

塩酸, 人工海水を用いた土壌中の放射性微粒子由来の放射能測定  
Measurement of radioactivity derived from radioactive microparticle using hydrochloric acid and artificial seawater

○辰野宇大\* 二瓶直登\*\* 和田敏裕\* 大手信人\*\*\*

○Takahiro Tatsuno, Naoto Nihei, Toshihiro Wada, and Nobuhito Ohte

## 1. 背景・目的

2011 年 3 月の福島第一原子力発電所事故により, 福島県を中心にセシウム-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ) などの大量の放射性物質が飛散した. また, 事故後 10 年間の調査により, 放射能汚染地域の表層土壌や河川水, 農地付近の不織布等から放射能濃度が高く, 大きさが数  $\mu\text{m}$  程度の放射性微粒子が多く存在することが報告された (Kogure et al., 2016; Ikehara et al., 2018). 放射性微粒子は飛散した Cs が風化黒雲母等の粘土鉱物に吸着した Cesium-sorbing mineral (CsMS) と, 事故時に核燃料と原子炉内の建材などが反応してできた Cesium-bearing micro particle (CsMP) に分けられる (Furuki et al., 2017; Kogure et al., 2016). 特に, CsMP は CsMS と比べて, 単位質量当たりの放射能が  $10^5$  倍以上大きく (Kogure et al., 2016), その濃度の高さや小ささから人体への内部被曝, 農作物や周辺環境の再汚染といった影響が懸念されている. Okumura 等は, 不織布から採取した放射性微粒子を用いて, CsMS と異なり, CsMP 中の Cs は 10 mM 以下の塩酸溶液と反応させてもほとんど溶出しないこと (Okumura et al., 2020) や, 人工海水と反応させた場合は CsMP 中の Cs がほとんど溶出する (Okumura et al., 2018) こと等, CsMS と CsMP からの Cs の溶出が異なることを報告した.

CsMP はチェルノブイリ原発事故では見られなかった福島第一原発事故特有の放射性物質であり (Kogure et al., 2016), 事故後 10 年が経過した現在においても環境中の存在量や動態の把握については明らかにされていない. 本研究では, Okumura 等の報告 (2018, 2020) をもとに, 不織布ではなく実際の土壌試料を用いて, 土壌中の CsMP 由来の放射能の測定方法について検討した.

## 2. 試料

土壌試料は原子力規制庁が 2012 年に行った放射性物質の分布状況等に関する調査において, 福島第一原発から 3.5 km の離れた福島県双葉郡双葉町の畑地から採取された表層土壌を使用した. 土壌試料を純水と混合させ, 孔径 0.25 mm の篩を通過した懸濁液を回収した. 回収した懸濁液を孔径 0.45  $\mu\text{m}$  のメンブレンフィルター (Merck Millipore Ltd) でろ過を行い, フィルター上に残った試料を実験に使用した.

## 3. 実験方法

### (1) 塩酸による CsMS からの Cs 抽出処理 (CsMS 由来の $^{137}\text{Cs}$ の抽出)

メンブレンフィルターに残った土壌試料と 1 mM, または 10 mM の塩酸溶液 (和光純薬) を固液比 1:800 で耐熱容器に入れ, 90 度の恒温炉に入れて 24~72 時間反応させた. 反応後, 容器内のメンブレンフィルターを回収し, 溶液はろ過を行い, フィルターからはがれた土壌試料とろ液とに分

\*福島大学 環境放射能研究所 Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University, \*\*福島大学 食農学類 Faculty of Food and Agricultural Sciences, Fukushima University, \*\*\*京都大学 大学院情報学研究科 Graduate school of Informatics, Kyoto University  
キーワード セシウム, 放射性微粒子

けた。回収したろ液をゲルマニウム半導体検出器 (CANBERRA) で測定し、塩酸処理で土壌から脱離した  $^{137}\text{Cs}$  を定量した。また、各溶液濃度、反応時間の処理を 4-6 回繰り返した。

## (2) 人工海水による CsMP 由来の Cs 抽出処理 (CsMS 由来の $^{137}\text{Cs}$ の抽出)

1 mM, 10 mM の塩酸処理を 6 回繰り返した後の土壌試料と人工海水 (日本製薬) を固液比 1:800 で耐熱容器に入れ、90 度の恒温炉に入れて 24 時間反応させた。反応後、上澄液を回収し、 $^{137}\text{Cs}$  濃度を測定した。

