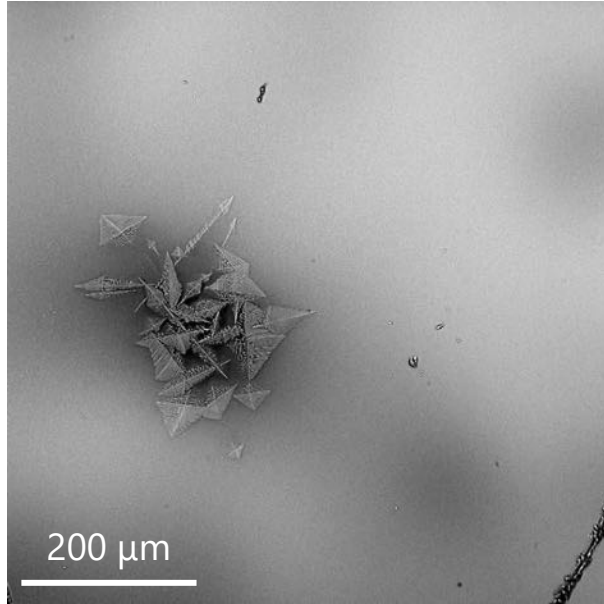
④ グラスウール  
+ 海水

- 全ての試料が、光沢のある非常に硬いガラス状になった  
→ 砕いてSEM/EDS分析へ

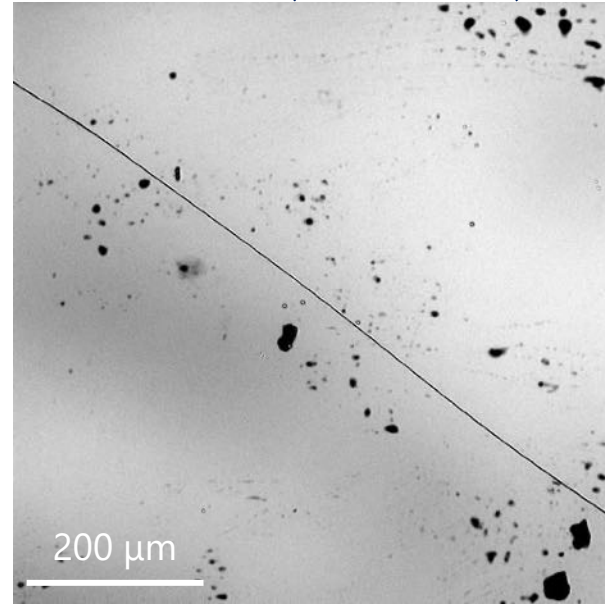
# 模擬微粒子生成実験：SEM（外観）



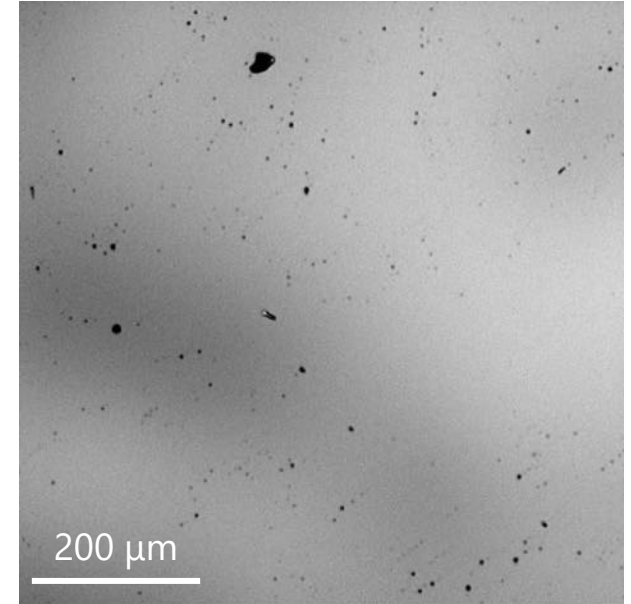
① 珪藻土  
+ 海水



② 玄武岩  
+ 海水



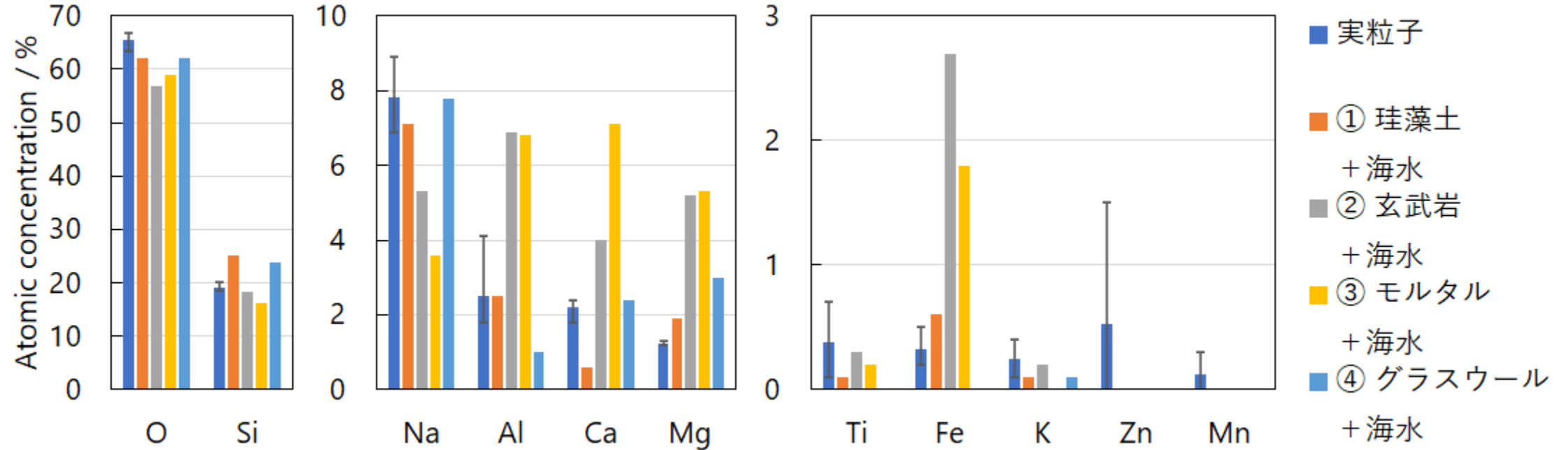
③ モルタル  
+ 海水



④ グラスウール  
+ 海水

- 玄武岩試料（②）のみ結晶のような構造が見られた
- ①、③、④は滑らかな面に気泡状の穴が開いた外観

# 模擬微粒子生成実験：EDS（元素分析）

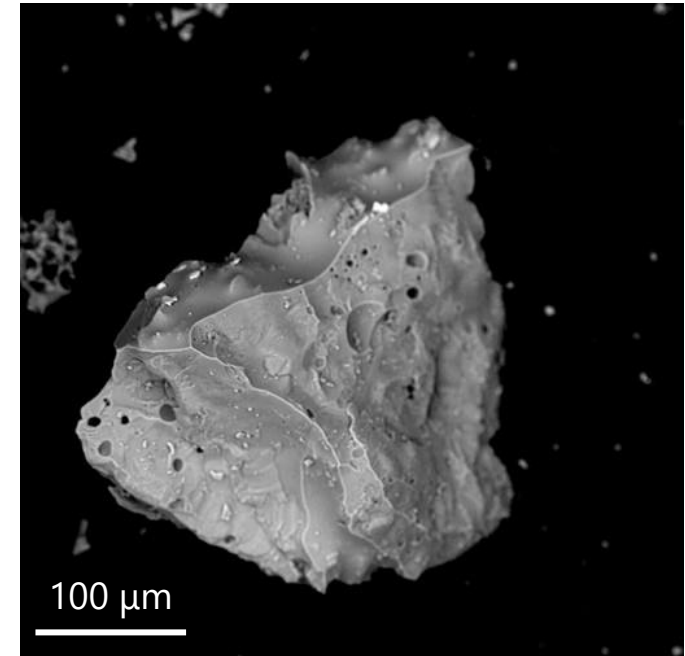
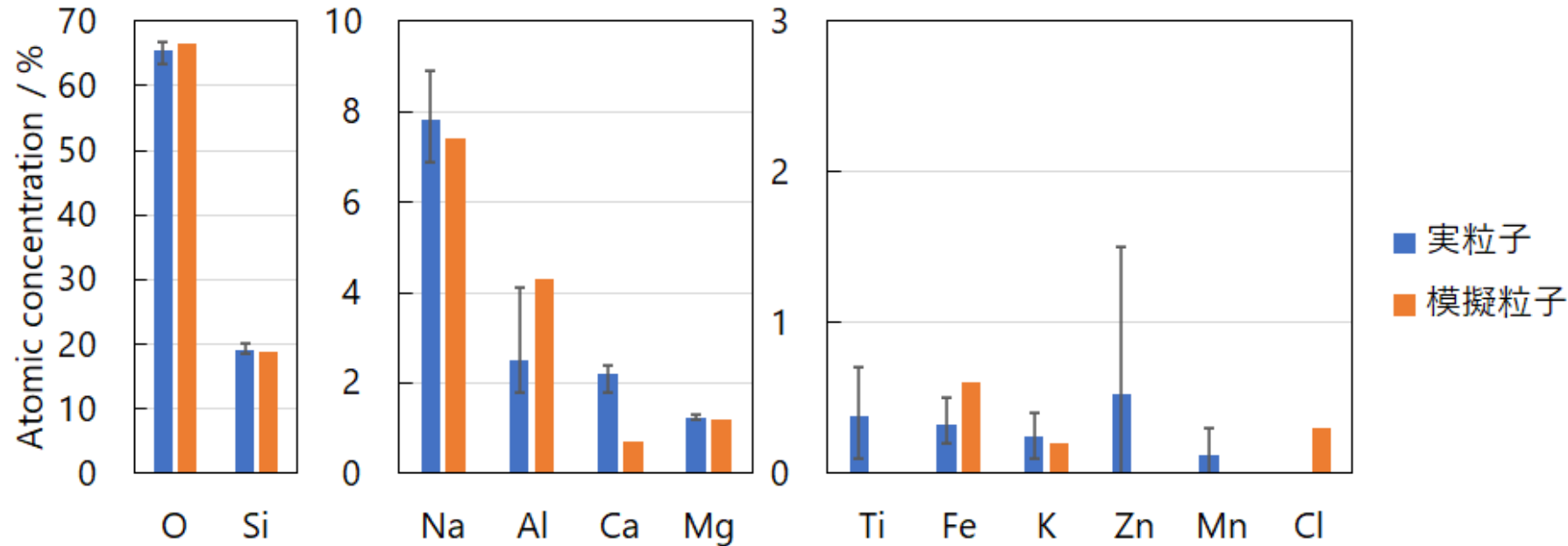


珪藻土 + 海水が最も実粒子に近い → 主たる材料として有力

海水注入に用いられた津波の溜水由来？

