

放射性微粒子の謎に迫る



山口 紀子

1 はじめに

過去の原子力発電所の事故や大気圏内核実験では、放射性セシウム (Cs) の大部分はガスとして放出されたと考えられている。ところが、東京電力福島第一原子力発電所の事故 (福島原発事故) では、放射性 Cs が、ガスだけでなく難溶性の微粒子としても原子炉から放出されたことを示す証拠が得られてきた。これは、チェルノブイリ原子力発電所事故により放出された粒子状物質であるホットパーティクル¹⁾とは異なる性状のものであった。放射性 Cs を含む微粒子とはどのようなものなのか、その正体と性質をつかむためには、微小領域の分析が可能な手法による多角的なアプローチが必要となる。本稿では、放射性微粒子の発見から構造の解明に至るまで、どのような分析手法が用いられてきたか、またそれによりどのようなことがわかってきているかについて解説する。

2 不均一かつスポット状に沈着した放射性 Cs

イメージングプレート (IP) を用いたオートラジオグラフィにより、放射性核種の強度分布を二次元で捉えることができる。福島原発事故由来のプルームの大気沈着を受けた植物の葉²⁾や土壌³⁾には、図 1 に示すように放射性核種が不均一かつスポット状に分布していた。これらのスポット状に存在する放射性核種は、水や酸などに浸潤した後も溶解せずに残っていたことから、難溶性の粒子である可能性が指摘されていた⁴⁾。また、ゲルマニウム半導体検出器により、このスポット状に分布する放射性核種は放射性 Cs が主体であることが確認された。

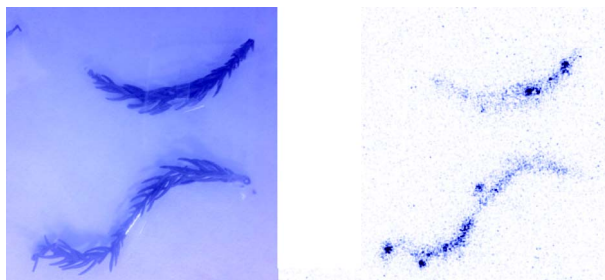


図 1 福島県内で 2011 年 8 月に採取したスギの葉のイメージングプレートオートラジオグラム (感光時間: 1 時間, Typhoon FLA 7000, GE Healthcare)

Approach to Identify Radioactive Particles.

IP は、富士フイルム㈱によって開発された、輝尽性蛍光現象を利用した放射線記録媒体である。輝尽性蛍光体 (BaFBr:Eu²⁺) では、X 線やβ線などの放射線のエネルギーの照射により電子が準安定状態に励起される。これにレーザー光を照射すると、輝尽性蛍光とよばれる光が放出される。IP 表面をレーザー光で走査しながら輝尽性蛍光を検出することにより、IP を感光させた放射性物質の二次元分布と強度をデジタル化した画像を得ることができる。IP 及びその読み取り装置が発売されたのはチェルノブイリ事故後の 1987 年のことである。それ以前はオートラジオグラフィには X 線フィルムが用いられていた。IP は X 線フィルムの 100 倍~1000 倍の高感度で放射線の検出が可能であるといわれる。すなわち福島原発事故は、原子炉から広域に飛散した放射性核種の環境試料上における二次元分布を、IP によってはじめて高感度に検出できた事例であるといえる。

3 走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線検出器による放射性微粒子の同定

走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線検出器 (SEM-EDS) を用いて放射性微粒子の同定にはじめて成功したのは、Adachi ら⁵⁾のグループである。Adachi ら⁵⁾は、2011 年 3 月 14 日~15 日に茨城県つくば市で採取されたエアロゾルフィルターに、放射性核種が不均一かつスポット状に分布していることを IP オートラジオグラフィにより見いだした。しかしエアロゾルフィルター上には、放射性微粒子以外にも様々な粒子が存在している。そこでフィルターを細分化し、IP に感光させることで、フィルター片上の放射性微粒子を含む部位を 1 mm 角程度にまで絞り込んだ。さらにカーボンテープ上にフィルター片を載せ、光学顕微鏡下でマイクロコンピュータを用いて放射性 Cs を含む断片を分割していった。このような分離過程を経たあとも、SEM の視野内には多数の粒子が存在しているため、放射性 Cs を含む微粒子を電子顕微鏡下で特定するには以下の様な反射電子像を用いた。

試料に電子ビームを照射すると、入射電子の一部が試料表面から反射電子として放出される。反射電子の放出量は、試料の平均原子番号が大きいほど多い。Cs は原子番号 55 であり、エアロゾルを構成する元素の中では比較的原子番号が大きい。反射電子の強度が強い (= 反射電子像で明るく見える) 粒子を選択して EDS のスペクトルを取得し、Cs の特性 X 線が検出される粒子を特

