

博士学位論文

福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムにおける
形態と特性について

令和3年3月

茨城大学大学院理工学研究科

物質科学専攻

山口 淳史

要旨

2011年3月11日に起きた東日本大震災に伴って発生した津波により、福島第一原子力発電所の原子炉施設（1～5号機）は全交流電源を喪失した。全交流電源喪失に伴い原子炉冷却システムの機能を喪失したため、原子炉内で発生した核分裂生成物の崩壊熱除去が不可能となり、ほとんどの燃料が溶融し大規模な炉心損傷が発生した。さらに燃料被覆管と冷却材における水・ジルカロイ反応によって大量に発生した水素による水素爆発及び原子炉施設の破損を引き起こし、最終的に大量の放射性物質が広範囲に飛散した。

飛散した放射性物質のうち環境に影響のある核種及び放射能濃度について、いくつかの調査が行われた結果、照射済燃料体に存在する核分裂生成物のうち、一定以上の量が存在し、透過力が高いガンマ線を放出し、放射線エネルギーも比較的高く（662KeV）、半減期が約30年と長い放射性セシウム（セシウム-137）による影響が大きいことが判明した。

その後、放射性セシウムの動向や、物理・化学的性質をはじめとした除染のための研究が数多く行われ、飛散した放射性セシウムはイオンの形で土壌の雲母やその他の鉱物に吸着されていると考えられている。

また、一方で飛散した放射性セシウムの一部はエアロゾルの一種であり非水溶性として存在していることや、鉄やケイ素等の無機物質を含有した顆粒状微粒子に取り込まれていること、それら顆粒状微粒子は調査の結果、アモルファスであることが報告されている。また土壌においても顆粒状微粒子が発見されており、それらに取り込まれている放射性セシウムは植物にはほとんど取り込まれていないとの報告が有る。しかし、植物にはごく微量であるが非水溶性である顆粒状微粒子由来であると考えられる放射性セシウムが取り込まれており、どの様な過程を経て、イオン状態となり土壌に吸着されたのか。また土壌からどのように植物等に取り込まれているのかは不明である。

上記の顆粒状微粒子に取り込まれている放射性セシウムがどのような物理・化学的特性をもっているのか、また顆粒状微粒子の性質等を調べることを目的として、リター（落葉落枝：福島県二本松市の「布沢慣行」（福島第一原子力発電所から約45km）にて採取したもの）を用いて様々な溶解実験を行った。

リターを用いた理由は、土壌に直接飛散した顆粒状微粒子は経年変化及び土壌に含まれる鉱物の影響により、飛散した当初の物理的、化学的形態が異なっており、吸着されている可能性が強いが、枯葉の上に飛散した顆粒状微粒子は枯葉等が鉱物を含まないため枯葉に吸着される可能性は低く、顆粒状微粒子が飛散した当初の形態を保っていると考えられるためである。

溶解実験はそれぞれ、リター試料に手を加えずに用いて、フィルターとして浸透膜を使用して行った溶解実験と、耐熱容器に入れ電気炉にて加熱し蒸し焼きの状態（約290℃度）で

炭化させた炭化リターを試料として用いて、ガラスフィルターを使用した溶解実験に分かれる。溶解実験は容器に純水を加え振とうした後、浸透膜あるいはガラスフィルターを用いて、水溶液と炭化リターを分離し、濾過液の放射エネルギーをベクレル計測器で測定した。測定後はフィルター、残渣及び濾過液すべてを再び同じ容器に戻し置き、一定時間後、再び同様の操作を行い濾過液中の放射エネルギーの時間経過を測定した。

またリターに付着した顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムの溶解速度は表面積に依存すると仮定し、上記の仮定を確認するために、顆粒状微粒子の表面積を増加させることを目的として、機械的な外力を加えるためにボールミルを使用して炭化リターを粉砕した。粉砕した炭化リターを用いて、その他の溶解実験と同様に濾過液中の放射エネルギーの時間経過を測定した結果、顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムの溶解速度は増加していた。

透析膜を使用した実験結果から、顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムは水中で、可溶性の放射性セシウムイオンまたは水和セシウムイオンとして存在すると考えられる。このことから、水と接触した場合、表面に存在する放射性セシウムは容易に溶け出すと考えられる。

また、生のリターと炭化リターでの溶解速度は同じであったため、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子の表面だけでなく、内部構造も変化しなかったことが示された。また、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子が約 290℃では熱的安定性があることを示している。

併せて、粉砕した炭化リター試料をもちいた溶解実験は、他の試料の場合と比べて溶解速度が約 10 倍になったことから、平均半径は約 1/10 になったことが示された。この事実は、将来の汚染のシミュレーションだけでなく、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子はボールミル等の外力によって粉砕されることが示され、この性質は放射性セシウムを除染する方法の開発にも貢献する可能性がある。

現在の除染は、イオン状態で枯葉や土壌に付着していることを前提に考えられているが、今回の研究の結果から、顆粒状微粒子も除去することを念頭においた除染方法の開発が必要であると考えられる。

目次

1. 序論	
1-1 研究背景	… 1
1-2 先行研究と課題	… 3
1-3 研究目的	… 4
第1章 参考文献	… 5
2. 放射性物質	
2-1 諸言	… 7
2-2 放射線と放射性物質	… 8
2-3 放射線測定	… 15
2-4 原子力発電所における放射性物質	… 27
2-5 福島第一原子力発電所事故由来の放射性物質	… 30
2-6 環境中に放出された放射性セシウム	… 32
第2章 参考文献	… 35
3. 実験	
3-1 試料の準備と放射能測定	… 38
3-1-1 試料の採取	… 38
3-1-2 炭化リターの作成	… 40
3-1-3 ボールミルを用いた炭化リターの粉砕	… 49
3-2 炭化リターのエネルギー分散型蛍光X線分析	… 52
3-3 溶解実験	… 53
3-3-1 透析膜を用いた顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムの溶解実験	… 53
3-3-2 グラスフィルターを用いた溶解実験	… 57
第3章 参考文献	… 60
4. 結果	
4-1 溶解実験	… 61
4-1-1 透析膜を用いた溶解実験の結果	… 61
4-1-2 グラスフィルターを用いた溶解実験の結果	… 62
4-1-3 溶解実験の結果	… 64
4-2 炭化リターのエネルギー分散型蛍光X線分析結果	… 66
第4章 参考文献	… 67

5. 考察	
5-1 試料選定の理由	... 68
5-2 試料の炭化について	... 68
5-3 透析膜を使用した理由	... 68
5-4 放射性セシウムの溶解速度について	... 69
5-4-1 生リターと炭化リターの比較	... 69
5-4-2 機械粉砕した炭化リターと機械粉砕していない 試料との比較	... 69
5-5 機械的性質と熱安定性について	... 70
5-5-1 機械的性質	... 70
5-5-2 熱安定性	... 70
5-6 放射性セシウムの除染について	... 71
第5章 参考文献	... 72
6. 結論・課題・展望	... 73
論文リスト及び国際会議論文リスト	... 74
謝辞	... 75

1：序論

1-1：研究背景

2011年3月11日に発生したマグニチュード9.0の東北地方太平洋沖地震によって、東北地方から関東地方までの広範囲に渡って大規模な津波が発生した。地震の発生から約1時間後に遡上高10m以上の津波が福島第一原子力発電所を襲い、全交流電源喪失状態に陥った。このことにより1号機、3号機は原子炉冷却能力を失い、崩壊熱による炉心溶融（メルトダウン）に伴って、燃料体の一部であるジルコニウム合金製被覆管と冷却材の相互作用によって生成された水素が、原子炉施設に滞留し水素爆発が発生した。また2号機は水素爆発には至らなかったが、圧力抑制室を損傷したと考えられている。最終的に上記の水素爆発及び原子炉施設の損傷によって引き起こされた放射性物質による広範囲に渡る放射能汚染は、震災後約10年経過した現在においても社会問題のひとつとなっており、一連の事象はまとめて福島第一原子力発電所事故と呼ばれている。

福島第一原子力発電所事故由来の飛散した放射性物質について、各地域における土壌中の放射能濃度や経時変化が詳細に調べられ、報告としてまとめられている[1]。飛散した放射性物質はプルトニウム、ストロンチウム、ヨウ素、キセノン、セシウム等が挙げられるが、この中で特に影響が大きいものがセシウム137である。放射性セシウムはセシウム134とセシウム137が存在するが、半減期の長さがセシウム134は2.06年、セシウム137は30.17年と比較的長いことから、セシウム137の方が長期にわたり環境に与える影響は大きい。

セシウム137（イオン半径：1.67Å）の壊変図を図1に示す[2]。94.4%の確率で崩壊し、512 keVのベータ線を放出しバリウム137mとなる。バリウム137mは85.1%の確率でさらに崩壊して662 keVのガンマ線を放出した後、非放射性的バリウム137（イオン半径：1.37Å）となる。ほかに、ベータ崩壊により1.174MeVのベータ線を放出しセシウム137から直接バリウム137となる経路も存在する。ガンマ線の強い発生源であるのはバリウム137mであるが、セシウム137はバリウム137mと放射平衡の関係にあり、バリウム137mの半減期が短い（2.56分）ため、除染対象となるのはセシウム137である。

セシウム137は中性子の捕獲率が低いため、中性子捕獲によるセシウム137の処理ができず、自然に崩壊するのを待たねばならない。またウラン235の熱中性子核分裂において直接生成する場合の核分裂収率は、セシウム137は0.06%に過ぎないが、ヨウ素137（半減期24.5秒）、キセノン137（半減期3.82分）は3.2%生成し、その他も含めて、これら短寿命核種がベータ崩壊してセシウム137となるため、累積の核分裂収率は大きく、原子炉内のセシウム137発生量は多量である。

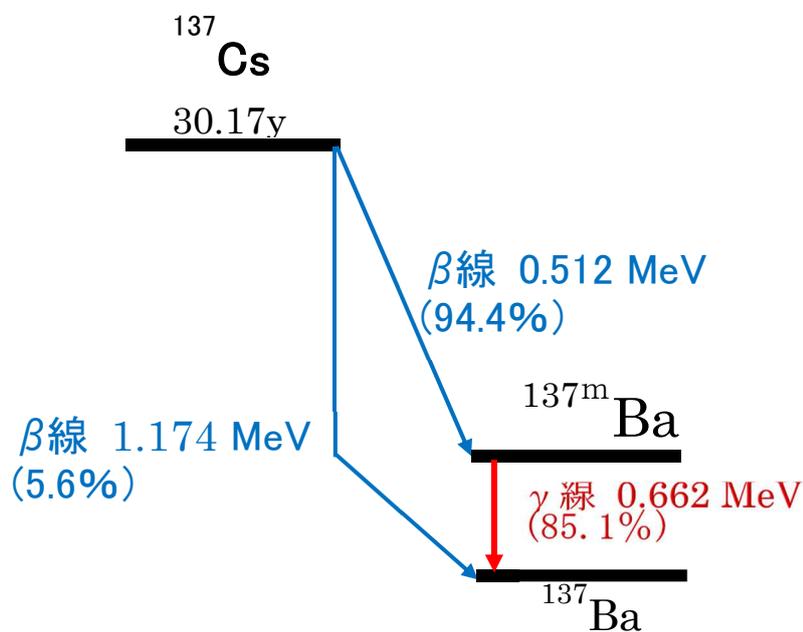
また、セシウムは原子番号55の第一族元素であり、アルカリ金属であることから、融点が低く反応性が高いという化学的性質を持つ。セシウム単体（金属）では非常に軟らかく、延性に富む銀白色の金属であり、融点は312.4Kと低く水に溶解しやすい。また金属セシウムは金属ナトリウム同様に高い反応性を持つため化合物を生成しやすく、自然発火することから、取り扱いには乾燥状態にした上でアルゴンや窒素などの不活性ガスの下で行わなけ

ればならない。従って本来、セシウムは不溶性にはなりにくい物質である。

本論文では、このセシウム 137 を研究対象としていることから、以後、セシウム 137 を「放射性セシウム」と呼ぶ。

この福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムは、様々な形態で環境に存在しているということが示唆されている。また除染方法の研究・開発や今後の取り扱いについて等の検討は、現時点においても引き続き行われており、様々な仮説が提唱されている。例としては、放射性セシウムが原子の形で特定の粘土鉱物等に強く固定されている説[3]、植物やキノコ等に放射性セシウムが吸着されている説、放射性セシウムを含んだ顆粒状のエアロゾルとして存在している説等がある。この中の顆粒状のエアロゾルに放射性セシウムが含まれている説については、事故直後からつくば市において、数日間空気中のダストサンプラーを用いて調査し、放射性セシウムを含む顆粒状のエアロゾル存在を確認している[4]。この放射性セシウムを含む顆粒状微粒子（以下「顆粒状微粒子」という。）は福島第一原子力発電所事故特有の物質であり、チェルノブイリ原子力発電所事故やその他の海外における原子力事故の場合には存在が確認されていない。

現時点でも、放射線量が高い帰還困難及び山林エリア等が存在することから、当該地域の放射性物質による汚染は、復興及び廃炉における懸念材料の一つとなっている。建設中の中間貯蔵施設（除染で取り除いた土や放射性物質に汚染された廃棄物を、最終処分をするまで最長で 30 年間保管するための施設）についても、用地取得が難航していることや、環境への影響も考慮すると、放射性廃棄物の減容は今後の大きな課題となる可能性がある。



図－1 セシウム 137 の壊変図

1-2 : 先行研究と課題

放射性セシウムの形態についてはいくつかの先行研究が行われており、初期において地面に落下した放射性セシウムについては、土壤に含まれる鉱物に吸着されて閉じ込められることが報告されている[3]。

その後、地面に落下して土壤に吸収されていない放射性セシウムの一部については、IP ラジオグラフィーや電子顕微鏡を用いた分析の結果、顆粒状微粒子の形態で存在していることが報告されている[5]。

この顆粒状微粒子については、先行研究にてさらなる研究が行われ、ウランやケイ素、その他の有機物質や無機物質を含んでいること、数 μm から数十 μm サイズの大きさであることが報告されている [5-15]。また、基本的には不溶性であり、アモルファス構造をもっているという報告もされている[5-6]。これら先行研究は、放射能汚染が広範囲に拡散していることから、試料を採取した場所が異なることや採取方法が異なること等から、含有元素や大きさ等にばらつきが見られる。

また、顆粒状微粒子の生成過程についても、いくつかシミュレーションを用いた研究が行われており、顆粒状微粒子の形成プロセスは約 2000K を超える温度状態であると推測されており、顆粒状微粒子は熱的に安定していると考えられる[8]。

現在の状況に目を向けると、放射性セシウムに汚染された野菜などが存在し、それらを水で洗浄しても除染できないことから、放射性セシウムが溶解した形（イオン又は原子）で入り込んでいると考えられる例が報告されている[16-17]。

汚染された野菜等の原因を考えると、上記の放射性セシウムが土壤に含まれる鉱物に吸着されている場合、鉱物に吸着されていることから、植物やキノコ等にイオン又は原子の形で吸収されることはないとされている。また、顆粒状微粒子についても不溶性であることから、放射性セシウムが溶解することはないため、野菜等の汚染の原因ではないと考えられてきた。しかしながら、顆粒状微粒子は顆粒状であることから容易に移動することや、顆粒状微粒子の放射性セシウムが溶解する可能性も否定できないことから、顆粒状微粒子を用いた溶解実験を行う必要がある。

また、顆粒状微粒子の平均的な性質及び環境中での振る舞いを調査するためには、大量の顆粒状微粒子を用いた研究も必要であり、土壤に付着した試料を用いた場合、土壤の組成や構造に大きく依存する可能性がある。そのため、顆粒状微粒子との相互作用が少ないと考えられる落葉落枝等の試料を用いて、調査を行うことは有用である。

1-3 : 研究目的

不溶性である顆粒状微粒子由来の放射性セシウムが植物に取り込まれている可能性があるため、顆粒状微粒子について、溶解実験を行いその性質を調査し、植物に放射性セシウムが取り込まれている原因となっているか確認を行う。

放射性セシウムの由来が顆粒状微粒子であった場合、適切な対応をおこなわなければ、放射性セシウムによる食物や飲用水等の放射能汚染を引き起こし、経口摂取によって、放射性セシウムが体内に入ってしまう。セシウムの化学的性質と体内摂取後の挙動が、カリウムと似ていることから、ベータ線とガンマ線を放射しながら血液の流れに乗って腸や肝臓に到達し、カリウムと置き換わって筋肉に蓄積したのち、腎臓を経て体外に排出される。従って、体外に排出されるまでの 100 日から 200 日にわたってベータ線とガンマ線による内部被ばくを引き起こす可能性がある[18]。

溶解実験は、最初に透析膜を使用して顆粒状微粒子の溶解を行った。透析膜は分子量 1000Dalton 以下の分子のみを通過させるものを使用した。顆粒状微粒子が付着した試料を純水に浸漬し、溶解した放射性セシウムを含む 1000Dalton 以下の分子を含んだ溶液と試料を、透析膜を用いて分離し、顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムの溶解について調査を行った。

併せて、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子が、時間経過によって風化し、その結果生じる放射性物質による放射能汚染について考える必要があるため、機械的特性及び熱安定性を調査し、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子の特性を確認し、今後の長期的な放射性物質の拡散・移動等の動態予測、様々な処理等による放射性セシウムの除去方法の開発や、汚染土壌の減容や貯蔵方法の検討などに貢献する知見を得ることを目的とした。

上記の目的を達成するために、顆粒状微粒子の表面積を変化させる工程が必要となる。そのために炭化試料を作成し、機械粉碎等の試料の調整を行った溶解実験も行った。

第1章 参考文献

1. 日本の環境放射能と放射線ライブラリー
(URL : https://www.kankyo-hoshano.go.jp/08/08_1.html)
2. 日本アイソトープ協会, 2012 : アイソトープ手帳, 丸善出版
3. Kogure, T., Morimoto, K., Tamura, K., Sato, H., Yamagishi, A., 2012. XRD and HRTEM evidence for fixation of cesium ions in vermiculite clay. *Chem. Lett.* 41, 380-382.
4. Kaneyasu, N., Ohashi, H., Suzuki, F., Okuda, T., Ikemori, F., 2012. Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident. *Environ. Sci. Technol.* 46, 5720-5726.
5. Abe, Y., Iizawa, Y., Terada, Y., Adachi, K., Igarashi, Y., Nakai, I., 2014. Detection of uranium and chemical state analysis of individual radioactive microparticles emitted from the Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron radiation X-ray analyses. *Anal. Chem.* 86, 8521-8525.
6. Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y., Igarashi, Y., 2013. Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.* 3, 2554. <https://doi.org/10.1038/srep02554>.
7. Abe Y, Iizawa Y, Terada Y, Adachi K, Igarashi Y et al. (2014) Detection of uranium and chemical state analysis of individual radioactive microparticles emitted from the Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron radiation X-ray analyses. *Anal Chem* 86: 8521-8525.
8. Furuki G, Imoto J, Ochiai A, Yamasaki S, Nanba K et al. (2017) Caesium-rich micro-particles: A window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci Rep* 7: 42731.
9. Itoh S, Eguchi T, Kato N, Takahashi S (2014) Radioactive particles in soil, plant, and dust samples after the Fukushima nuclear accident. *Soil Sci Plant Nutr* 60: 540-550.
10. Kikuchi K, Niimura N, Onizawa T, Komatsuzaki M, Tanaka I (2018) Detection of Radioactive cesium on Granular Particle using Autoradiography, germanium detector and Energy dispersive X-ray spectrometry. *Radiol Diagn Imag* 1: 1-5.
11. Miyamoto Y, Yasuda K, Magara M (2014) Size distribution of radioactive particles collected at Tokai, Japan 6 days after the nuclear accident. *J Environ Radioact* 132: 1-7.
12. Niimura N, Kikuchi K, Tuyen ND, Komatsuzaki M, Motohashi Y (2015) Physical properties, structure, and shape of radioactive Cs from the Fukushima

- Daiichi Nuclear Power Plant accident derived from soil, bamboo and shiitake mushroom measurements. *J Environ Radioact* 139: 234-239.
13. Satou Y, Sueki K, Sasa K, Adachi K, Igarashi Y (2016) First successful isolation of radioactive particles from soil near the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Anthropocene* 14: 71-76.
 14. Satou Y, Sueki K, Sasa K, Yoshikawa H, Nakama S et al. (2018) Analysis of two forms of radioactive particles emitted during the early stages of the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Station accident. *Geochem J* 52: 137-143.
 15. Yamaguchi N, Mitome M, Kotone AH, Asano M, Adachi K et al. (2016) Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant. *Sci Rep* 6: 20548.
 16. Hoshino, Y., Higashi, T., Ito, T., Komatsuzaki, M., 2015. Tillage can reduce the radiocesium contamination of soybean after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Soil Till. Res.* 153, 76-85.
 17. Nakanishi, H., Tanaka, H., Takeda, K., Tanoi, K., Hirose, A., Nagasaka, S., Yamakawa, T., Mori, S., 2014. Radioactive cesium distribution in bamboo [*Phyllostachys reticulata* (Rupr) K. Koch] shoots after the TEPCO Fukushima Daiichi Nuclear
 18. 環境省. 「放射線による健康影響等に関する統一的な基礎資料 平成 30 年度版」
<http://www.env.go.jp/chemi/rhm/h30kisoshiryo.html>

