

大気汚染物質としての球状高純度酸化鉄粒子の走査型電子顕微鏡観察

前野 智和^a

大気降下物中に含まれる球状の高純度酸化鉄粒子を、走査型電子顕微鏡を用いて観察した。2020年6月から2022年12月までに捕集した大気降下物を観察し、粒径100 μm 以下の吸引性酸化鉄粒子を3,401個見つけ出した。そのうち、2,217個（約65%）は粒径10 μm 以下の咽頭通過性酸化鉄粒子で、さらに498個（約15%）は粒径4 μm 以下の吸入性酸化鉄粒子であった。酸化鉄粒子は形態別に、標準型（N型）、6種類の派生型（N2~N7型）、回転型（R型）および崩壊型（B型）の9種類に分類された。観察した酸化鉄粒子数には、季節変動性などの経時変化や、粒子形態との有意な関連性は見られなかった。崩壊型には、標準型、各派生型そして回転型に類似する酸化鉄粒子があり、どの形態の粒子であっても同様な生成過程を経ているものと推察された。

キーワード：大気降下物, 大気汚染物質, 球状酸化鉄, じん肺, 走査型電子顕微鏡

はじめに

2011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^{1,2)}。

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が含まれていたため^{1,2)}、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球状の高純度酸化鉄粒子（以下酸化鉄粒子と略す）を観察した³⁾。同様な酸化鉄粒子は、2020年度に捕集した大気降下物からも多数観察された。酸化鉄はじん肺の原因物質とされる第二種粉塵であるため、それ以降も各月1日分の大気降下物のSEM観察を継続した。これにより、いくつかの知見を得たので報告する。

実験方法

1. 大気降下物の捕集

当センター敷地内に設置された、原子力規制庁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、毎日24時間分の大気降下物を採取した。

前報³⁾と同様、採取した大気降下物を水洗しながら5.0 μm の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、残渣をSEMで観察した。

2. SEM観察

SEM観察には主に日本エフイー・アイ社製Nova Nano SEM 230を使用した。加速電圧15kVで二次電子像および反射電子像を観察したほか、エネルギー分散形X線分光分析により元素分析を行い、観察した粒子が高純度の酸化鉄であることを確認し、形態別に個数を計数した。

