

受賞者氏名：宇都宮 聡 会員（国立台湾大学地球科学科）

受賞題目：「福島第一原発事故で放出された高濃度放射性セシウム含有微粒子に関する先導的研究」



#### 授賞理由

宇都宮聡会員は2011年に福島第一原発で起きた事故によって環境中に放出された放射性セシウム(Cs)の中に大量に含まれた高濃度放射性Cs含有微粒子(CsMP)の鉱物科学的、地球化学的特徴に焦点をあてた研究を行ってきた。福島県、関東地方の表層土壌や大気フィルターから単離されたCsMPは、直径数 $\mu\text{m}$ ～数 $10\mu\text{m}$ 程度のSi、Fe、Zn、Csを主成分とした球状または非球状の微粒子であり、 $^{134+137}\text{Cs}$ 放射能は数ベクレル程度を示す。その $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は $\sim 1$ で、福島第一原発内で形成されて放出されたことを示し、水に溶けにくく環境中にミクロなホットスポットとして残留することが分かった。原発事故後10年以上、原子炉内を開けることができない状況だったが、宇都宮会員はCsMP内に取り込まれた内包物が炉内に関する有益な情報を保持していると考え、燃料デブリの性状把握に貢献する成果を挙げてきた。

宇都宮会員はまず、CsMPとともに存在する二種類のデブリ片をその原子像まで捉えた。一つは $\sim 70\text{nm}$ の $\text{UO}_{2+x}$ 粒子がエピタキシャル成長した $\sim 400\text{nm}$ の磁鉄鉱結晶に包まれており、磁鉄鉱に核分裂生成物であるTcやMoが収着していることから、原発内で徐々に冷えて固化したデブリの一部であることが分かる。二つ目は $\sim 200\text{nm}$ の(Zr, U) $\text{O}_2$ 共晶で、UとZrの混合比はU/Zr モル比 $0.14\sim 0.91$ であった。この共晶は高温安定相である等軸晶系の構造を示し、高温の熔融デブリが急冷された部分も存在したことが分かった。このように宇都宮会員は福島第一原発由来ウラン原子の可視化に加えてデブリ片の熱履歴を示すことにも成功した。

次に、SIMS分析によってCsMP個別粒子の同位体組成を初めて報告した。CsとBaの同位体には同位体干渉があり、イオン化効率が異なるために $^{134}/^{137}$ 質量比が放射能から計算される比とずれる。このずれからCsMPマトリックスに対するCs/Baイオン化効率係数を算出し、SIMS測定における同位体干渉を補正することに成功した。 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 同位体比はORIGENコードで理論計算された事故時点での平均燃焼度よりも低くなり、メルトダウン後も不均質なデブリの同位体組成が残ることを示した。その後のSIMS分析によってCsMPに含まれるプルトニウムの同位体比、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 、 $^{242}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の分析にも初めて成功した。これらは、理論計算から導かれる平均値とほぼ一致し、三号機で用いられていたMOX燃料の同位体比とは異なることを示した。さらに同じCsMPに対して透過電子顕微鏡観察と放射光マイクロX線分析を行い、Uの濃集部に $\text{UO}_{2+x}$ ナノ粒子が点在し、その一部は $\text{PuL}_3$ 吸収端を示したことから、Puがサブミクロンサイズで濃集し、酸化物として存在することを初めて明らかにした。XRFマップでZrの濃集点が多数分布していたことを考慮すると、Zr被覆管に近い照射燃料の縁に濃集したPu含有ウラン酸化物に由来すると考えられ、熔融燃料が大規模に熔融・均質化しなかった可能性を示した。

さらに、SIMSを用いてCsMPのB-Li同位体分析にも初めて成功している。 $^{11}\text{B}/^{10}\text{B}$ は $4.15\sim 4.21$ 、 $^7\text{Li}/^6\text{Li}$ は $213\sim 406$ と天然同位体比よりも高い値が測定され、制御棒中で起きた $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応の証拠を示した。これによって制御棒が揮発してCsMPに取り込まれた直接的な証拠が初めて示されるとともに、Bに対してLiがCsMPへ選択的に取り込まれること、また $^7\text{Li}$ の起源がほぼ核反応由来であることが定量的に示された。さらに関東地方に飛来した放射性プルームに含まれるCsMPの個数を大気フィルター上に計測される個数から計算し、CsMP中の平均B濃度から、放出されたBの量を算出し、原発にはほとんどすべての $\text{B}_4\text{C}$ が残っていることを初めて明らかにした。