2：放射性物質について

2-1：緒言

福島第一原子力発電所事故以来、放射性物質について様々な報道がなされており、放射性物質から放出される放射線は直接目に見えないことや、福島第一原子力発電所事故時に放出された放射性物質については、核種、範囲、総量については、未だに確定していない部分もあることから、放射性物質について不安の声もある。

また放射性物質について核種や放射エネルギーについて調査する場合、放射性物質が単体であることは比較的珍しく、化学的手法で分析することが難しい場合は放射線や半減期を測定する必要があり、放射性物質を化学的に単離するには、溶媒抽出やイオン交換など、同時に存在するほかの物質の影響を被りにくい化学的手法が必要となるため、放射性物質に関する分析は、定性・定量的な情報を得るためには時間がかかる場合もある。

放射性物質の特徴として、「半減期」を持つことが挙げられる。放射性物質は時間とともに崩壊し、最終的には放射能を持たない安定な同位体となる。半減期は放射性物質が半分になる期間を示すもので、半減期は核種により異なり、短い（1 マイクロ秒）核種や長い（数十億年）核種もある。半減期が長い元素ほど少しずつ放射線を放出するため放射能濃度が低く、逆に半減期が短い元素は短期間に放射線を放出するため放射能濃度が高い。

放射性物質は、核燃料や核兵器の製造や、加速器を用いて人工元素を合成することなどで人為的に作られたものばかりではなく、太陽や恒星から降り注ぐ中性子が、大気に含まれる原子や人工物に吸収されて放射化するものもある。炭素 14 は空気中又は鉄骨中の窒素原子が宇宙からの中性子線を吸収して自然に生成され、カリウム 40 も同様に空気中のアルゴン 40 中性子線を吸収して自然に生成される。従って自然界には、多種多様の放射性物質が存在していることから、空気中や土壌に含まれている放射性物質によって被ばくしており、これら放射性物質からの放射線を「自然放射線」と呼ぶ。

放射性物質は工業、農業、医療その他の分野で広く利用されている。例を挙げると自然環境に含まれる放射性物質（炭素 14 やカリウム 40 など）の含有比を調べることで年代測定することが出来る。また、PET と呼ばれる陽電子放出断層撮影にはテクネチウム 99m という物質が必要である。

被ばくには、「外部被ばく」と「内部被ばく」に分けることが出来る。内部被ばくの場合には放射性物質を体内に取り込んでいるので、すべての放射線が影響を及ぼす。また体内に取り込まれた放射性物質は元素の種類により、特定の組織・臓器に沈着する。例えばセシウム 137 は筋肉・全身に、ヨウ素 131 は甲状腺に、ストロンチウム 90 は骨に沈着する。プルトニウム 238、239 および 240 が放出するアルファ線は放射線荷重係数が大きく人体への影響も甚大である。外部被ばくからの防護には「遮へい」を行い、「距離」をできるだけとり、「時間」を短くすることが必要になる。

2-2：放射線と放射性物質

「放射線」とは、電磁波または粒子線のうち、直接又は間接に空気を電離（原子や分子が放射線等のエネルギーを吸収してイオンになること）する能力のことを指す[1-2]、それぞれ【アルファ線、重陽子線、陽子線、その他の重荷電粒子線及びベータ線、中性子線、ガンマ線、特性エックス線（軌道電子捕獲に伴って発生する特性エックス線に限る）、1MeV以上のエネルギーを有する電子線及びエックス線】と定義されている。

上記の放射線を放出する能力を「放射能」と呼び、放射線を出す物質を「放射性物質」という。言い換えれば放射能を持っている物質のことを「放射性物質」といい、放射性物質はすべからず放射能をもっていることになる。また、放射能というのは原子核が、上記の放射線、例えばガンマ線や中性子等の電磁放射線や粒子放射線に照射されなくても、存在している原子核が自発的に放射性壊変（放射性核種が放射線を出して化学的に異なる原子種になること）してアルファ線、ベータ線及びガンマ線等を放出する性質があるという意味も持つ。

放射能の単位はBq（ベクレル）と言い、1秒あたりの壊変数であり、1Bqの定義は一つの原子核が1秒あたりに壊変を起こし放射線を放出していることを指す。従って、放射線が放出されていることのみを考慮しており、放射線の種類及びエネルギーについては考慮していない。

なお、比較的良好に用いられる単位として、比放射能（Bq/kg）がある。これは放射性核種の属する元素の単位当りの放射能のことを指している。この単位は福島第一原子力発電所事故後に公布された【平成二十三年三月十一日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う原子力発電所の事故により放出された放射性物質による環境の汚染への対処に関する特別措置法（平成二十三年法律第百十号）】（通称：放射性物質汚染対処特措法）を受けて制定された規則[3]第十四条に8000Bq/kg以上を国の方針として汚染土であると定めていることから、比較的良好に知られている。

上記の放射能は核放射性物質の半減期によって壊変が決まり、核種の質量から放射能の関係は以下の式に従う。

$$I = -\frac{dN}{dt} = \lambda N \quad (1)$$

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad (2)$$

$$\lambda = \frac{\ln 2}{T} = \frac{0.693}{T} \quad (3)$$

$$N = \frac{W}{A} \times 6.02 \times 10^{23} \quad (4)$$

$$-\frac{dN}{dt} = \frac{W \times 4.17 \times 10^{23}}{AT} \quad (5)$$

ここで

I：放射性物質の放射能量（Bq）

W：質量（g）

N：原子数

A：質量数（g）

λ ：崩壊定数

T：半減期（秒）

を表している。

また、上記の式を用いて、放射能を測定することにより当該放射性核種における半減期から放射性物質の総量を計算することも可能である。

例を挙げれば、福島第一原子力発電所事故によって大気中に放出されたセシウム 137 の放射能量については 9-37PBq（PBq=10¹⁵Bq）の範囲であると今までの調査[4-6]から推定されている。上記の式に当てはめて考えれば、半減期が 30.17 年であることから放出されたセシウム 137 の重量は約 2.8kg～11.6Kg となり、広範囲にわたって深刻な放射能汚染の要因となった放射性物質であるセシウム 137 は、集約してしまえばわずか数 Kg～数十 Kg 程度であることが分かる。

またセシウム 137 については比較的長い半減期（30.17 年）であり、この半減期が除染を行う必要がある放射性物質となっている原因の一つである。セシウム 137 についての時間経過と放射能量のついてのグラフを図-1 に示す。

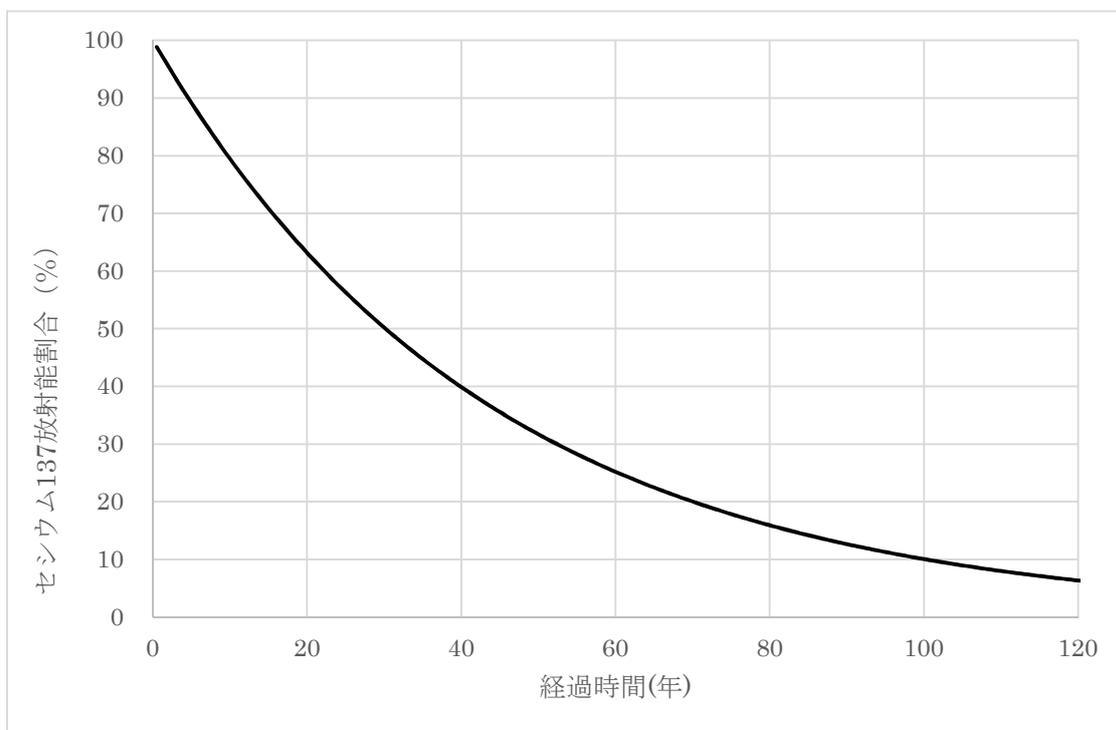


図-1 Cs-137 の経過時間と放射能割合のグラフ

放射性物質の影響を評価する値の一つである放射線量の単位には、吸収線量、等価線量、実効線量等が存在するが、実際によく用いられる単位は実効線量を表す Sv（シーベルト）を使用することが多い。

実効線量を求めるには、最初に物理量である吸収線量 (D) を測定しなければならない。この数値は放射線と物質との相互作用が発生した結果、物質に入射した 1 次放射線から 2 次電子が作られ、放射線のエネルギーが物質に吸収されることを考慮し、物質の単位質量に与えられたエネルギー物質に吸収された放射線のエネルギーのことを指している。以下の式で定義される。

$$D = \frac{dE}{dm}$$

ここで

dE：微少な物質が放射線から受けたエネルギー (J)

dm：微少な物質の質量 (kg)

吸収線量は放射線の照射による物質 1kg 当り 1J (ジュール) のエネルギーを吸収したとき、これを 1Gy (グレイ) と呼んでいる。単位は【J/kg】であり放射線、物質の種類によらず使用することが出来る。また以前用いられていた単位である rad (ラド) との関係は 1Gy = 100rad となっている。

次に等価線量 (H) は、上記の吸収線量が同じであっても、放射線の種類やエネルギーによって、人体に対する影響が異なることを考慮したものである。例を挙げればガンマ線と中性子線によって被ばくした場合を比較すると、吸収線量が同じでも中性子線の方が強い損傷を受ける。

放射線の生物学的効果を加味し、被爆によって人体組織に与えられる影響を考慮するため、照射により人体組織に与えられる影響を同一尺度で計量するために、組織・臓器について平均し、各放射線の種類について分類したものである。等価線量と吸収線量の関係式及び放射線荷重係数を表-1 に示す。

$$H = \sum_R (w_R \times D_R)$$

ここで

H：各組織における等価線量 (Sv)

w_R：放射線荷重係数

D_R：放射線 R に起因する吸収線量 (Gy)

を表している。

放射線の種類とエネルギーの範囲	放射線荷重係数 (w_R)
光子	1
電子及びミュオン粒子	1
中性子	$E < 1\text{MeV} : 2.5 + 18.2e^{-[\ln(E)]^{2/6}}$ $1\text{MeV} \leq E \leq 50\text{MeV} : 5.0 + 17.0e^{-[\ln(2E)]^{2/6}}$ $50\text{MeV} < E : 2.5 + 3.25e^{-[\ln(0.04E)]^{2/6}}$
陽子及びパイ中間子	2
アルファ粒子、核分裂片、重原子核	20

表-1 放射線荷重係数[7]

中性子については連続関数をもちいており、係数の範囲は2.5~21としている。特に低エネルギー ($E \leq 30\text{keV}$ 程度) 及び高エネルギー (100MeV 以上) では係数は5以下となり、1MeV エネルギー付近で最大値となる。これは中性子が体内物質 (水等) との相互作用がエネルギーによって変わることを考慮しているものである。

等価線量の値は Sv (シーベルト) で示され、実効線量とは単位が一緒であるが、別物であることを注意する必要がある。なお、等価線量及び実効線量は防護量となっている。

実効線量は、各組織・臓器の等価線量にそれぞれの組織荷重係数を掛け、放射線に被爆を受けた対象となる組織について加え合わせたものである。実効線量と等価線量と関係式以下に示す。また、表-2 に組織荷重係数を示す。

$$E = \sum_T (w_T \times H)$$

E : 実効線量 (Sv)

H : 等価線量 (Sv)

w_T : 組織過重係数
を表している。

組織・臓器	組織荷重係数 (w_T)
乳房	0.12
骨髄 (赤色)	0.12
結腸	0.12
肺	0.12
胃	0.12
生殖腺	0.08
甲状腺	0.04
食道	0.04
肝臓	0.04

膀胱	0.04
骨表面	0.01
皮膚	0.01
脳	0.01
唾液腺	0.01
残りの組織・臓器（以下 14 種類）	以下の○がついた臓器の合計として 0.12
副腎	○
小腸	○
腎臓	○
筋肉	○
膵臓	○
脾臓	○
胸腺	○
胸郭外気道領域	○
胆嚢	○
心臓	○
リンパ節	○
口腔粘膜	○
子宮（子宮頸部、女性のみ）	○
前立腺（男性のみ）	○

表－2 組織荷重係数[8]

実効線量は放射線の人体への影響の程度を表わすのに、用いられており、物理量である吸収線量を元に、放射線防護を目的とした指標である。

上記の実効線量等は放射性防護の観点から用いられているものであり、それぞれ管理の目的に応じて使われている。放射線防護には、大きく分けて外部被ばくと内部被ばくがある。外部被ばくは体の外にある放射性物質から出る放射線を浴びることによる被ばくであり、アルファ線やベータ線は遮蔽によって防げることが多いので、外部被ばくはガンマ線、エックス線及び中性子線による被ばくが主である。一方、内部被ばくは、食事や呼吸で体内に取り込まれた放射性物質による被ばくであると定義されている。

外部被ばくの評価は、ある場所に放射性物質があると仮定し、一定時間滞在した結果を外部被ばくとして評価するには、サーベイメータで空間線量率を測定し、空間線量率の値に滞在時間をかけると、その滞在中の外部被ばく線量が求められる（単位 Sv 等）。

なお、空間線量率には自然及び人工の放射線について区別することなく扱われ、実効線量値が、法律などで定められている規制値やガイドラインの実効線量（単位 Sv）に対応する

として評価する[9]。(例として、放射線業務従事者の上限被曝量は 100mSv/5 年)

内部被ばくの評価は、経口あるいは吸引で摂取した放射エネルギーを計算して、経口、吸引に分けて実効線量係数 (Sv/Bq) をかけて値を求め、摂取するたびに被ばく線量と見なして、外部被ばく線量と合算して評価する。

上記の実効線量係数は内部被ばくを計算するための係数と定義されており、体内に取り込んだ放射性物質の種類とその放射能が判明していることが前提条件となっている。内部被ばくは遮蔽が不可能であることから、全種類の放射線による被ばくを考慮しなければならない、また体内に摂取した放射性物質の放射能は、核種の物理的半減期だけでなく、人体の代謝・排泄機能についても考慮した実効的半減期 (Te) を含めて定められている。

実効的半減期は、摂取した放射性物質の、核種における物理的半減期 (Tp) と放射性物質の一部が代謝・排泄機能によって体外に放出され、物質量が半分になるまでの時間である生物学的半減期 (Tb) も考慮して定義されており、それらの関係式を以下に示す。

$$\frac{1}{T_e} = \frac{1}{T_p} + \frac{1}{T_b}$$
$$T_e = \frac{T_p \times T_b}{T_p + T_b}$$

上記より、実効的半減期は、物理的半減期及び生物学的半減期のいずれよりも短くなる。預託実効線量として、摂取後の積算期間を考慮するが、特定されていない場合は、Te を考慮しつつ、成人では摂取したときから 50 年間、子供では摂取した年齢から 70 歳までの被ばくを積算すること[10]としている。

実際の内部被ばくは実効的半減期で決まる期間で減衰するので、積算期間によらない預託実効線量の値が得られる。これらは計算コードを用いて計算される。

放射性物質が存在する場所において、ある一定時間滞在した場合、放射線を被曝することによって、どの程度身体に影響があるのかを表しているのが空間線量率 (Sv/h) であり、頻繁に情報媒体に用いられる単位である。

これは放射能が判明している (あるいは放射エネルギーを仮定した) 放射性物質があるときに、その場所における空間線量率を、実効線量率あるいは 1cm 線量当量率で表したものである。

実効線量率は、主に 1 cm 線量当量率と等しい扱いを受けるため、放射線測定器 (サーベイメータ) は 1 cm 線量当量率を測定している。

1 cm 線量当量率は国際放射線単位測定委員会 (ICRU) が定めた、放射線の量を表す物理量のことで、人体組成を模擬した元素組成値をもつ直径 30cm の球体 (ICRU 球: 直径 30 cm の球、元素組成が酸素: 76.2wt%、炭素: 11.1wt%、水素: 10.1wt%、窒素: 2.6%wt、密度は 1g/cm³) を放射線場に置き、その球表面から 1cm 深さの点における線量の値のことである。これら放射能 (Bq) と空間線量率 (Sv/h) 1cm 線量当量率 (Sv/h) への「換算係数」として、係数を各放射性物質の種類ごとに計算して一覧表となっており、それらの代表的なものを表-3に示す。

放射性物質	① 実行線量率定数 ② 1cm 線量当量率定数 ($\mu\text{ Sv}\cdot\text{m}^2/\text{MBq}\cdot\text{h}$)
ベリリウム 7	① 0.00706 ② 0.00839
ナトリウム 22	① 0.284 ② 0.333
カリウム 40	① 0.0184 ② 0.0212
コバルト 60	① 0.305 ② 0.354
ストロンチウム 89	① $1.14 \cdot 10^{-5}$ ② $1.33 \cdot 10^{-5}$
テクネチウム 99m	① 0.0184 ② 0.0236
セシウム 134	① 0.211 ② 0.249
セシウム 137 (バリウム 137m)	① 0.0779 ② 0.0927
ラドン 222	① $5.48 \cdot 10^{-5}$ ② $6.52 \cdot 10^{-5}$
ウラン 235	① 0.0244 ② 0.0341
プルトニウム 238	① $4.64 \cdot 10^{-4}$ ② 0.00265
プルトニウム 239	① $2.03 \cdot 10^{-4}$ ② 0.00112
プルトニウム 240	① $4.36 \cdot 10^{-4}$ ② 0.00250
プルトニウム 241	① $2.78 \cdot 10^{-7}$ ② $5.74 \cdot 10^{-7}$
アメリシウム 241	① 0.00576 ② 0.0151

表-3 代表的な放射性物質の実行線量率定数及び1cm 線量当量率定数[11]

2-3：放射線測定

放射線にはアルファ線、ベータ線、ガンマ線、中性子線、重陽子線等の様々な種類があり、種類やエネルギーに応じて検出器及び測定法もそれぞれ異なる。測定目的に応じて測定量も様々なものが存在し、例を挙げれば吸収線量、線量当量線、フルエンス、照射線量等がある。

また検出器については、放射線の種類にもよるが、大抵の場合は1種類の測定器で測定できる放射線は1種類であり、複数の放射線を測定する場合には、それぞれ放射線の種類に応じた測定器を用意する必要がある。また放射線の種類が同じであっても、測定核種のエネルギーによっては、そのエネルギー対応した測定器が必要になる。

従って、測定目的に応じて測定方法を考慮し、対象とする放射線の種類に応じて適切な検出器、測定器及び測定法を選択しなければならない。

測定の目的には、管理区域からの持ち出し物品の汚染検査、作業現場の実行線量率及び放射性物質による汚染有無等があり、放射性物質による汚染が無いことの確認はもとより、汚染があった場合には、どの放射性物質によるものなのか、汚染濃度の確認等、幅広く用途があることから、ある程度状況を考慮して、測定機器及び方法を選択する必要がある。またそれぞれの放射線に対応する測定機器について、検出器の原理は大きく分けて、気体及び固体であり、液体については限られている。

アルファ線はアルファ壊変したときに放出される粒子で、正の電荷をもつヘリウムの原子核が加速されたものである。このアルファ線の透過力は、非常に弱く、外部被ばくを考慮した場合、紙一枚で遮蔽することが出来る。このため、体外に存在するアルファ線による外部被ばく線量はほとんど無視できる。しかしアルファ線放出核種を経口摂取や呼吸によって体内に吸収した場合の、内部被ばくへの影響は大きい。