問題点：Ca、Zn、Mnが不足 → 他の追加材料

# 模擬微粒子生成実験：粒子状物質の生成



- 珩藻土 + 海水、加熱温度985 °Cの条件で、外観・組成共に実粒子（タイプB）に近いものが生成
- 今後は温度などの条件を更に検討 → 事故時炉内環境の推定

# まとめ

## 実粒子の分析

- 実粒子（タイプB）のSEM観察により、表面から珩藻土を発見
- 実粒子の元素分析から、 $\text{SiO}_2$ 質物体と海水が材料であると推定

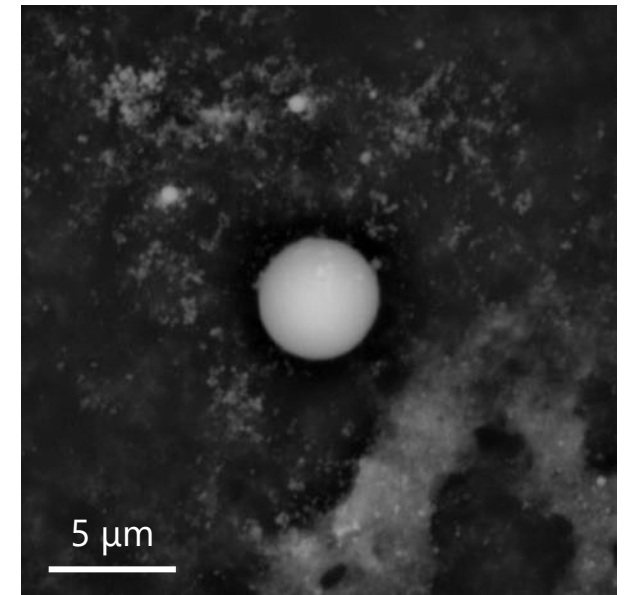
## 模擬微粒子生成

- 材料として①珩藻土、②玄武岩、③玄武岩＋セメント、④グラスウールを検討した結果、珩藻土と海水の加熱生成物が実粒子に最も近かった → 主たる材料として有力
- 外観・組成共に実粒子（タイプB）に近い模擬微粒子の生成に成功



# 今後の計画

- ▶珪藻土 + 海水のみでは不足する元素 (Ca、Zn、Mn) の起源  
= 他の追加材料の検討
- ▶模擬微粒子生成の温度依存性の検討 → 事故時炉内温度の検討
- ▶タイプAの模擬微粒子の生成：レーザー加熱法



