

福島表層環境に存在する高濃度セシウム含有微粒子の 原子スケール特性とその環境動態

Migration in environment and atomic scale properties of the particle containing high concentration of
radioactive cesium present in Fukushima

*古木 元気¹, 井元 純平¹, 落合 朝須美¹, 山崎 信哉², 難波 謙二³,
大貫 敏彦⁴, Bernd Grambow⁵, Rodney C. Ewing⁶, 宇都宮 聡¹
¹九大院理, ²筑波大, ³福島大, ⁴東工大, ⁵ナント大, ⁶スタンフォード大

熊川河口堆積物、河川流域表層土壌から福島第一原発由来の高濃度放射性セシウム含有微粒子(CsMP)を単離し、原子スケールで解析したところ、内部組織は他の CsMP と同様に Fe-Zn 酸化物ナノ粒子の凝集体が SiO₂ のマトリックスに覆われていた。河川流域と河口堆積物で同様の粒子が検出されたことから、CsMP の表層における動態が明らかになり、その後の海洋への流出が示唆された。

キーワード：高濃度放射性セシウム含有微粒子

1. 緒言

福島原発由来の放射性 Cs は土壌中の粘土鉱物に吸着し、環境中を移行していると考えられてきた。その中で高濃度放射性セシウム含有微粒子(CsMP)は環境中における放射性セシウムの移行に関して、これまでとは異なる重要な要素であると考えられる。しかし CsMPs の詳細な内部構造や移行形態は明らかになっていないため、本研究では熊川河口堆積物、河川流域表層土壌から CsMPs を検出し、電子顕微鏡技術を用いたナノスケール分析により、CsMPs の内部構造、構成元素、元素分布を明らかにすることで、環境中における放射性セシウムの化学形態と移行挙動を解明することを目的とした。

2. 実験

本研究では、福島県で採取した土壌と河川堆積物から CsMPs を単離した。各々の試料のオートラジオグラフィ測定を行い、放射能の強いスポットをカーボンテープで分取した。そのカーボンテープを細分化して走査型電子顕微鏡とエネルギー分散型 X 線分光装置により粒子を検出した。ゲルマニウム半導体検出器を用いて放射能を測定した後、集束イオンビームにより粒子を 200 nm 以下まで薄片化した。その超薄切片を透過型電子顕微鏡(TEM)を用いて詳細に分析した。

3. 結果および考察

γ 線測定の結果から、CsMPs の単位質量当たりの放射能が福島の環境土壌に比べて 10^{7-8} 倍であることが分かった。TEM-EDX の分析結果から CsMPs の主な構成元素として O, Si, Fe, Zn, Cs, Sn, Rb, Cl, Mn が検出され、これらの元素は粒子内部に不均質に分布していた。また高分解能 TEM 観察により、CsMPs のマトリックスは非晶質な SiO₂ で構成されており、その内部には Fe, Zn からなる結晶性を持つナノ粒子が取り込まれていることが明らかになった。ナノ粒子の EDX 分析により Fe-Zn に相関関係が見られ、フランクリナイト(ZnFe₂O₄)の存在が示唆された。さらに粒子内部において CsCl および CsOH の内包物が同定された。以上の結果から、環境中の CsMPs 内部における Cs の化学状態が明らかになった。またこれらの粒子は同様の元素由来、形成過程を経ていると考えられ、環境中における CsMPs の土壌から河川への移行プロセスとその後の海洋への流出が示唆された。

*Genki Furuki¹, Junpei Imoto¹, Asumi Ochiai¹, Shinya Yamasaki², Kenji Nanba³, Toshihiko Ohonuki⁴, Bernd Grambow⁵, Rodney C. Ewing⁶ and Satoshi Utsunomiya¹

¹Kyushu Univ., ²Tsukuba Univ., ³Fukushima Univ., ⁴Tokyo Inst.Tech., ⁵Nantes Univ., ⁶Stanford Univ.