従って、アルファ線の測定というと、特定の研究目的で測定する場合を除き、空気、水、食物などの環境物質中アルファ線放出核種濃度の測定を意味することが多い。

従って、放射線施設内等で、常時人が立入る場所においては、表面密度限度が法律[9]で設定されており、人の立入り条件及び物品持ち出しにおける基準の一つとなっており、アルファ線を放出する放射性物質の表面汚染密度は $4\text{Bq}/\text{cm}^2$ と定められており、管理区域からの持ち出しには、上記の定められた表面汚染密度の1/10以下($0.4\text{Bq}/\text{cm}^2$)となっている。

また、アルファ線放出核種の測定については直接法（サーベイ法）と間接法（スミヤ法）があり、それぞれ機器等の持ち出しの場合には直説法が、シート等の面積が大きく拭き取りやすい場合には間接法が用いられることが多い。

測定器の例としては、固体検出器の硫化亜鉛（銀）シンチレータ検出器をもちいたサーベイメータ等が用いられる。

ベータ線はベータ壊変によって放出される放射線である。ベータ壊変には電子放出、陽電子放出、軌道電子捕獲の3通り壊変が存在しているが、電子放出のことを意味する

ことが多い。またベータ線は単一エネルギーではなく、0 から最大エネルギー値までの連続したスペクトルを持つ。最大エネルギーは核種に依存しており、それらの値をベータ線のエネルギーと定義されている。このベータ線の透過力は、アルファ線よりは強いが、ガンマ線に比べると弱い。しかしながら、ベータ線のエネルギーが高い場合には外部被ばく（とくに皮膚被ばく）を考慮する必要があり、内部被ばくについても同様に考慮が必要である。

ベータ線のエネルギーが低い場合、液体シンチレーション法を用いて測定することが多い。代表的なのがトリチウムの測定で、機器を用いて測定する前処理として液体シンチレーションを溶媒中に発光する溶質を溶かし、測定試料を溶媒に溶けるような形にするか、あらかじめ溶液にしておくなどの事前処理が必要である。

また場合によってはストロンチウム 90 のように定量のため、他の放射性核種を化学分離によって除去する必要があるため、測定値が得られるまでには数日を要する場合もある。

またベータ線による表面汚染の検査には、端窓式と呼ばれるもので、管の端に薄い窓と蓋を設け、蓋を外すとベータ線を測定できるようにした GM 管もある。大面積端窓型 GM 計数管を使用したサーベイメータ等が実際に使用されている。

ガンマ線は高エネルギーをもった光子であり、短波長の電磁波である。放射性核種のアルファ壊変やベータ壊変にともない、一度高励起状態となり基底状態になるときに、放出されるものである。ガンマ線はアルファ線同様に単一エネルギーをもち、それらは核種に固有である。また透過力はすべての放射線の中で一番高い。

また、大抵の放射性核種はガンマ線を放出するため、放射性核種の分析法としてガンマ線を測定する方法が、一般的な手法となっている。

ガンマ線用測定器には、電離箱、GM 計数管、ヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器、ゲルマニウム半導体検出器、比例計数管、熱蛍光線量計、ガラス線量計、イメージングプレート（IP）法など様々なものがある。

測定原理は測定器毎に異なり、直接測定した量を、必要に応じて線量率などに換算して表示することもある。目的とする測定量は線量率、積算線量など、様々なものがあるが、最も広く用いられているのは、線量率及び計数率の表示である。

まず蛍光作用を利用した検出器として、ヨウ化ナトリウム（タリウム添加）や臭化ラ

ンタン（セリウム添加）の用いたシンチレーション検出器が挙げられる。測定原理は、ガンマ線や中性子等の電離性放射線が入ると蛍光や燐光を発生する物質（シンチレータ）が存在しており、このシンチレータを電離性放射線が通過すると、物質との相互作用によって生じる光（シンチレーション）を利用して放射線を測定するものである。シンチレータは放射線を照射すると光を発するが、その光は微弱なものであるため、光電子増倍管などで増幅し、大きな電気パルスにすることで放射線を検出することが可能となる。シンチレータの放射線に対する発光性質を利用した放射線検出機器をシンチレーシ

ョン検出器と呼ぶ。

シンチレータに要求される特性は、荷電粒子の運動エネルギーを高効率で検出可能な光エネルギーに変換するだけでなく、入射した荷電粒子のエネルギーと変換した光エネルギーが正の相関を持ち、シンチレーション光の減衰時間が短いこと、発生した光を吸収や散乱しないこと等が必要となる。

このような特性を持ったシンチレータは大きく 3 つに分類でき、無機シンチレータと呼ばれ、無機結晶に少量の不純物を添加するもの。例を挙げると臭化ランタンにセリウムを添加したものがある。次に、有機シンチレータと呼ばれ、有機物を使用するもの。例を挙げるとベンゼン環をもつアントラセンなどがある。最後に、ヘリウム 3 等の気体を使用する気体シンチレータ（ヘリウム、アルゴン、キセノン、クリプトンなどの希ガス）が存在する。

また、シンチレータの種類に応じて検出器が効率よく測定できる放射線は異なっており、例を挙げると、PET（陽電子放出断層撮影）の検出器として研究されているケイ酸ガドリニウムなどの原子番号の大きい元素を含む検出器を使用した場合、ガンマ線を効率良く検出することができる。

また、中性子を検出するのであれば、中性子を効率的に散乱させる水素を豊富に含む蛍光物質を用いることで高い効率が得られる。中性子の検出に用いられる無機シンチレータとしては、リチウム 6 と中性子の(n, α)反応を利用したものがある。特にフッ化リチウムカルシウムアルミニウム (LiCAF) 単結晶は、密度が約 3 g/cm³ と小さいためガンマ線感度が低く、潮解性が無いので安定性に優れており、添加する物質ユーロピウムドーパ品は発光量が大きく、セリウムドーパ品は減衰時間が短い。この特徴から中性子シンチレータとして優れた材料であり、実用化に向けて研究がなされている。

シンチレータから光子が発生すると、入射する光子を電子に変換する膜である光電面を通過すると電子が発生する。発光波長と光電子増倍管の光電面の感度波長が一致するようにアルカリ金属が受光面に蒸着されている。バイアルカリ光電面は、アンチモンにカリウム、セシウムを反応させることにより可視域に感度を持ち、この光電面の分光感度特性は、ヨウ化ナトリウムの発光波長と良く一致していることから、シンチレーションカウンティングによる放射線計測などに広く応用されている。またマルチアルカリ光電面は、アンチモン (Sb) にナトリウム (Na)、カリウム (K)、セシウム (Cs) を反応させることにより、300~850nm まで広い波長域に感度を持ち、分光光度計やバイオ・遺伝子関連分野での蛍光計測など幅広い用途に利用されている。

これらをまとめた固体シンチレーション検出器の測定原理を図-2に示す。電離性放射線であるガンマ線がヨウ化ナトリウムや臭化ランタン結晶中に入射すると、両者の相互作用（光電効果、コンプトン散乱、電子対生成）によって2次電子が発生する。このことによって結晶物質を励起し、この励起から定常状態に戻る際、分子がシンチレーションと呼ばれる光を発生する。この光の強さは、失ったエネルギーに比例するため、ガンマ線のエネルギーに関する情報が得られ、ガンマ線エネルギースペクトル測定やガン

マ線量率測定に用いることが出来る。光電子増倍管を用いて、光電面で光を電子に変換し、ダイオードで加圧し電子を増倍して、光の強さに比例したパルスを得る。

このタイプの測定器として多くの原子力施設で用いられているものに、ヨウ化ナトリウム検出器があげられる、この測定器は現場の測定器だけでなく、環境ガンマ線モニタリングにも用いられている。主なシンチレータの特性を表-4に示す。

また臭化ランタン（セリウム添加）を用いたシンチレーション検出器は、エネルギー分解能が上記のヨウ化ナトリウム検出器の約2倍(半値幅が約1/2)(662keV)と優れており、温度安定性も高く、減衰時間がヨウ化ナトリウムの約1/10と短いため、高計数率においても十分な性能を持っており、比較的高濃度の放射性物質についても測定することが可能となっている。

種類	比重 (g/cm ³)	最大発光波 長(nm)	減衰定数 (ns)	光収率光子 /MeV	パルス波高 知
無機シンチレータ					
ヨウ化ナトリウム(タリウム)	3.67	415	230	38000	100
ヨウ化セシウム(タリウム)	4.51	540	680	65000	49
臭化ランタン(セレン)	5.29	380	26	-	-
ヨウ化リチウム(ユウロピウム)	4.08	470	1400	11000	23
硫化亜鉛(銀)	4.09	450	200	-	130
フッ化カルシウム(銀)	3.19	435	900	24000	50
有機シンチレータ					
アントラセン	1.25	447	30	100	-
スチルベン	1.16	410	4.5	50	-

表-4 代表的なシンチレータの特性

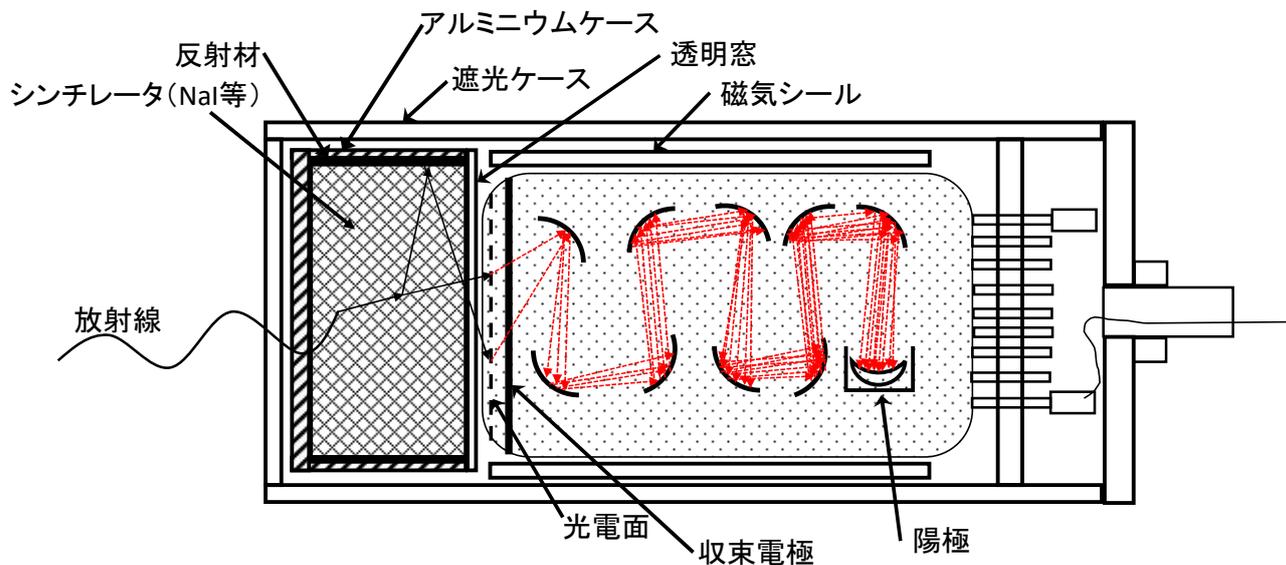


図-2 固体シンチレーション検出器の測定原理 概略図

また、液体シンチレーション検出法も、原理は蛍光作用である。PPO（ジフェニルオキサゾール）などの溶質を溶かし込んだ有機液体シンチレータと測定試料を混合し、混合した試料がベータ線との相互作用で放出した光を光電子増倍管で受けて増幅、電気信号に変えて測定している。構造を図-3に示す。

この液体状のシンチレータを用いた液体シンチレーション検出器は、通常の検出器では困難である低エネルギーのベータ線を効率的に測定することができ、特にトリチウムの検出に用いられている。

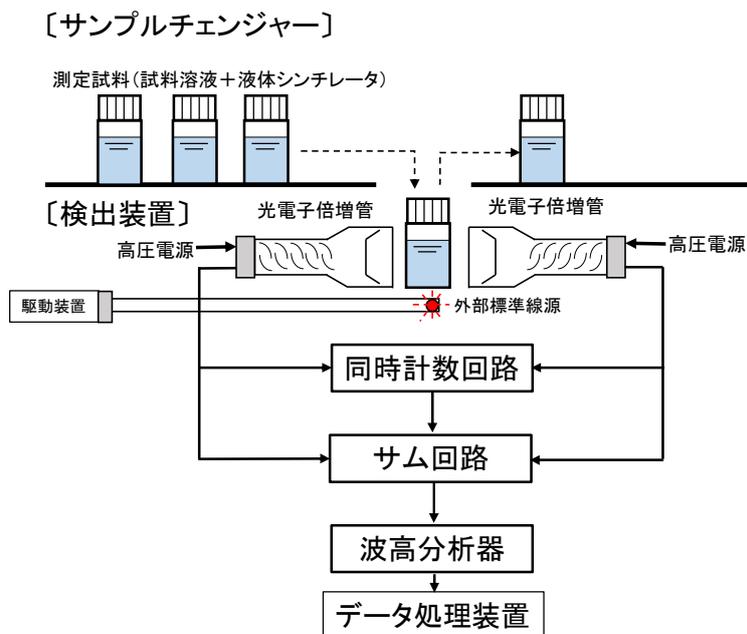


図-3 液体シンチレーション検出の概略図

次に気体を利用した検出器について説明する。これらは大きく分けて、電離箱、比例計数管及びGM計数管と3種類に分けられる。

まず電離箱の概念を図-4に示す。電離箱は2枚の平行に向かい合った電極に電圧が印加されており、荷電粒子が気体中を通過すると、気体原子を電離し、電子とイオンの対が多数発生する。負の電荷をもつ電子は正の電極に引き寄せられ、イオンは負の電極に引き寄せられ、回路に電流が流れる。この電流を測定することで放射線を検出することが出来る。電極にかける電圧は低すぎると、電子とイオンが再び結合してしまうため十分な電圧(数十ボルトから数百ボルト)がかかっている。特徴としてはガンマ線のエネルギーによる感度曲線が他の検出器と比較して差が小さい、すなわちエネルギー依存性が良いことである。

次に比例計数管について、電離箱同様に電圧をかけた領域(比例計数管内)に放射線が入った時に気体が電離し、発生した電子及びイオンが途中でガス分子と衝突しながら正及び負の電極に集合する。ここで電離箱より高い電圧を加えると、電子は衝突の歳に加速され、衝突にともなって、新たに電子-イオン対が生成される。このように、電子-イオン対の数が増幅され、パルス(電圧)の高さが大きくなる(ガス増幅)ことを利用している点が、電離箱検出器との違いである。なお安定したガス増幅が得られるように特殊な計数ガス(PRガス等)が使われることが多い。比例計数管から出力されたパルスは、増幅器(アンプ)で増幅された後、波高分析器(ディスクリミネータ)に入る。波高分析器は設定した高さを超えるパルスが入ったとき信号を出力するもので、雑音対策として用いられている。また電圧を上げていくと計数が始まり(千ボルト程度)、電圧をあげても計数率が変化しない電圧領域(プラトー)があり、この領域(比例領域)では比例計数管内に入ってくる荷電粒子数にほぼ等しくなる。従って比例計数管は比例領域の電圧で使用することとなる。

最後に、GM検出器は比例計数管とほぼ同様であり、管内には不活性ガスが封入されており、中心電極と管壁との間に高電圧が印加されている。放射線が通過すると放射線の電離作用により気体中にイオン対が発生し、このイオン対は管内の電場により、加速され、増幅されて中心電極に電気パルスを発生する。このパルスを計数することにより放射線の量を測定する。比例計数管との違いは計数ガスにガス増幅を押さえるためにクエンチングガスが封入されていること、また加えられている電圧が高いことである。

違いとしては、入射した放射線のエネルギーとは無関係に大きな信号が得られるので計数管より高感度な検出率をもつこと、パルスの持続時間が長く放電後の回復に時間を要するので高計数率の場合数え落としがある(窒息現象)ため、分解時間は一般的に 10^{-4} 秒程度であることである。GM計数管は可搬型でなおかつ測定時間も短時間であるという利点があり、持ち出し検査などにおいてよく利用されるが、放射線エネルギーに関する情報が得られないことなどの理由で、すべての放射線測定に用いることが出来るわけではない。図-5にGM管を用いた測定器の写真を示す。

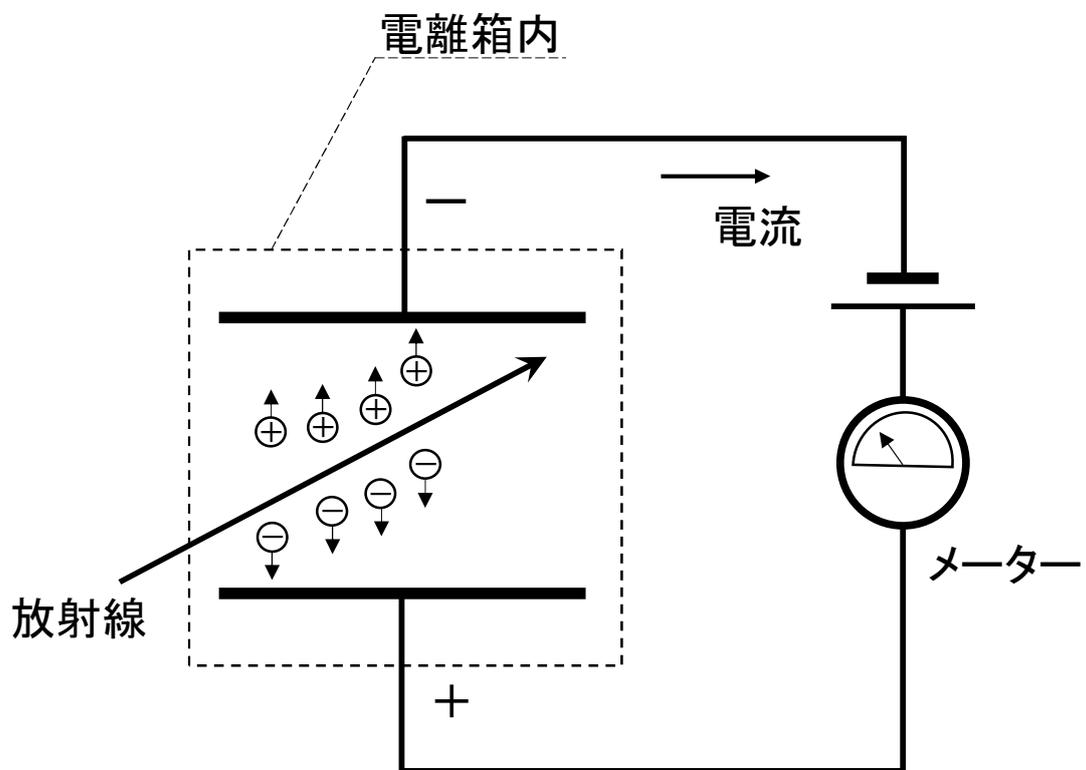


図-4 電離箱の概略図



図-5 GM管を用いた測定器

写真作用を利用した測定法として、はイメージングプレート (IP) を用いたものがある。原理としては放射線を照射すると物質によっては、照射後に赤外線などを当てると「光輝尽発光」とよばれる現象により可視光を放出する。この性質を利用して、放射性物質を含む試料を密着させた後に、ヘリウム-ネオンレーザー等で照射し読み取ることで、試料に放射性物質が含まれるかの要否や放射線強度等を求めることが出来る。

放射線を照射すると物質では、励起および電離が生じ、物理的あるいは化学的性質に変化が起こる。その後、緩和現象が生じるが、これは物質により異なり、元の状態に戻る、あるいは準安定になる、永続的に残存するものがある。

緩和現象によってエネルギーの放出が発生し、元の状態に戻る場合には、大部分のエネルギーは分子の振動や回転などの熱運動に消費される。一部の光のエネルギーよりエネルギーバンドギャップの大きい物質においては、そのエネルギーの一部が可視光の形で放出されることがある。

一方で、状態が準安定あるいは永続的に存在する場合においては、熱的あるいは光学的に刺激を与えると、光放出を伴って準安定状態が緩和され、もとの状態に回復することがある。この熱的な刺激 (加熱) による発光現象は、熱刺激ルミネッセンスと呼ばれ、すでに個人被曝線量計等に広く応用されている。

また、ある特定の波長の光を用いて刺激を行っても発光が観測される場合がある。この現象は、光刺激発光又は光輝尽発光と呼ばれており、放出される発光の強度があらかじめ照射した放射線量に比例することから、この現象も放射線量計測への応用されている。

ここで、イメージングプレート用輝尽性蛍光体媒体として広く実用されている、ユウロピウムを添加したバリウムフルオロハライド (BaFBr:Eu) 蛍光体における光輝尽発光を例として取り上げる。

バリウムフルオロハライドはイオン結晶である。この結晶に電離放射線であるガンマ線等が入射すると、バリウムや臭素イオンが光子を吸収し、内殻正孔と伝導電子の対が生成される。その際、内殻正孔のオーグジュ遷移により数個の伝導帯電子と価電子帯正孔になる。

このとき作られた伝導帯電子は大きな運動エネルギーをもっており、価電子帯から電子を次々に励起して緩和するので、エネルギーを持った光子が入射すると電子-正孔対が生成される。伝導帯の電子は、蛍光体中を移動して不純物、格子欠陥 (陰イオン空孔等) 等にトラップされる。不純物や格子欠陥に捕らえられた電子や正孔はその場所に捕らえられた状態で安定に存在する。