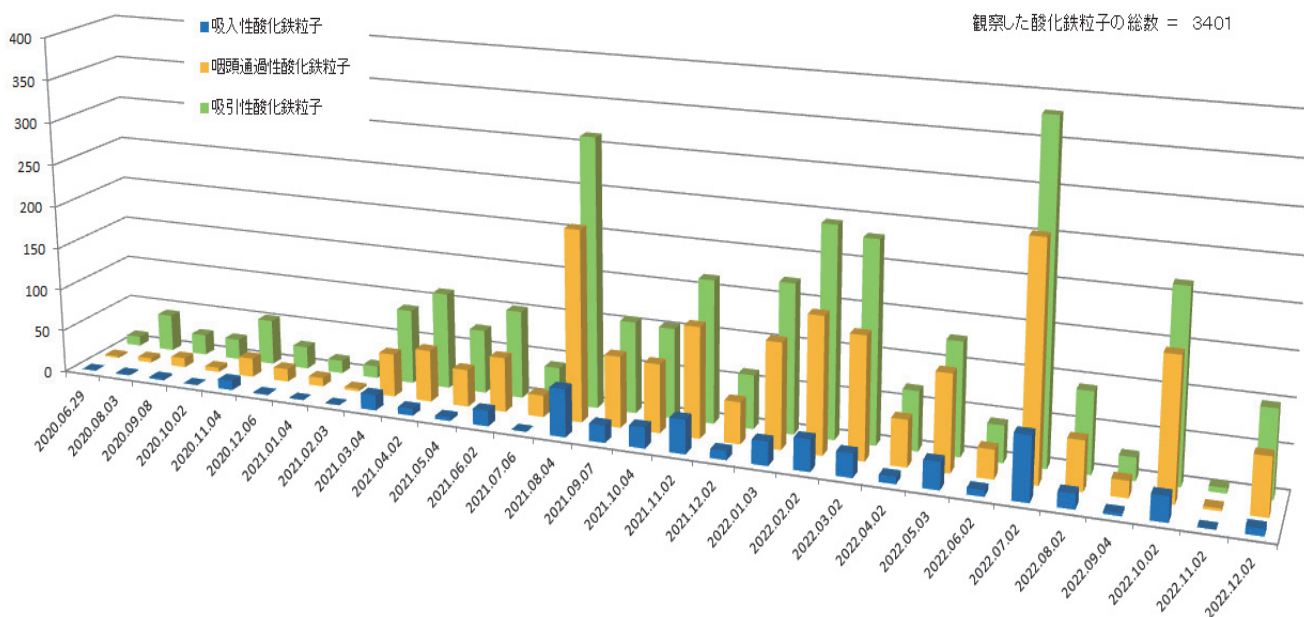


図1. 各月毎に観察した酸化鉄粒子の個数

^a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

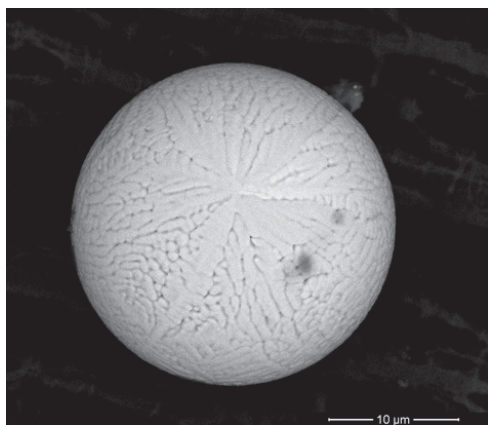


写真1-1. 標準型 (N型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

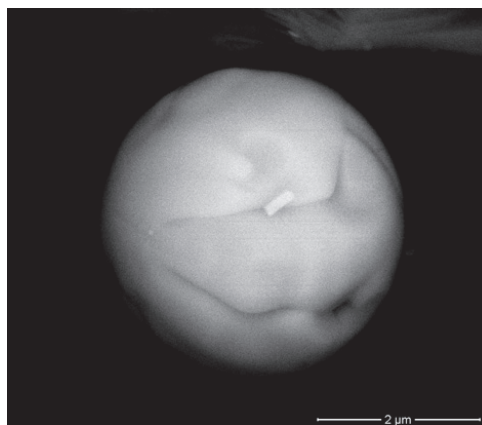


写真3-1. 派生型 (N3型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

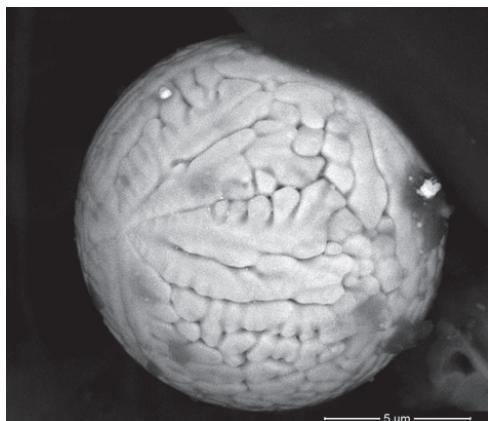


写真1-2. 標準型 (N型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

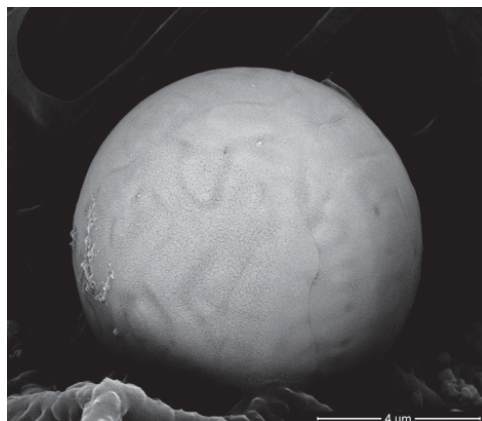


写真3-2. 派生型 (N3型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

