

大気粉塵中の強放射性物質の放射光 X 線分析

東京理科大学 理学部 中井 泉

1. はじめに

科学技術の進歩の産物である福島原子力発電所の重大事故が国民に与えた影響はきわめて大きく、深刻かつ長期的であり、事故に伴う環境汚染の真相を解明することは科学者の責務である。放射性の大気粉塵の起源解明は、現在我が国の多くの研究者がチャレンジしているが、放射光マイクロビーム X 線分析は、数ミクロンレベルの微小粒子の素性を非破壊で解明するのに最も有効な方法である。

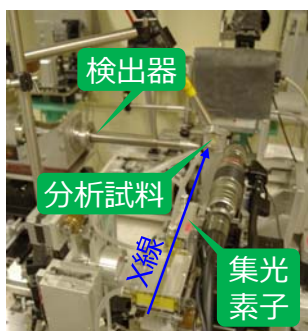
3月11日の福島第一原子力発電所の事故に伴って初期の段階(3月14~15日)で放出された放射性物質を含む大気粉塵を、その当時つくばの気象研究所でフィルター上に捕集していたものを試料として用いた。フィルターからの分離作業を行った放射性物質を含む球状粒子を試料とし、化学組成をマイクロ XRF イメージングにより明らかにし、さらに特徴的な組成の粒子に対してマイクロ XAFS/XRD による化学状態/結晶構造の情報と形態的知見を組み合わせれば、大気粉塵微粒子を同定し、各々の元素の起源を解明に役立つ情報がえられる。なお、すでに SEM-EDS を用いた K. Adachi ら(2013)の研究¹⁾により、本粒子は Cs を含有することが明らかにされている。

2. 放射光 X 線分析

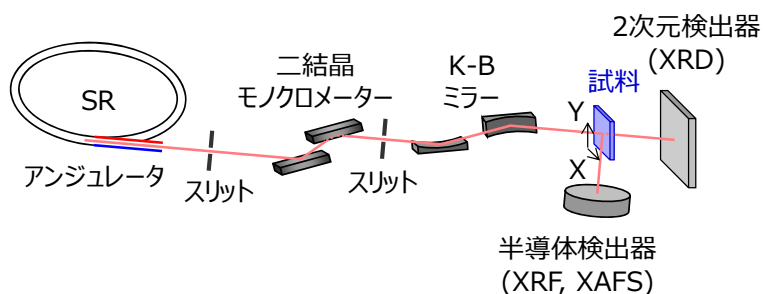
測定は、SPring-8 BL37XU にて $1 \mu\text{m}$ 以下に集光した X 線を用い、低エネルギーと高エネルギーの2つの実験モードで、非破壊で X 線複合分析を行った。図1に用いた測定システムを示す。それぞれの分析の目的は以下の A, B, C となる。

- A. 蛍光 X 線分析 (XRF) : 化学組成およびその分布の分析
- B. X 線吸収微細構造 (XAFS) : 特定の元素の化学状態分析
- C. 粉末 X 線回折 (XRD) : 1 粒子レベルでの結晶構造分析

高エネルギーモードでの測定には、Si(111)の二結晶分光器で $36\sim 37.5 \text{ keV}$ / $17\sim 37.5 \text{ keV}$ に単色化し K-B ミラーを用いて $0.8 \mu\text{m(V)}\times 1.3 \mu\text{m(H)}$ / $1.0 \mu\text{m(V)}\times 1.2 \mu\text{m(H)}$ に集光した X 線を蛍光 X 線イメージングに使用し、検出器には Si-(Li)SSD を用



(a)



(b)

図1 放光複合分析システム (a) 実験風景 (b) BL37XU の光学系

いた。さらに、同様のマイクロビームを照射光とし、X線フラットパネルセンサを検出器とするX線回折測定システムを用いて、25 keVでマイクロXRD測定を行った。また、検出された複数の元素についてマイクロXAFS測定を行った。

低エネルギーモードでの測定には、Si(111)の二結晶分光器で約7.0~15.0 keVに単色化し、K-Bミラーを用いて0.6 μm (V) \times 0.8 μm (H)に集光したX線を蛍光X線イメージングに使用し、検出器にはSDDを用いた。さらに、検出された複数の元素についてマイクロXAFS測定を行った。また、各々の粒子でフラットパネルセンサを用いてマイクロXRD測定を行った

3. 測定対象試料

研究対象は、2011年3月の東日本大震災の際に発生した福島原子力発電所事故の前後に捕集した大気粉塵のフィルター試料である。2011年3月11日以降、3月中に茨城県つくば市の気象

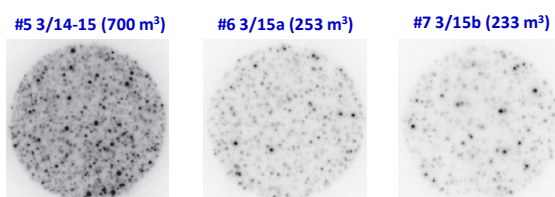


図2 IPに写った強放射性物質のイメージ

研究所研究露場(地上)と本館屋上で、HVサンプラー(柴田科学)とLVサンプラー(サーモサイエンティフィック)により石英フィルターに採取されたものの中で、特に高い放射線強度を示した3月14-15日の試料中の分離作業によりされた強放射性粒子を用いた。放射性物質を含む何らかの粒子がフィルター上に散在しており(約0.14 $\mu\text{Sv/h}$)、フィルター捕集試料をイメージングプレート(IP)と接触させて露光させたものが図2である。IP上に強放射性粒子が明瞭にイメージされることから、放射光マイクロビームXRFイメージングの利用が有効である。本試料からマイクロマニピュレーターで1粒子をサンプリングして放射光実験に用いた。

4. 結果

マイクロXRFイメージングの結果、Csの存在が明瞭に示された他、以下に示した元素が球状の粒子内に均一に分布していることが分かった。

高エネルギーモード：Ca, Pb, Ba, Te, Sn, Mo, Zr, Rb, Zn, Fe

低エネルギーモード：Fe, Mn, Cr, Zn, As, Br, Rb, Pb

点分析の結果より特徴的な元素を選択し、マイクロXANES測定により化学状態分析を行った。測定を行った元素は高エネルギーモードでMo, Sn, Cs, 低エネルギーモードでFe, Znである。Mo, Fe, Znではガラス状態で存在していることが明らかとなった。一方、マイクロXRD測定により粒子の結晶状態の解析を行った。その結果、粒子は回折線を与えなかったことから、アモルファスであると判断した。今後、これらの物質科学情報を組み合わせることで、強放射性粒子の起源について考察する。

【謝辞】本研究は、科研費新学術領域「福島原発事故により放出された放射性核種の環境動態に関する学際的研究」A01-02 班の活動の一環として行い、阿部善也、飯澤勇信、足立光司、五十嵐康人との共同研究の成果である。記して謝意を表す。

参考文献 1) K. Adachi *et al.*: *Scientific Reports* **3**, Article number: 2554 (2013).