上記の照射した光子エネルギーにより生成された電子や正孔のうち、そのままでは再結合せずにトラップされた状態を読みだすことによって、蛍光体に蓄積した放射線の情報を取得することが出来る。

発光のメカニズムの有力な説として、照射した光子により生成された電子は臭素イオンやフッ素イオン空格子に捕らえられ、カラーセンターを形成する。また正孔は微量に蛍光体結晶にドーピングされている2価のユウロピウムに捕らえられ、3価のユウロピウムを形成す

る。

次に情報を読みだすためにレーザーなどによる光を露光することによって、電子が放出され3価のユウロピウムに取り込まれて再び2価のユウロピウムとなる。その際に放射線強度に応じた輝尽性発光が放出されるので、光電子倍增管を用いた読み取り機で検出を行うものである。

これらのイメージングプレートを用いた二次元の放射線イメージセンサシステムが開発され、医療診断、オートルADIOグラフィおよびX線結晶構造解析等への応用されており、特に、平面上に分布する放射性物質を検出・定量および画像化するための方法として広く利用されるようになっている。

また、中性子を検出することが出来る中性子イメージングプレートも存在しており、これは上記のユウロピウムを添加したバリウムフルオロハライドに中性子を検出することが出来る中性子コンバーターと呼ばれる核種（リチウム6、ガドリニウム等）を均一に混入させて、照射した中性子の位置や強度等を測定することが可能であり[12]、中性子検出器として応用利用されており、中性子ラジオグラフィ等において使用されている。

なお、ガンマ線等の光子を検出するためにイメージングプレートを使用する場合には、自然放射線が存在するため、外部の放射線を遮へいする必要があり、厚い鉛箱の中でイメージングプレートと試料を数日程度、照射する必要がある。図-6にイメージングプレートの外観及び図-7にイメージングプレート読み取り機の外観を示す。



図-6 イメージングプレートの外観



図-7 イメージングプレート読み取り機の外観

最後に固体の電離を利用した代表として、半導体検出器であるゲルマニウム検出器について示す。放射性核種毎のガンマ線エネルギー分析及び線量率等を測定するために広く用いられ、いくつかの優れた性能から、高価で可搬が難しいにもかかわらず、放射線測定においては重要な計測器の一つである。

半導体検出器は、電離物質として固体のゲルマニウムまたはシリコンを用いた一種のダイオードでもちいて、これに整流方向と逆極性の直流電圧を印加して電離を利用した測定法と同様の原理により、放射線情報を得るものである。例として、図-8にゲルマニウム半導体検出器の外観を示す。

図-9は、P-N接合型といわれる検出器の動作原理を示したものである。この検出器はP型とN型半導体からなるもので、この状態に逆方向の電圧を加えると、これらの自由電荷は両電極の方に引き寄せられ中間には自由電荷のない空乏層が生じる。この空乏層に放射線が入射するとその飛跡に沿って多数の電子と正孔が生じ、これが反対符号の電極に向かって移動しパルス電流が流れる。この信号により入射した放射線のエネルギー及びカウント数についての情報を得ることができる。

ゲルマニウム検出器は、同軸型、井戸型などの検出器が主に用いられ、ガンマ線のエネルギー測定において放射性核種の同定と定量のほか核種別の情報を得ることができるなど優れた性能をもっており、高いエネルギー分解能をもつことから、公式データとして用いられることが多い。また、装置の運用に関しては、測定時に液体窒素で冷却（-200℃近く）しておく必要があるため常時メンテナンスが必要であるが、近年では、電気冷却式クライオスタットを用いたゲルマニウム半導体検出器も開発され、液体窒素を使わないため、保守がさらに簡単になってきている。

また、実際に測定をする場合には、測定したい核種を化学分離する、用いる容器は同型のを必ず使用し、校正に用いる模擬試料も形状を等しくすることなど、いくつかの条件があるので、留意する必要がある。



図-8 ゲルマニウム半導体検出器の外観

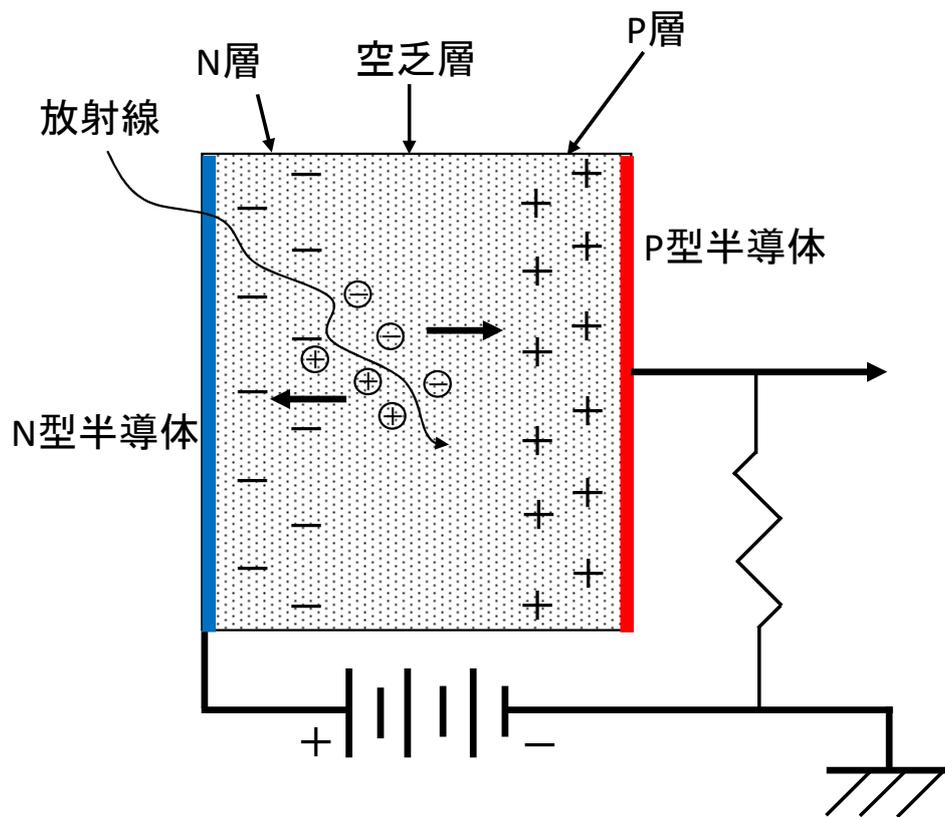


図-9 半導体検出器の動作原理

2-4：原子力発電所における放射性物質

「原子炉」とは、【核燃料物質を燃料として使用する装置をいう。】と定められており[1]、ここでいう「核燃料物質」についても同様に【ウラン、トリウム等原子核分裂の過程において高エネルギーを放出する物質であつて、政令で定めるものをいう。】と定められている[5]。

一般に原子炉は、核分裂反応を起こしやすい核燃料物質（主にウラン 235 及びプルトニウム 239）を含んだ燃料体を主として構成する炉心（被覆材等の炉心構造材を含む）と、炉心内部及び炉心周辺に存在する冷却材、減速材及び反射体で構成されている。

ここで、減速材は臨界（核分裂連鎖反応を維持できる状態）になるように核分裂で生じた中性子エネルギーを下げる（減速）させるために用いられるもので、主に軽水が用いられる。また、軽水は冷却材としても用いられ、大抵の実用発電用原子炉は軽水を冷却材及び減速材として用いている。併せて、反射材は炉心から漏れやすいエネルギーの高い中性子を減速させてから炉心に反射させることを目的としており、こちらも実用発電用原子炉の場合は、反射材を別途設置することは少ない。

現在、日本に設置されている実用発電用原子炉には加圧水型炉（PWR）と沸騰水型炉（BWR）の2種類が存在しており、福島第一原子力発電所の実用発電用原子炉は沸騰水型炉である。

日本に存在するどちらの実用発電用原子炉であっても、火力発電と同様に水を沸騰させて蒸気を発生させ、発電機につながるタービンを回して発電を行っている。

火力発電所との大きな違いは、火力発電所では蒸気をつくるために燃料となる石油、石炭及び天然ガスを燃焼させるが、原子力発電所では実用発電用原子炉内にあるウランの核分裂によって発生した熱を利用し、蒸気を発生させる点である。

従って実用発電用原子炉が運転中している時には、絶えず発生した中性子によって核分裂が起きており、中性子によって核燃料物質が核分裂を起こし、熱及び放射線を発生した後に生成されるのが、核分裂生成物（FP と呼ばれる）である。

核分裂が起こると、原子核は2個（場合によっては2個以上）の核分裂片に分かれるが、核分裂片が均等の大きさ（原子量）になる可能性は低く、大抵の場合はどちらかの核分裂片の質量数が大きくなる。図-10に核分裂生成物の収率曲線を示す。

この図より、核分裂生成物は質量数 90～100 付近と質量数 135 付近にそれぞれピークがあり、質量数 118 付近では生成量が低下していることがわかる。またこれらの核分裂生成物はほとんどがベータ放射能を持っていることから、強いベータ線とガンマ線を放出する。

これが使用済燃料や炉心に残る炉心溶融物の取扱を、著しく難しくしている原因であり、福島第一原子力発電所事故による放射能汚染の原因である。

表-5に使用済燃料に含まれる核分裂生成物の核種及び半減期の一例を示す。

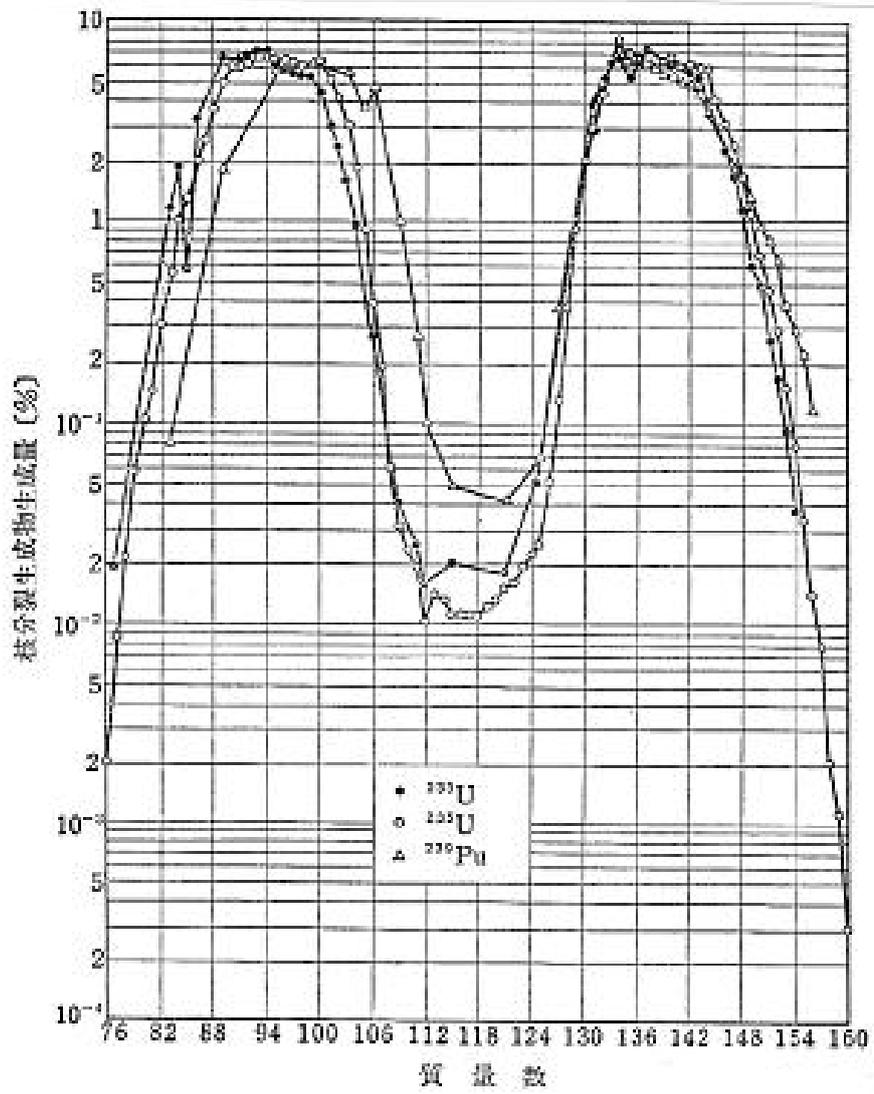


図-10 核分裂生成物の収率曲線[13]

核分裂生成物 (FP)	比放射能 (Bq/MTU)	半減期
トリチウム	1.6×10^{13}	12.3 年
炭素 14	3.7×10^6	5730 年
クリプトン 85	3.2×10^{14}	10.7 年
ストロンチウム 89	3.1×10^{15}	50.5 日
ストロンチウム 90	2.5×10^{15}	29.1 年
イットリウム 90	2.5×10^{15}	64.0 時間
イットリウム 91	5.5×10^{15}	58.5 時間
ジルコニウム 95	8.6×10^{15}	64.0 日
ニオブ 95	1.7×10^{16}	35.0 日
テクネチウム 99	4.3×10^{11}	2.13×10^5 年
ルテニウム 103	2.1×10^{15}	39.2 日
ルテニウム 106	1.0×10^{16}	374 日
ロジウム 106	1.0×10^{16}	29.9 秒
銀 110m	4.6×10^{13}	250 日
ヨウ素 129	9.3×10^8	1.57×10^7 年
ヨウ素 131	6.4×10^9	8.04 日
キセノン 133	4.0×10^6	5.25 日
セシウム 134	3.2×10^{15}	2.065 年
セシウム 137	3.2×10^{15}	30.167 年
プラセオジウム 144	2.9×10^{16}	17.3 分
プロメチウム 147	4.9×10^{15}	2.6 年
ユウロピウム 152	2.2×10^{11}	13.3 年
ウラン 235	1.2×10^9	7.04×10^8 年
ウラン 238	1.2×10^{10}	4.47×10^9 年
プルトニウム 238	4.6×10^{13}	87.7 年
プルトニウム 239	1.1×10^{13}	2.41×10^4 年
プルトニウム 240	1.5×10^{13}	6570 年
プルトニウム 241	3.1×10^{15}	14.4 年
プルトニウム 242	3.0×10^{10}	1.57×10^7 年

表-5 使用済燃料に含まれる放射性核種及び半減期の一例[14-15]

2-5：福島第一原子力発電所事故由来の放射性物質

運転中の実用発電用原子炉では、発電に伴い核分裂が発生するので、多量かつ多種の核分裂生成物が生成され、そのほとんどは放射性物質である。政府の事故調査報告書[16-18]によれば運転中であった1、2、3号機の総放射能は、定期検査中の5、6号機と比較して大きく、それぞれ 2.9×10^{20} Bq、 5.0×10^{20} Bq、 5.0×10^{20} Bqであった。使用済燃料プール内の総放射能は、4号機が他号機と比較して大きく、 2.1×10^{19} Bqであった。また共用プール内には6375体もの燃料集合体が保管されており、総放射能も 1.4×10^{19} Bqと4号機の使用済燃料プールに次ぐ量であった。

福島第一原子力発電所事故は、東日本大震災で発生した地震によって誘発された津波が、福島第一原子力発電所の施設内にまで浸水したことによって、当該原子力発電所における原子炉施設（1号機～5号機）の全交流電源が喪失し、それに伴い原子炉停止直後の燃料中に含まれる核分裂生成物による崩壊熱を除去（冷却）することが出来なくなり、炉心損傷（炉心溶融）が発生し、被覆材であるジルコニウム合金と冷却材（軽水）との反応によって発生した水素による水素爆発及び高温かつ圧力上昇による原子炉圧力容器及び格納容器の破損により、環境に放射性物質が放出されたものである。

放出された放射性物質は多種多様であるものの、対策が必要となる放射性物質は、核種、半減期及び拡散範囲等によって限られたものとなる。事故直後にはヨウ素 131 が、中長期的にはセシウム 137 及びストロンチウム 90 などが主な核種となる。

環境に放出されたいくつかの放射性物質については、国の機関が調査を行っており、例として挙げると、原子力安全・保安院が行った調査では、福島第一原子力発電所事故に起因して、1号機から3号機によって大気中に放出された放射性物質の総量を推計した結果を平成23年6月に公表[17]しており、ヨウ素 131 が約 160PBq、セシウム 137 が約 15PBqであった。また、原子力安全委員会も、同事故に起因して、大気中に放出された放射性物質の総量を、別の手法により推計し、4月に結果を公表[18]しており、ヨウ素 131 が約 130PBq、セシウム 137 が約 11PBqであった。これは重量で表すと、それぞれヨウ素 131 が 29 g～35 g、セシウム 137 が 3.5kg～4.7kg 放出されたこととなる。

各地域におけるヨウ素 131 及びセシウム 137 の拡散量については日本原子力研究開発機構が福島県、宮城県、茨城県のほぼ全域で $10000\text{Bq}/\text{m}^2$ の沈着量があったと予測している[19]。実際に線量量率が上昇したのは平成23年3月15日、16日及び21日の三つのピークが存在する[20]。また、発電所敷地内においては放射線汚染が特に顕著であり、ヨウ素セシウムの他にテルルが観測されており、平成23年3月においては $200\mu\text{Sv}/\text{h}$ 放射線量率が記録されている[21]。

福島第一原子力発電所事故によって、多種多様の放射性物質が放出されたが、除染対象となる核種が限られている理由としては、拡散量及び拡散範囲が小さいというものが大半である。除染の対象となる放射性物質は、原子炉内での生成量と事故による拡散量が多く、常温では固体であること。更に放射線エネルギーが高く、半減期が比較的長い物質が条件とな

っており、セシウム 134 及びセシウム 137 が該当する。

このうち、セシウム-134 は半減期が約 2 年となっており 10 年経過すると放射エネルギーが $(1/2)^5 \approx 0.03$ となり 3%程度となるため、減衰を待つことも考えられるがセシウム 137 については半減期が約 30 年と比較的長く、放射エネルギーを 10%以下にするためには 100 年近く経過しなければならない。

2-6 : 環境中に放出された放射性セシウム

東京電力福島第一原子力発電所の事故により、環境中に放出されたセシウム 137 をはじめとした放射性物質の分布について把握するために、環境中の空間線量率及び土壌中の放射性物質の量について、大学及び研究機関他による調査が行われた。

測定範囲としては、福島第一原子力発電所から 100km 程度の範囲で、土壌の放射能汚染の調査を空間線量率について、航空機モニタリング及び地表から 1m の高さでの空間線量率 ($\mu\text{Sv/h}$)、地表から 5cm の深さまでの土壌中の放射性物質の量 (Bq/m^3) 等についてのデータ収集等の調査が行われた[22]。

放射性物質の分布状況における調査結果の一つである図-11及び図-12[23]は、それぞれ航空機モニタリング空間線量率を色分けしたものと及び航空機モニタリングと陸上におけるガンマ線エネルギー分析からである。福島第一原子力発電所を中心にして高線量の区域が広がっているが、特に北西に高線量区域が広がっており、7年以上経過した 2018 年 11 月においても一部で 9.5 毎時マイクロシーベルト以上となっており、これらの大半は山及び森林となっている。

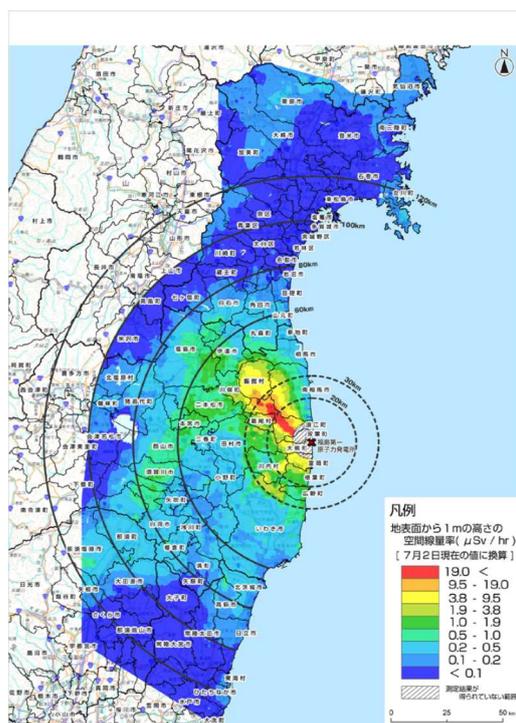


図-11 空間線量率

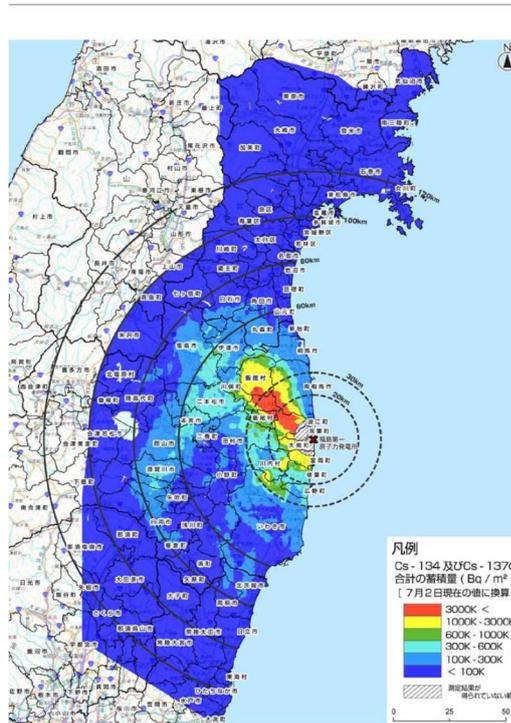


図-12 放射性物質の分布

放射性物質の飛散については、3月15日～16日にかけてのピークと、21日の二つのピークがあるが[20]、特に21日のピークが大きく、茨城県においてもヨウ素 131 が $90\text{GBq}/\text{km}^2$ セシウム 137 が $13\text{GBq}/\text{km}^2$ と大量の放射性物質の降下が観測されている[24]。