続いて宇都宮会員は、これまでに成功例がない放射性Cs原子の可視化を試みた。3つのCsMPの中にCsを高濃度(27-36%以上)含有する粒子が含まれ、ゼオライトの一種であるポルサイトを同定した。これらの組成式は理想式のAlをFeで置換した組成が主だった。[111]から観察したポルサイトのHAADF-STEM像はポルサイト中のCs原子の六回対称の配列を示し、相対的な強度はシミュレーション像と一致した。Csと比べて同サイトに位置するBa、Kの濃度が低いこと、Cs同位体中の約5割が放射性Cs同位体であることを考えると、この像で可視化されたCs原子の半数は放射性Cs原子を示しており、世界初の放射性Cs原子の可視化に成功した。また、これらのポルサイト中の放射性Csによるβ線損傷エネルギーを計算したところ、非晶質化線量と比較して2桁以上低いため、結晶構造は長期間保持されることが予想された。これらの結果はメルトダウン時の炉内におけるCsの分配挙動に対する新しい知見であり、シビアアクシデント現象の詳細やデブリの性状把握に貢献する成果である。

一方で、CsMPは微小ながら放射能が $\sim 10^{11}$  Bq/gと高いためにその健康リスクが懸念され、周辺環境におけるCsMPの存在量を数値化することが望まれていた。宇都宮会員は、粒径分別と定量オートラジオグラフィ法を組み合わせながらCsMPの放射能閾値を設定することで、個数と全放射能に対する割合(RF値)を算出可能にし、CsMP定量法(QCP法)を新しく開発した。QCP法を用いて福島県内20地点の表層土壌中のCsMPを定量したところ、北西方向の原発近傍では22.1~101個/gでRF値が15.4~34.0%、北西遠方では24.3~64.8個/gでRF値36.7~37.4%、南方向では0.869~8.00個/gで27.6~80.2%となり、線量マップとは異なるCsMP分布図が示された。この分布図とプルームの動きから、CsMPの放出時期と寄与した号機の推定を初めておこなった。またCsMPの屋内への侵入を知るために、大熊町、熊町小学校内廊下の塵に対してQCPを適用し、1m<sup>2</sup>に最大に最大2481個のCsMPを計測し、RF値は~39%にまでなることが分かった。

CsMPを基軸とした上記一連の研究によって、宇都宮会員はこれまでに不可能であった多角的な情報、燃料デブリの不均質な同位体的特性、結晶学的特性、制御棒の反応に関する情報を抽出し、“真に知る必要がある”デブリの性状理解に貢献した。また、原子核工学、物質科学、地球環境科学分野を学際的に網羅しながら、卓越した先端分析技術をもつ国際的なチームを構築し、CsMP研究を深化させながら福島第一原発事故のメルトダウン現象、環境影響に関して革新的新事実を示してきた。一連の成果で2024年国際地球化学会環境科学分野の最高位、クレア・パターソン賞に選ばれるとともに、地球化学フェロー(国際地球化学会および欧州地球化学連合)に選出されている。また、2025年文部科学大臣表彰科学技術賞(研究部門)を受賞している。日本鉱物科学会ではこれらの成果を認め、宇都宮聡会員に2024年度日本鉱物科学会賞を授与するものである。

#### 宇都宮 聡 会員の主要論文

1. K. Miyazaki, M. Takehara, K. Minomo, K. Horie, M. Takehara, S. Yamasaki, T. Saito, T. Ohnuki, M. Takano, H. Shiotsu, H. Iwata, G. F. Vettese, M. P. Sarparanta, G.T.W Law, B. Grambow, R. C Ewing & S. Utsunomiya “Invisible” radioactive cesium atoms revealed: Pollucite inclusion in cesium-rich microparticles (CsMP) from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Journal of Hazardous Materials*, 470 (2024) 134104. doi.org/ 10.1016/j.jhazmat.2024.134104
2. K. Fueda, R. Takami, K. Minomo, K. Morooka, K. Horie, M. Takehara, S. Yamasaki, T. Saito, H. Shiotsu, T. Ohnuki, G. T. W. Law, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, Volatilization of B4C control rods in Fukushima Daiichi nuclear reactors during meltdown: B-Li isotopic signatures in cesium-rich microparticles. *Journal of Hazardous Materials*, 428 (2022)128214. doi.org/10.1016/j.jhazmat.2022.128214