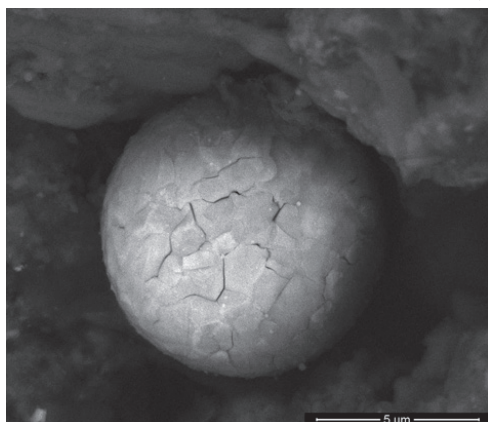


写真2-1. 派生型 (N2型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

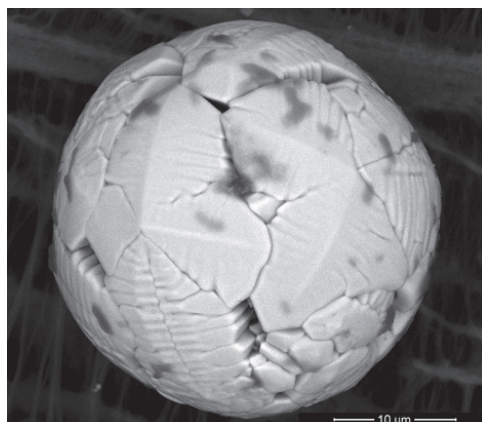


写真4-1. 派生型 (N4型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

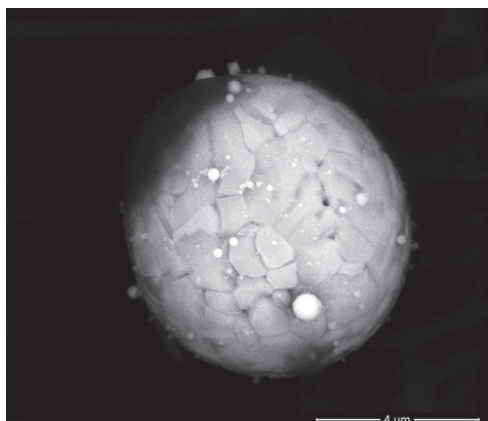


写真2-2. 派生型 (N2型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

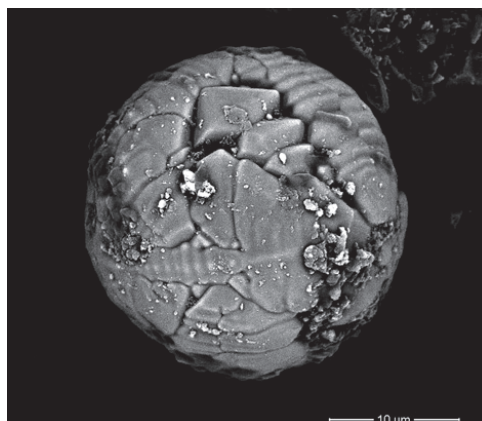


写真4-2. 派生型 (N4型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

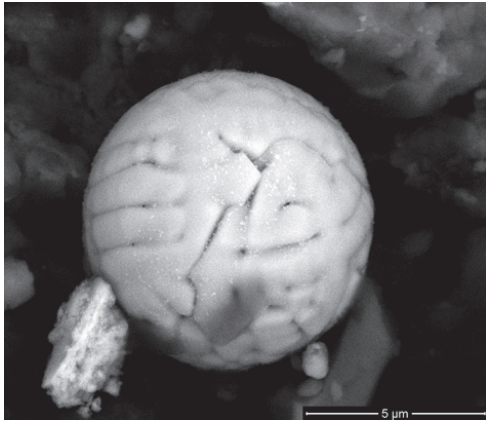


写真5-1. 派生型 (N5型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