# 放射性溶液エアロゾルの模擬生成による 生成過程の解明



京都大学複合原子力科学研究所

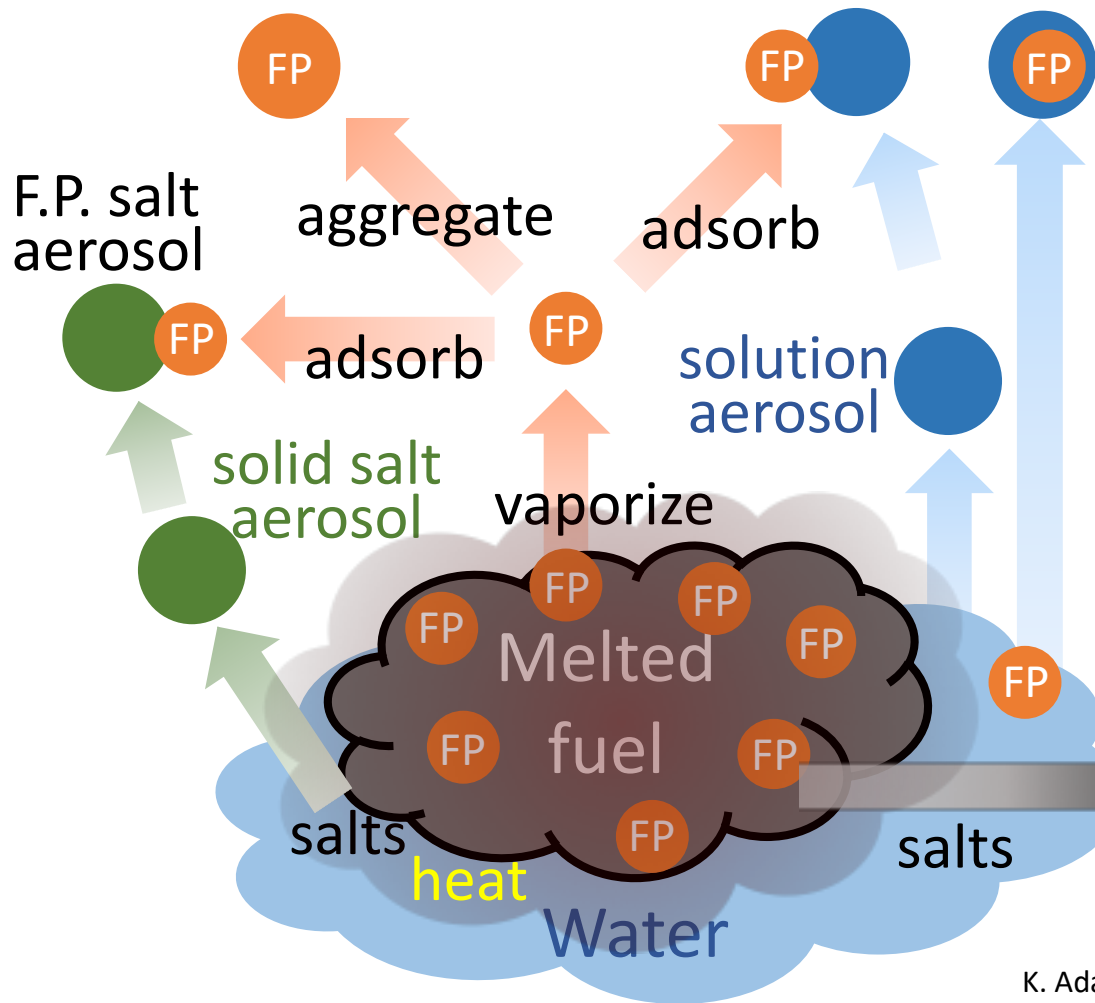
○ 高宮 幸一、竹内裕也、竹内佑、平松有沙、稲垣誠、関本俊、沖雄一、大槻勤

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

2020.12.24 (on Zoom)

# 研究の背景

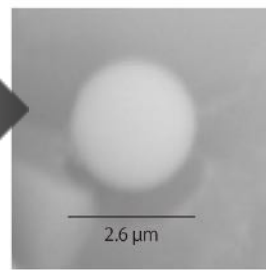


2011年に発生した東電福島第一原子力発電所の事故に伴い、環境中に多量の放射性エアロゾルが放出された。

放射性エアロゾルが生成するメカニズムは明確になっておらず、特に環境中に放出されるまでの初期の生成、成長過程は不明確。

放射性エアロゾルの初期の生成メカニズムが明確になれば、環境中で観測された放射性エアロゾルの性状から、事故の状況を推測できる可能性もある。

Cesium bearing



本研究では

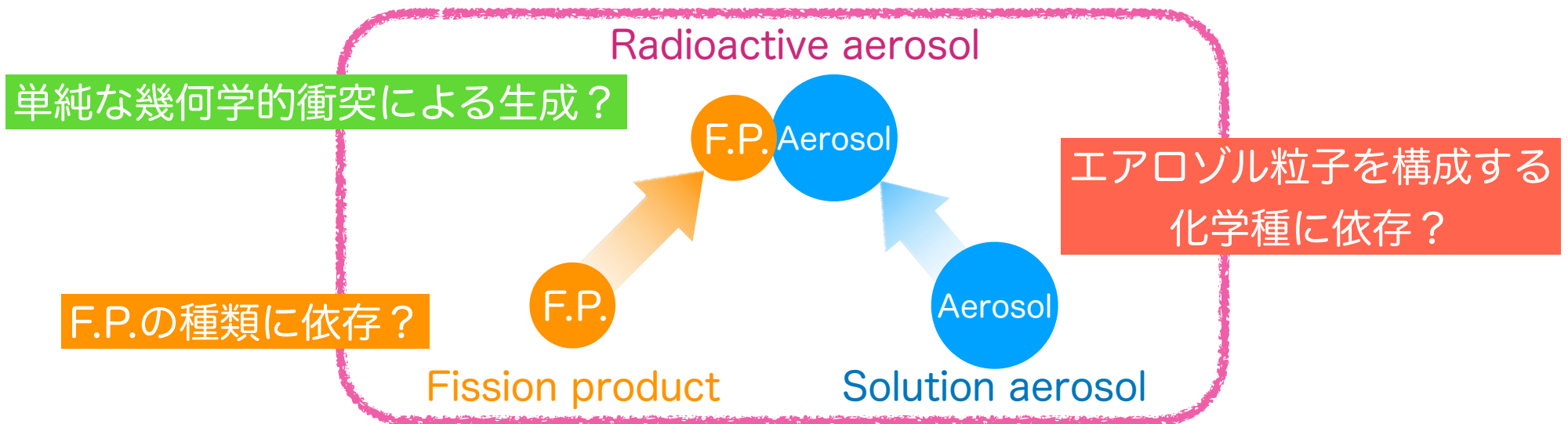
溶液状エアロゾルとF.P.とから放射性エアロゾルが生成する過程に着目

K. Adachi, et al., Sci. Rep. 3, 2554 (2013)

Production scheme of various types of radioactive aerosol containing F.P.