3. K. Morooka, E. Kurihara, M. Takehara, R. Takami, K. Fueda, K. Horie, M. Takehara, S. Yamasaki, T. Ohnuki, B. Grambow, G. T.W. Law, J. W.L. Ang, W. R. Bower, J. Parker, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, New highly radioactive particles derived from Fukushima Daiichi Reactor Unit 1: Properties and environmental impacts, *Science of The Total Environment*, 773 (2021) 145639. doi.org/10.1016/j.scitotenv.2021.145639.
4. E. Kurihara, M. Takehara, M. Suetake, R. Ikehara, T. Komiya, K. Morooka, R. Takami, S. Yamasaki, T. Ohnuki, K. Horie, M. Takehara, G.T.W. Law, W. Bower, J. Frederick W. Mosselmans, P. Warnicke, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, Particulate plutonium released from the Fukushima Daiichi meltdowns. *Science of The Total Environment*, 743 (2020) 140539. doi.org/10.1016/j.scitotenv.2020.140539
5. R. Ikehara,\* K. Morooka,\* M. Suetake, T. Komiya, E. Kurihara, M. Takehara, R. Takami, C. Kino, K. Horie, M. Takehara, S. Yamasaki, T. Ohnuki, G. T. W. Law, W. Bower, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, Abundance and distribution of radioactive cesium-rich microparticles released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the environment. *Chemosphere*, 241 (2020) 125019. \* Two authors contributed equally. <https://doi.org/10.1016/j.chemosphere.2019.125019>
6. R. Ikehara, M. Suetake, T. Komiya, G. Furuki, A. Ochiai, S. Yamasaki, W. Bower, G. Law, T. Ohnuki, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, Novel method to quantify radioactive cesium-rich microparticles (CsMP) in the environment from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Environmental Science & Technology*, 52 (2018) 6390–6398. doi.org/10.1021/acs.est.7b06693.
7. A. Ochiai, J. Imoto, M. Suetake, T. Komiya, G. Furuki, R. Ikehara, S. Yamasaki, G. Law, T. Ohnuki, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya, Uranium dioxides and debris fragments released to the environment with cesium-rich microparticles from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Environmental Science & Technology*, 52 (2018) 2586–2594, doi.org/10.1021/acs.est.7b06309
8. J. Imoto\*, A. Ochiai\*, G. Furuki, M. Suetake, R. Ikehara, K. Horie, M. Takehara, S. Yamasaki, K. Nanba, T. Ohnuki, G. T. W. Law, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya. Isotopic signature and nano-texture of cesium-rich micro-particles: Release of uranium and fission products from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Scientific Reports*, 7 (2017) 5409. doi.org/10.1038/s41598-017-05910-z. \*Two authors contributed equally.
9. G. Furuki\*, J. Imoto\*, A. Ochiai, S. Yamasaki, K. Nanba, T. Ohnuki, B. Grambow, R. C. Ewing, & S. Utsunomiya. Cesium-rich micro-particles: A window into the meltdown events at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *Scientific Reports*, 7 (2017) 42731. \*Two authors contributed equally as the first author.
10. A. P. Novikov, S. N. Kalmykov, S. Utsunomiya, R. C. Ewing, F. Horreard, S. B. Clark, V. V. Tkachev, & B. F. Myasoedov. Colloid Transport of Plutonium in the Far-field of the Mayak Production Association, Russia. *Science*, 314 (2006) 638–641.

宇都宮 聡 会員の略歴

- 1995年3月 東京大学理学部 地学科 地質鉱物課程 卒業
- 1997年3月 東京大学大学院理学系研究科 鉱物学専攻 修士課程修了
- 2000年3月 東京大学大学院理学系研究科 鉱物学専攻 博士課程修了
- 2000年5月 東京大学総合研究博物館 協力研究員
- 2000年10月 Research Fellow, Nuclear Engineering and Radiological Sciences, University of Michigan
- 2004年8月 Research Fellow, Geological Sciences, University of Michigan
- 2004年11月 Assistant Research Scientist, Geological Sciences, University of Michigan
- 2007年4月 九州大学大学院理学研究院化学部門 准教授
- 2025年8月 国立台湾大学 地球科学科 教授（玉山学者）
- 現在に至る