

# 不溶性 Cs 粒子の溶解や加熱による変化

高宮幸一

たかやぶ ことば  
京都大学原子力研究所

## 不溶性 Cs 粒子は水に不溶か？

不溶性 Cs 粒子が溶解するかどうか、つまりは環境中あるいは人体に取り込まれた後に消失せずに放射能を維持し続けるのかどうかは、長期的な環境影響、被ばく影響を検証する上で重要であることは言うまでもない。

はじめに不溶性 Cs 粒子の存在を明確にした Adachi et al. (2013) は、放射性粒子を水にさらす前後での電子顕微鏡観察において形状に変化がないことを示唆した<sup>1)</sup>。この 2013 年の不溶性 Cs 粒子の発見報告の後、雨風に長期曝露された土壌試料などからたくさん不溶性 Cs 粒子が採取された。つまり事故後 2 年以上が経過した後においても観測されたことから、多くの研究者は不溶性 Cs 粒子は水に不溶であるという認識をもっていったと考えられる。また、不溶性 Cs 粒子が水に不溶であるという前提に立って、土壌などの環境試料を水へ懸濁させることで不溶性 Cs 粒子を単離する手法は多くの研究者に用いられている<sup>2,3)</sup>。

一方で Itoh et al. (2014) のように、土壌、植物、大気浮遊塵といった環境試料についてオートラジオグラフィによる分析を行った際、水を用いたフィルター洗浄の前後でオートラジオグラフィ画像の違いを分析し、フィルター上に捕集された高放射性粒子はわずかに水に溶解すると結論した報告も見られた<sup>4)</sup>。不純物を含まない水(蒸留水)の他、ろ過した海水でも高放射性粒子の溶解特性については、Ikenoue et al. (2017, 2018) がオートラジオグラフィによって海洋における動物プランクトン (2012 年に採取、堆積物試料) (2013, 2017 年に採

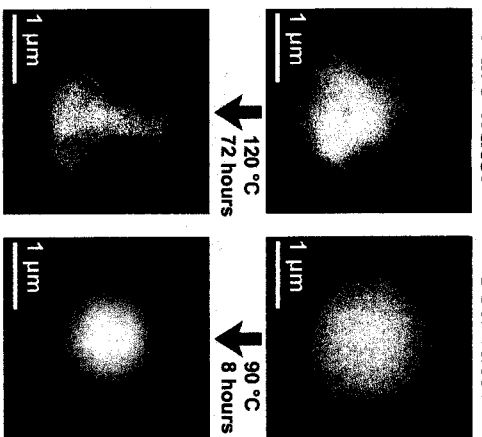
取) 中に <sup>137</sup>Cs が濃縮された高放射性粒子を検出したことを報告し、粒子が長期間にわたり海水中で存在し続けることから、海水に対して不溶であると推測している<sup>5,6)</sup>。

これらの報告での粒子の溶解特性への言及は状況的証拠からの推測であったが、粒子の溶解特性が長期間にわたる環境影響の評価に重要なことと認識され始めたこともあってか、溶解特性を定量的に明らかにしようとする研究も行われている。Okumura et al. (2019) は、純水と海水中で不溶性 Cs 粒子そのものが溶けて小さくなる様子を、粒子からの <sup>137</sup>Cs の溶出を測定することで間接的に観察し、不溶性 Cs 粒子が溶解する際の活性化エネルギーと溶解速度を見積もっている<sup>7)</sup>。また、Suetake et al. (2019) は、不溶性 Cs 粒子を模擬肺液、超純水、人工海水の 3 種の溶液を対象として、25℃ と 37℃ の温度環境下において 1~63 日間の浸漬試験を行い、粒子による体内被ばくを考慮する上で重要な肺胞内での溶解特性について調査を行っている<sup>8)</sup>。