# 本研究の目的

溶液状エアロゾル粒子に核分裂生成物(F.P.)が付着して  
放射性エアロゾルが生成する反応過程

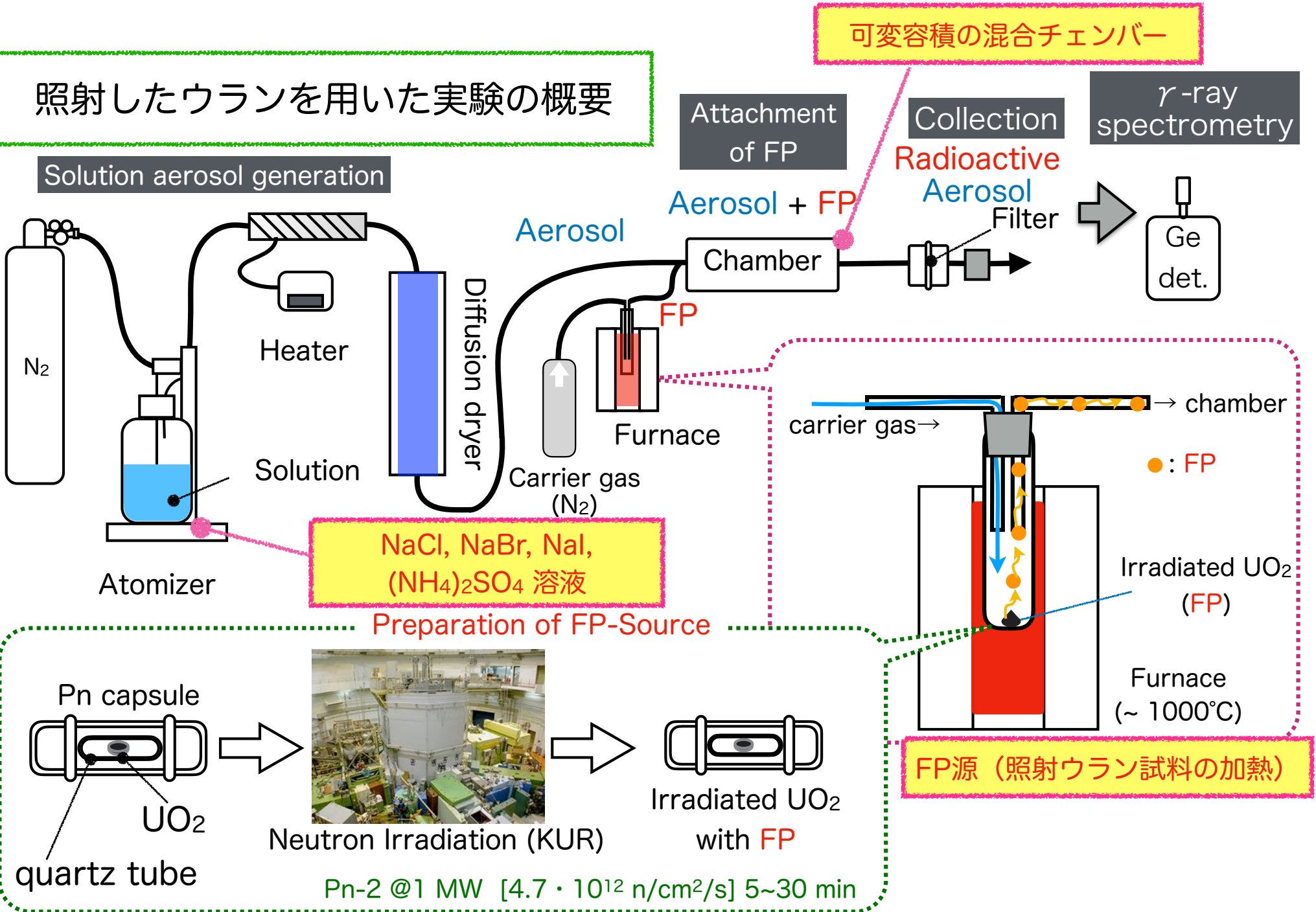


なにをしたか

- ・ F.P.と溶液状エアロゾルとから放射性エアロゾルを生成する装置を開発
- ・ F.P.が溶液エアロゾル粒子に付着する確率（付着率）を測定
- ・ 様々な溶液状エアロゾル/F.P.の組み合わせでの付着挙動を比較
- ・ エアロゾル粒子の化学的な性質が付着挙動に影響を与えるかを検証

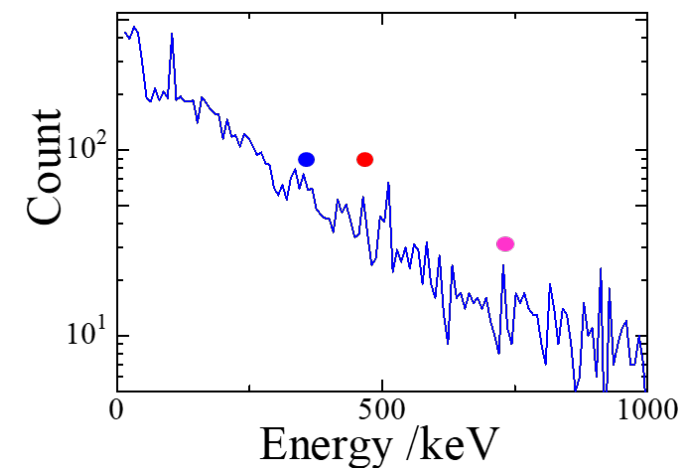
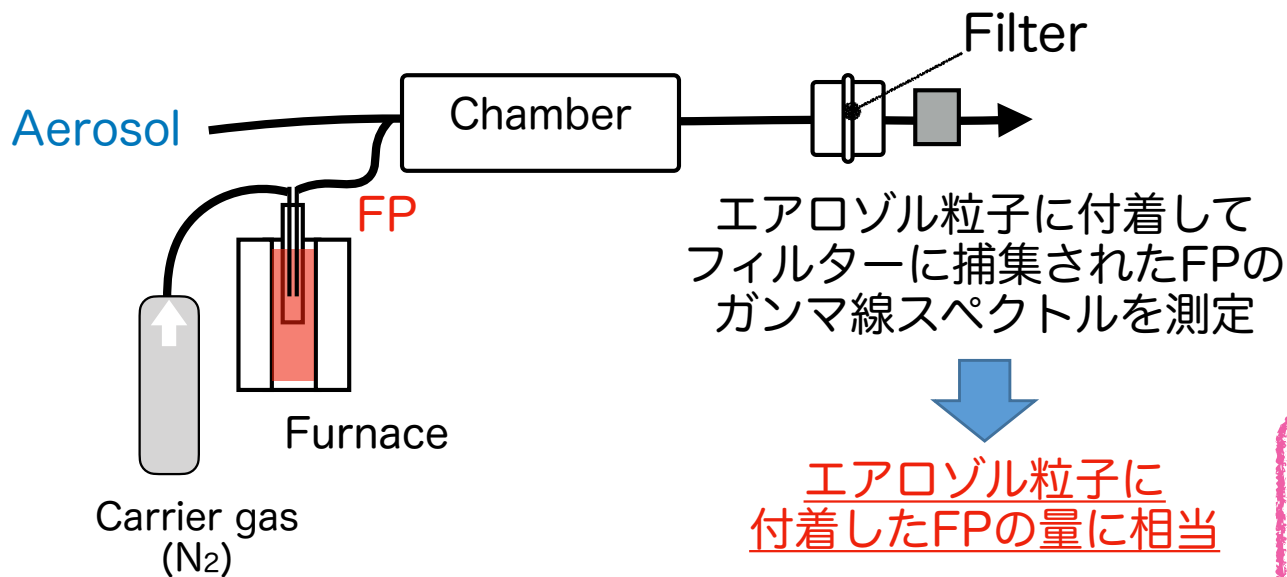
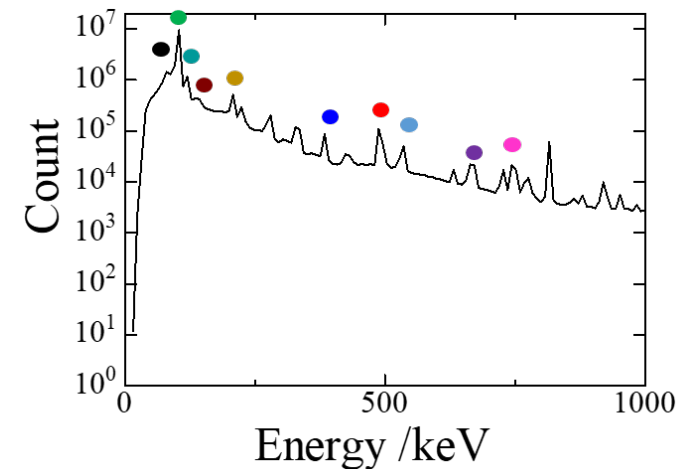
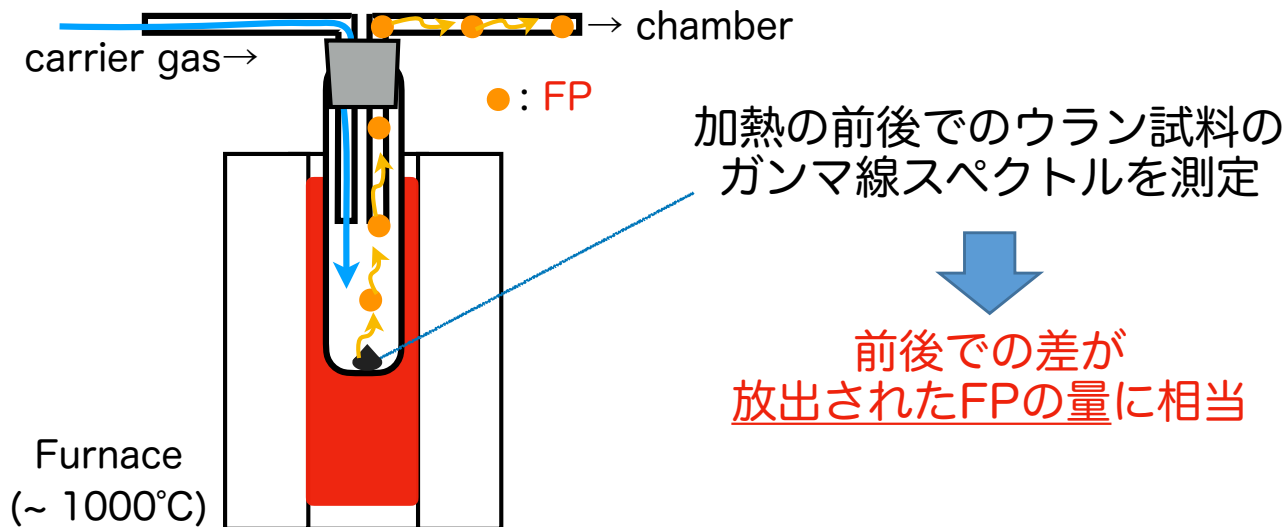
# 熱運動するF.P.を用いたエアロゾル粒子への付着実験

