

放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分について

第1回 放射性物質の基礎知識

JW SEMINAR

(独) 国立環境研究所 資源循環・廃棄物研究センター

山田正人、滝上英孝、倉持秀敏、大迫政浩

《連載にあたって》

東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所の事故により、福島県を中心に、東日本で広域的な放射性物質汚染が生じています。日常生活環境からの被ばくや、食品を通じた被ばくなどが懸念される一方、放射性物質を含む廃棄物等の処理の問題が、深刻化しています。この国難を克服するためには、放射能に汚染された環境の早期回復が試金石となり、放射性物質に汚染された廃棄物の安全かつ安心な処理処分の推進は、最も優先されるべき対策の一つであると言えます。

本連載では、放射性物質汚染廃棄物の適正処理を行っていくうえで留意すべき技術的事項等を、(独) 国立環境研究所が実施してきた調査研究の成果を中心に取り纏めた「放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分(技術資料¹⁾)」の内容を紹介します。

なお、今回の原子力災害は、わが国において、また、世界においても過去経験したことの無い未曾有の事態であり、科学的な知見が十分でなく不確実性を含む事項があることは、予めお断りしておきます。



1. 放射性物質による廃棄物の汚染事象

図1に、主要な放射能汚染廃棄物である福島県内の災害廃棄物、除染廃棄物、下水汚泥、浄水汚泥(浄水発生土)、一般ごみの焼却灰等が、放射性物質に汚染された事象の機序(メカニズム)の概要を示しました。

原発事故により放出された放射性物質は、エアロゾルなどの形で広域に移流拡散しました。現在、環境中の放射能のほとんどを占めている放射性セシウムは、イオンの形で降雨に溶けて降り注ぎ、地表などに沈着したものと考えられます。こうして、東日本大震災による災害廃棄物

