

## 福島原発事故直後に東京で捕集した大気降下物中の 球状酸化鉄の走査型電子顕微鏡観察

前野 智和<sup>a</sup>

東日本大震災に起因する福島原発事故では、多くの放射性物質が大気中に放出された。当センターでも、都内の水道水や大気降下物などに含まれる放射能を測定し、セシウムを含む放射性核種を検出した。原発事故直後に都内で捕集した放射性セシウムを含む大気降下物を、走査型電子顕微鏡を用いて観察し、粒径が9.03~1.60 $\mu\text{m}$ の粒子を5個発見した。エネルギー分散形X線分光分析の結果から、これらは純粋な球状酸化鉄と考えられた。結晶粒が融着していることやセシウムボールと同形の球状であることから、酸化鉄粒子の生成時には、融点近くの極めて高温まで熱せられたものと推察された。

**キーワード**：福島原発事故，大気降下物，走査型電子顕微鏡，球状酸化鉄，セシウムボール

### はじめに

平成23年3月11日に起きた東日本大震災により、福島第一原子力発電所で事故があり、多くの放射性物質が大気中に放出された。東京都健康安全研究センター（以下当センターと略す）でも、都内の水道水や大気降下物に含まれる放射能を測定し、セシウムを含む放射性核種を検出した<sup>1,2)</sup>。

原発事故直後から、セシウムボールとも呼ばれる直径0.1~10 $\mu\text{m}$ ほどの放射性セシウムを含んだ微小粒子が発見され、様々な分析手段によって解析が行われた<sup>3-7)</sup>。

原発事故直後に当センターで捕集した大気降下物は、放射能の含有が判明したため<sup>1,2)</sup>、走査型電子顕微鏡（以下SEMと略す）を用いて観察し、セシウムボールと同等な径を持つ粒子を5個発見したので報告する。

### 実験方法

#### 1. 大気降下物の分離

大気降下物試料は、原子力規制庁（当時、文部科学省）の放射能水準調査で使用する70A-H型降水採取装置を用いて、平成23年3月8日午前9時から3月18日午前9時までの間に採取した降下物を用いた。この採取期間中に、原発事故の影響により、3月15日から3月16日にかけて当センターのモニタリングポストで空間線量率の急上昇を記録した。

採取した降下物をゲルマニウム半導体検出器により核種分析したところ、微量のセシウム137が含まれることを確認した。この試料は、洗浄液と共にU8容器に長期間保存されていたため、容器底部を藻状生物が覆っていた。容器底部の堆積物の一部を藻状生物と共に試験管にすくい取り、純水を加え加温することで藻状生物を除外して、堆積物を5.0 $\mu\text{m}$ PTFEメンブレンフィルター（メルクミリポア社製）にてろ過した。

#### 2. SEM観察

SEM観察には日本エフイー・アイ社製Nova Nano SEM 230を使用し、主に加速電圧15kVで反射電子像を観察したほか、エネルギー分散形X線分光（以下EDSと略す）分析により元素分析を行った。

### 結果と考察

#### 1. 球状粒子の形状、粒径およびEDS分析結果

観察した5個の球状粒子のSEM像を写真1~5に示す。

いずれも真球に近い形状であった。各粒径は写真掲載順に、9.03, 5.95, 5.81, 5.64, 1.60 $\mu\text{m}$ であった。

球状粒子(2), (4)のEDS分析結果を図1, 2に示す。全ての粒子で、炭素を除いた有意元素は鉄と酸素しか検出できず、これらは二酸化ケイ素を主成分とするセシウムボール<sup>3-7)</sup>ではなく、純粋な球状酸化鉄であると推察された。