また、3月15日～16日にかけてのピークについては[25]、降雨による沈着放射性核種によるものであるとされており、21日のピークとは性質が異なると言われている。

また、計算コードを用いて、環境中に放出されたセシウム 137 の分布についてのシミュレーションの結果では、特に福島県で 100GBq/km² 程度の放射能が降下したと言う結果が、報告されている[26]。

上記より、空間線量率と土壌中の放射性物質には相関性がある。従って、土壌中の放射性物質の量を減らすことが除染ということになる。現時点では空間線量率が高い、森林部における除染が目下の課題となっている。

併せて、土壌におけるガンマ線の減衰効果については、調査の結果、半価層（放射線強度が 1/2 と減衰する）は深さ 12cm 必要であり、現在の状況では土壌による減衰は期待できない。また空気中の減衰効果に関しては、ガンマ線の遮へいが物質密度に依存することから、減衰することはほとんどない。

また、土壌中の放射性物質に関しては、深さ 5 cm の部分に 90% 以上含まれており、放射性セシウムは比較的浅いところにとどまっており、土壌により深く浸透する傾向はない[27]。

現在の帰還困難区域の大半は森林林地域であり、その大部分は山地に分布する。森林部は放射性セシウムの大部分が沈着していると考えられており、流出が少ないことが分かっている。これらは時間の経過とともに、雨や台風などに起因する水流や風などによって河川水系等を移動し、最終的には、生活圏や海に到達し、生活や健康に影響を及ぼす可能性があることが指摘されている。

それらの移行を調査するため、森林内における移行調査が国の機関等によって行われた。広葉樹林、及びスギ若齢林（樹齢 18 年）、並びにスギ壮齢林（樹齢 40 年～50 年）における、生葉、及び枯葉、並びに落葉を採取した上で、放射性セシウムの濃度を測定したものである[28]。

調査の結果、それら山地森林に沈着した放射性セシウムの一部は、降雨を起点として発生する土壌流出や表面流に伴って、土壌粒子に吸着した粒子態あるいは表面流水に溶け込んだ溶存態として森林域から流出すると考えられている。

放射性セシウムの主な移動経路は、放射性セシウムが森林に生育する樹木の頂部付近（樹冠）に沈着し、雨や樹幹流、落ち葉といったプロセスを通じて林床へと到達し、林床では降雨を起点とする土壌流出や表面流の発生により、森林生態系の外部（林外）へ移動していくものと考えられている。

一方、森林内に留まった放射性セシウムは、樹木や草本、キノコ等の生活活動とともに、落葉落枝の腐植を伴う土壌生成過程などにより森林生態系内を移動し、時間とともに森林内における分布が変化すると考えられている。林床に存在する放射性セシウムは、落葉落枝を含む土壌有機物層に移動する。この状態は、放射性セシウムが可溶化した場合、地下水を汚染する可能性があり、併せて降雨や融雪による土砂流出時に、土粒子に吸着した高濃度の放射性セシウムも一緒に流出し、その結果、下流水域や河川氾濫原への集積（再汚染）が生じる可能性がある。

環境中に放出された放射性物質による汚染（主に放射性セシウム）については、汚染状況が土壌、植物及び建築物等といった対象によって異なること。また放射性物質がどのように堆積・付着しているかによって、洗い流す及び拭き取る等の方法を選択している。また、汚染濃度が低い土壌の場合は、放射性物質の付着した表面の土壌を地中に埋める天地返しや、深い部分の土壌と入れ替える反転耕などの方法も採用されている。これらは、放射性物質を除去するという意味での除染ではないが、空間放射線量率を下げ、除去物の発生量を低減化する観点で採用されている方法である。

福島第一原子力発電所事故によって大気中に放出された放射性セシウムは、雨水等とともに地表に降下し、建造物や側溝等といった場所に集積していると考えられている。また粘土鉱物を含むような土に付着し易いと言われており、土壌の表層近くに付着していると考えられている。

現時点では、帰還困難区域以外の面的除染（基準値以上の放射性物質が検出された一面）がすでに完了しており、残りは山地森林及び空間線量率が高い箇所のみである。

第2章 参考文献

1. 原子力基本法（昭和三十年法律第百八十六号）
2. 核燃料物質、核原料物質、原子炉及び放射線の定義に関する政令（昭和三十二年政令第三百二十五号）
3. 平成二十三年三月十一日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う原子力発電所の事故により放出された放射性物質による環境の汚染への対処に関する特別措置法施行規則（平成二十三年環境省令第三十三号）
4. Terada H, Katata G, Chino M, Nagai H. 2012. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *J Environ Radioact.* 2012 Oct;112:141-54. doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.05.023.
5. A. Stohl, P. Seibert, G. Wotawa, D. Arnold, J. F. Burkhart, S. Eckhardt, C. Tapia, A. Vargas, and T. J. Asunari. 2012. Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. *Atmos. Chem. Phys.*, 12, 2313-2343, doi:10.5194/acp-12-2313-2012
6. 東京電力福島原子力発電所における事故調査・検証委員会 中間報告
II 福島原子力発電所における事故の概要
7. 「放射線概論」, 『管理技術』, 柴田徳思 編著, pp. 457.
8. 「ICRP 2007 年勧告の組織加重係数等に基づく内部被ばく線量係数、濃度限度等の試算」, JAEA-Data/Code 2010-020, 真辺 健太郎、遠藤 章
9. 放射線を放出する同位元素の数量等を定める件（昭和63年5月18日科学技術庁告示第15号8条別表第3）第八条
10. 日本アイソトープ協会, 2012: 国際放射線防護委員会の2007年勧告, 丸善出版
11. 日本アイソトープ協会, 2012: アイソトープ手帳, 丸善出版
12. N.Niimura et al. An imaging plate neutron detector, *Nucl. Instrum & Methods* A349, 521 (1994)
13. 「軽水炉燃料のふるまい」, 軽水炉燃料のふるまい編集委員会編, p21
14. 動燃技報 No. 100, 軽水炉使用済燃料の再処理, p196
15. 軽水炉の使用済燃料、ATOMICA
(URL : http://www.rist.or.jp/atomica/data/dat_detail.php?Title_No=04-07-01-02)
16. 東京電力福島原子力発電所事故調査委員会 報告書 平成24年7月5日.
<http://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/3539508/naiic.go.jp/blog/reports/main-report/reserved/2nd-1#toc-2-1-3>
17. 原子力安全・保安院. 東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に係る1号機, 2

- 号機及び3号機の炉心の状態に関する評価について. 平成23年6月6日.
http://dl.ndl.go.jp/view/download/digidepo_6017222_po_20110606-1nisa.pdf?contentNo=1&alternativeNo=
18. 原子力安全委員会. 福島第一原子力発電所から大気中への放射性核種 (ヨウ素 131, セシウム 137) の放出総量の推定的試算値について. 平成23年4月12日.
<https://www.mhlw.go.jp/stf/shingi/2r9852000001eap9-att/2r9852000001eawy.pdf>
 19. 福島第一原子力発電所事故に伴う Cs137 の大気降下状況の試算. 日本原子力研究開発機構. <https://nsec.jaea.go.jp/fukushima/data/20110906.pdf>
 20. 原子力機構各拠点のモニタリングポスト (代表点) における線量率の推移. 日本原子力研究開発機構. <http://www.jaea.go.jp/jishin/monitor.pdf>
 21. 原子力安全・保安院. 地震被害情報 (第50報) 及び現地モニタリング情報. 発電所敷地内における空气中放射性物質の核種分析結果について.
<http://warp.da.ndl.go.jp/info:ndljp/pid/8679751/www.meti.go.jp/press/20110325005/20110325005-2.pdf>
 22. Ohkura, T., Oishi, T., Taki, M., Shibamura, Y., Kikuchi, M., Akino, H., Kikuta, Y., Kawasaki, M., Saegusa, J., Tsutsumi, M., Ogose, H., Tamura, S., Sawahata, T., 2012. Emergency Monitoring of Environmental Radiation and Atmospheric Radio-nuclides at Nuclear Science Research Institute, JAEA Following the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. JAEA-Data/Code 2012-010.
 23. 文部科学省. 文部科学省及び宮城県による航空機モニタリングの測定結果について. 平成23年7月20日.
https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/5000/4892/24/1305819_0720.pdf
 24. 原子力規制庁. 定時降下物のモニタリング. 平成23年3月21日
https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/3000/2294/24/1303977_032119_1.pdf
 25. 東京電力福島第一原子力発電所事故によるプラント北西地域の線量上昇プロセスを解析. 日本原子力研究開発機構.
<http://www.jaea.go.jp/02/press2011/p11061302/index.html>
 26. Yasunari, T. J., Stohl, A., Hayano, R. S., Burkhart, J. F., Eckhardt, S., Yasunari, T., 2011. Cesium-137 deposition and contamination of Japanese soils due to the Fukushima nuclear accident. Proc. Natl. Acad. Sci. U.S.A. 108, 19530-19534.
 27. Kato, H., et al., Depth distribution of ¹³⁷Cs, ¹³⁴Cs, and ¹³¹I in soil profile after Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident, Journal of Environmental Radioactivity (2011), doi:10.1016/j.jenvrad.2011.10.003

28. 文部科学省による放射性物質の分布状況等に関する調査研究（森林内における放射性物質の移行調査）の結果について. 平成 23 年 9 月.

https://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/6000/5046/24/5600_091412.pdf

3:実験

3-1：試料の準備と放射能測定

3-1-1：試料の採取

顆粒状微粒子を含む試料として、落葉及び落枝からなるリターと呼ばれる試料（以下「生リター」と呼ぶ。）を、福島第一原子力発電所から約 50km 離れた福島県二本松市の山林にて、2013 年 5 月に収集した。試料の写真を図-1 に、試料採集の場所と福島第一原子力発電所との位置関係を記したものを図-2 に示す。リターを実験試料に決めた理由は、溶解実験をおこなうにあたって、先行研究から福島第一原子力発電所事故によって拡散した顆粒状微粒子は、水素爆発等の理由で大気中に放出されたのち、大気によって拡散され、降下物質として森林、土壌、河川や居住地等に降り注いだと報告[1-2]されていることから、顆粒状微粒子は土壌のみならず、リターにも付着していることが挙げられる。

また、土壌などに降り注いだ放射性物質については、土壌が様々な物質を含有していること（酸素、マンガン、窒素、リン、カリウム、アルミニウム等）や、その成分も地域等の環境によって大きく変わること、また場所によっては酸性度が異なること等、条件が様々であることから、土壌は構造、組成共に複雑あり、かつ顆粒状微粒子と同じ構成元素が存在する可能性がある。

一方、リターは植物繊維と水分が主であり、リターは顆粒状微粒子を構成する元素をほとんど含んでいない。併せて、若葉と異なり放射性物質を吸着することはなく、その他の相互作用はほとんどなく一定条件の試料を得ることができることが挙げられる。



図-1 リターの写真



図-2 試料採集の場所と福島第一原子力発電所との位置関係

3-1-2：炭化リターの作成

溶解実験において、顆粒状微粒子の大きさを変えた実験を行うためには乾式機械粉碎が必要であり、リターを炭化処理することで植物の粘弾性物質（セルロース等）が炭素に変わるため、乾式機械粉碎が容易になる。また、リターを1週間以上水に浸すと、細菌が増殖して溶解実験が難しくなり、湿度が高い場所で保管した場合も同様に細菌が増殖する可能性がある。これらの事を考慮し、試料として安定した形で保管することが出来ることと、リターの植物部分の組成がほぼ炭素となり、様々な解析が容易になることから、炭化処理を行った試料（以下、「炭化リター」と呼ぶ。）を作成した。

リターを炭化する手順は、最初に顆粒状微粒子が付着していると考えられるリターの重量測定を行い、重量測定を行ったリターの放射エネルギー測定とIP測定を行った。

放射エネルギー測定で使用した簡易ベクレル計(Techno AP 社製、TS150B (シンチレータLaBr₃))はセシウム134、セシウム137、ヨウ素131及びカリウム40に特化したものである。簡易ベクレル計の写真と測定結果の例を、それぞれ図-3及び図-4に示す。

放射エネルギー測定後、リターに付着している顆粒状微粒子において、炭化工程前後で変化が無いことを確認するためにIP測定を行った。IP測定は重量測定及び放射エネルギー測定を行ったリターを、アルミニウム箔(厚さ12 μ m)で被覆したIP(BAS-SR 2040, 幅200mm、長さ400mm、厚さ50mm)の上に乗せ、鉛ブロックで作成した放射線遮蔽箱に格納し一定時間(12時間)以上照射した。遮蔽箱にて一定時間照射したIPを専用の読取機(GEヘルスケアライフサイエンス社製、Typhoon FLA 9500)にて読取りを行った。試料に乗せたIPの写真、放射線遮蔽箱の写真、読取機の写真及び炭化前のリターのIP結果を、それぞれ図-5、図-6、図-7及び図-8に示す。

重量測定、放射エネルギー測定及びIP測定を行ったリター(20g程度)を容量200mlのバイレックス(耐熱ガラスの一種)製のビーカーに入れる。リターを入れたビーカーにアルミホイルか耐熱ガラス製蓋を用いて蓋をして、電気炉を用いて加熱し、リターを蒸し焼き状態にして炭化させる。温度条件は放射性セシウムを含む顆粒状微粒子に変化が起きないように、最大温度は290 $^{\circ}$ Cに決定した。1時間かけて290 $^{\circ}$ Cまで昇温させ、30分程温度を維持する。その後、1.5時間程かけて室温まで自然冷却させた。電気炉に容器を入れた写真を図-9に示す。

電気炉による加熱及び冷却が完了した後、放射エネルギー測定とIP測定を再度行い、炭化処理によって性質が変わっていないことを確認し、重量測定を行った。炭化リターの作成手順の概要を図-10に示す。



図-3 簡易ベクレル計 TechnoAP 社製 TS150B

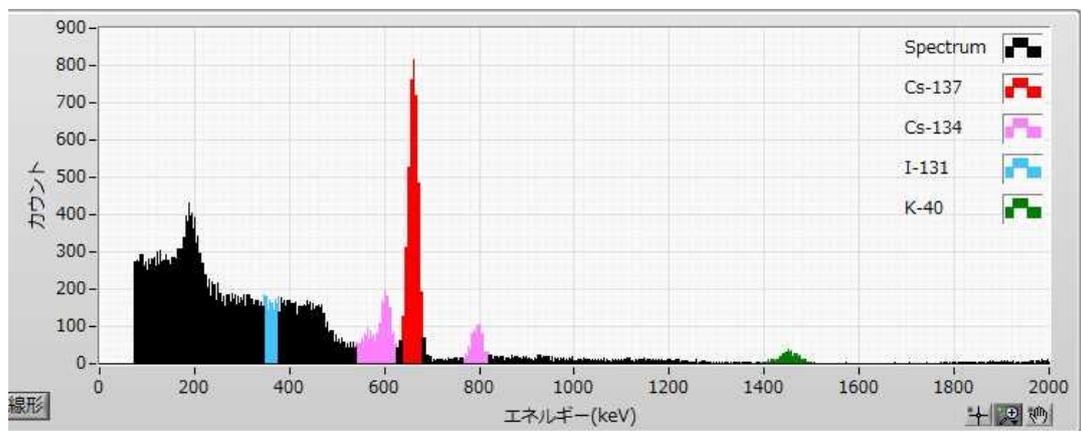


図-4 放射エネルギー測定の結果



図-5 試料を乗せたIP



図-6 放射線遮蔽箱



図-7 IP 読取機 GE ヘルスケアライフサイエンス社製、Typhoon FLA 9500

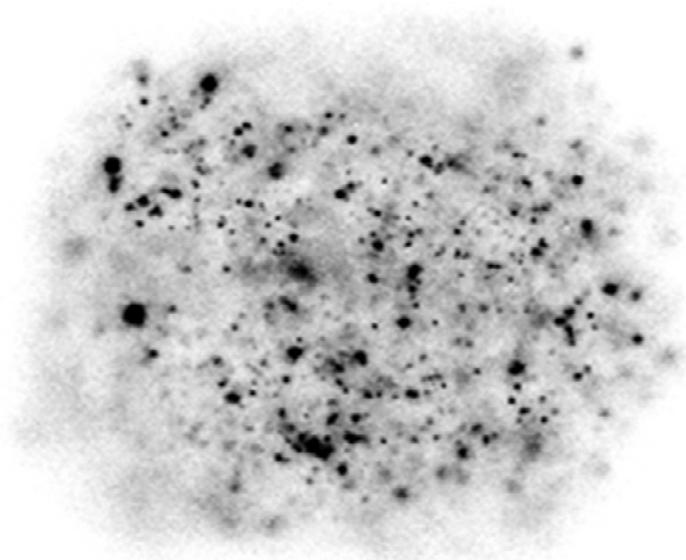


図-8 リターの IP 結果



図ー 9 炭化工程に用いた電気炉

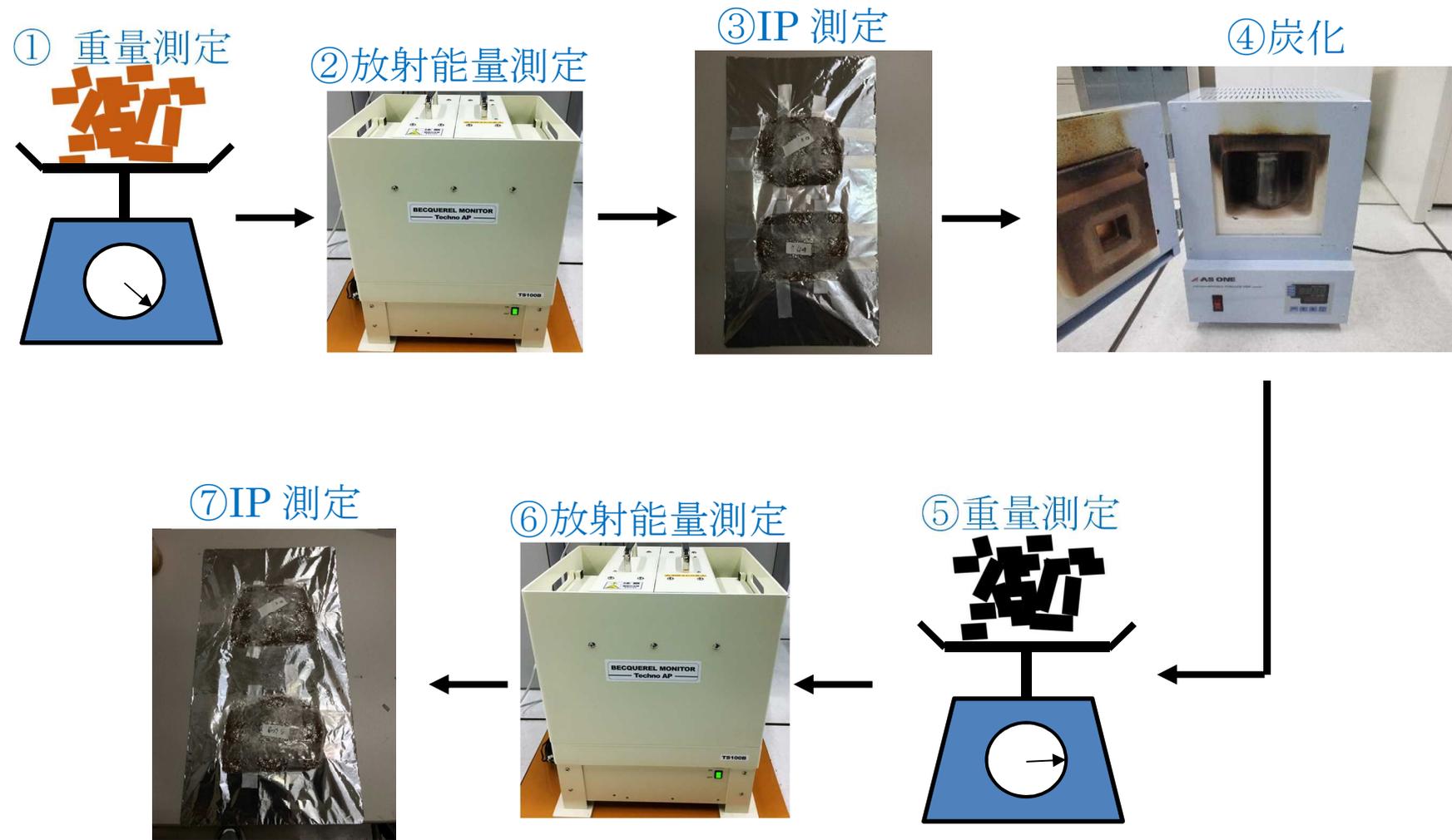


図-10 炭化リターの作成手順の概要

炭化処理を行った結果、体積については約 30%減少し、重量については 20 g から約 14 g に減少していた。これは主に竹の落葉落枝からなる試料が炭化したことによって中の水分が減少するとともに、リターに含まれる繊維を構成しているセルロース等の炭水化物が炭素になることで、重量及び体積が減少したと考えられる。また放射エネルギー測定を行った結果、放射エネルギーに変化はなかった。炭化処理前の放射エネルギー、炭化処理後の放射エネルギー及び重量などを含めた比較表をそれぞれ、図-11、図-12 及び表 1 に示す。