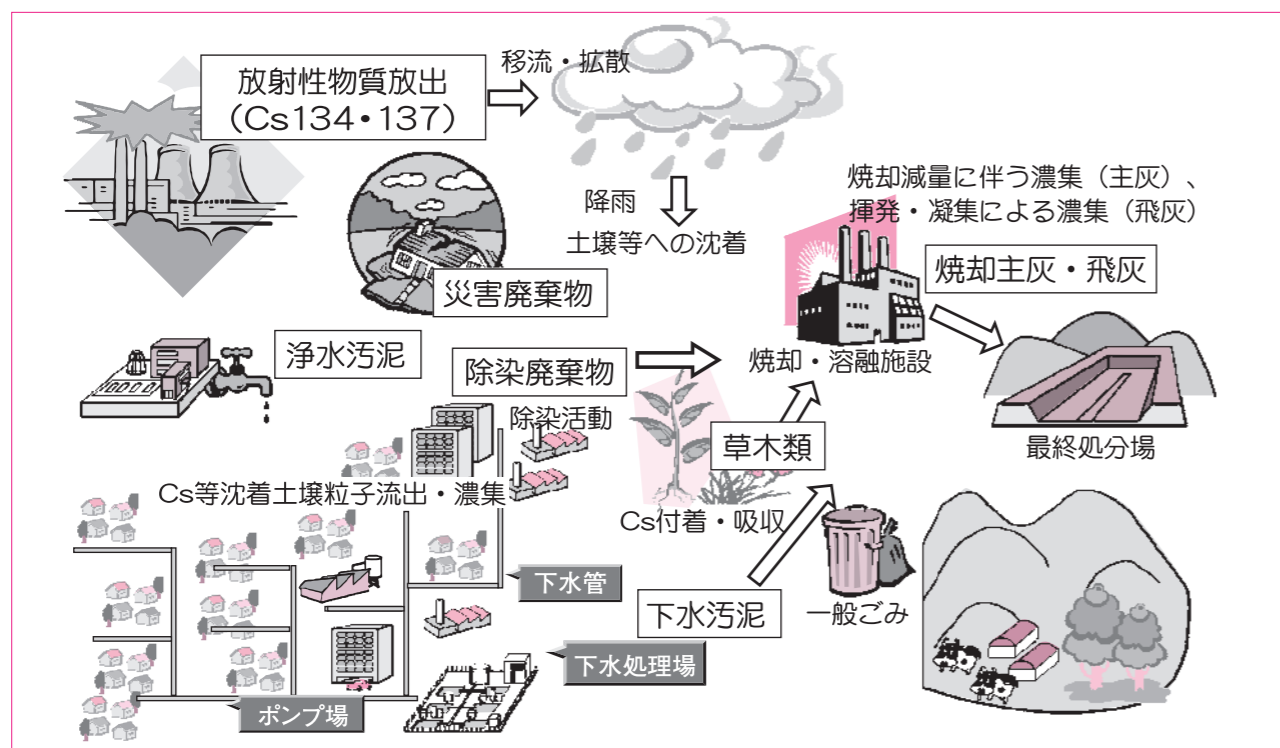


図1 主要な放射能汚染廃棄物である災害廃棄物、除染廃棄物、下水汚泥、浄水汚泥(浄水発生土)、一般ごみの焼却灰等が放射性物質に汚染された事象の機序(メカニズム)の概要

を含めて、土壌や建物、森林など事故当時に野外にあったものが、放射性セシウムに汚染されました。

文部科学省が行った航空機モニタリングの結果²⁾では、汚染は福島県内だけでなく、県外の広範囲に及んでおり、関東圏域にも千葉県の北西部や栃木県、群馬県の山麓部などに、高線量地域が存在しています。高線量地域では、一般廃棄物の焼却施設から放射性セシウムが高濃度で濃集された焼却灰が発生しています。これは主に、日常生活の中で放射性セシウムを含む土壌が付いた雑草の除去や葉や樹皮に放射性セシウムが付いた樹木等の剪定などの際に生じた草木類のごみに起因するものと考えられています。汚水と雨水を共に集める合流式下水道では、放射性セシウムは、地面の土壌粒子に付着し、懸濁物として下水道に流入して、終末処理場で下水汚泥に濃集しています。上水の場合も同様に、放射性セシウムは、懸濁物に伴って浄水場に流入し、浄水過程で浄水汚泥中に濃集しています。それ以外にも、降下物が付着した稲わらや腐葉土などの取り扱いも問題になっています。

連載第1回では、以上のような放射能汚染廃棄物問題を取り扱うための基礎知識として、「放射線と放射能」、「放射線の計測」および「放射性物質の物性」について紹介します。

2. 放射線と放射能³⁾

放射線は、空間を移動する高速の粒子の流れと一種の電磁波です。一方、放射能は、不安定な原子核が崩壊し、放射線を出す能力とその数量(ベクレル)を指し、放射能を持った物質を放射性物質と呼びます。放射線は、正しくは電離放射線といいます。この電離はイオン化を意味し、放射線の照射で生じたイオンは、化学的な反応性に富むことから、人体に様々な影響を及ぼす可能性があります。主な電離放射線の種類と基本的な性質を、表1に示します。

福島第一原子力発電所の事故により環境中に飛散した放射性核種には、原子力発電プロセスで生じた核分裂生成物(Cs-137、Cs-134、I-131、Sr-90)や、中性子が構造物や燃料に吸収されることによって生成するCo-60やAm-241があります。これらのうち、現在も残存する代表的な核種は、放射性セシウム(Cs-137とCs-134)と放射性ストロンチウム(Sr-90)であり、それぞれ半減期は30.17年、2.06年と28.8年です。Cs-137とCs-134は、

表1 主な電離放射線の種類と基本的な性質

種類	基本的な性質
α線	ヘリウム原子核 直進するが、空気中の飛行は数cm。紙1枚で止まる。強い電離作用。体内影響を及ぼす。エネルギー一定。γ線と共に起こることがある。
β線	電子 アルミ箔や厚さ数cmのプラスチックで止まる。連続エネルギーをもつ。γ線と共に起こることがある。核内中性子から電子線が放出され、一般的にα線の約100倍の透過力がある(質量数不変で、β ⁻ 崩壊は陽子+1、β ⁺ 崩壊は陽子が-1なので、原子番号が1つ変わる)。
γ線X線	電磁波 光と性質が類似。核内から出て、透過力が大きい。単色エネルギー。α線、β線と共に起こる。α線の約1万倍、β線の約100倍の透過力があるので、鉛やコンクリートなどで遮蔽し、環境中の放射線源に注意。
中性子線	中性子 電子核を構成する素粒子で電気的に中性である。透過力が強く、水やパラフィンなど軽い元素を含むもので減速させる。単独に存在する中性子の半減期は10.8分でβ線を放出して陽子になる。

