1．基本情報

区分	市街地	担当者名	和田桂子、古米弘明、尾崎則篤
タイトル（英文）	Mechanisms of desorption of ^{134}Cs and ^{85}Sr aerosols deposited on urban surfaces		
タイトル（和文）	市街地表面に堆積したセシウム134、ストロンチウム85エアロゾルの脱着機構に関する研究		
キーワード	Cesium; Strontium; Aerosols; Desorption; Urban surfaces		
著者	J. Real, F. Persin, C. Camarasa-Claret		
文献	Journal of Environmental Radioactivity 62 (2002) 1-15		

（1）対象地域

市街地：実験には市街地(詳細については記述なし、おそらくフランス)から採取したタイルとコンクリートを用い、人為的に発生した放射性核種(^{134}Cs、^{85}Sr)の吸着試験、雨水と洗浄液による脱着試験を行った。タイルは主にアルミノケイ酸カルシウム(ジオプサイド、灰長石)やケイ酸塩(珪灰石、石英)から構成されており、表面には硫酸カルシウムや有機物質が堆積している(塩化物は含まれていない)。

一方コンクリートは、チョークや炭酸塩から構成され、微量のケイ酸塩、アルミニウム塩、マグネシウム塩も含有していた。採取したタイル、コンクリート表面、コアの多孔性、孔の平均直径などは Table1 に示した通りである(タイルについては採取したものと比較して、新品のもののデータも示している)。

Table 1
Results of analysis by mercury porosimetry of urban surfaces

	Porosity total (%)	Diameter median (μm)	Distribution of pores (μm)	Specific area ($m^2 g^{-1}$)
Used tile	36.56	1.05	0.2–1.4	3.0
New tile	29.36	0.303	0.06–0.5	5.8
Concrete surface	14.06	0.164	0.01–2	6.9
Concrete core	15.62	0.079	0.01–1	13.4

実験を行う際、POLYR という実験装置（実験室レベルの擬似的な原子炉のようなもの）を用いた．この装置によって安定同位体の核分裂生成物や炉心溶融物の混合物が含まれるエアロゾルが生成される。この装置は加圧炉中の部分核溶融の状態を再現することができる。装置中に設置した安定元素（および装置の構成元素）は 2900℃の高温で他の元素が混成したエアロゾル（粒径，d_{50}=0.5μm）に変化する。吸着試験ではこのエアロゾルを水に溶かし、汚染された水にタイルまたはコンクリートを浸すことで行っている。

生成したエアロゾルを ICP/MS で分析した結果、92-93%が反応容器を構成する物質由来のもので、7-8%程度が核分裂生成元素のものであった。また Sr は Fe や Ag などの金属とともに存在していたのに対して、Cs は Cs-Cd-Cl が含まれている球状でよく見られた。
生成したエアロゾルは乾性沈着によってタイルおよびコンクリートに沈着させた（^{134}Cs+stable Cs；150-350μg/m^2、^{85}Sr+stable Sr；200-500μg/m^2）。
タイル、コンクリートを用いた吸着実験、脱着試験は振とう機能を有した恒温槽(15℃)で行った。
タイルとコンクリートはディスク状(直径 9.4cm)に成形され試験に供された。また、タイルとコンクリートには、吸着、脱着を行わせる上層を除いて、防水とエアロゾル中の元素に対する不活化処理を行っている。

一方で、洗浄液としては 0.1M または 1M の塩化アンモニウムおよび 0.05M または 0.1M のシュウ酸アンモニウムを用いた。これらの洗浄液はいずれも酸性を示し、イオン交換性(アンモニウムイオンと物質成分中のカチオン間のイオン交換性)を有している。
吸着、脱着試験共に 21 日間行い、適宜サンプルを 10ml 採取した。その後、0.45μm 孔径のろ紙(素材やメーカーについて記述なし)でろ過し、ろ液中の放射性核種をガンマ-ゲルマニウム高検出スペクトロメトリー（Canberra GR 2020）で測定した。