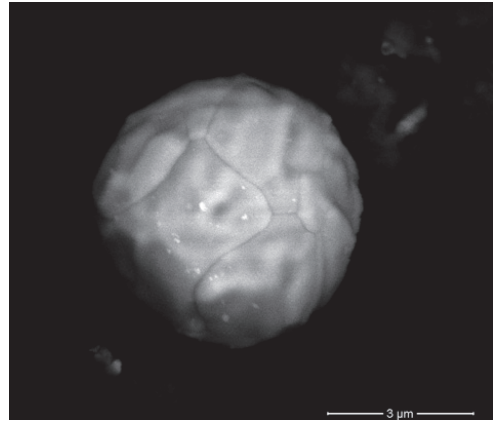


写真7-1. 派生型 (N7型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

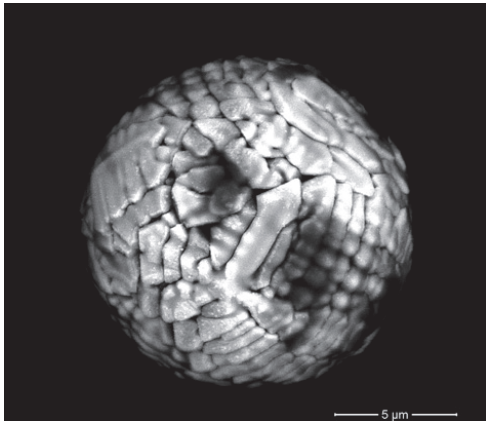


写真5-2. 派生型 (N5型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

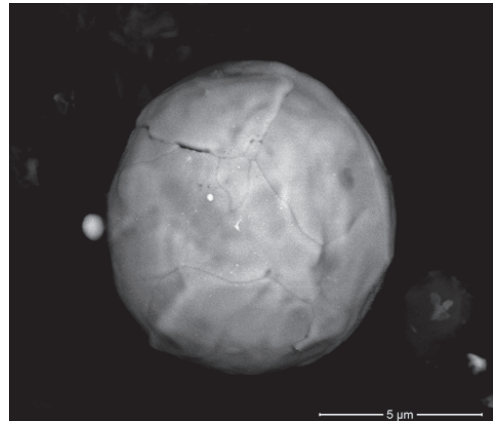


写真7-2. 派生型 (N7型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

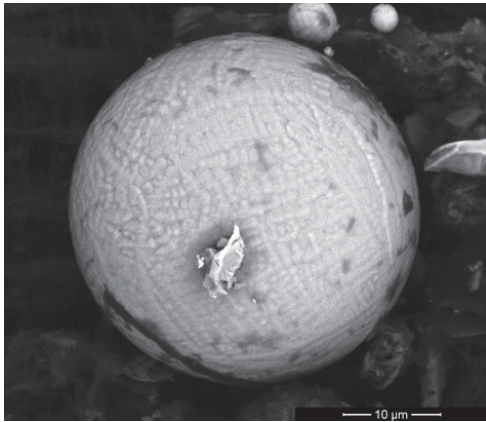


写真6-1. 派生型 (N6型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

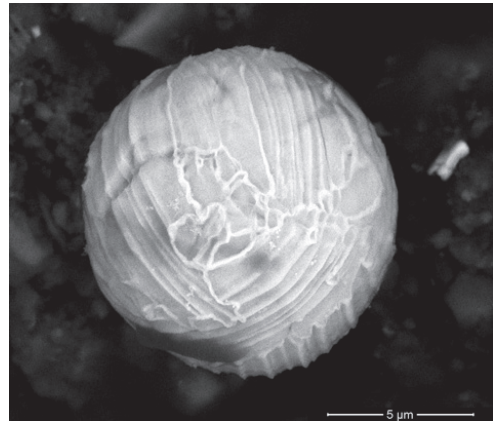


写真8-1. 回転型 (R型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