次に、炭化処理前後における試料及び IP 測定結果について図-13 に示す。IP 測定の結果、炭化リター前後で顆粒状微粒子に大きな違いが生じなかったことが分かる。

なお、文献から福島第一原子力発電所事故では炉心溶融した高圧高温の環境下 (1000℃以上) で生成したと報告[3]されていることから、物性が 290℃で変化する可能性はほとんどない。

今回行った炭化処理における温度は最大でも 290℃までであること、上記の放射エネルギーに変化がなかったこと、IP 測定についても大きな違いがなかったことを併せて考えると、炭化処理における顆粒状微粒子の形状及び顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムにおいてはほとんど変化がなかったと考えられる。今回の炭化処理では、性質を変えることなく炭化及び減容する事が出来た。

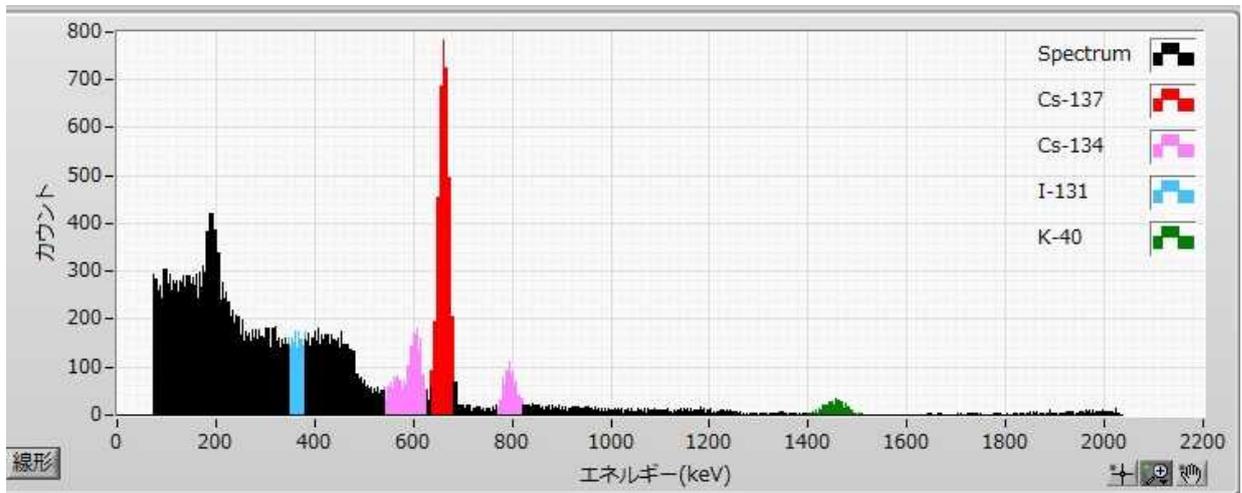


図- 1 1 炭化工程前の試料の放射エネルギー

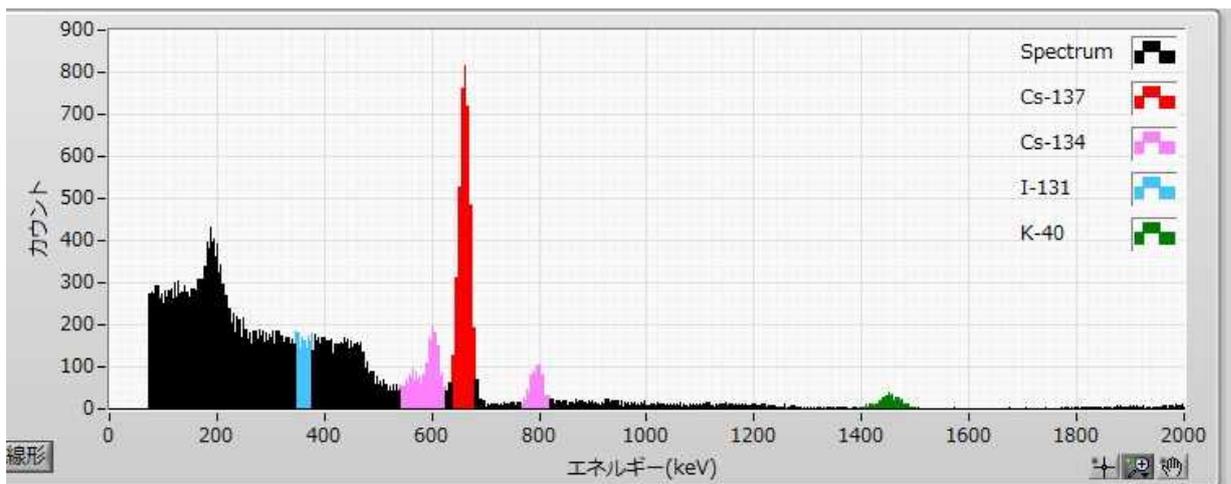


図- 1 2 炭化工程後の試料の放射エネルギー

	炭化工程前	炭化工程後
重量 (g)	20	約 14
放射エネルギー (Bq)	378 ± 21	384 (28)
容積 (cc)	約 100	約 70

表- 1 炭化処理前後の比較表

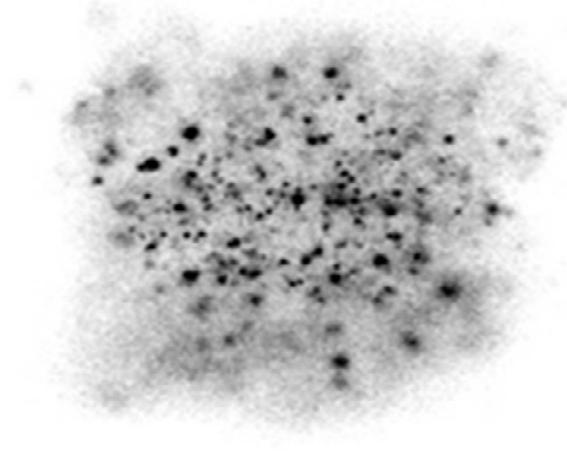
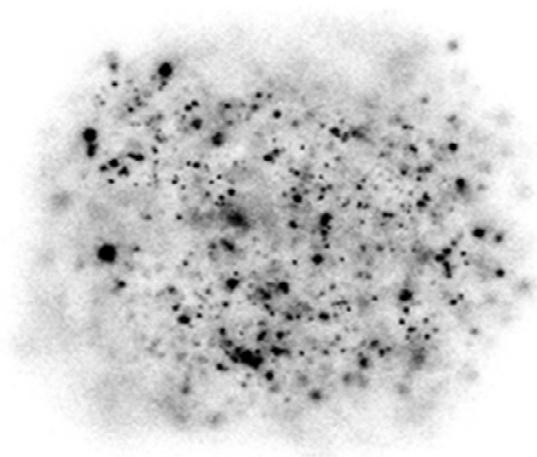
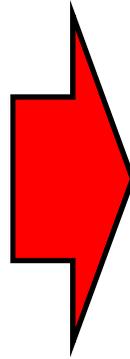


図-13 炭化処理前後の試料の写真及びIP

3-1-3：ボールミルを用いた炭化リターの粉砕

顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムが水への溶解する場合、顆粒状微粒子の表面積が1つの要素になるのではないかと考え、表面積が放射性セシウムの溶解の要因となるか確認するため、微粒子の表面積を増加させることを目的として、機械（ボールミル）を用いて炭化リターを粉砕した。

準備した約19gの炭化リター放射エネルギーは約90kBq/kgであり、タングステンカーバイド製10mm直径のボール20個で遊星ボールミル装置（Fritsch社製、P-5）によって400rpmで2分間粉砕した。使用したボールミル容器とタングステン製ボール、遊星ボール装置、粉砕方法の概略図を、それぞれ図-14、図-15及び図-16に示す。

今回使用したボールミル装置で乾式粉砕を行った場合、最終到達粒度で1 μ mまで粉砕する事が可能である。

約2分間ボールミルにて粉砕した試料の写真を図-17に示す。同じ重量の炭化リターと機械粉砕した炭化リターを同じ容器に入れて、確認した結果、容積は炭化リターと比較して約70%減少した。



図-14 使用したボールミル容器とタングステン製ボール



4 個掛け

図-15 遊星ボールミル装置 (Fritsch Co. Ltd., P-5) [4]

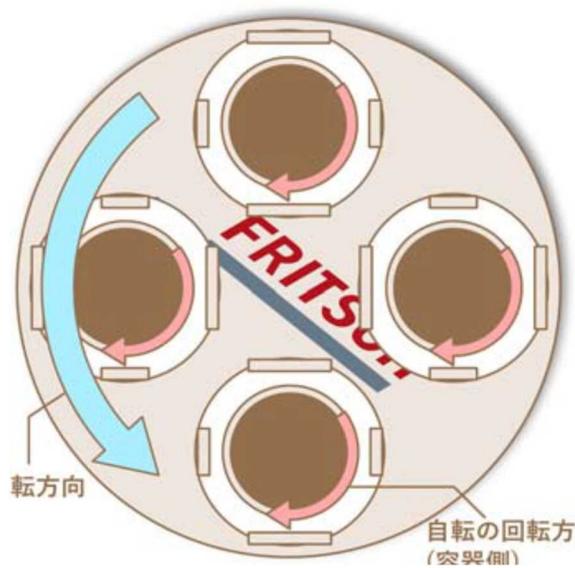


図-16 粉碎方法の概略図 (Fritsch Co. Ltd., P-5) [4]



図-17 粉碎工程前後の炭化リター

3-2：炭化リターのエネルギー分散型蛍光X線分析

試料である炭化リターが、放射性物質を含むことは放射線量測定によって明らかであるが、どのような物質が含まれているかについて調査するために、顆粒状微粒子の成分分析を行うために、エネルギー分散型蛍光X線分析を行った。

分析は幅 1cm 長さ 20cm の両面粘着のカーボンテープを汚染防止のためアルミホイルで包蔵した IP に装着させて、その上に試料を乗せ、鉛ブロックで作成した放射線遮蔽箱に 24 時間格納し、IP に照射させた。その後 IP 読み取り機で現像することによって、放射性セシウムが存在する部分を確認した。図-18 に IP を用いた炭化リターの放射性セシウムの位置確認図を示す。

次に、放射性セシウムが存在する部分のカーボンテープを切り取り、直径 30mm、厚さ 10mm の円形のアルミ製ホルダーに装着して、エネルギー分散型 X 線分光分析装置（FE-SEM/EDS、JEOL7000）を用いて分析を行った。

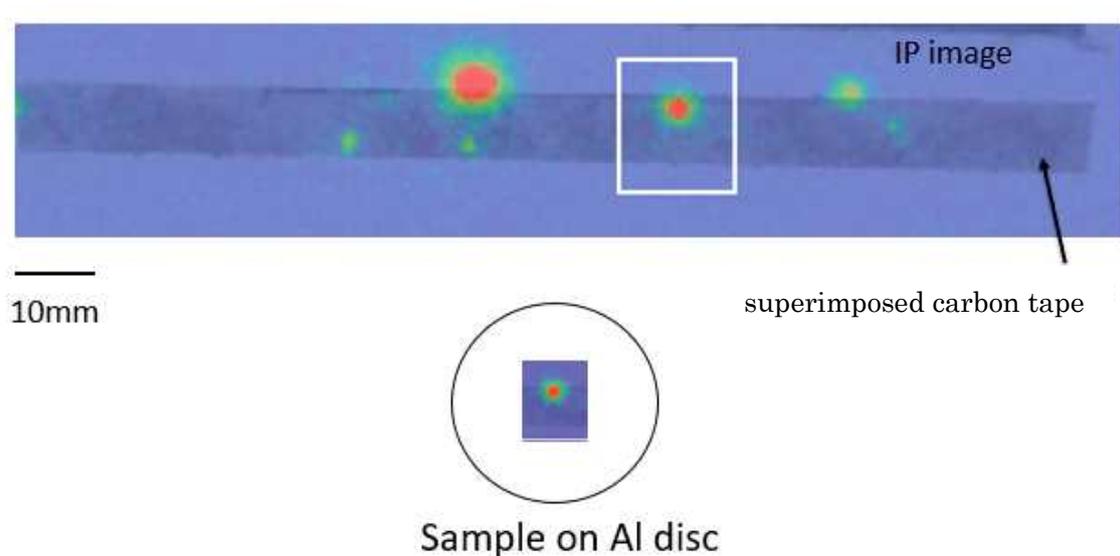


図-18 IP を用いた炭化リターの放射性セシウムの位置確認図

3-3 : 溶解実験

3-3-1 : 透析膜を用いた顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムの溶解実験

生リターを試料として用いた溶解実験を行うために、試料を純水に浸漬させて混合し、一定時間経過後に、混合液を固体である試料と液体である溶解液を分離するためにフィルターとして透析膜を用いた。透析膜は分画分子量 1000Dalton の製品(Spectrum Laboratories 社製 Spectra/Por 7, 132105.)を使用した。この透析膜は分子量 1000Dalton 以上のものは透析膜を通過しないという製品である。この透析膜を使用すれば分子量 1000Dalton 以下の物質のみを通過させ、これ以上大きいものは透析膜を通過することが出来ないため、固体である試料と液体である溶解液を分離することが出来る。

この透析膜の性能を確認するために、ニワトリ卵由来のリゾチーム (分子量約 14000) (IDs: 1105) (Emsley and Cowtan, 2004) [5-6]とアデニン三リン酸 (分子量 517) [7]を用いた。データから、リゾチームの直径は約 3nm、ATP の直径についても約 1.2nm であると推定した。このことから ATP が通過し、ニワトリ卵由来のリゾチームが通過しなかった場合、透析膜の穴の大きさは約 3 nm 以下、1.2nm 以上と推定できる。

透析膜の性能を確認した実験結果を表-2に示す。この結果から、ATP においては、約 6%の濃度の ATP が通過し、リゾチームにおいては、約 0.07%の濃度のリゾチームが通過したことが分かる。従って、透析膜の孔径は直径 1.2nm 程度と推定した。

イオン状態の放射性セシウムの大きさは約 0.18nm であり、透析膜の孔径以下であるため、透析膜を通過することが出来る。一方、1.2nm 以上の大きさの物質は透析膜を通過できない。このことから、イオン状態の放射性セシウムと固体である試料を分離することが可能である。

	リゾチーム (高分子)	ATP (低分子)
(a)透析前内液	9.1×10^{-1}	1.9×10^{-3}
(b)透析後外液	6.4×10^{-4}	1.2×10^{-4}
透過割合 (%) ($[a-b] \times 100$)	0.70	6.3

表-2 透析膜の透過割合

溶解実験は、生リターを純水に浸漬させ、生リターに付着している顆粒状微粒子から放射性セシウムが溶解するのか確認することが目的である。上記の実験からイオン状態の放射性セシウムとイオン状態以外の物質を分離することが可能である透析膜を用いて、溶液と試料の分離を行った。

溶解実験は、最初に、前処理として生リター120g をハサミで細かく裁断し、続いて簡易ベクレル計 (TS150B) を用いて生リターの放射エネルギー測定 (放射エネルギー $37.7 \pm 0.7 \text{Bq/g}$) を行い、生リター1060g を純水に浸しポリ瓶に入れ 1 時間(day)=560rpm 振とうし、一定時間振とうしたポリ瓶内の溶液をフィルターでろ過した。

次にろ過した溶液を沸騰しないよう加熱し 100ml に濃縮し、濃縮液を透析膜に二重に包

み、透析膜を蒸留水 900ml が入ったビーカーに沈め 1 時間透析した。透析した外液を 700ml に濃縮し、簡易ベクレル計を用いて外液の放射性セシウムの放射エネルギー測定を行った。測定終了後、溶液、残渣、透析膜内の溶液を全てポリ瓶に戻し、再び上記と同様の条件で振とうし、30 日後に溶液の放射エネルギー測定を行った。図-19 に生リターの透析膜を用いた溶解実験手順を、図-20 に生リターの透析膜を用いた溶解実験時の写真を示す。

実験操作中にどれだけ Cs^* が損失されたか示すために、最後にポリ瓶全量を取り出し簡易ベクレル計で測定し、併せて、ポリ瓶内のリターから異臭が漂ったため、振とう開始 24 日目に、腐食防止のために抗生物質である 0.1g のアンピシリンを加えた。