崩壊により放射線種としてβ線とγ線を、Sr-90はβ線を放出します。

放射能や放射線の単位には以下のものがあります。

①放射能(ベクレル; Bq): 放射能の強さを示し、1秒間に崩壊する原子の数(壊変数)です。同一核種における単位時間当たりの壊変数は、存在する原子核の数に比例します。放射性物質の表面密度は、放射線を測定対象の面積で割ったもので表し、(Bq/cm²)などの単位で表現します。また、空気中や水溶液中の放射性物質の濃度は、放射線を測定対象の体積で割ったもので表し、(Bq/cm³)などの単位で表現します。食物や土壌試料などに対しては、体積当たりではなく質量当たり、つまり、放射線を測定対象の質量で割ったもので表し、(Bq/kg)などの単位で表現します。

②吸収線量(グレイ; Gy): 放射線の照射を受けることによって、物質が受け取るエネルギーです。1kgの物質が1Jのエネルギーを吸収したとき、その物質の吸収線量は1Gyです。

③線量当量: 放射線が生体に及ぼす吸収線量の影響を評価する尺度であり、放射線防護の目的に使用される単位です。単位はSv(シーベルト)で、線量当量(Sv) = 吸収線量(Gy) × 放射線荷重係数で求められます。放射線荷重係数は、それぞれの放射線の生体に及ぼす影響を表すもので、β線、γ線、X線に対しては1、α線に対しては20と定められています。線量当量のうち、身体のそれぞれの組織や臓器について、

不均一に放射線を受ける場合、その組織や臓器の感受性から相対的に値付けられた係数を組織荷重係数といます。線量当量にある組織や臓器の組織荷重係数を掛けた値を、その組織や臓器の「等価線量当量 (=吸収線量×放射線荷重係数×組織荷重係数)」と呼びます。体の全ての組織や臓器の組織荷重係数の和は1であり、全ての組織や臓器の「等価線量当量」を合計したものを「実効線量当量」と呼びます。実際には、あらゆるエネルギーの放射線による、実効線量当量を正確に評価するのは難しい為、放射線障害防止法では1cm線量当量(皮膚から1cm深さの線量)を測定することにより、外部被ばくによる実効線量を評価します。よって、 γ (またはX)線を測定する個人線量計やサーベイメーターでは、1cm線量当量を測定するように調整されています。

3. 放射線の計測⁴⁾

ここでは、 γ 線測定(主にCs-137とCs-134などに起因する線量当量率及び放射線の測定)に用いられる各種計測機器の概略について示します。

まず、空間線量(1cm線量当量)測定用として持ち運びの容易なサーベイメーターとしては、GM計数管やNaI(Tl)シンチレーション式などが一般的です。計測値を空間線量率 $\mu\text{Sv}/\text{h}$ 単位で表示することができるNaI(Tl)シンチレーション式のサーベイメーターは、欠点であるエネルギー依存性(感度が放射線のエネルギーによって変化すること)を補償する機種も販売されています。

γ 線放出核種の定性と定量測定に用いられる検出器としては、まずNaI(Tl)シンチレーションカウンター(検出器)が挙げられます。NaI(Tl)シンチレーションカウンターよりもエネルギー分解能に優れ、核種同定に威力を発揮するのがゲルマニウム(Ge)半導体検出器であり、ほとんどの場合の核種同定と放射線の定量に用いられています。GMサーベイメーターには、線量質測定用の $\mu\text{Sv}/\text{h}$ 表示できるもの(線量率測定用)と、表面汚染密度測定用のcpm(count per minutes:一分間あたりに放射

線測定器が計数した放射線の個数)表示のもの2種類が存在します。計数は γ 線だけでなく β 線も検出するので、 γ 線の精度のよい測定をする場合には注意が必要です。一般的に、時定数の設定のあるもので長い時定数の方が、より精度の高い測定が可能ですが、計測には時定数の3倍の時間保持(例えば、時定数が10秒となっている場合、30秒間保持しての読み値を測定値とする)して測定すべきとされています。

