

福島第1原子力発電所事故由来のエアロゾル態放射性セシウムの微物理・化学特性 Physico-chemical characteristics of airborne radio cesium from the Fukushima accident

兼保 直樹^{1*}, 大橋英雄², 鈴木芙美恵², 奥田知明³
KANEYASU, Naoki^{1*}, Hideo Ohashi², Fumie Suzuki², Tomoaki Okuda³

¹ 独立行政法人 産業技術総合研究所, ² 東京海洋大学, ³ 慶応大学

¹Nat. Inst. Advanced Industrial Sci&Tech, ²Tokyo Univ. of Marine Sci.& Tech., ³Keio University

福島第一原子力発電所事故の直後より、ハイボリューム・エアサンプラ等により捕集された大気エアロゾル中の放射性核種の測定は各地で実施され、多くの結果が公表されている。しかし、これらの放射性核種の大気中からの湿性(雲過程を含む)・乾性沈着による除去、および呼吸器内の各部位への沈着を考える際に重要な情報と考えられるエアロゾル中の放射性核種の粒径分布については、その測定例をほとんど見ない。そこで、事故後40日以上が経過した時点ではあるが、茨城県つくばにおいて大気エアロゾルの粒径別捕集を開始し、そこに含まれる放射性核種の測定を実施した。また、捕集されたエアロゾル中放射性核種の液相への抽出実験を実施した。

エアロゾル捕集は茨城県つくば市にある産業技術総合研究所の4階バルコニーにおいて、2011年4月28日より低圧型カスケードインパクト(Low-pressure cascade impactor, Tokyo Dylec LP-20)を用いて実施した。12段の衝突捕集材としてアルミニウムシートまたは石英繊維フィルター(Pallfex 2500QAT-UP)を用い、13段目のバックアップフィルターには同じ石英繊維フィルターを用いた。吸引流量は 23.6 L min^{-1} 、吸引時間は事故後に相当の日数が経過したことから2週間~40日と長く取った。放射性核種の測定は東大宇宙線研究所に設置された低バックグラウンドガンマ線スペクトロメーターを用いて行われた。

2011年4月28日~5月12日にアルミシート上(最終段は石英繊維)に捕集された大気エアロゾル(LPI-AIST-1 サンプル)中の¹³⁷Csおよび¹³⁴Cs放射能粒径分布はほぼ同型で、その大部分がサブミクロン領域に分布していた。粒径分布は $0.5\text{-}0.7 \mu\text{m}$ に最大値を持ち、かつ $0.2\text{-}0.3 \mu\text{m}$ にも極大値を持つ二峰性の特徴的な形を示した。この二峰性の特徴は次の5月12~26日のLPI-AIST-2 サンプル(石英繊維フィルター上に捕集)では消え、 $0.5\text{-}0.7 \mu\text{m}$ に最大値を持つ単峰のLog-normal型のピークとなっている。

LPI-AIST-1および2 サンプルから分析されたエアロゾル主要成分の質量粒径分布のうち、 nss.SO_4^{2-} の質量粒径分布は¹³⁷Csおよび¹³⁴Csの放射能粒径分布とほぼ同じ微小域に存在した。一方、他の組成の多くは粗大域に存在した。LPI-AIST-1のCs同位体でみられた微小域での二峰性の分布は、 SO_4^{2-} の質量粒径分布によく見られるdroplet modeの形成とほぼ一致する。また、LPI-AIST-1および2の放射能中央空気力学径(Activity Median Aerodynamic Diameter: AMAD)は nss.SO_4^{2-} の質量中央空気力学径と一致した。また、今回測定された放射性CsのAMADは、事故形態の違いにもかかわらず、チェルノブイリ事故時に各地で測定された¹³⁷CsのAMADとあまり大きな差がない。

これより得られる結論は、以下のものである。

- ・放射性セシウムの大部分がサブミクロン域(Accumulation mode)にあるということは、土壌粒子収着・再飛散はこの時点(2011年4月末~5月)では少ない
- ・放射性セシウムの放射能粒径分布はsulfate粒子の質量粒径分布ときわめて近い分布であり、サブミクロン域にダブルピークがみられたことは、その担体・輸送メディアはsulfateである可能性が大きいことを示す。すなわち、放射性セシウムの湿性除去過程のモデリングにはsulfateを使えると考えられる。
- ・本結果からは、内部被曝評価のためBqをSvに変換するeffective dose conversion factorを選択する際、ICRP-66のデフォルト値であるAMAD: $1 \mu\text{m}$ (公衆カテゴリ)は大き過ぎる可能性があることが示唆された。

また、チェルノブイリ事故時に採取された同様なエアロゾル・サンプルでは、水のみで抽出可能な放射性セシウムは20%程度で、0.1M程度の塩酸で抽出処理を行っても、依然30%以上の放射性セシウムは抽出できなかったことが報告されている。そこで、LPI-AIST-1で最大の放射能粒径を示した8段目($0.5\text{-}0.7 \mu\text{m}$)に捕集されたエアロゾル・デポジット中の放射性セシウムの液相への successive な抽出実験を行った。サンプルが捕集されたアルミシートの1/4枚を純水(水画分)中に20分間静置して引き上げ、次に0.1Mの塩酸(塩酸画分)中に20分浸してこれも引き上げ、最後に1Mの塩酸中にアルミシートごと全溶解させた(残渣)。この抽出実験の結果については講演で発表する。

キーワード: 放射性セシウム, 粒径分布, 内部混合, 硫酸塩, エアロゾル
Keywords: radio cesium, size distribution, internal mixture, sulfate, aerosol