（2）重要な図表

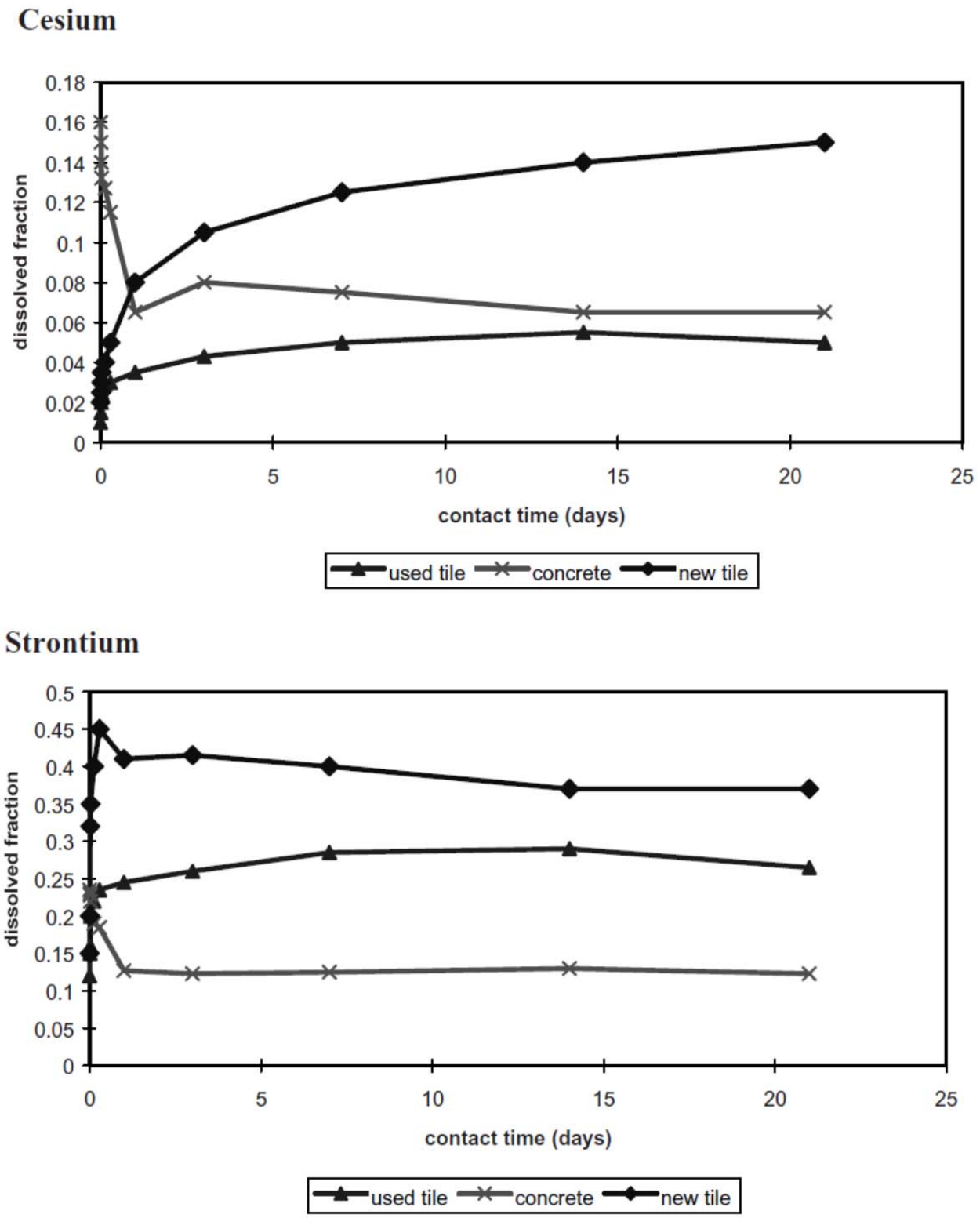

Fig. 4. Desorption by rainwater of cesium and strontium deposited on urban surfaces.

Fig.4 には雨水(モンルークスの水)による脱着試験結果を示している。縦軸には水中における放射性核種の溶解率を示している。上図から、新しいタイルの方が溶解成分の平衡値が高く、除染効率、流動率が高い。その溶解率は、Cs が新品と使用済みでそれぞれ約 14%、4%、Sr が 40%、25%となった。この

ことからタイルと Cs の親和性が高く、Sr と比して雨水による除染効率、流動性は低いと考えられる。
またコンクリートについてはタイルと全く違う挙動を示している。図の解釈としては、脱着の為にモンルークスの水に浸して、溶解成分の測定の為にサンプルを採取するまでの短時間(詳細なサンプル時間についての記述なし)に脱着し、その後一部再吸着し、平衡に達したと考えられる。

