

福島第一原子力発電所事故によって放出された放射性微粒子のシンクロトロン放射光マイクロビームを利用した複合 X 線分析によるウランの検出及び元素の化学状態分析

紹介者氏名：栗原 雄一

受理日：2017年10月2日（理事会の承認日）

<紹介論文>

Abe Y. et al.

Detection of uranium and chemical state analysis of individual radioactive microparticles emitted from the Fukushima nuclear accident using multiple synchrotron radiation X-ray analyses

Analytical Chemistry 86 (17), 8521-8525 (2014)

<概要>

本論文は、2011年3月の福島第一原子力発電所事故によって大気中に放出された「セシウム (Cs) を多く含む放射性微粒子 (以下、セシウムボール)」がどのような化学的性状のものであるのかを明らかにするために、シンクロトロン (SR) 放射光マイクロビームを利用した複合的な X 線分析の結果をまとめたものである。

<セシウムボールについての確認>

セシウムボール (通称) は、つくば市の気象研究所で2011年3月14日から2011年3月15日の間にサンプリングされたエアロゾル試料のフィルターから見つかった粒径数マイクロメートルの放射性微粒子である (Adachi et al., 2013)。Adachi et al. (2013)では、この放射性微粒子について、ゲルマニウム半導体検出器、走査型電子顕微鏡及びエネルギー分散型 X 線分析装置による分析を行うことにより、セシウムボールが、その名前の通り放射性セシウム (^{137}Cs で1粒子あたり数 Bq) とともにケイ素 (Si)、鉄 (Fe) 及び亜鉛 (Zn) を多く含む球形の放射性微粒子であることを明らかにしている。また、水に不溶性を持つことも明らかにしている。現在までに、同様のセシウムボールはエアロゾル試料だけでなく、土壌などの環境試料中からもいくつか発見されている。

<方法>

事故直後につくば市の気象研究所で採取されたセシウムボール (3粒子) について、SPRING-8 のビームライン BL37XU においてビーム径を $1\ \mu\text{m}$ 以下に集光した X 線を用いて、シンクロトロン放射光マイクロビーム蛍光 X 線分析 (SR- μ -XRF)、シンクロトロン放射光マイクロビーム X 線回折分析 (SR- μ -XRD) 及びシンクロトロン放射光マイクロビーム X 線吸収端近傍構造分析 (SR- μ -XANES) を行うことにより、セシウムボールに含まれる重元素の存在、セシウムボールの結晶構造及びセシウムボールに含まれるいくつかの元素の存在状態をそれぞれ明らかにした。

<結果>

SR- μ -XRF 分析により得られたスペクトルより、セシウムボールにはセシウムの他に核燃料及び核分裂生成物に由来すると考えられるウラン (U)、ルビジウム (Rb)、ジルコン (Zr)、モリブデン (Mo)、銀 (Ag)、スズ (Sn)、アンチモン (Sb)、テルル (Te) 及びバリウム (Ba) などの存在が明らかになった。また、Adachi et al. (2013)によって示された原子炉構成物に由来すると考えられる Fe や Zn に加えて、クロム (Cr) 及びマンガン (Mn) の存在も明らかとなった。一方、SR- μ -XRD 及び SR- μ -XANES 分析の結果からは、セシウムボールはガラス状 (非晶質) 物質で、セシウムボールに含まれるいくつかの元素は高酸化状態 (Fe^{3+} 、 Zn^{2+} 、 Mo^{6+} 及び Sn^{4+}) にあることが示された。セシウムボール中の U の存在に関しては、SR- μ -XRF 分析の結果だけでなく、SR- μ -XANES のスペクトル分析の結果も合わせることで、3 粒子中 2 粒子に存在していることが確認された。

<結論>

シンクロトロン放射光マイクロビームを利用した複合 X 線分析によって得られた結果から、事故当時の原子炉内は、比較的揮発性の高いセシウムだけでなく、核燃料そのものである U や核分裂生成物及び原子炉構成物が混合された状態にあり、それが大気中に放出され急冷されたことによりガラス状態のセシウムボールが生成された可能性が示された。このようなシナリオはメルトダウンした核燃料が圧力容器の底を抜けて落下したとする炉内事象に関する指摘を化学的に支持するものと言える。

<所見>

本論文の特筆すべき点は、粒径数マイクロメートルの微粒子に対して非破壊の X 線分析を行うことにより、事故当時の原子炉内の状況や原子炉内の放射性物質がどのようにして大気中に放出されたのかなどについての情報を数多く得たことにある。これらの結果は、福島原子力発電所の事故によって放出された放射性物質の環境や人体への健康影響だけでなく、放射性物質の放出メカニズムの解明・理解にとって重要な知見であると言える。特に U の検出は非常に重要であり、核燃料そのものである U が大気中に放出される程度に原子炉が破損していた可能性を示すものである。