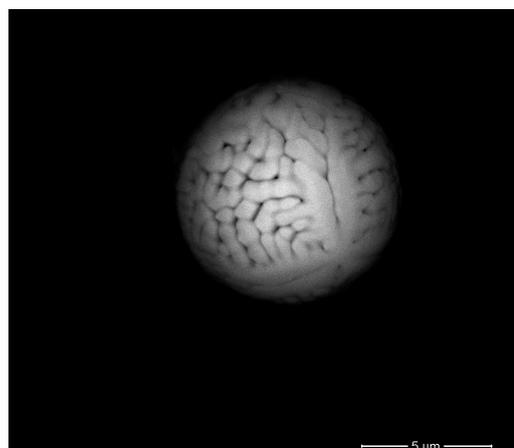


写真1. 球状粒子(1)のSEM像

<sup>a</sup>東京都健康安全研究センター薬事環境科学部生体影響研究科  
169-0073東京都新宿区百人町3-24-1

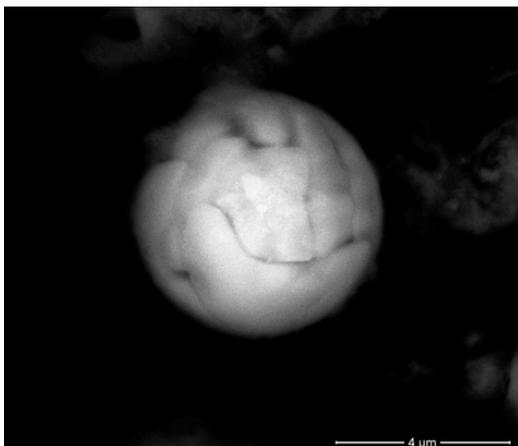


写真2. 球状粒子(2)のSEM像



図1. 球状粒子(2)のEDS分析結果

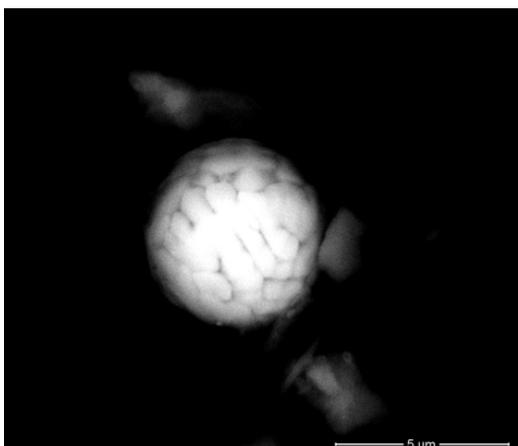


写真3. 球状粒子(3)のSEM像

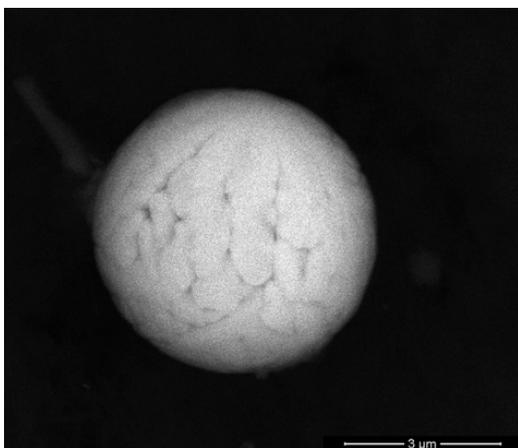


写真4. 球状粒子(4)のSEM像

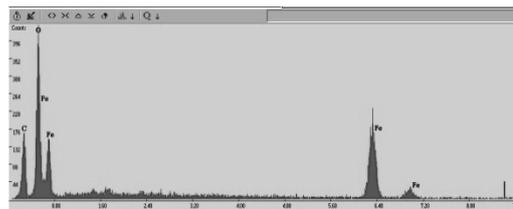


図2. 球状粒子(4)のEDS分析結果

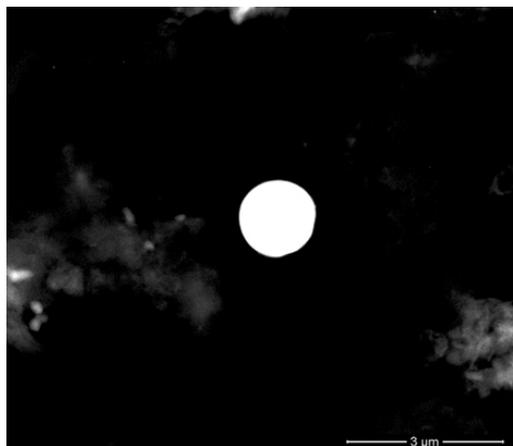


写真5. 球状粒子(5)のSEM像

## 2. 球状酸化鉄の生成過程の推定

写真1～4に示した球状酸化鉄は、いずれも真球に近く、また粒子を構成する結晶粒は融着している。

この理由として、粒子の生成過程で多数の酸化鉄結晶粒が融点近くの極めて高温まで熱せられて密着し、冷却する際に表面張力が働いて表面積が最小となる球状に変形したものと考えられた。

## 3. 大気降下物中の酸化鉄粒子の観察例

大気降下物中には常態的に酸化鉄粒子が含まれており<sup>8)</sup>、その起源は土壌由来と、塗料や研磨材など工業製品由来であると報告がある<sup>9)</sup>。