## 照射したウランを用いた実験の概要





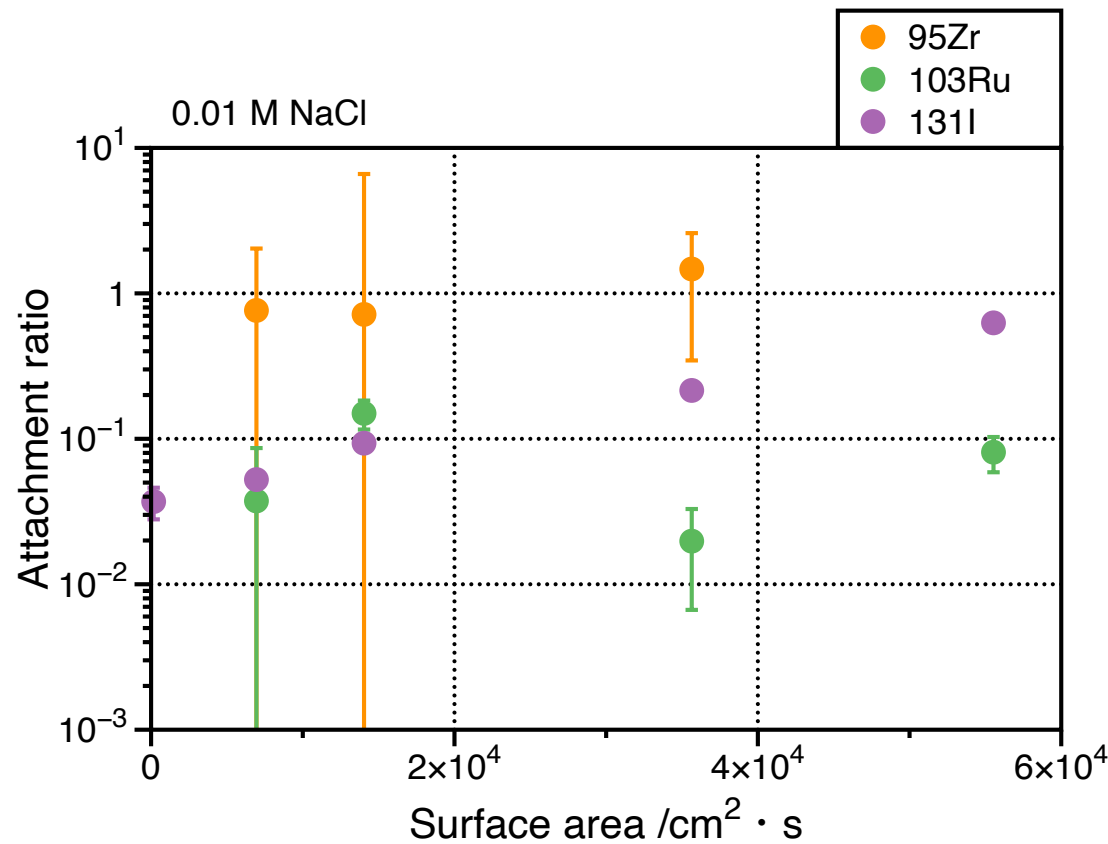
# 付着率の見積り



FP の付着率

$$\frac{\text{エアロゾル粒子に付着したFPの量}}{\text{放出されたFPの量}}$$

# 熱運動するF.P.を用いた エアロゾル粒子への付着実験



0.01 M NaCl, 0.01 M NaBrを原料として生成する溶液状エアロゾル粒子への、照射したウラン試料の加熱によって放出されるFPの付着率の測定を行った。

- ・ ウラン試料への中性子照射  
KUR Pn-2 (1MW) 30min
- ・ 照射後、実験開始までの時間  
3~7日間

放射性エアロゾルとして観測できた核種

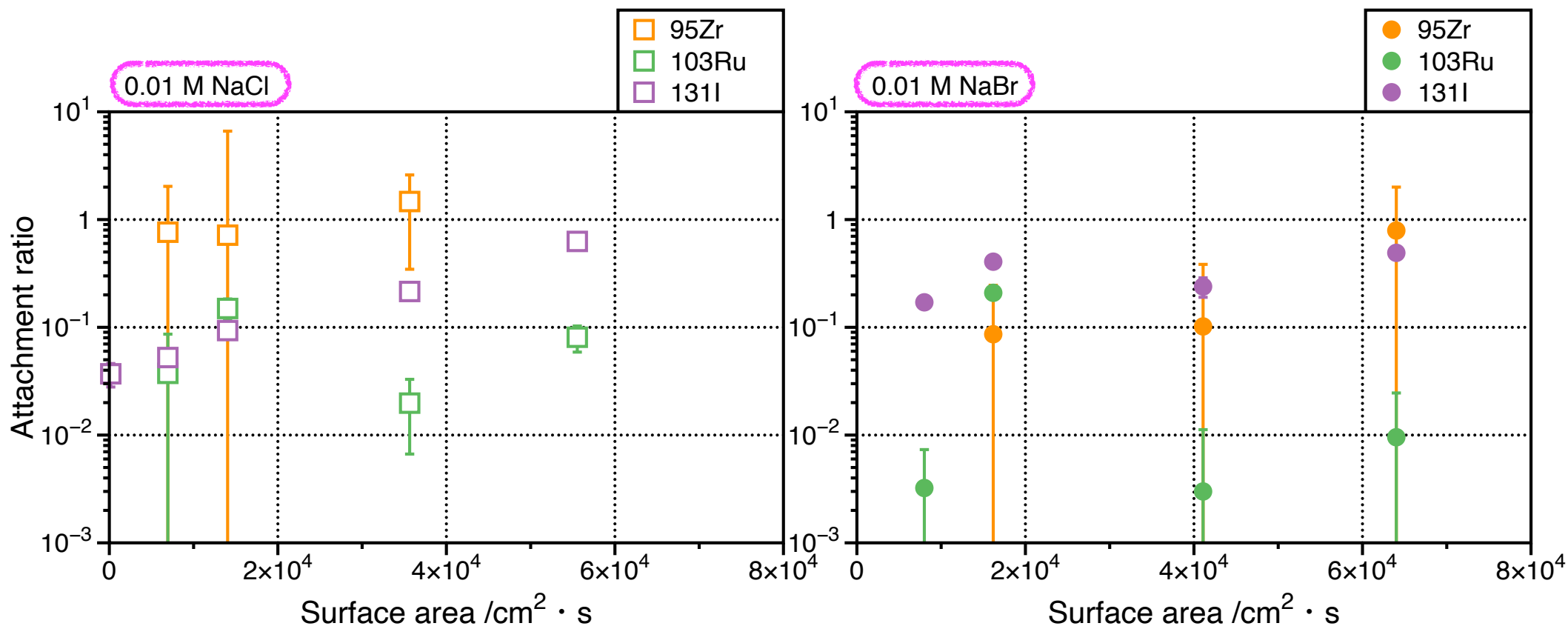
<sup>95</sup>Zr ( $t_{1/2}$ : 64.0 d)

<sup>103</sup>Ru ( $t_{1/2}$ : 39.2 d)

<sup>131</sup>I ( $t_{1/2}$ : 8.02 d)

