



## 福島原子力事故関連情報アーカイブ

Fukushima Nuclear Accident Archive

Title	X線分析で物質の起源を探る - 土砂データベースから福島第一原子力発電所由来放射性大気粉塵まで
Alternative_Title	Study on the history of material through x-ray analysis - Development of forensic soil database and analysis of individual radioactive micro-particles emitted from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident
Author(s)	中井 泉(東京理科大学) Nakai, Izumi(Tokyo Univ. of Science)
Citation	第52回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集, p.157-158 52nd Annual Meeting on Radioisotope and Radiation Researches
Subject	セッション：特別講演
Text Version	Publisher
URL	<a href="http://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/80942">http://f-archive.jaea.go.jp/dspace/handle/faa/80942</a>
Right	© 2015 Author
Notes	禁無断転載 All rights reserved. 「第52回アイソトープ・放射線研究発表会要旨集」のデータであり、発表内容に変更がある場合があります。



# X線分析で物質の起源を探る ～土砂データベースから福島原発由来放射性大気粉塵まで～

Study on the history of material through X-ray analysis

～ Development of forensic soil database and analysis of individual radioactive micro-particles emitted from the Fukushima nuclear accident ～

東京理科大学・理学部

○中井 泉  
(NAKAI, Izumi)

## 1. はじめに

物質は時間の流れの中で、点ではなく線の存在で、その存在は様々な因果関係の糸で結びつけられている。ある物質の起源を考えると、その物質には誕生から現在までの歴史がある。著者はこれを物質の歴史、物質史と呼んでいる。そして、物質の中には、その起源と現在にいたるまでの履歴の情報が、微量元素組成、同位体組成、鉱物組成などの物質史の情報として潜在している。そして物質史の情報は、高感度な分析により読み出すことができる。筆者らは、その情報を読み出し、活用する研究を行っている。今日のお話のひとつは法科学土砂データベースの開発で、完成すれば犯罪現場に残された微量の土から、事件が日本のどこでおこったかを推定することが可能になる。もう一つは、福島第一原発事故により大気中に放出された強放射性微粒子を、SPring-8の放射光を使って分析した研究で、わずか2ミクロンの微小粒子から事故当時の原子炉の情報を読み出そうという試みである。筆者は、分析は物質との対話の手段であり、分析により物質の物語を聴くことができると考えている。

## 2. 日本全国法科学土砂データベースの開発<sup>1)</sup>

法科学試料では、土砂は事件の場所を特定する重要証拠となりうるが、土砂の起源の解明には特別な技能が必要で、日本でそれができる人はほとんどいない。そこで、特に経験がなくても、少量の土砂試料からその採取地域を推定できる法科学土砂データベースの開発を、著者らの研究室では5年がかりで行っている。日本の国土は多様な地質を持ち、土砂の鉱物組成と重元素組成により、その地域の特性化が可能である。試料は、産業技術総合研究所が元素の地球化学図作成のために収集した3024箇所の河川堆積物を利用させていただいた。重鉱物組成は、比重2.85の重液で重鉱物を分離した試料に対し、SPring-8の高輝度放射光単色X線を照射し全自動粉末X線回折測定システムの利用により極微量の試料で高分解能の粉末回折データを1日130試料収集して、鉱物組成を半定量的に求めた。

地域の特性化に有効な重元素組成は、116 keVの高エネルギーX線を蛍光X線分析の励起光に用いること

で、Uまでの重元素を1日100試料、高感度に分析した。両手法を用いて、全データの測定が本年終了し、重鉱物の相対濃度分布と、重元素分布を日本地図上にマップとして可視化することができた。図1は角閃石のマップの例である。さらに、統計的手法等を導入することで、未知資料の同定法の開発を進めており、2年以内に放射光X線分析技術による世界初の科学捜査用データベースが完成する見通しである。

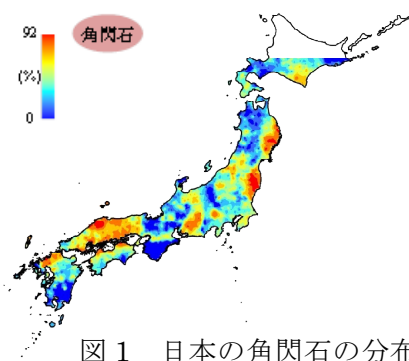


図1 日本の角閃石の分布図

### 3. 放射光複合X線分析による福島第一原発事故由来大気粉塵中の強放射性物質の起源解明<sup>2)</sup>

2011年3月の福島第一原発事故で、多量の放射性物質が大気中に放出されたが、その放射性物質の実体は不明であった。事故直後につくば市の気象研究所で大気粉塵フィルター上に捕集された大気粉塵は、IPを接触させると感光した(図2)。マイクロマンピュレーターを用いてその強放射性物質を採取し、SEM-EDS分析すると、放射性Csを主成分として含む直径2 $\mu\text{m}$ 程度の球状粒子(通称Csボール)であることが明らかになった(図3左)<sup>3)</sup>。我々は、そのCsボールから、事故当時の状況を読み出すために、SPring-8の1 $\mu\text{m}\phi$ の高輝度X線マイクロビームを励起光とする複合X線分析技術を導入し、重元素に着目して分析を行った。