本調査でも、今回報告した粒子以外に多数の酸化鉄粒子を観察したが、ケイ素やアルミニウム等の元素を含有した土壌由来と考えられる粒子や、風化や摩耗等で微小化されたと推察できる鋭角を有する形状の粒子がほとんどであった。

特殊な例では、発電所やセメント工場の近傍で発見された酸化鉄粒子の形状が本報の酸化鉄粒子に極似している<sup>10)</sup>。しかしながら、それらの粒子はケイ素やカルシウム等の元素を含んでおり、純粋な酸化鉄ではない。

今回観察された粒子は、採取された期間が原発事故前後であるためSEM観察を行ったものの、原発事故に関連するかは不明である。但し、酸化鉄は第二種粉塵に指定されており、大気環境中の挙動など、更なる調査観察が必要と考えられる。

## ま と め

- 1) 当センターで原発事故直後に捕集した放射性セシウムを含む大気降下物をSEM観察したところ、セシウムボールと同等な径を持つ粒子を5個発見した。
- 2) 各粒子はいずれも真球状であり、その粒径は写真掲載順に、9.03, 5.95, 5.81, 5.64, 1.60 $\mu\text{m}$ であった。
- 3) EDS分析により有意な元素として鉄と酸素が検出された。これらの粒子は純粋な球状酸化鉄であり、セシウムボールではないと考えられた。
- 4) 各粒子を構成する結晶粒は融着状態にあるため、粒子の生成過程で、多数の酸化鉄結晶粒が融点近くの極めて高温まで熱せられて密着し、冷却する際に表面張力が働いて表面積が最小となる球状に変形したものと考えられた。

## 文 献

- 1)小西浩之：東京健安研七 年 報, **65**, 25-37, 2014.
- 2) 保坂三継, 灘岡陽子, 小西浩之, 他：東京健安研七 年 報, **63**, 13-27, 2012
- 3)Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y., *et al.*: *Sci. Rep.*, **3**,2554, 2013.
- 4)Igarashi, Y., Kogure, T., Kurihara, Y., *et al.*: *J. Environ.Radioact.*, **205**, 101-118, 2019.
- 5)Abe, Y., Iizawa, Y., Terada, Y., *et al.*: *Anal. Chem.*, **86**, 8521-8525, 2014
- 6)Kogure, T., Yamaguchi, N., Segawa, H., *et al.*: *Microscopy*, **65**, 451-459, 2016.
- 7)Yamaguchi, N., Mitome, M., Akiyama, H K., *et al.*: *Sci. Rep.*, **6**, 20548, 2016.
- 8)U.S. EPA. Integrated Science Assessment (ISA) for Particulate Matter (Final Report, Dec, 2019) <https://cfpub.epa.gov/ncea/isa/recordisplay.cfm?deid=347534> (2021年4月5日現在。なお本URLは変更または末梢の可能性がある)
- 9)Dinis, M., Goncalves, M.: *Atmosphere*, **11**, 1069, 2020.
- 10)Magiera, T., Goluchowska, B., Jablonska, M., *et al.*: *Water, Air, & Soil pollution*, **224**, 1389, 2013.

**Scanning Electron Microscope Observations of Spherical Iron Oxides in Atmosphere Fallouts  
Felled in Tokyo Immediately after the Fukushima Nuclear Accidents**

Tomokazu MAENO<sup>a</sup>

As a result of the Fukushima nuclear accidents triggering gigantic earthquakes and tsunami waves that hit the eastern portion of mainland Japan, great amounts of radioactive elements were released into the atmosphere. In our institute, radioisotopes including radio-caesium were determined in tap water and atmosphere fallouts. Using a scanning electron microscope, five heterogeneous spherical particles were discovered in atmosphere fallouts, including radio-caesium, that felled in Tokyo immediately after the Fukushima nuclear accidents; they had 9.03 to 1.60 $\mu\text{m}$  diameters. Energy dispersive X-ray spectrometer measurements showed that these spherical particles were composed of pure iron oxides. These spherical iron oxides seemed to be heated to the melting point temperature of iron oxides because their shapes were similar to caesium-bearing micro-particles and welding crystal.

**Keywords:** Fukushima nuclear accident, atmosphere fallout, scanningelectron microscope, spherical iron oxide, caesium-bearing micro-particle,

---

<sup>a</sup> Tokyo Metropolitan Institute of Public Health  
3-24-1, Hyakunin-cho, Sinjuku-ku, Tokyo, 169-0073, Japan