アンモニウムイオンを含んだ洗浄液で同様の脱着試験を行った時、タイル、コンクリートともに、Cs の 70%以上が脱着した。タイルの場合は洗浄液の種類での相違は確認できないが、コンクリートではシュウ酸アンモニウムで最も脱着した。さらに平衡に達するまで 2 日ほどあった。また、Sr でも同様であるが、塩化アンモニウム濃度が高くなると脱着性は高くなっている。
一方、Sr の脱着に関しては、シュウ酸アンモニウムで著しく低い値を示している。他の洗浄液についても Cs より低い値を示している。しかし、雨水での脱着と比較して、非常に高い脱着率を示している。
アンモニウムイオンは粘土質の物質、今回は特にタイル中の物質と強い陽イオン交換性を示す。これが放射性核種の脱着と関連していると考えられる。
シュウ酸イオンはキレート効果を示し、この効果によってコンクリート表面上のカルシウムや炭酸塩が放出される。ここで放出されたカルシウムイオンと Sr が反応し、炭酸ストロンチウムとして沈殿したことから、シュウ酸アンモニウムでは脱着率が低いと考えられる。

2. 提言につながる情報

（1）モニタリングへの活用

特になし

（2）流出挙動・経路

特になし

（3）除染の際の留意点

○市街地建築物に対する放射性セシウム、ストロンチウムの吸着(汚染)について

・被吸着物質の成分や多孔性などの性状が吸着に関して大きなファクターとなっている。

・多孔性の異なる新旧タイルへのセシウムの吸着性試験の結果(新タイルについては他文献)から、多孔性が大きい方がセシウムの吸着は促進されると考えられる。

・ほかの要因としては、元々タイル表面に堆積していた非定量の硫酸カルシウムや有機物が考えられる。

・セシウムのタイルへの吸着性が大きかったのに対して、ストロンチウムの吸着は 45%程度と低い。

・コンクリートに対してはセシウム、ストロンチウム共に 80%以上吸着した。

※新しいタイルを扱っている文献

Sandalls, F. J., Stewart, S. P., & Wilkins, B. T. (1986). Natural and forced decontamination of urban surfaces contaminated with radiocaesium. Proceedings of Workshop on Methods for assessing the offsite radiological consequences of nuclear accidents, Luxembourg, EUR 10397, pp. 511–532.

○市街地建築物からの放射性セシウム、ストロンチウムの脱着(除染、流動性)について

①雨水の場合

・雨水による脱着の割合は非常に低い(タイル：セシウム 5%。ストロンチウム 29%、コンクリート：セシウム 6%、ストロンチウム 12%)。

・セシウムはどちらの物質に対してもほとんど脱着しない。

・これはタイル上では、ケイ酸塩と不可逆、不溶解性成分を形成する為。コンクリート上でも C-S-H ゲル(ケイ酸カルシウム水和物)と不溶解性成分を形成するためと考えられる。

・セシウムと比較して、ストロンチウムの吸着性は低く、それに応じて脱着しやすい。

・一方で、コンクリートについてはカルシウムイオンと不溶解性成分($SrCO_3$)を形成し、沈殿するため、タイルに比べて脱着性は低くなっている。

②洗浄液の場合

・塩化アンモニウム溶液はタイル、コンクリート、セシウム、ストロンチウム問わず、非常に高い脱着性を示した(70-90%)。
・これはアンモニウムイオンがカルシウムイオンなどと交換し、放射性核種が溶解性イオンとなることで脱着するためと考えられる。
・一方で、シュウ酸アンモニウム溶液はキレート効果を示すため、コンクリートに含まれるカルシウムを大量にイオンとして放出させる。ここで放出されたカルシウムイオンとストロンチウムが不溶解性の $SrCO_3$ を形成し沈殿させることで、脱着性を下げている。

（4）担当者のコメント

具体的な実験条件やサンプル採取時間などについての記述がなく、類推しなければいけない部分が多かった。また今回の結果はフランスの雨水、市街地建設物を対象としている。その為、日本において同様の結果になるとは限らない。しかし、吸着、脱着に関して多孔性やイオン交換性など、注目すべき項目の参考として、十分に利用可能と考えられる。

また、本論文は脱着機構についての知見の収集を目的としていたが、これによって、放射性核種の市街地からの流域移動性を評価することが出来ると考えられる。