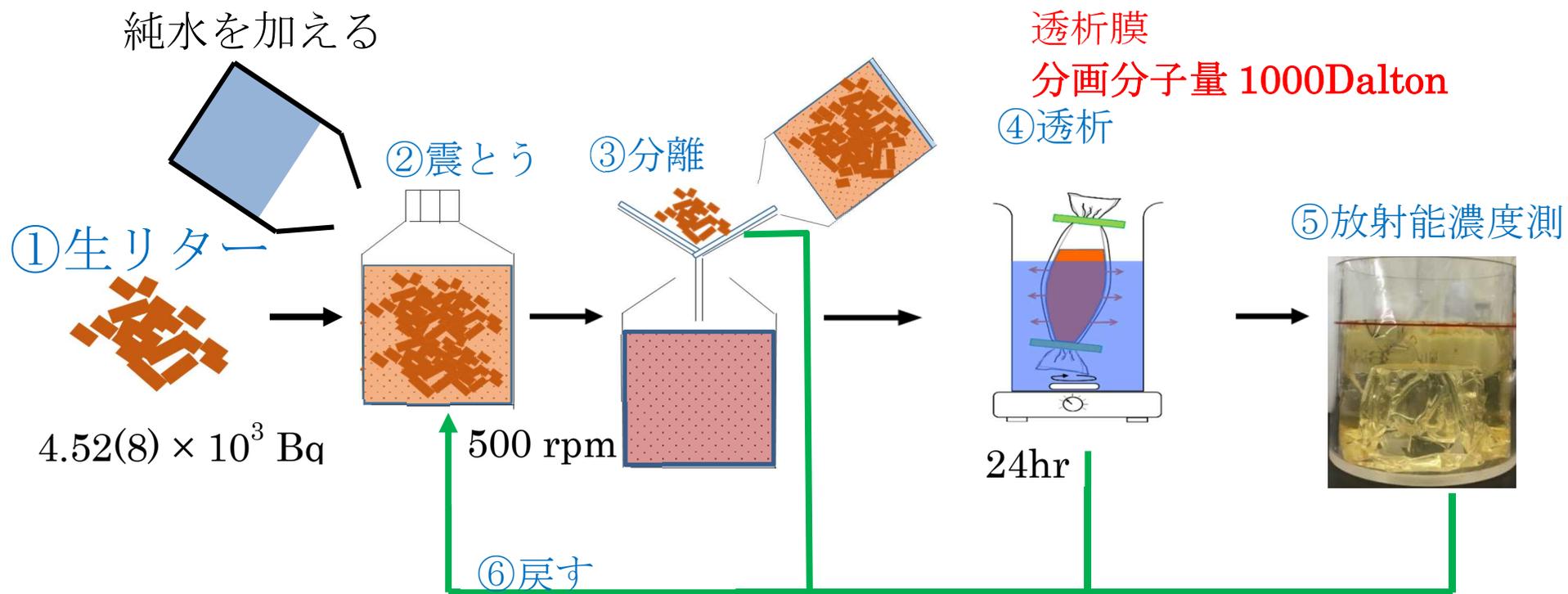


図-19 生リターの透析膜を用いた溶解実験手順

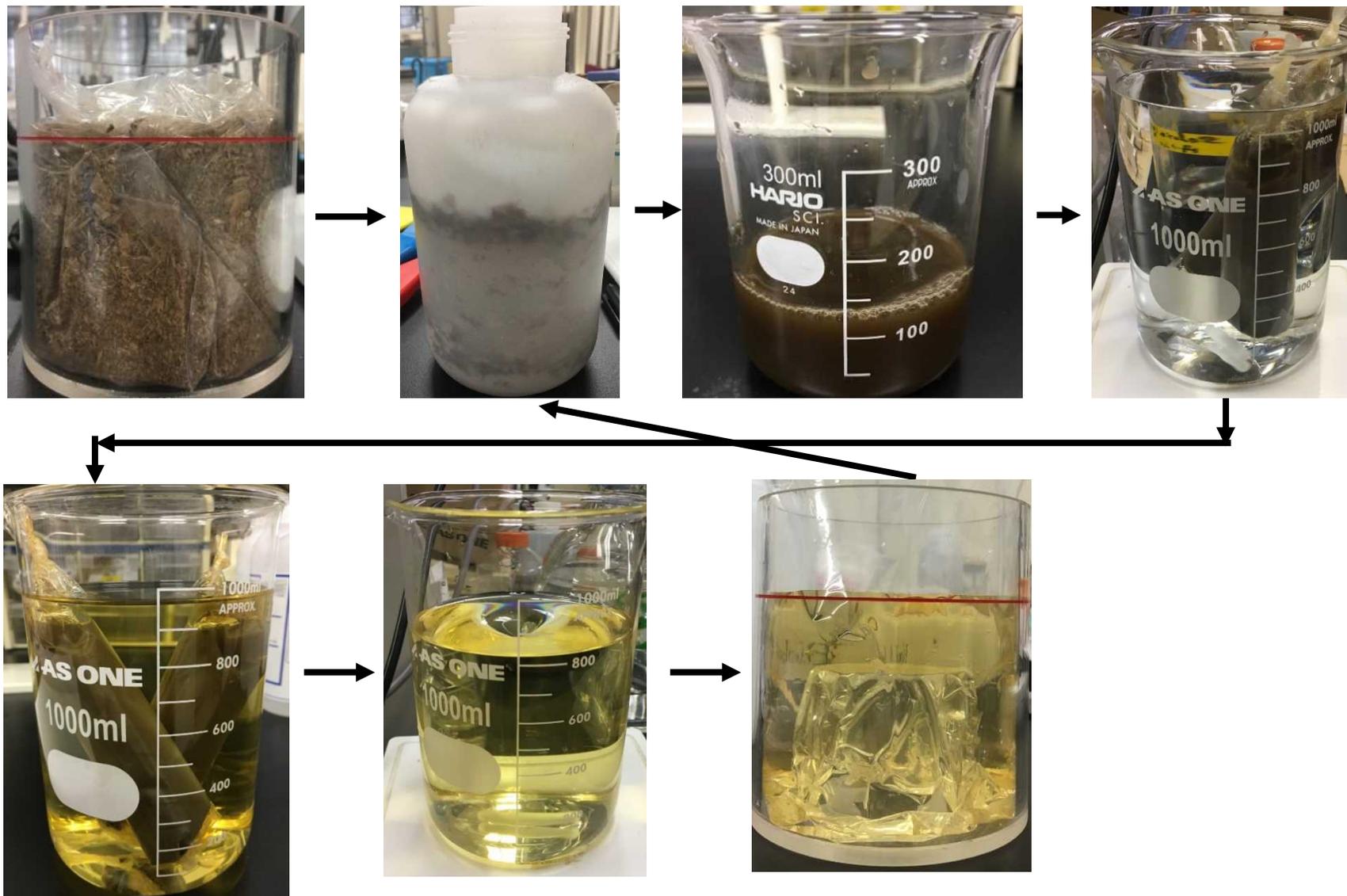


図-20 生リターの透析膜を用いた溶解実験時の写真

3-3-2 グラスフィルターを用いた溶解実験

次に、放射性セシウムを含んだ顆粒状微粒子の溶解において、顆粒状微粒子の大きさを変えた場合、どのような影響があるのか調査するため、炭化リターの浸漬時間及び表面積変化させ、グラスフィルターを用いた溶解実験を行った。

最初に炭化リターを試料として用いた溶解実験を行った。作成した炭化リター30gを簡易ベクレル計 (TS150B) により放射能量測定 (放射能量 $90 \pm 1.0 \text{Bq/g}$) を行い、すり鉢を使用して軽く粉砕した。続いて、純水 210 mL と一緒に 1000mL の容器に入れ試料と純水がなじむように振とうし、2時間静置した。図-21に炭化リターと純水に浸漬した炭化リターの写真を示す。

その後、グラスフィルター (Advantec 製 GC-50: 平均孔径 $0.5 \mu\text{m}$) を用いてろ過を行い、溶液と試料をろ過した。平均孔径 $0.5 \mu\text{m}$ のグラスフィルターを使用した理由は、顆粒状微粒子の最小サイズは直径 $0.5 \mu\text{m}$ と報告されているためである[8-9]。

ろ過した溶液の放射能量は、簡易ベクレル計を使用し 12 時間測定を行い、分離した試料、グラスフィルター及びろ過した溶液を、元の 1000mL 容器に戻した。これら手順を数回繰り返し、最終的に 89 日間測定を行った。図-22に炭化リターの溶解実験手順を示す。

次に、機械粉砕した炭化リター3gを 30mL の純水と一緒に、50mL の容器に入れ溶解実験を行った。機械粉砕した炭化リターの溶解実験は、炭化リターの機械粉砕有無が違っただけで、振とう、濾過、放射能量測定の手順は上記の炭化リター溶解実験と同様であり、測定期間は 1 週間間隔で 21 日間測定を行った。図-23に機械粉砕した炭化リターの溶解実験手順を示す。



図-21 炭化リターと純水に浸漬した炭化リター

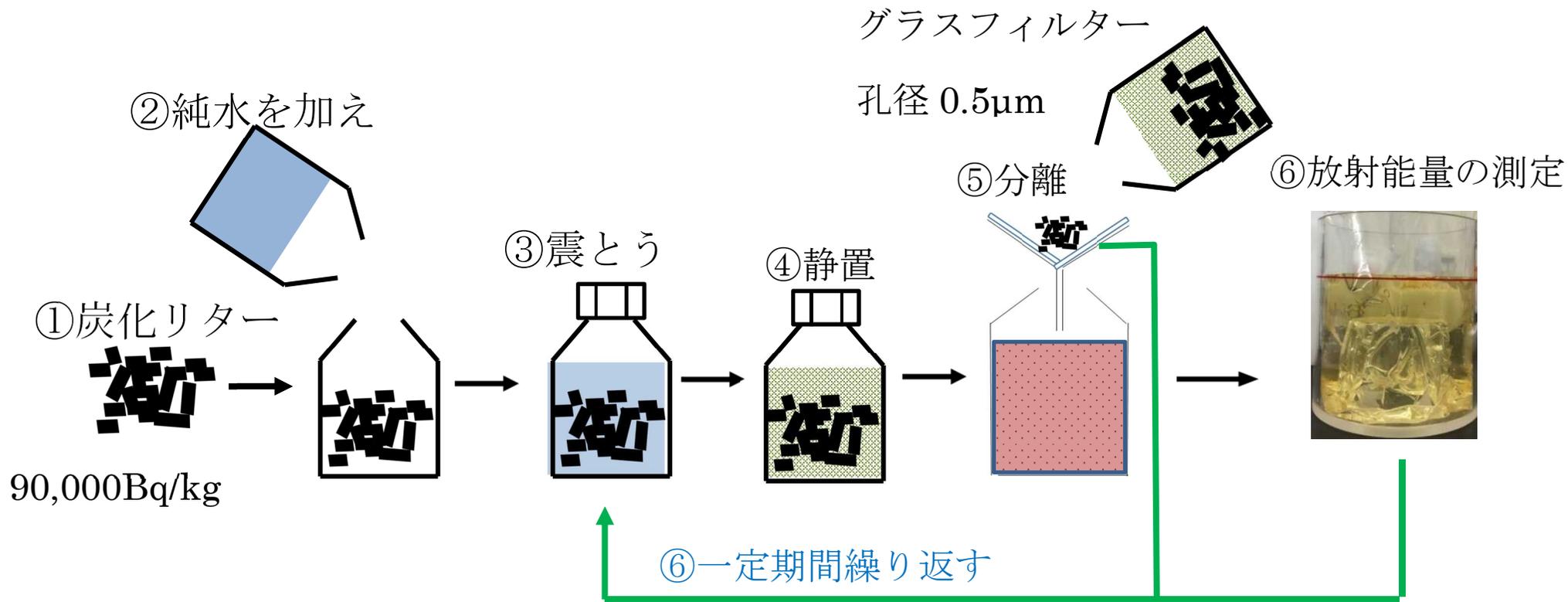


図-22 炭化リターの溶解実験手順

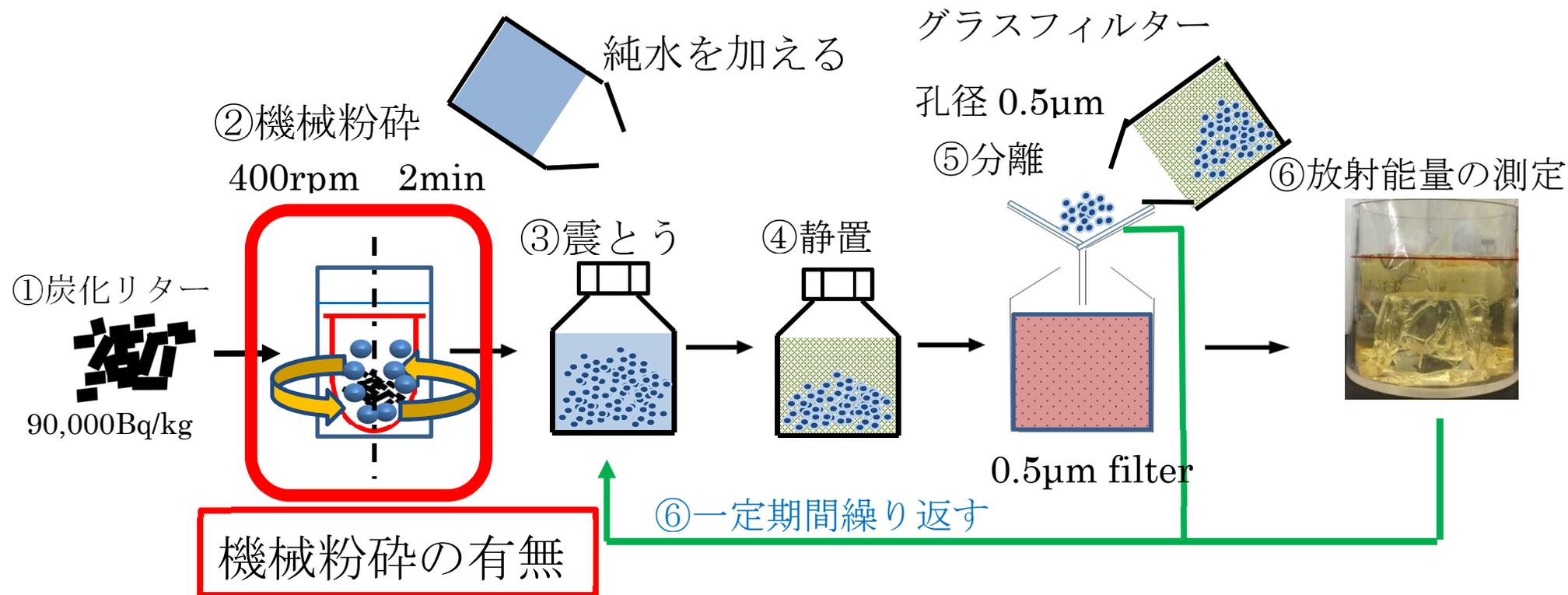


図-23 粉砕した炭化リターの溶解実験手順

第3章 参考文献

1. Terada H, Katata G, Chino M, Nagai H. 2012. Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part II: verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion. *J Environ Radioact.* 2012 Oct;112:141-54. doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.05.023.
2. Kaneyasu N, Ohashi H, Suzuki F, Okuda T, Ikemori F (2012) Sulfate aerosol as a potential transport medium of radiocesium from the Fukushima nuclear accident. *Environ Sci Technol* 46: 5720-5726.
3. Furuki G, Imoto J, Ochiai A, Yamasaki S, Nanba K et al. (2017) Caesium-rich micro-particles: A window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci Rep* 7: 42731.
4. Fritsch 社 HP : <http://www.fritsch.co.jp/p5.html>
5. Emsley P, Cowtan K (2004) Coot: model-building tools for molecular graphics. *Acta Crystallogr D Biol Crystallogr* 60: 2126-2132.
6. Protein data bank: <https://pdj.org/mine/summary/1io5>
7. Protein data bank: <https://pdj.org/chemie/summary/ATP>
8. Chen F, Hu J, Takahashi Y, Yamada M, Rahman MS (2019) Application of synchrotron radiation and other techniques in analysis of radioactive microparticles emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident-A review. *J Environ Radioact* 196: 29-39.
9. Kogure T, Yamaguchi N, Segawa H, Mukai H, Motai S (2016) Constituent elements and their distribution in the radioactive Cs-bearing silicate glass microparticles released from Fukushima nuclear plant. *Microscopy* 65: 451-459.

4:結果

4-1：溶解実験

4-1-1：透析膜を用いた溶解実験の結果

溶解実験において、放射性セシウムが溶解し、溶解特性を調べる場合には、試料に含まれる放射性セシウムの放射能濃度に影響を受けることから、試料 1g 当りの放射エネルギー (Bq/g) を記載する。

また、簡易ベクレル計を用いて測定できる放射エネルギーは溶液全体の放射エネルギーであることから、溶解度を測定する場合には溶液全体の放射エネルギーを試料重量で割る必要があり、透析膜を用いた溶解実験で使った試料重量は 120g である。試料である生リターの総放射エネルギーは $45.2 \pm 0.4 \times 10^3 \text{Bq}$ であることから、試料 1g 当りの放射能濃度は $37.7 \pm 0.3 \text{Bq/g}$ である。

透析膜を用いた溶解実験の結果、浸漬直後における溶液の放射性セシウムの総放射エネルギー $19.1 \pm 0.7 \text{Bq}$ であり、溶液の試料 1g 当りの放射エネルギーは $0.16 \pm 0.01 \text{Bq/g}$ であった。この値を浸漬直後の放射能割合として、【浸漬直後の溶液の放射エネルギーを試料 1 g 当りの放射エネルギー】を【試料 1 g 当りの放射エネルギー】で割った場合、 $0.42 \pm 0.03\%$ となる。

顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムの一部が表面に露出し、水と接触したことによって溶解したと考えられる。

30 日後の総放射エネルギーは、 $28.2 \pm 1.1 \text{Bq}$ であり、試料 1g 当りの放射エネルギーは $0.24 \pm 0.01 \text{Bq/g}$ であった。このことから試料 1g 当りの放射エネルギー $37.7 \pm 0.7 \text{Bq/g}$ から $0.24 \pm 0.01 \text{Bq/g}$ の放射性セシウムが溶解することが分かった。

また、試料と溶液の総放射エネルギーは $37.8 \pm 0.3 \text{Bq/g}$ であった。従って、この実験中に放射性セシウムの損失は無かったことが分かる。

このことは、先行研究のイヌブナの落ち葉に関する実験結果と、同様の結果となった[1]。

4-1-2：グラスフィルターを用いた溶解実験の結果

炭化リターを用いた溶解実験で使用した試料重量は30gであり、また試料1g当りの放射能濃度は $90 \pm 1 \text{Bq/g}$ である。

グラスフィルターを用いた炭化リターの溶解実験を行った結果、溶液の浸漬直後の放射性セシウムの試料1gあたりの放射能濃度 $0.40 \pm 0.07 \text{Bq/g}$ であった。この値を浸漬直後の放射能割合として、【浸漬直後の溶液の放射エネルギーを試料1g当りの放射エネルギー】を【試料1g当りの放射エネルギー】で割った場合、 $0.44 \pm 0.08\%$ となる

その後定期的に放射エネルギーを測定した結果、89日後に溶液の試料1g当りの放射能濃度 $1.0 \pm 0.2 \text{Bq/g}$ まで増加した。この結果から、89日間の浸漬で1.11%程度の放射性セシウムが溶解したことが分かった。

また、溶解については、測定した結果より放射性セシウムの濃度には大幅な増加は見られなかったが、溶解する放射性セシウムの濃度は引き続き上昇していくものと考えられる。

次に、上記の実験と同様にグラスフィルターを用いて、試料に約2分間ボールミルにて粉碎した炭化リターを用いた溶解実験を行った。実験手順に従って溶解実験を行った結果、浸漬直後の溶液の放射性セシウムの試料1g当りの放射能濃度は $2.0 \pm 0.4 \text{Bq/g}$ であった。この値を浸漬直後の放射能割合として、【浸漬直後の溶液の放射エネルギーを試料1g当りの放射エネルギー】を【試料1g当りの放射エネルギー】で割った場合、 $2.2 \pm 0.4\%$ となる

その後3週間経過した後に測定した結果、溶液の放射性セシウムの試料1g当りの放射能濃度 $3.7 \pm 0.8 \text{Bq/g}$ まで増加した。

上記の結果から、機械粉碎した炭化リターは、粉碎しない試料と比較して、溶解速度が大幅に上昇したことが分かる。

また、機械粉碎した炭化リター及び粉碎していない炭化リターの放射性セシウム溶解度の経時変化を図-1に示す。ここでオレンジ色の三角が機械粉碎した炭化リターの数値を、青色の丸が炭化リターの数値を示している。

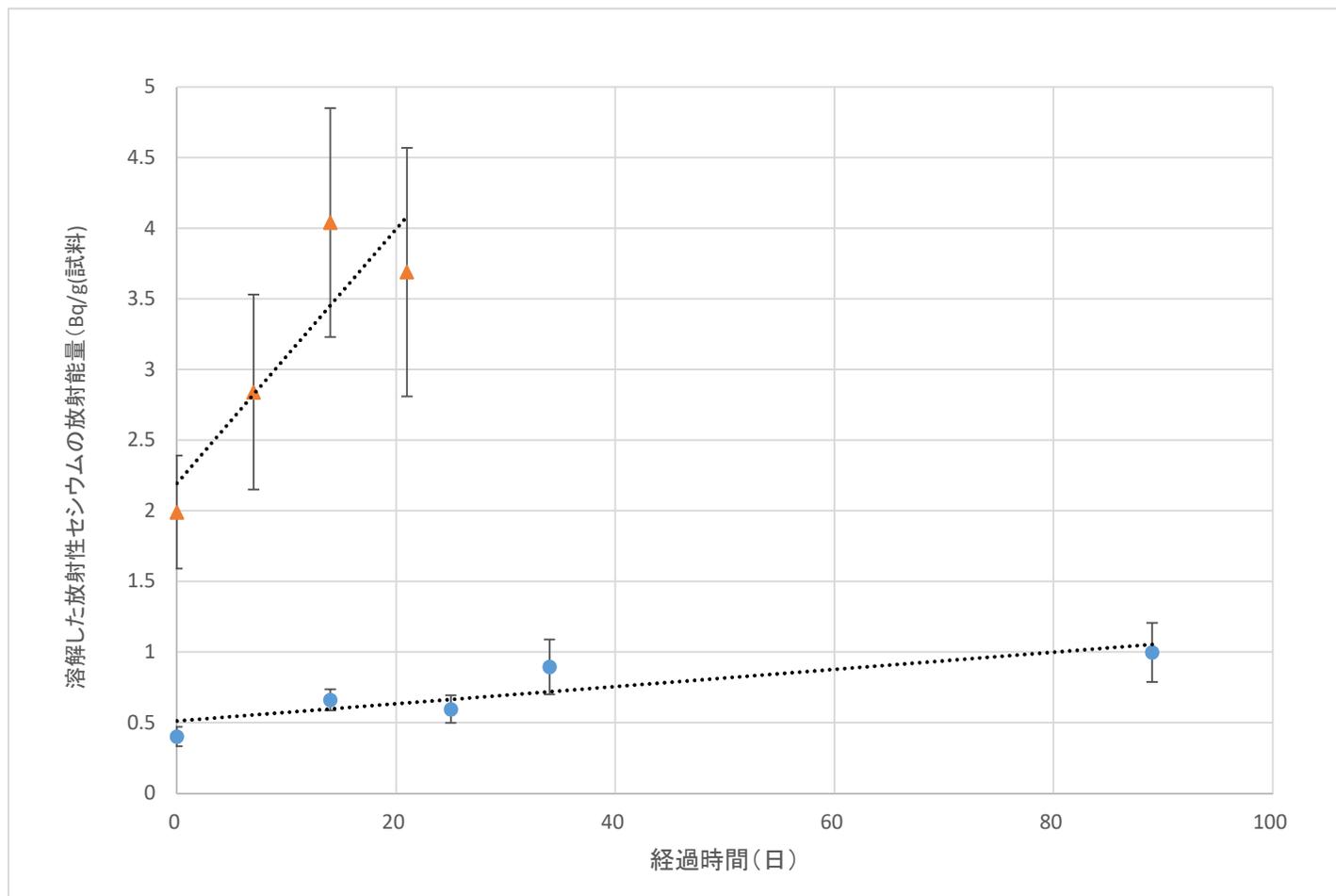


図-1 機械粉砕した炭化リターと炭化リターの溶解した放射性セシウムと経過日数

4-1-3 : 溶解実験の結果

溶解実験の結果によって得られた結果の概要を表-1に示す。この表において、フィルターの種類が透析膜とガラスフィルターの2種類ある。次に試料条件では(A)が生リター、(B)が炭化リター、(C)が機械粉砕した炭化リターを示しており、これら3つの条件(A)、(B)、(C)についての結果を整理したものである。