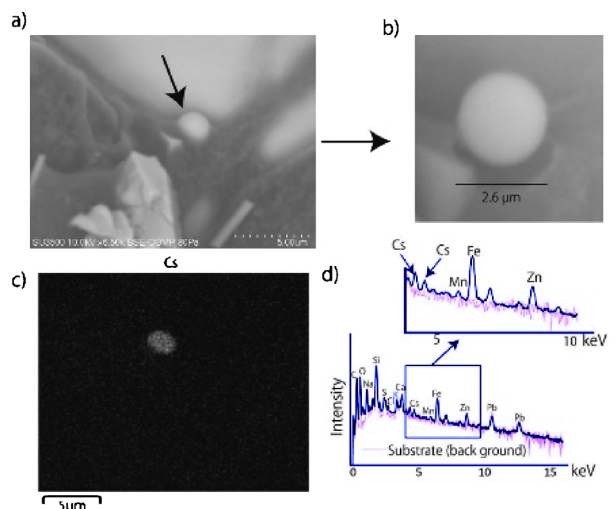


図 2 走査型電子顕微鏡-エネルギー分散型 X 線検出器により同定された放射性微粒子 (Adachi et al⁵⁾)

定した。

以上のような手法により見つかった微粒子は、直径が約 2.6 μm の球状であり、2011 年 3 月時点の放射能として 1 粒子あたり 3.3 Bq の ^{137}Cs を含んでいた (図 2)。また、Cs 以外に Fe, Zn, Mn, Cl などが検出された。類似の粒子が、東京電力福島第一原子力発電所、3 号機のオペレーションフロア上で採取されたダストフィルターからも発見されている⁶⁾。

放射性微粒子の構成元素と化学状態

Abe ら⁷⁾は、Adachi ら⁵⁾が見つけたエアロゾルフィルター上の放射性微粒子を、さらにシンクロトロン放射光源 X 線マイクロビーム蛍光 X 線分析 (μXRF) および X 線吸収スペクトル近傍構造 (μXANES) により分析した。

シンクロトロン放射光源 X 線を励起源に用いることで高感度な蛍光 X 線分析が可能である。X 線のエネルギーが可変であることから、分析対象元素の吸収端の直上の最も蛍光 X 線の発生確率の高いエネルギーの X 線を用いることができる。さらに輝度と指向性が高いため、X 線を細く絞っても試料上での強度を十分に保つことができ、局所分析への応用にも適している。SPring-8 BL37XU においてビーム径 1 μm の入射 X 線 (7.0~37.5 keV) で放射性微粒子に含まれる元素を励起し蛍光 X 線スペクトルを得た。Cs のほか Fe, Zn, Rb, Zr, Mo, Sn, Sb, Te, Cs, Ba, In が含まれており、U が含まれている粒子も存在した。これらの元素はすべて核分裂生成物、あるいは原子炉に使用されていた元素と一致していた。すなわち放射性微粒子は、原子炉内で生成した可能性が高い。

X 線のエネルギーに対し吸光度をプロットした X 線吸収スペクトルは、元素固有のエネルギー (吸収端) で急激に立ち上がる。吸収端前 50 eV から吸収端後 200 eV 程度の領域が XANES であり、X 線を吸収した原子の電子構造、吸収原子に配位する原子の配置の対称性などに対応する。放射性微粒子中の Fe, Zn, Mo, Sn の酸化数はそれぞれ +3 価、+2 価、+6 価、+4 価であること、また放射性微粒子中のこれらの元素の XANES スペクトルは合成ガラス中の元素の XANES と類似していたことから、放射性微粒子は、ガラス状態であることが示唆された。

放射性微粒子とホットパーティクルおよび放射性 Cs を吸着した土壌粒子との違い

帰還困難区域内の未除染土壌から、最大で直径約 6.4 μm 、粒子あたりの ^{137}Cs 放射能 67.5 Bq の放射性微粒子が見つかった⁸⁾。Sato ら⁸⁾は、放射性微粒子の体積あたりの ^{137}Cs 放射能はほぼ一定であり、粒子あたりの ^{137}Cs 放射能 = $2 \times 10^{16} \times [\text{粒子体積 cm}^3]^{1.43}$ の関係があることを明らかにした。これに対し、チェルノブイリ原子力発電所事故時に同定されたホットパーティクルの粒子あたりの ^{137}Cs 放射能は $4 \times 10^7 \times [\text{粒子体積 cm}^3]^{0.74}$ であった⁹⁾。ホットパーティクルと比較し、福島原発事故由来の放射性微粒子のほうが、より多くの放射性 Cs を濃縮した粒子である。このことから、放射性微粒子は、核燃料の破片であるホットパーティクルとは異なるプロセスで生成し、放出されたものであると考えられる。