## 環境中での不溶性 Cs 粒子の性状の変化

Okumura et al. (2019) の溶解実験の結果では、純水よりも海水の方が溶解速度が速いというところがわかり、溶解速度の違いには pH や海水中に含まれるイオンが影響するのではないかと推測している。図にこの溶解実験で観察された、純水および海水への浸漬後の走査型電子顕微鏡 (SEM) 写真を示す。また、溶解挙動の観察だけでなく、溶解によって不溶性 Cs 粒子にどのような変化が生じたかも SEM や走査透過型電子顕微鏡 (エネ

## Pure water Seawater



図一 溶解実験前後での放射性 Cs 粒子の形態変化を示す走査型電子顕微鏡写真  
(<https://www.s.u-tokyo.ac.jp/ja/press/2019/6288/>)

ルギー分散型 X 線分光分析装置 (STEM-EDS) を使って観察している。その観察結果からは、水への浸漬によって不溶性 Cs 粒子の表面に酸化スズや酸化鉄のナノ粒子が生成することがわかり、このようなナノ粒子の存在は、Yamaguchi et al. (2018) が、2015 年 7 月に大容量エアソプレーで大気中から捕集した不溶性 Cs 粒子の表面でも観察されている<sup>9)</sup>。つまり、環境中に存在する不溶性 Cs 粒子も Okumura et al. (2019) により実験的に観察されたような部分的な溶解を受けていることを示唆しており、彼らの推測の妥当性を示すものと考えられる。また、Okumura et al. (2019) は、福島第一原発事故の直後に海水中に落下した不溶性 Cs 粒子は、研究結果が発表された事故の 7 年後においてほぼすべて溶解しているだろうとも推定している。しかし、この結果は Ikenoue et al. (2017, 2018) の結果とは反している。Ikenoue et al. (2017, 2018) で報告された海底堆積物や海洋中の動物性プランクトンからの粒子の発見は、これらが海水中でも一定の期間は溶解せずに存在できることを示しているからである。ただし、粒子自体の形状や化学組成などは観察されておらず、陸域

で採取されている不溶性 Cs 粒子に比べて表面が変化していたり、浸食を受けていたりするかどうかは明確ではないため、このような海洋試料に含まれる高放射性粒子についてはさらなる調査が必要であると考えられる。

## 人体中での溶解特性

Suetake et al. (2019) で報告された実験結果では、模擬肺液、超純水、人工海水のすべての溶液において、最初の 3 日間は不溶性 Cs 粒子からの <sup>137</sup>Cs の迅速な脱離が見られ、その後定常的な溶解状態へと移行する様子が観測された。実験の対象とした 3 種類の溶液について、この定常状態での <sup>137</sup>Cs の放出速度を見積もった結果から、肺液は不溶性 Cs 粒子の溶解を促進することが示された。とはいえ、溶解には相当の時間を要し、肺胞において約 2 Bq の不溶性 Cs 粒子が吸入され沈着した場合を想定すると、完全に溶解するには 35 年以上が必要であると見積もられている。35 年間という長期にわたる体内での沈着がどのような健康影響を与えうるのかは検討が必要であろう。

この Suetake et al. (2019) による様々な条件での溶解試験では、2 粒の不溶性 Cs 粒子を繰り返して用いており、実験手順としては必ずしも理想的とは言えない。これに限らず、溶解特性を調べた他の実験的研究においても、異なる粒子を異なる条件で溶解させて比較することは、条件の違いによる結果であるのか、あるいは粒子自体の性質の違いによる結果であるのかを明確にすることが難しい。

一方で、不溶性 Cs 粒子を環境中から採取するのは簡単ではなく、溶解試験は粒子の性質を変えてしまう破壊実験であるため、試験後にアークイテスすることもできない。そのため、数多くの粒子を使った統計的にも確かな実験結果を導き出すのは難しいと考えられる。