## 4. 結果

土壌試料の  $^{137}\text{Cs}$  濃度に対する塩酸処理で抽出された  $^{137}\text{Cs}$ 、および、塩酸処理後に人工海水で抽出された  $^{137}\text{Cs}$  の割合をそれぞれ Fig.(a), Fig.(b)に示す。塩酸処理時に、10 mM, および 1 mM 塩酸で抽出される  $^{137}\text{Cs}$  は反応時間が 24-72 時間のいずれの場合も有意差がなかった。同様の処理を 2-4 回繰り返した場合、3 回繰り返した時点での  $^{137}\text{Cs}$  抽出割合は 4-6 回繰り返した時の  $^{137}\text{Cs}$  抽出割合と変わらず、3 回程度の繰り返して塩酸処理が完了すると考えられる。また、10 mM 塩酸での  $^{137}\text{Cs}$  抽出量は 1 mM のものよりも多くなった。Okumura et al. (2018) は、1 mM の塩酸では CsMP から  $^{137}\text{Cs}$  がほぼ溶脱しなかったが、10 mM 塩酸では約 10%程度の  $^{137}\text{Cs}$  が溶脱したと報告しており、10mM では塩酸処理時の溶液濃度が高く対象とする CsMS だけでなく、CsMP からの  $^{137}\text{Cs}$  も溶出した可能性がある。

また、塩酸処理後の土壌を人工海水で処理した場合、処理前の土壌試料の 0.10~0.15 %の  $^{137}\text{Cs}$  が抽出された。これらの  $^{137}\text{Cs}$  は CsMP 由来の  $^{137}\text{Cs}$  と考えられ、表層土壌においては CsMP 由来の放射能が非常に少ないと考えられる。

本実験では塩酸、人工海水を用いた CsMP 由来の放射能の定量について検討したが、塩酸による CsMP からの  $^{137}\text{Cs}$  の溶脱の可能性、塩酸処理後に人工海水による処理で抽出されたのが CsMP 由来の  $^{137}\text{Cs}$  だけであったのかという点は確認できていない。これらについてはイメージングプレート (IP) を用いたオートラジオグラフィによる放射性微粒子の定量や、各種溶液処理前後の IP 画像を用いた分析が必要と考えられる。

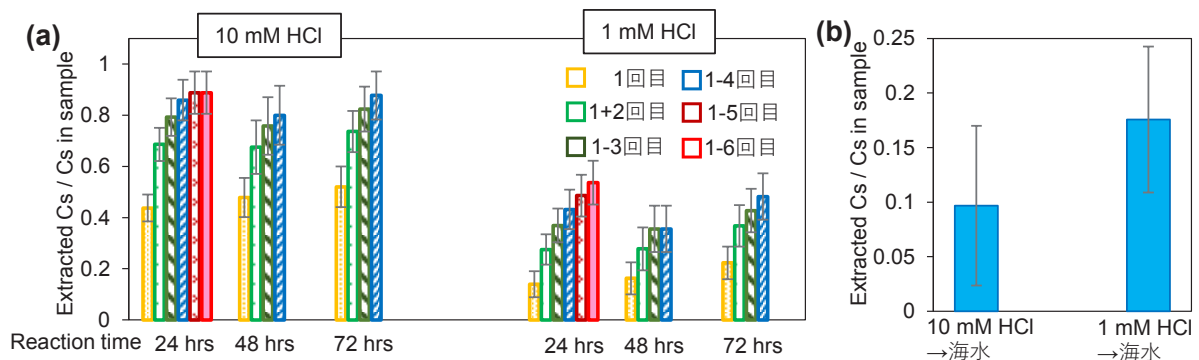


Fig. (a) 塩酸処理と (b) 人工海水による土壌からの Cs 抽出  
Fig. Cs extracted with (a) HCl and (b) artificial seawater from soil

**謝辞** この研究は科研費 (20H00435) と放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点 2020 年度重点共同研究 (受付番号 F-20-21) の助成を受けて行った。また、土壌試料として福島大学環境放射能研究所で所管する土壌アーカイブ試料を使用した。ここに記して感謝する。

**参考文献** Furuki et al., 2017. Scientific Reports, 7(1), 42731. Ikehara et al., 2018. Environ. Sci. Tech., 52(11), 6390-6398. Kogure et al., 2016. Microscopy, 65(5), 451-459. Okumura et al., 2018. Scientific Reports, 8(1), 1-8. Okumura et al., 2020. Chem. Lett., 49, 1294-1297.