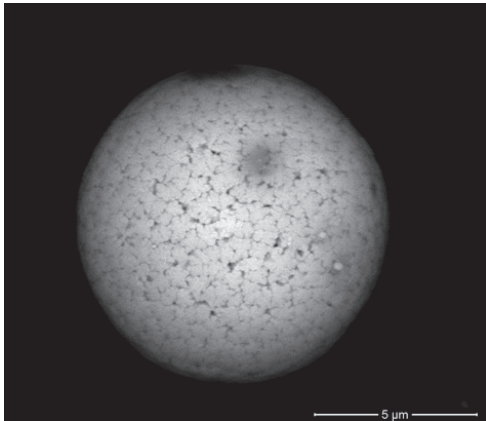


写真6-2. 派生型 (N6型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

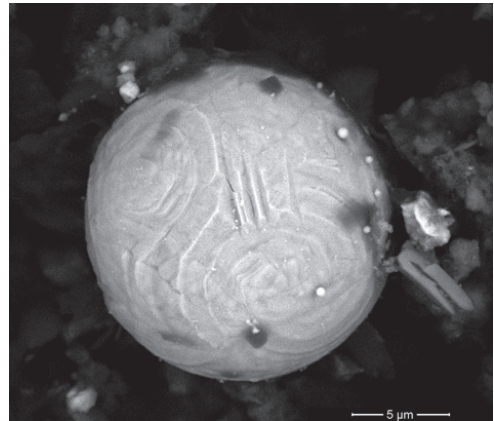


写真8-2. 回転型 (R型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

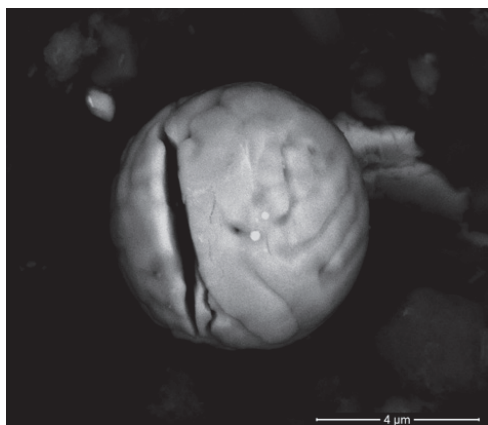


写真9-1. 崩壊型 (B型) 酸化鉄粒子のSEM像(1)

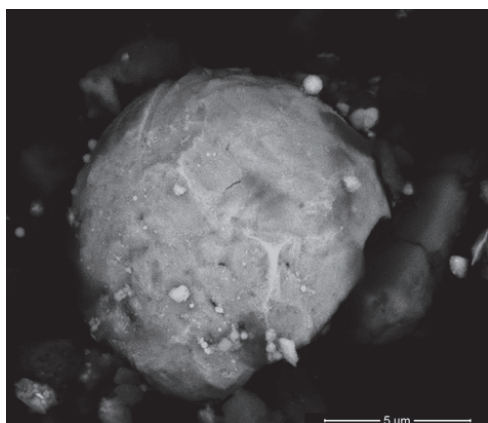


写真9-2. 崩壊型 (B型) 酸化鉄粒子のSEM像(2)

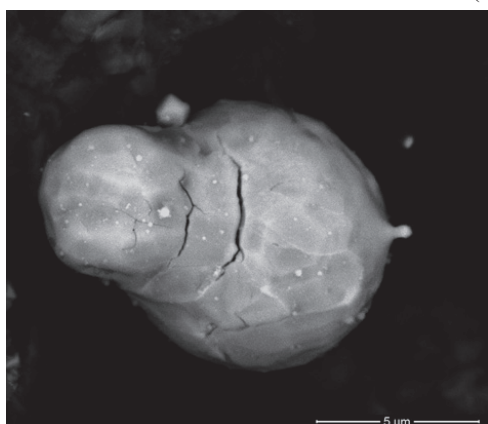


写真9-3. 崩壊型 (B型) 酸化鉄粒子のSEM像(3)

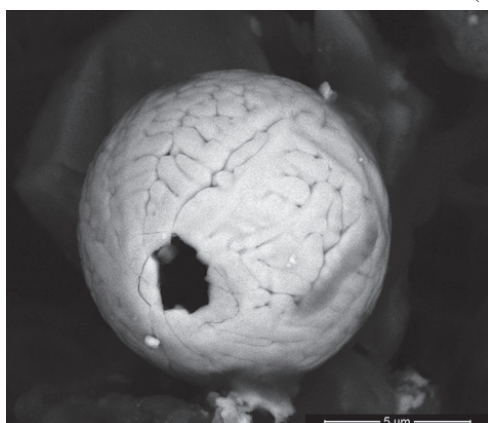


写真9-4. 崩壊型 (B型) 酸化鉄粒子のSEM像(4)

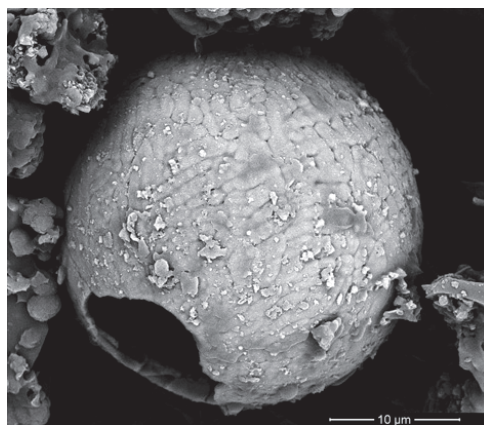


写真9-5. 崩壊型 (B型) 酸化鉄粒子のSEM像(5)