直径 2 μm の球状の放射性微粒子が粒子あたり 1 Bq の ^{137}Cs 放射能をもち、同組成のガラスの組成を 2.7 g/cm³ とすると、重量あたりの放射能濃度は約 87 MBq/kg となる。この濃度は、汚染土壌中の ^{137}Cs 濃度よりもはるかに高い。したがって、土壌は、放射性微粒子のみによって汚染されているわけではないといえる。Mukai ら¹⁰⁾は、福島県飯舘村で採取された土壌粒子を

IP で感光させ、放射性 Cs を濃縮している粒子をマイクロコンピュータにより単離した。単離した粒子は、粘土の凝集体、有機物-粘土複合体、風化雲母であった。しかし、放射性 Cs を濃縮したこれらの土壌粒子には、蛍光 X 線スペクトルにより検出可能な量の Cs は含まれていなかった。

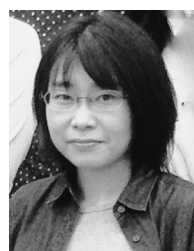
Kaneyasu ら¹¹⁾は、放射性 Cs は、可溶性の硫酸エアロゾルを担体として輸送されたと報告している。また、Adachi ら⁵⁾が 2011 年 3 月 20~21 日につくば市で採取したエアロゾルに含まれていた放射性 Cs の大部分は水溶性であった。関東地方では放射性 Cs の大部分が、3 月 20 日ごろの降雨により沈着したものであることから、現在土壌中に残存する放射性 Cs のほとんどは水溶性で沈着したものに由来すると考えられる。しかし、原発周辺地域では、雨などの湿性沈着よりも乾性沈着に由来する放射性物質が地表に沈着した割合が高く¹²⁾、放射性微粒子の沈着割合も高かった可能性がある。

4 おわりに

放射性微粒子には、高濃度の放射性 Cs を 1 粒子に濃縮しているという特徴がある。再浮遊や、それが地表に再沈着した場合のインパクトは、放射性 Cs を吸着した土壌粒子に比べて大きい。粒子がケイ酸塩ガラスを主体とするため、短期間では溶解しないが、環境中で徐々に風化・溶解が進み、放射性 Cs を放出する可能性がある。原子炉からの放出量、分布状況および沈着量、風化速度、生体影響等、放射性微粒子には未解明の点が多い。今後多角的なアプローチによる実態解明が望まれる。

文 献

- 1) F. J. Sandalls, M. G. Segal, N. Victorova: *J. Environ. Radioactiv.*, **18**, 5 (1993).
- 2) H. Nakanishi, H. Tanaka, K. Takeda, K. Tanoi, A. Hirose, S. Nagasaka, T. Yamakawa, S. Mori: *Soil Sci. Plant Nutr.*, **60**, 801. (2014).
- 3) S. Itoh, T. Eguchi, N. Kato, S. Takahashi: *Soil Sci. Plant Nutr.*, **60**, 540. (2014).
- 4) K. Tanaka, H. Iwatani, A. Sakaguchi, Y. Takahashi, Y. Onda: *J. Radioanal. Nul. Chem.*, **295**, 2007 (2013).
- 5) K. Adachi, M. Kajino, Y. Zaizen, Y. Igarashi: *Sci. Rep.*, **3**, 2554 (2013).
- 6) 東京電力 (2015). http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/handouts/2015/images/handouts_150512_06-j.pdf (2016 年 10 月 27 日確認)
- 7) Y. Abe, Y. Iizawa, Y. Terada, K. Adachi, Y. Igarashi, I. Nakai: *Anal. Chem.*, **86**, 8521 (2014).
- 8) Y. Satou, K. Sueki, K. Sasa, K. Adachi, Y. Igarashi: *Anthropocene*, doi:10.1016/j.anucene.2016.05.001 (2016).
- 9) V. Tcherkezian, V. Shkinev, L. Khitrov, G. Kolesov: *J. Environ. Radioactiv.*, **22**, 127 (1994).
- 10) H. Mukai, T. Hatta, H. Kitazawa, H. Yamada, T. Yaita, T. Kogure: *Environ. Sci. Technol.*, **48**, 13053 (2014).
- 11) K. Kaneyasu, H. Ohashi, F. Suzuki, I. Okuda, F. Ikemori: *Environ. Sci. Technol.*, **46**, 5720 (2012).
- 12) G. Katata, M. Ota, H. Terada, M. Chino, H. Nagai: *J. Environ. Radioactiv.*, **109**, 103 (2012).



山口紀子 (Noriko YAMAGUCHI)

国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構農業環境変動研究センター (〒305-8604 茨城県つくば市観音台 3-1-1)。東京農工大学連合農学研究科博士課程修了。博士 (農学)。《現在の研究テーマ》土壌-植物系における有害化学物質の挙動解明。《主な著書》「土壌環境中の有害元素の挙動」(博友社)。《趣味》ジャズピアノ。