←—————→  
チェンバー内の容積 (F.P.と共に滞留している時間) を変えることで、F.P.が付着できるエアロゾル粒子の表面積を変化させる

# 熱運動するF.P.を用いた エアロゾル粒子への付着実験



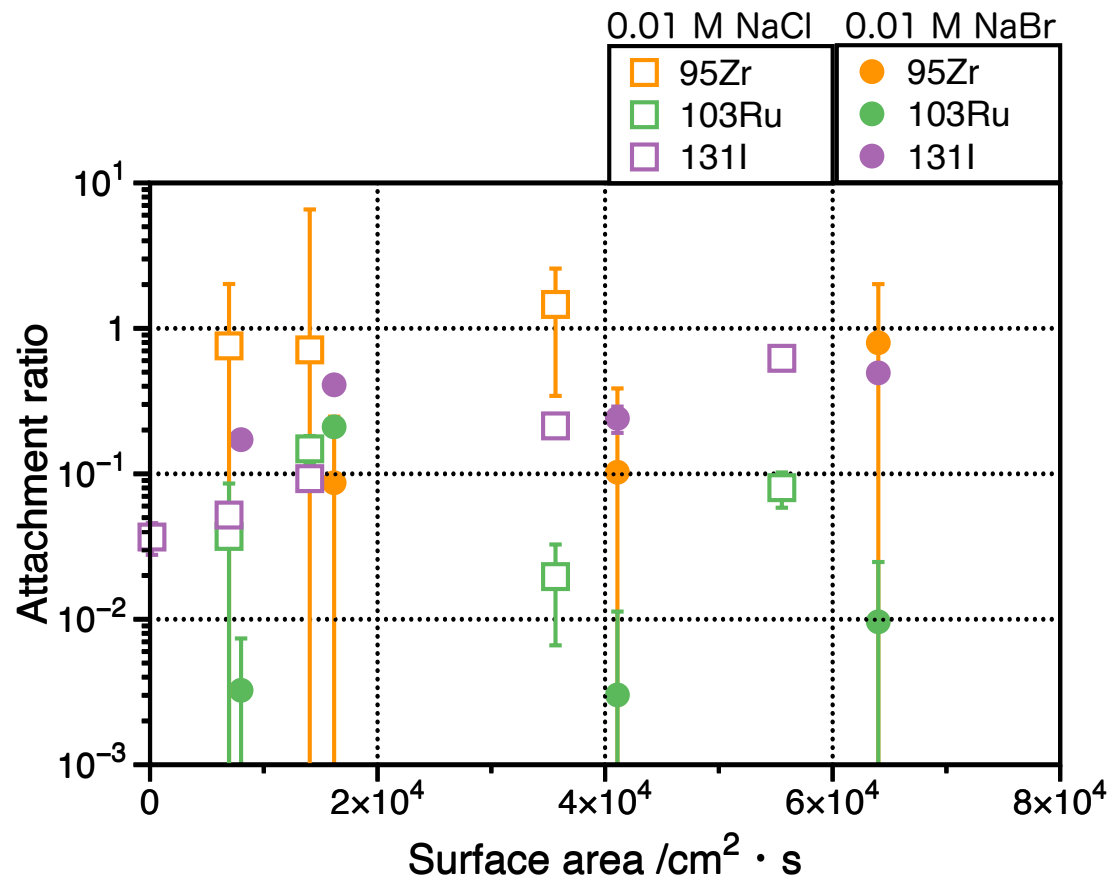
F.P.の核種による付着挙動の差異

NaCl 溶液エアロゾル :  $^{103}\text{Ru} < ^{131}\text{I} < ^{95}\text{Zr}$

NaBr 溶液エアロゾル :  $^{103}\text{Ru} < ^{95}\text{Zr} \approx ^{131}\text{I}$

NaCl溶液エアロゾル粒子へのヨウ素の付着においては表面積依存性がある？

# 熱運動するF.P.を用いた エアロゾル粒子への付着実験



エアロゾル溶液種による付着挙動の差異

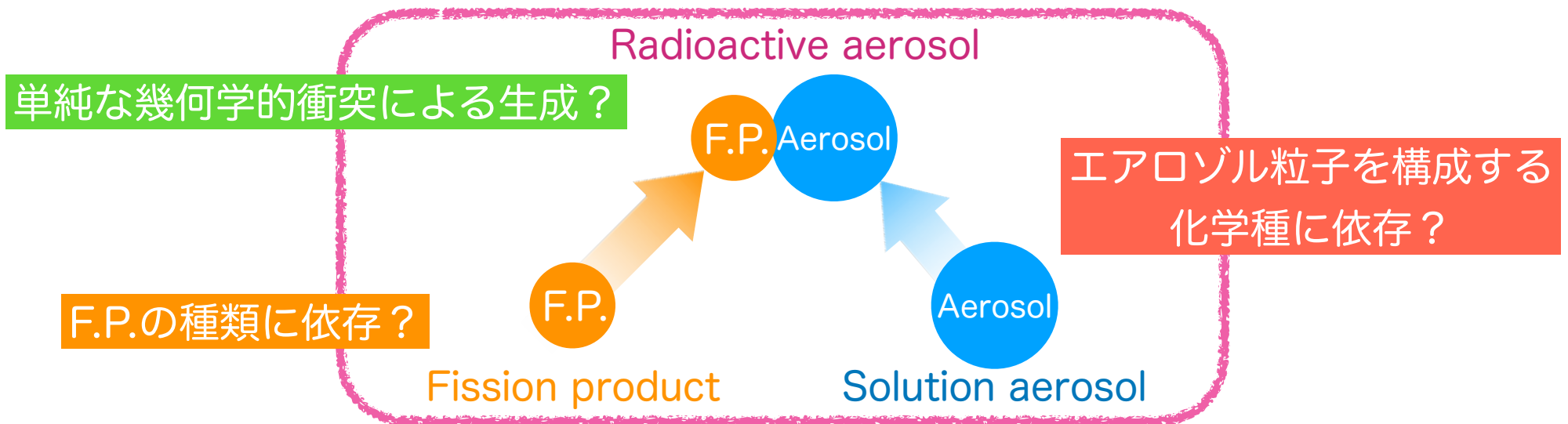
$^{95}\text{Zr}$  : NaCl > NaBr

$^{103}\text{Ru}$  : NaCl  $\geq$  NaBr

$^{131}\text{I}$  : NaCl  $\approx$  NaBr