4. 放射性物質の物性

廃棄物の処理・処分の過程において、廃棄物に含まれる放射性セシウムや放射性ストロンチウムが、ガスとして大気へ拡散するのか、固体となり灰に付着するのか、さらには雨水と接触して浸出水中へ溶け出すのか、といった挙動を理解することが、安全性確保の観点から最も重要です。そのためには、物質の蒸気圧や水への溶解度などの物理化学的性状、すなわち物性の把握が必要となります。このためには、Cs-134および-137、Sr-90そのものの物性情報は入手できないので、セシウムとストロンチウムの安定同位体の物性データを用いることになります。

まず、元素の周期律表では、セシウムはカリウムやナトリウムと同族のアルカリ金属(第1もしくは1A族)、ストロンチウムはマグネシウムやカルシウムと同族のアルカリ土類金属(第2もしくは2A族)に属するため、環境中や処理過程において、原子(金属)よりはむしろ電解質(塩)として存在する可能性が高いと予想されます。

表2にセシウム、ストロンチウムおよび同族元素とそれらの塩の沸点(T_b)と融点(T_f)を、図2に蒸気圧(P_{vp})を示します^{5, 6)}。

Csは、ハロゲン(F、Cl、Br、I)化すると、融点と沸点は500~600℃高くなり、常温で揮発する可能性は低くなります。ただし、高温下での蒸気圧は比較的高いため、揮発の可能性があります。なお、Srは、アルカリ金属とくらべて元々融点と沸点が高く、 SrCl_2 等のハロゲン化塩では、融点と沸点がさらに高くなり、揮発の可能性

表2 Cs、Srおよび同族元素とそれらの塩の沸点(T_b)と融点(T_f)⁵⁾ (単位K:絶対温度)

	Na	NaCl	NaI	Cs	CsCl	CsI	Ca	Mg	MgCl ₂	Sr
原子量または分子量, g/mol	22.99	58.442	149.894	132.905	168.358	259.81	40.078	24.305	95.21	87.62
T_b, K	1156	1738.15	1577.15	963.15	1573.15	1553.15	1762	1376	1691.15	1630
T_f, K	370.98	1073.95	924	301.15	919.15	894.15	1112	922	985.15	1042

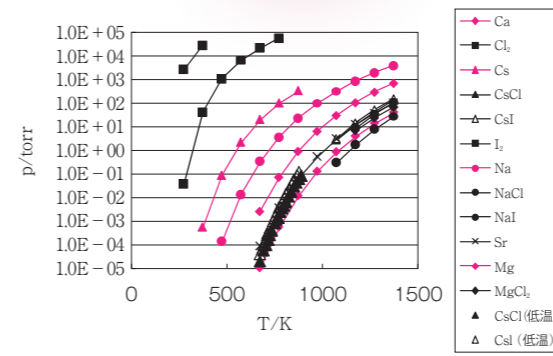


図2 I₂、Cs、Srおよびそれらの塩の蒸気圧^{5, 6)}

表3 塩化セシウム(CsCl)とダイオキシン類の蒸気圧および放射性Csの濃度

温度(°C)	2,3,7,8-T4CDDの蒸気圧 ⁷⁾ (Pa)	O8CDDの蒸気圧 ⁷⁾ (Pa)	推定したCsClの蒸気圧 ⁶⁾ (Pa)
150	0.522	7.15×10^{-3}	2.75×10^{-12}
170	2.560	4.79×10^{-2}	3.37×10^{-11}

は低いと予想されます。以上より、CsClは焼却炉内(800~900℃)ではガス態として存在すると考えられます。焼却施設に排ガス処理設備として設置されているバグフィルターは、気体中のばいじんをろ過して除去するものですが、このままではバグフィルターを通過してしまいます。そこで、焼却炉の後のバグフィルターや煙道、すなわち、冷却後(150~170℃)に、CsClがガス態としてどの程度存在するのか、Clausius-Clapeyronの式⁷⁾を用いて、推定した結果を表3に示します。バグフィルター付近の低温では、CsClの蒸気圧は10の-11から-12乗のオーダーであり、揮発性の低いダイオキシン類と比較しても9~11桁ほど低く、超低揮発性もしくは不揮発性といえるくらいのレベルと考えられます。すなわち、燃焼ガスが冷却されるとダイオキシンと同様にセシウム塩は凝結し、ダイオキシンが除去できている排ガス処理設備では、より確実にセシウム塩の除去ができると考えられます。