試料は、気象研究所のCsボールと、我々が2014年4月に福島県内の学校の屋外プールで採取した堆積物中から分離されたCsボールである。 $\mu\text{-XRF}$ の結果、Cs以外にもRb, Mo, Snなどの重元素が検出され、一部の粒子には核燃料のUが含まれることを見出した<sup>2)</sup>。Sn, Mo, Zn, Feの4元素について、 $\mu\text{-XANES}$ による化学状態分析を行ったところ、いずれの粒子においても、図4に示すようにFeは3価、Moは6価と高酸化数のガラス状態で存在していることが明らかになり、X線回折でも粒子は非晶質であった。この結果は、核燃料や核分裂生成物を含むPM2.5と同サイズの粒子が、事故直後首都圏まで飛散し、事故後4年以上が経過した今日においても、ガラス状態で環境中に安定に残留していることを示している。

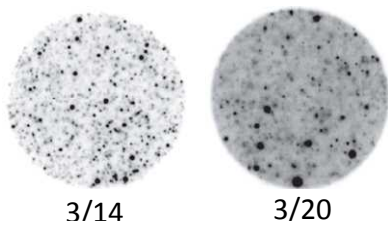


図2 事故直後に採取した大気粉塵のIP写真  
粉塵フィルターのIP写真

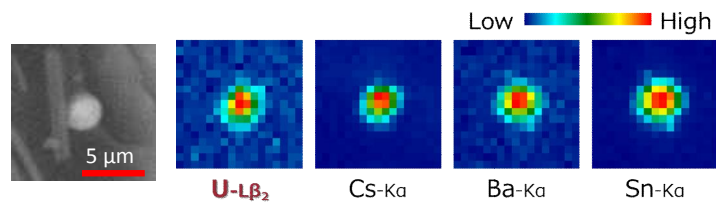


図3 CsボールのSEM像(左)と蛍光X線イメージング(右)

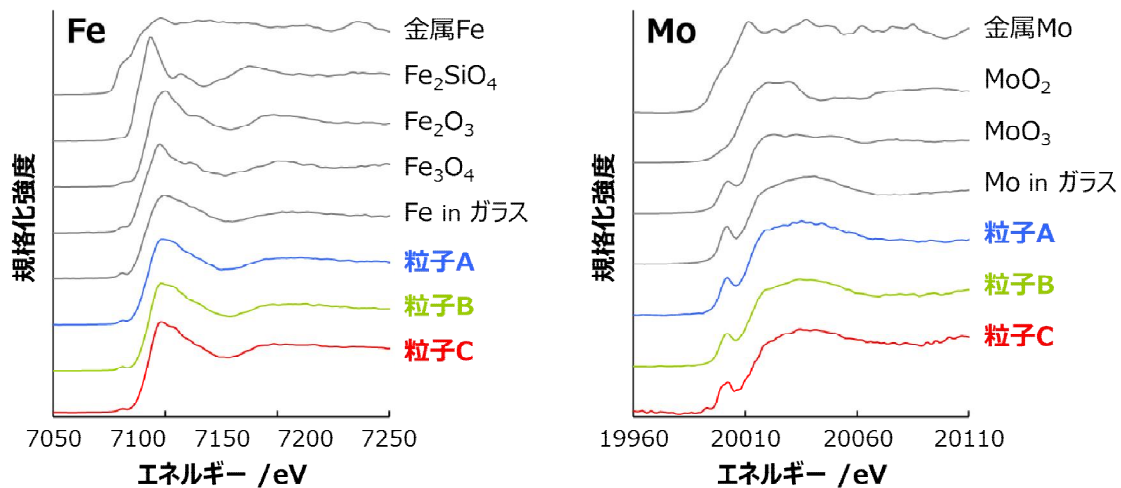


図4 Csボールと参照物質の $\mu\text{-XANES}$ スペクトルの比較(左:Fe-K吸収端, 右:Mo-K吸収端)

- 1) Quantitative analysis of heavy elements and semi-quantitative evaluation of heavy mineral compositions of sediments in Japan for construction of a forensic soil database using synchrotron radiation X-ray analyses. I. Nakai, S.Furuya, W.Bong, Y.Abe, K.Osaka, T. Matsumoto, T.Ninomiya, X-ray Spectrometry, 43,1, 38-48 (2014)
- 2) Detection of uranium and chemical state analysis of individual radioactive micro-particles emitted from the Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron radiation X-ray analyses. Y.Abe, Y.Iizawa, Y.Terada, K.Adachi, Y.Igarashi, & I.Nakai, Analytical Chemistry, 86(17), 8521-8525. (2014)
- 3) Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident. K. Adachi M. Kajino, Y.Zaizen and Y. Igarashi, Sci. Rep. 3(2013) 2554