# 本研究の目的

溶液状エアロゾル粒子に核分裂生成物(F.P.)が付着して  
放射性エアロゾルが生成する反応過程



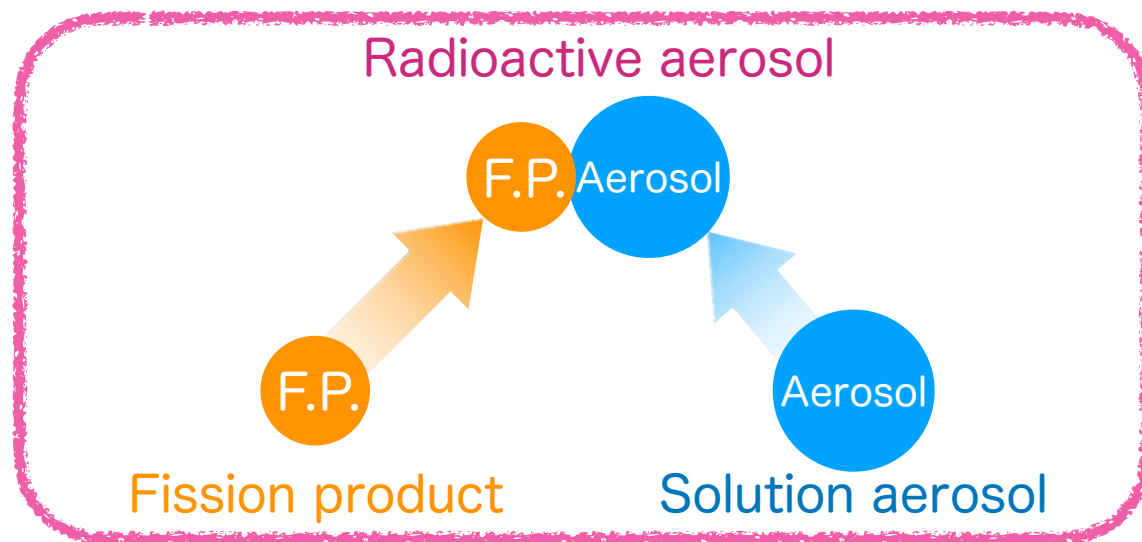
なにをしたか

- ・ F.P.と溶液状エアロゾルとから放射性エアロゾルを生成する装置を開発
- ・ F.P.が溶液エアロゾル粒子に付着する確率（付着率）を測定
- ・ 様々な溶液状エアロゾル/F.P.の組み合わせでの付着挙動を比較
- ・ エアロゾル粒子の化学的な性質が付着挙動に影響を与えるかを検証

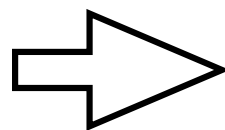


# 本研究の目的

溶液状エアロゾル粒子に核分裂生成物(F.P.)が付着して  
放射性エアロゾルが生成する反応過程

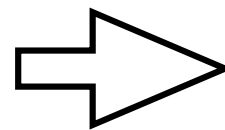


エアロゾル粒子を構成する  
化学種に依存？



依存する

F.P.の種類に依存？



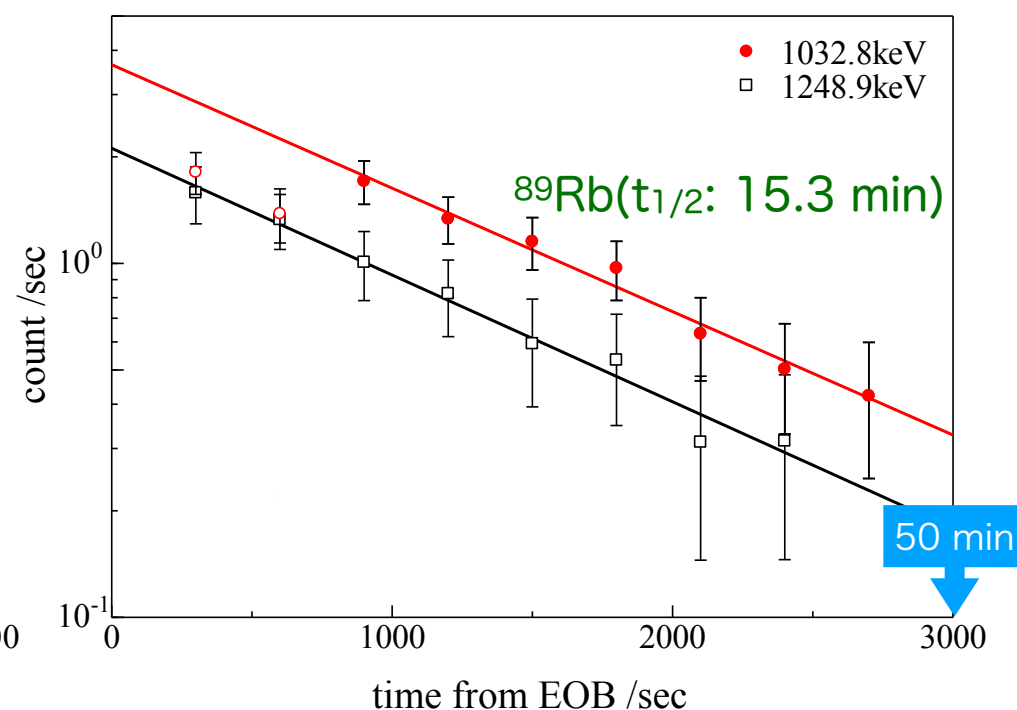
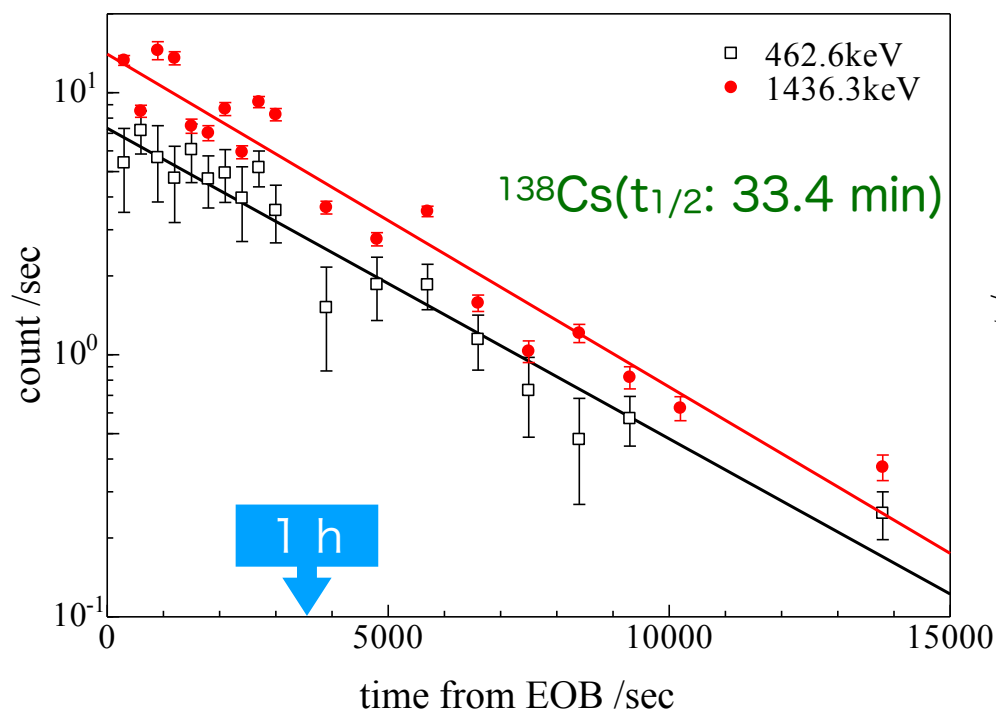
依存する