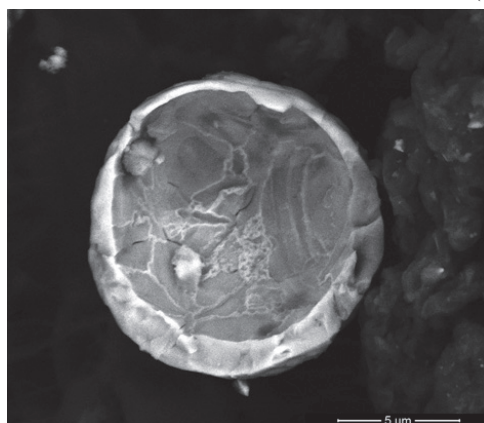


写真9-6. 崩壊型 (B型) 酸化鉄粒子のSEM像(6)

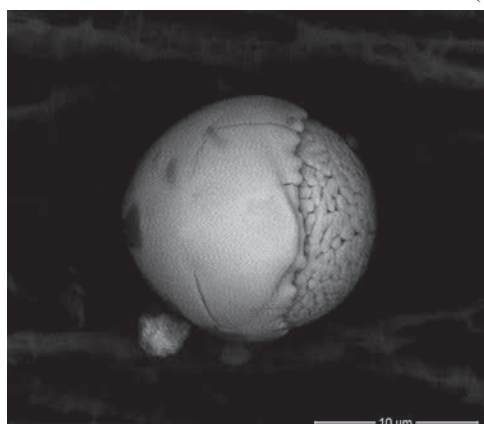


写真9-7. 崩壊型 (B型) 酸化鉄粒子のSEM像(7)

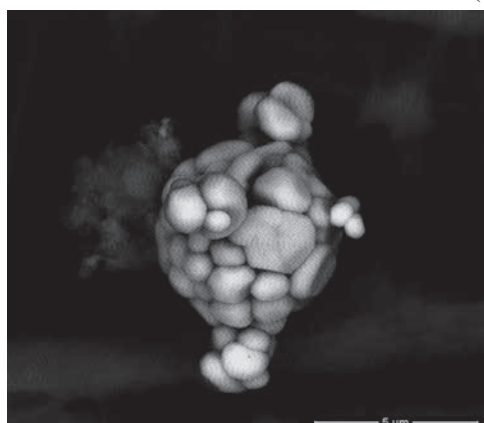


写真9-8. 崩壊型 (B型) 酸化鉄粒子のSEM像(8)

結果と考察

1. 観察できた酸化鉄粒子の個数と経時変化

2020年6月から2022年12月までに、センターで捕集した大気降下物中に観察した酸化鉄粒子の個数を図1に示す。本研究では、第二種粉塵に指定される酸化鉄粒子を次のように分類した。

- ・吸引性酸化鉄粒子（粒径が100 μm 以下）
鼻孔または口を通過すると考えられる大きさ
- ・咽頭通過性酸化鉄粒子（粒径が10 μm 以下）
咽頭を通過し肺に向かうと考えられる大きさ
- ・吸入性酸化鉄粒子（粒径が4 μm 以下）
肺胞まで達すると考えられる大きさ

観察総数3,401個の中で、2,217個（約65%）が粒径10 μm 以下の咽頭通過性酸化鉄粒子であり、さらに498個（約15%）が粒径4 μm 以下の吸入性酸化鉄粒子であった。また観察数には、季節変動性等の経時変化は見られなかった。