また(c)の浸漬直後の放射能割合については【(b) 浸漬直後の溶液の放射エネルギーを試料1g当りの放射エネルギー】を【(a) 試料1g当りの放射エネルギー】で割り、パーセントで表した値である。式にすると、

$$(c) = (b)/(a) \times 100$$

となる。

併せて、また(f)の浸漬直後の放射能割合については【(d) 最終溶解放射エネルギー】から【(b) 浸漬直後の放射エネルギー】を差し引き、【(a) 試料1g当りの放射エネルギー】及び【(e) 浸漬時間】で割り、その値をパーセントで表した値である。式にすると、

$$(f) = \{ (d) - (b) \} / (a \times e) \times 100$$

となる。

溶解実験の結果から、以下のことが分かった。

まず、(A) 生リターと (B) 炭化リターにおける、顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムの溶解速度は、ほぼ同じである。

次に、(C) 機械粉砕した炭化リターの放射性セシウムの溶解速度は、機械粉砕していない(A) 生リター及び (B) 炭化リターと比較して、溶解速度が約10倍に増加している。

フィルターの種類	透析膜	ガラスフィルター	
試料条件	(A) 生リター	(B) 炭化リター	(C) 械粉碎した炭化リター
浸漬温度(°C)	室温 (約 20-25)	室温 (約 20-25)	室温 (約 20-25)
(a) 試料 1 g 当りの放射エネルギー (Bq/g)	37.7±0.7	90±1	90±1
(b) 浸漬直後の放射エネルギー (Bq/g)	0.16±0.01	0.4±0.07	2.0±0.4
(c) 浸漬直後の放射能割合 (%)	0.42±0.03	0.44±0.08	2.2±0.4
(d) 最終溶解放射エネルギー (Bq/g)	0.24±0.01	1.0±0.2	3.7±0.9
(e) 浸漬時間 (日)	30	89	22
(f) 溶解速度 (%/day)	0.0071±0.0009	0.0075±0.003	0.086±0.05

表-1 溶解実験の結果概要

4-2 : 炭化リターのエネルギー分散型蛍光X線分析結果

炭化リターにおける顆粒状微粒子の成分分析についての結果を図-2に示す。この図における BSI 下のスケールバーは 20 μm を示している。

この反射電子像 (BSI : back scattered electron image) から顆粒状微粒子が直径数 μm 程度であることが分かる。また分析の結果、セシウムが存在を示すエネルギー4.286 keV の特性 X 線が検出されたことから、顆粒状粒子はセシウムを含有していることが分かった。さらにケイ素、酸素、塩素、チタン、微量のマンガン及び鉄が含有されていることが分かった。

このことから、試料である炭化リターには放射性セシウムを含む顆粒状微粒子が付着していることが確認され、また併せて顆粒状微粒子は放射性セシウム以外に多数の無機物質を含んでいることが分かった。

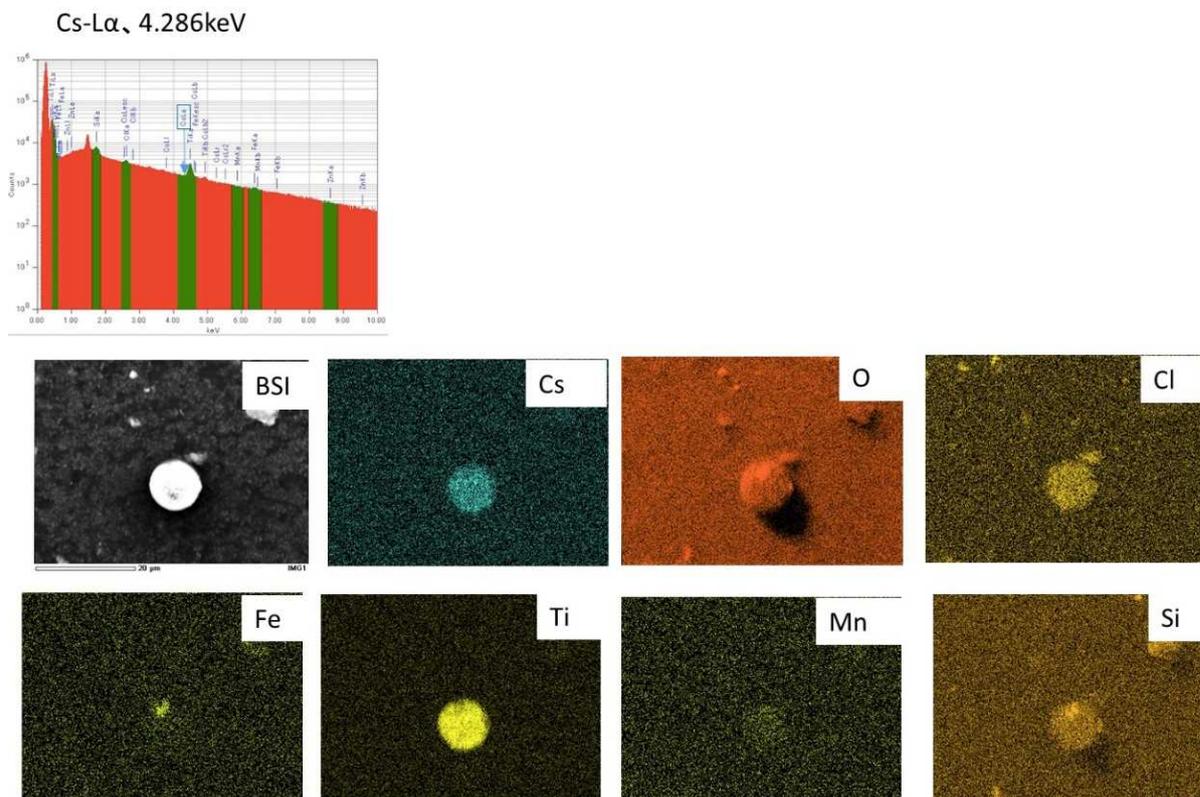


図-2 エネルギー分散型蛍光X線分析結果

第4章 参考文献

1. Nakazato R, Kawakami T (2019) Private Commun.

5: 考察

5-1 : 試料選定の理由

今回の実験において、落葉落枝からなるリターを試料として使用した。これは福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムは、土壌だけでなく広範囲に拡散しており、土壌における放射性セシウムの挙動は、土壌の組成や構造に大きく依存する可能性があるためである。

また、放射性セシウムを含んだ土壌を試料として溶解実験を行う場合、放射性セシウムは土壌に吸着されている可能性があり、かつ顆粒状微粒子と同じ構成元素が存在する可能性がある。

一方、リターは、組成や構造が比較的単純であり、リターは顆粒状微粒子を構成する元素をほとんど含んでいない。また落葉であることから放射性セシウムの吸収等の挙動を示す可能性は低く、事故時の状態で存在する可能性が高いと考えられる。

5-2 : 試料の炭化について

今回の研究では、試料の条件を3つ用意し、それぞれ試料において放射性セシウムの純水への溶解についての実験を行った。その際、試料に付着している顆粒状微粒子の表面積を増加させるためにボールミルを用いた乾式の機械粉砕を行うことを計画した。表面積を増やすためには湿式粉砕も検討したが、湿式粉砕では機械粉砕中に放射性セシウムが溶解してしまうので、乾式粉砕を採用した。

ボールミルを用いて機械粉砕をするためには、粘弾性のある植物セルロースを粉砕しやすい形にする必要があり、また生リターを1週間以上水中に沈めると、生リターに細菌が繁殖し腐食するため、実験の妨げとなる。

上記の条件を考慮して、落葉試料であるリターを炭化することにした。炭化工程を行うに当たって、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子に変化が起きないように最大温度は290℃に決定した、これはいくつか文献を考慮して顆粒状微粒子の形成温度は1000度を超えると報告されており[1]、顆粒状微粒子の物理的特性が290℃で変化する可能性は低いためである。

炭化処理した結果は下記の通り、炭化工程前後の変化はなかったことを確認した。

- i) 第3章に示すとおり、放射性セシウムの量は加熱前後でほぼ同じであり、加熱前後のIPのオートラジオグラフィーから変化がないことを確認した。
- ii) 第4章に示すとおり、生リターと粉砕されていない炭化リターの放射性セシウムの溶解速度はほぼ同じであった。

5-3 : 透析膜を使用した理由

ガラスフィルターのサイズは直径0.5 μm となっており、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子が透析膜を通過する可能性は低い[2-3]、通過する可能性はある。このため0.5 μm より孔径が小さい透析膜（推定孔径サイズ1.23 nm）を用いて試料と溶液を分離した。

透析膜の孔径サイズから、溶液に進出された放射性セシウムは、セシウムイオン（水和構造の場合直径 0.182 nm）と考えられることから、透析膜を用いた溶解実験は放射性セシウムと放射性セシウムを含む顆粒状微粒子に確実に分離することが可能である。

5-4：放射性セシウムの溶解速度について

5-4-1：生リターと炭化リターの比較

本調査では、試料の状態が炭化したものと未処理のもの（炭化リターと生リター）、2種類が存在する。また炭化リターについては、機械粉砕した試料としていない試料がある。これらを考えると、合計で3種類（生リター、炭化リター、機械粉砕した炭化リター）となりそれらの情報を整理したものが第4章の表-1である。

フィルターに透析膜を用いた (A) 生リターと (B) ガラスフィルターを用いた炭化リターの浸漬直後の放射エネルギーの割合は、それぞれ $0.42 \pm 0.03\%$ と $0.44 \pm 0.08\%$ であった。

透析膜をもちいた溶解実験については孔径サイズからイオンの形で溶解した放射性セシウムが溶出したものと考えられる。

ガラスフィルターを用いた溶解実験での放射エネルギーは、イオンの形で溶解した放射性セシウムが主であるが、 $0.5 \mu\text{m}$ 未満の顆粒状微粒子が存在した場合には、それぞれの合計値となる。

透析膜を用いた実験結果とガラスフィルターを用いた実験結果から、放射エネルギーの割合は、ほぼ同様であり、誤差の範囲内であるため、ガラスフィルターを通過する $0.5 \mu\text{m}$ 以下の顆粒状微粒はほとんど存在しないと考えられる。

このことから、試料に存在している放射性セシウムを含む顆粒状微粒子は、純水に浸漬した場合直後の場合は、約 0.44% が溶解することが分かった。

併せて、一定時間経過後の生リターと炭化リターにおける溶解速度の結果は、それぞれ $0.0071 \pm 0.0009\%$ と $0.0075 \pm 0.0003\%$ であり、こちらもほぼ同様の値であった。従って、生リターと炭化リターの放射性セシウムの溶解速度及び性質は変化しておらず、炭化工程による影響が無いことを確認した。

5-4-2：機械粉砕した炭化リターと機械粉砕していない試料との比較

(A) 生リター及び (B) 炭化リターについては、放射性セシウムの溶解速度は同じであることから、各試料における顆粒状微粒子表面積は同じであると考えられる。

一方、(C) 機械粉砕した炭化リターの放射性セシウムの溶解速度は、機械粉砕していない (A) 生リター及び (B) 炭化リターと比較して、溶解速度が約 10 倍に増加している。

このことから、顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムの溶解については、顆粒状微粒子表面積が主要な要因の一つだと考えられる。

また、粉砕された炭化リター試料が、フィルターを通過することの可能性について考えると、溶解速度を $0.086 \pm 0.05\%$ /日であると仮定すると、直径 $1 \mu\text{m}$ の顆粒状微粒子が直径

0.5 μm に溶解するのに約 1000 日必要である。今回の実験の経過日数が 21 日間であることから、0.5 μm フィルターを通過した顆粒状微粒子はほぼ存在しないと考えられる。

ボールミル粉砕した試料は、溶解速度が 10 倍増加したことから、顆粒状微粒子の表面積が約 10 倍に増加したとすると、顆粒状微粒子の半径は下記の計算式から、約 1/10 になったと推定した。

まず、ボールミル粉砕前後の全体体積は一定であると仮定し、顆粒状微粒子の半径、表面積、体積、粒子数をそれぞれ、 r 、 S 、 V 、 N とする。ボールミル粉砕前の添字を i 、粉砕後の添字 f とし、表面積が 10 倍になった場合を式で表すと、

$$V_f = V_i \quad \text{----- (1)}$$

$$S_f = 10 \times S_i \quad \text{----- (2)}$$

$$(1) \text{ から } \frac{4}{3}\pi r_f^3 N_f = \frac{4}{3}\pi r_i^3 N_i \quad \text{----- (3)}$$

$$(2) \text{ から } r_f^2 N_f = 10 \times r_i^2 N_i \quad \text{----- (4)}$$

$$(3) \text{ と } (4) \text{ から } r_f = r_i / 10 \quad \text{----- (5)}$$

$$(1) \text{ と } (5) \text{ から } N_f / N_i = (r_i / r_f)^3 = 10^3 \quad \text{----- (6)}$$

となることから、顆粒状微粒子の半径は約 1/10 になったと推定することが出来る。

5-5 : 機械的性質と熱安定性について

5-5-1 : 機械的性質

ボールミルによって乾式粉砕された炭化リターを用いた実験結果では、放射性セシウムの溶解速度が、粉砕されていない炭化リターと比較しての約 10 倍増加した。

これは、アモルファス構造を持つと考えられる [4-5]。放射性セシウムを含む顆粒状微粒子がボールミルの外力によって微細化したためと考えられる。

また、顆粒状微粒子は放射性セシウムであるセシウム 137 を含んでおり、放射性壊変によりバリウム 137 になることによって、顆粒状微粒子の内部に歪みが生じて、強度が下がったと考えられる。その結果、人工的な力を加えることによって微細化することが可能であることが分かった。

このことから、現在の環境中に存在する放射性セシウムを含んだ顆粒状微粒子は、何らかの外力が加わった場合、汚染が拡大する可能性があることを示している。

併せて、放射性セシウムを顆粒状微粒子から抽出することを考えた場合、顆粒状微粒子の表面積を増やすことで、除染を加速させることが出来ることが分かった。

5-5-2 : 熱安定性

放射性セシウムを含む顆粒状微粒子の形成については、現時点でも詳細は正確には解明されていないが、いくつかの文献では 2000 K を超える温度で形成されることが予測されている [1]。

今回の実験で、顆粒状微粒子を含む試料を炭化工程において、290℃で 1 時間保持したが、

炭化工程前後において放射性セシウムの放射エネルギーに変化がなく、IP オートラジオグラフィにおいても変化がなかった。また、生リターと炭化リターの溶解度速度はほぼ同一であることから、顆粒状微粒子は 290℃では、物性や性質に変化が無いと考えられる。

このことから、顆粒状微粒子は熱安定性があること、また 290℃以上の条件下で形成された可能性が高いということが分かった。

5-6：放射性セシウムの除染について

放射性セシウムは土壤に吸着されると考えられている*、現在の除染方法は、放射性セシウム等の放射性物質で汚染された表面の土壤を除去あるいは天地返しと呼ばれる方法等を採用している。しかしながら、土壤に吸着されていない放射性セシウムを含む顆粒状微粒子が存在している場合には、そのまま放置すると、顆粒状微粒子から溶解した放射性セシウムによって植物や野菜に移行する可能性があります。

この将来のことを考えた場合、理想的な除染としては、汚染された表面の土壤だけでなく、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子を分離して、処分することが必要だと考えられる。

第5章 参考文献

1. Furuki G, Imoto J, Ochiai A, Yamasaki S, Nanba K et al. (2017) Caesium-rich micro-particles: A window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Sci Rep* 7: 42731.
2. Chen F, Hu J, Takahashi Y, Yamada M, Rahman MS (2019) Application of synchrotron radiation and other techniques in analysis of radioactive microparticles emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident—A review. *J Environ Radioact* 196: 29–39.
3. Kogure T, Yamaguchi N, Segawa H, Mukai H, Motai S (2016) Constituent elements and their distribution in the radioactive Cs-bearing silicate glass microparticles released from Fukushima nuclear plant. *Microscopy (Oxf)* 65: 451–459.
4. Abe, Y., Iizawa, Y., Terada, Y., Adachi, K., Igarashi, Y., Nakai, I., 2014. Detection of uranium and chemical state analysis of individual radioactive microparticles emitted from the Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron. *Anal. Chem.* 86, 8521–8525.
5. Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y., Igarashi, Y., 2013. Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. *Sci. Rep.* 3, 2554, doi:10.1038/srep02554.

6: 結論・課題・展望

透析膜をフィルターとして使用し、生リターを試料として用いた溶解実験の結果から、放射性セシウムを含んだ顆粒状微粒子が水と接触した場合、放射性セシウムはイオン又は水和イオンの形で溶解することが分かった。従って、放射性セシウムを放置しておく、100年以上土壌および植物の環境汚染引き越す可能性がある。

また、生のリターと粉砕されていない炭化リターの顆粒状微粒子の溶解速度はほぼ同一であったことから、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子の性質は炭化工程によって変化がなかったことが分かった。このことから、放射性セシウムを含む顆粒状微粒子は約 290℃以下では、熱安定性があることが分かった。

放射性セシウムを含んだ顆粒状微粒子は、乾式粉砕などの外力によって微細化することが分かった。これは、顆粒状微粒子に含まれる放射性セシウムが壊変をおこしバリウムになるためだと考えられる。この結果から、顆粒状微粒子に外力が加わった場合、汚染が広がるということを示しており、また放射性セシウムを含んだ顆粒状微粒子から放射性セシウムを除染することに貢献する可能性があることを示している。

論文リスト

Atsushi Yamaguchi, Kenji Kikuchi, Masakazu Komatsuzaki, Ichiro Tanaka, Nobuo Niimura(2020)

Dissolution, Mechanical Properties, and Thermal Stability of Microparticles Containing Radioactive Cesium on Plant Litter Derived from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident Radiol Diagn Imag 4: (1-8). DOI: 10.31487/j.RDI.2020.04.04

国際会議論文リスト

Atsushi YAMAGUCHI, Nobuo NIIMURA, Shigeyoshi NAKAMURA, Shun-ichi KIDOKORO, Toshiyuki CHATAKE, Takeshi YOKOYAMA, and Ichiro TANAKA

ATP Binding and Hydration State Analyses of DAPK: Steps toward Neutron Protein Crystallography Studies JPS Conf. Proc. (2015) 8, 033008 (1-6)

謝辞

指導教員として本論文の審査の取りまとめ、長い期間に渡って本研究への深いご理解を頂戴し様々なご指導とご意見を頂きました本大学大学院理工学研究科 物質科学工学領域 田中伊知朗教授に謹んで感謝申し上げます。田中先生とは大学4年生での研究室配属以来、学士論文、修士論文、そして博士論文まで辛抱強くご指導いただきました。心より感謝申し上げます。

本研究の総指揮、学会発表、学術論文作成、本論文校閲などにすべての内容について御指導を賜りました茨城大学工学部 新村信雄特命研究員に深く感謝いたします。

本研究の実験・解析・考察などすべての過程にわたり数多くの示唆に富む適切なご助言・ご指導を賜りました本大学工学部 菊地賢司特命研究員に深く感謝いたします。

また本大学工学部物質工学科の田中研究室所属の佐伯夢様、杉原誠様、坂本玲於奈様、成田純様の皆様には実験に協力頂きましたこと、お礼申し上げます。

また、実験の資料について協力頂きました BANGLADESH ATOMIC ENERGY COMMISSION 所属の M Rafiqul Islam 博士にお礼申し上げます。

実験を行うにあたってご助言を頂いた、本大学農学部 小松崎将一教授にお礼申し上げます。併せて、実験試料の採取についてご協力頂きました NPO 法人 ゆうきの里東和ふるさとづくり協議会 武藤正敏様にお礼申し上げます。EDX について様々なご協力を頂いた日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究センター 上野文義グループリーダーにお礼申し上げます。また実験装置について説明及び使用についてご協力頂いた本工学部 松村邦仁准教授、本大学フロンティア応用原子科学センター 星川晃範准教授のお二方にお礼申し上げます。

また、これまでの研究について、宇部工業高等専門学校 中村成芳准教授、長岡技術科学大学 城所俊一教授にお礼申し上げます。

本論文の審査にあたり、適切なご助言を賜りました本大学大学院理工学研究科工複雑システム科学専攻 関東康祐教授、本大学大学院理工学研究科量子線科学専攻 庄村康人准教授、量子科学技術研究開発機構量子生命科学領域構造生物学研究グループ 栗原和男博士に深く感謝いたします。

最後に、調査、実験及び論文作成に協力して下さったすべての方々に御礼申し上げるとともに、長い博士課程においてサポートしてくれた家族・友人にも感謝いたします。

皆様本当にありがとうございました。