対象とするFPを増やすことで化学種・FP依存性の傾向を把握

# 熱運動するF.P.を用いた エアロゾル粒子への付着実験

～ 短寿命核種への対象FPの拡張 ～

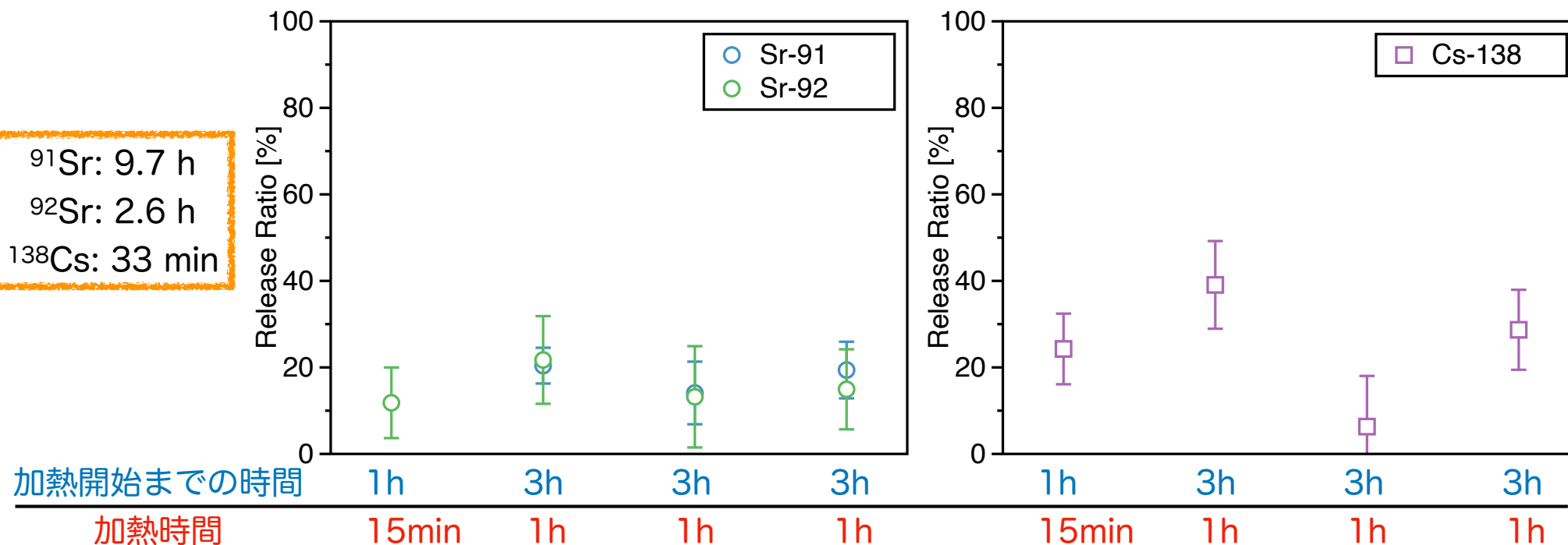
ウラン試料の照射後すぐに実験を開始し、  
短寿命（半減期 < 1h）のF.P.核種を対象とした実験を行った。



ウラン試料 5分照射後のガンマ線スペクトルの連続測定の結果の一部

# 短寿命FPを用いた エアロゾル粒子への付着実験

照射したウラン試料の加熱（1000°C）によるSr, Cs同位体の放出率



## 放出率

91,92Sr: 15~20%  
138Cs: 10~40%

事故時の影響が大きな<sup>90</sup>Srおよび<sup>134,137</sup>Csの同位体(<sup>91,92</sup>Sr, <sup>138</sup>Cs)を用いた実験が可能に。

# 短寿命FPを用いた エアロゾル粒子への付着実験

NaCl, NaBr, (NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub> エアロゾル粒子への  
<sup>91, 92</sup>Sr, <sup>138</sup>Csの付着率 (%)

	<sup>95</sup> Zr	<sup>103</sup> Ru	<sup>131</sup> I	<sup>91,92</sup> Sr	<sup>138</sup> Cs
NaCl	1.5*	0.08	0.63	N.D.	0.05 <sub>max</sub>
NaBr	0.79	0.01	0.49	N.D.	N.D.
(NH <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> SO <sub>4</sub>	—	—	—	N.D.	N.D.

以前の実験で観測された<sup>95</sup>Zr, <sup>103</sup>Ru, <sup>131</sup>Iと比べ  
小さな付着率が得られた。

# まとめ

- F.P.がエアロゾル粒子に付着する際の化学的効果をより明確に調査するために、中性子照射したウランを用いて、反跳エネルギーを持たず熱運動するF.P.をエアロゾル粒子に付着させる実験を実施した。
- 複数のF.P.核種に対し付着率が得られた。
  - F.P.核種により付着率が異なる。
  - 溶液エアロゾル粒子に含まれる化学種により付着率が異なる。
- 短寿命F.P.を対象とすることで、 $^{91,92}\text{Sr}$ ,  $^{138}\text{Cs}$ に対する付着率も得られた。
  - $^{95}\text{Zr}$ ,  $^{103}\text{Ru}$ ,  $^{131}\text{I}$ と比較すると小さな付着率
  - 事故時の影響が大きなF.P.の挙動が評価可能になった。

## 今後の課題

- 繰り返し実験等による統計量の向上
- 付着率の溶液濃度、エアロゾル粒子表面積に対する依存性の調査



F.P.がエアロゾル粒子に付着する際の化学的効果の明確化