2. 酸化鉄粒子の形態別による分類

観察した酸化鉄粒子を、下記の通り、標準型、6種類の派生型、回転型および崩壊型の9種類に分類した。

各粒子の観察数は、640個（約19%）のR型が最多で次に549個（約16%）のN型が多かったが、観察数と粒子形態に有意な関連性は見られなかった。

- 1) 標準型（N型）酸化鉄粒子（写真1-1, 写真1-2参照）
溶解した酸化鉄の一次粒子の結晶が、放射状に広がる様な形態の粒子。
- 2) 派生型（N2型）酸化鉄粒子（写真2-1, 写真2-2参照）
N型に類似するものの、一次粒子が溶着せず、一つ一つの結晶が鮮明な粒子。
- 3) 派生型（N3型）酸化鉄粒子（写真3-1, 写真3-2参照）
N型に類似し、かつ一次粒子表面がほぼ溶解している形態の粒子。
- 4) 派生型（N4型）酸化鉄粒子（写真4-1, 写真4-2参照）
N型に類似し、かつ結晶粒の大きな一次粒子が見られる形態の粒子。
- 5) 派生型（N5型）酸化鉄粒子（写真5-1, 写真5-2参照）
N型に類似し、かつ一次粒子が角張って見える形態の粒子。
- 6) 派生型（N6型）酸化鉄粒子（写真6-1, 写真6-2参照）
N型に類似し、かつ一次粒子が細かい形態の粒子。
- 7) 派生型（N7型）酸化鉄粒子（写真7-1, 写真7-2参照）
N型に類似し、かつ溶解した表面に結晶粒境界のような亀裂が見られる形態の粒子。
- 8) 回転型（R型）酸化鉄粒子（写真8-1, 写真8-2参照）
N型に類似せず、粒子表面に縞状痕が見られる形態の粒子。
- 9) 崩壊型（B型）酸化鉄粒子（写真9-1～写真9-8参照）
亀裂や割れ、衝突、粒子の内側あるいは外側の脱落、分解破片など、破壊された形態の粒子。

3. 球状酸化鉄の生成過程の推定

写真9-1と写真9-2の粒子には共に亀裂が入っていたが、写真9-1の粒子はN5型に、写真9-2の粒子はN7型に類似していた。

また、最外殻だけ残された様な形状の写真9-4～写真9-6の各粒子は、各々N型、N7型およびR型に類似していた。これよりいずれの形態の酸化鉄粒子であっても壊れてB型になるものと推察された。

写真9-7の粒子は、最表面はN3型でありながら、内核部分はN型の特徴を有していた。このことから、一つの粒子でも結晶化の進行過程において、様々な一次粒子の形態を取り得るものと推察された。

以上のことから、酸化鉄粒子は表面の形態の如何に関わらず同様な生成過程によって形成され、結晶化の進行に伴って無作為の粒子形態や結晶粒径を取り得るものと推察された。

ま と め

- 1) 令和2年（2020年）6月から令和4年（2022年）12月までに捕集した大気降下物をSEM観察したところ、粒径100 μm 以下の吸引性酸化鉄粒子を3,401個発見した。
- 2) 吸引性酸化鉄粒子のうち、2,217個（約65%）が粒径10 μm 以下の咽頭通過性酸化鉄粒子、さらに498個（約15%）が粒径4 μm 以下の吸入性酸化鉄粒子であった。
- 3) 酸化鉄粒子は形態別により、標準型（N型）、6種類の派生型（N2～N7型）、回転型（R型）、崩壊型（B型）に分類出来た。
- 4) 酸化鉄粒子の観察数には、季節変動性等の経時変化や、粒子形態との有意な関連性は見られなかった。
- 5) 崩壊型酸化鉄粒子には、標準型、6種類の派生型そして回転型のいずれにも類似する粒子があった。これより、どの形態の酸化鉄粒子であっても同様な生成過程によって形成されたものと推察された。

謝 辞

大気降下物試料は環境衛生研究科より提供いただきました。深謝いたします。

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) 前野智和：東京健安研七 年 報, **72**, 333-336, 2021.

Scanning Electron Microscope Observations of Spherical High Purity Iron Oxides Particles as Air Pollutants

Tomokazu MAENO^a

Spherical high purity iron oxide particles, including atmospheric fallout, were observed using a scanning electron microscope. Inhalable iron oxide particles of 3,401 pieces of <100µm in diameter were found in the atmospheric fallout collected from June 2020 to December 2022. Of the inhalable iron oxide particles, 2,217 pieces (approximately 65%) were thoracic particles of <10µm in diameter and 498 pieces (approximately 15%) were respirable particles of <4µm in diameter. The iron oxide particles were classified into nine types according to their shape: a representative form (N type), six derivate forms (N2-N7 type), a rotational form (R type), and a collapsed form (B type). The observed particle numbers demonstrated no correlation with temporal changes such as seasonal variation or particle morphology. The features of the collapsed form are similar to those of the representative form, six derivate forms, or rotational form. Therefore, all iron oxide particles were produced by the same process regardless of form.

Keywords: atmosphere fallout, air pollutant, spherical iron oxide, pneumoconiosis, scanning electron microscope

^a Tokyo Metropolitan Institute of Public Health,
3-24-1, Hyakunin-cho, Shinjuku-ku, Tokyo 169-0073, Japan