## 加熱による放射性セシウムの脱離

不溶性 Cs 粒子からの放射性セシウムの脱離という観点で、溶解ではなく加熱によって不溶性

Cs 粒子から放射性セシウムが放出されるかどうかを実験により調査した研究結果も紹介したい。Okumura et al.(2018)は、空気中で加熱された際の不溶性 Cs 粒子の反応について調査を行い、不溶性 Cs 粒子の放射能は 600℃ を超えるとゆっくりと減少し、温度が 1000℃ に達するとほとんどが消失したと報告している。加熱後も不溶性 Cs 粒子の大きさや形状はほとんど変化しないことが確認されたため、放射性セシウムが粒子から抜け出したと考えられている<sup>10</sup>。不溶性 Cs 粒子を含んだ汚染物が焼却処分されるような状況を考えて際に、脱離した放射性セシウムがどのような挙動をするかは環境への影響を評価する上で重要な情報であるため、今後の実験的な解明が望まれる。

## ● 今後の課題と展望

ここまで、放射性 Cs 粒子の水などへの溶解性と加熱による粒子からの放射性セシウムの放出に関して、実験的研究によって得られた結果とそこからわかってきたことを紹介した。様々な実験手法や分析によって、放射性 Cs 粒子から放射性セシウムが脱離する過程が少しずつ明らかになってきている。しかし、それぞれの実験結果がひとつの結論に到達しているわけではないのも事実である。異なる結論が得られる理由のひとつは、これまでに採取された不溶性 Cs 粒子が、同一条件下で生成したものではないためであると考えられる。生成した環境が違えば生成する粒子の性状も当然違ったものになる。また、実験に用いることができる不溶性 Cs 粒子の数が限られていることも理由のひとつであると考えられる。

多くの不溶性 Cs 粒子を用いた実験を行うことができれば、粒子ごとの性状の違いも統計的に分析することが可能になる。もし、不溶性 Cs 粒子が生成した条件を再現することができ、均一な性状をもつ多数の模擬粒子を使った実験ができるようになると、破壊実験であっても繰り返し行うことが可能になり、さらなる理解が深まると考えられる。既に環境中で採取された放射性 Cs 微粒子の組成を再現した粒子生成の試みも行われている

が<sup>11</sup>、例えば PM<sub>2.5</sub> サイズの非放射性 Cs 模擬粒子を 10 億 (10<sup>9</sup>) 個作ることができれば、通常の化学機器分析によっても Cs のマクロスコピックな挙動を調べることができると考えられる。また、研究用原子炉を用いて製造した放射性セシウム (<sup>134</sup>Cs) を材料とした模擬粒子の生成も考えられる。京都大学研究用原子炉で 10 mg の安定セシウムに 4 時間の中性子照射を行えば、約 1 MBq の <sup>134</sup>Cs を製造することができ、これを原料に放射性 Cs 粒子を模擬的に生成することができれば、粒子の生成効率を 0.1% としても総放射能が 1 kBq となる模擬放射性 Cs 粒子を生成することができる。将来的には、このような模擬放射性 Cs 粒子を用いた系統的な研究が進められることも期待できる。また、標準模擬粒子の生成条件と生成過程の理解が進めば、福島第一原発事故の理解にとどまらず、将来事故が発生した際にどのような粒子ができるか、どのような環境影響を与え得るか、といった未知の事故での影響評価への展開も期待できる。

## 文献

- 1—K. Adachi et al.: Scientific Reports, **3**, 2554(2013)
- 2—G. Furuki et al.: Scientific Reports, **7**, 42731(2017)
- 3—J. Imoto et al.: Scientific Reports, **7**, 5409(2017)
- 4—S. Itoh et al.: Soil Science and Plant Nutrition, **60**(4), 540(2014)
- 5—T. Ikenoue et al.: Scientific Reports, **7**, 39874(2017)
- 6—T. Ikenoue et al.: PLoS ONE, **13**(9), 1(2018)
- 7—T. Okumura et al.: Scientific Reports, **9**, 3520(2019)
- 8—M. Suetake et al.: Chemosphere, 233(2019)
- 9—N. Yamaguchi et al.: Geochemical Journal, **52**(2), 123(2018)
- 10—T. Okumura et al.: Scientific Reports, **8**, 9707(2018)
- 11—T. Kogure et al.: Microscopy, **65**(5), 451(2016)