CsとSrはイオン化エネルギーが低く、陽イオンになり易く、特にCsの反応性は非常に高く、一度大気へ放出されれば容易に酸化されると考えられます⁸⁾。したがって、環境中ではCsは、酸素、水、その他の元素や化学物質と反応し、酸化物、塩化物、炭酸塩、硝酸塩などの塩類もしくはイオンとして存在すると推察されます。Cs塩およびSr塩の水への溶解度を表4に示します⁹⁾。CsClなどのCs塩は、溶解度が非常に大きく、浸出水などの水中ではCs⁺イオンとして存在すると考えられます。なお、SrはF以外のハロゲン化塩の溶解度が大きいですが、炭酸塩(SrCO₃)、硫酸塩(SrSO₄)、フッ化物(SrF₂)の場合

表4 Cs塩およびSr塩の水への溶解度⁹⁾

元素	塩	単位	温度/°C	溶解度
Cs	CsBr	g/飽和溶液100g	25	55.23
	CsI	g/飽和溶液100g	15	4.45
	CsCl	g/溶媒100g	25	65.55
	CsI	g/飽和溶液100g	25	46.1
	Cs ₂ CO ₃	kg/g*	20*	11.1*
	CsHCO ₃	g/溶媒100g	20	67.8
	Cs ₂ O	g/飽和溶液100g	30	70.63

元素	塩	単位	温度/°C	溶解度
Sr	SrBr ₂ ·6H ₂ O	g/溶媒100g	25	107
	SrCl ₂ ·6H ₂ O	g/溶媒100g	25	55.8
	SrI ₂ ·6H ₂ O	g/溶媒100g	20	177.8
	Sr(OH) ₂ ·8H ₂ O	g/飽和溶液100g	25	0.85
	Sr(NO ₃) ₂	g/溶媒100g	26.40	82.052
	SrSO ₄	g/飽和溶液100g	20	0.0132
	SrCO ₃	mol/溶媒1kg	25	5.53E-05
	SrF ₂	mol/L	25	0.00091

*溶媒は水ではなくエタノール

は、溶解度が桁違いに小さくなります。放射性同位体の環境濃度、例えば、Cs-137の10Bq/Lは、つまり、 2.3×10^{-14} mol/Lと極めて微量であることから、大気から水系に降下した元素およびその塩類は、すべてイオン化して溶解するものと考えられます。ただし、イオン化したCsは、土壌等の他の媒体へ吸着します。吸着力は吸着媒体の性質に依存し、吸着力が強い場合には、水環境中に存在する量が少なくなります。土壌等への吸着特性に関しては、次回以降に紹介します。

参考文献(URLは2012年3月現在)

- (独) 国立環境研究所 (2011) 放射性物質の挙動からみた適正な廃棄物処理処分(技術資料), http://www.nies.go.jp/shinsai/techrepo_r1_111202.pdf
- 文部科学省 (2011) 文部科学省(米国エネルギー省との共同を含む)による航空機モニタリング結果, http://radioactivity.mext.go.jp/ja/monitoring_around_FukushimaNPP_MEXT_DOE_airborne_monitoring/
- 石川友清 (2003) 初級放射線, 通商産業研究社
- 動力炉・核燃料技術開発事業団 (1993) 放射線業務従事者指定教育講座テキスト
- Yaw CL.(1999) Chemical Properties Handbook: Physical Thermodynamic, Environmental, Transport, Safety, and Health Related Properties for Organic and Inorganic Chemicals, McGraw-Hill NY.
- Scheer MD, Fine J.(1962) Entropies, Heats of Sublimation, and Dissociation Energies of the Cesium Halides, J.Chem. Phys., 36 (6), 1647-1653.
- Mackay D, Shiu WY, Ma KC.(2006) Handbook of Physical-Chemical Properties and Environmental Fate for Organic Chemicals, CRC Press Taylor & Francis, Boca Raton, FL.
- コットンら(中原訳) (1991) 基礎無機化学 第二版, 培風館
- Linke WF. (1965) Solubilities: Inorganic and Metal-Organic Compounds; A Compilation of Solubility Data from the Periodical Literature, 4th ed.; American Chemical Society: Washington, DC.