

解	説
---	---

超ウラン元素による影響の評価—ウランとも比較して

阪上 正信*1

(1987年6月2日受理)

The Effect of Transuranium Elements, as Compared with Uranium

Masanobu SAKANOU*1

KEY WORDS : plutonium, americium, neptunium, radiation dose, environmental distribution, risk

1. はじめに

もともとウラン鉱中に天然の中性子による誘導生成核種として、きわめて微量で存在するものでしかなかった半減期1億年に満たぬ放射性的超ウラン元素も、歴史的にはまず人工的に製造発見されたため人工放射性元素とされた。最近原子力利用の増加に伴い、すでに45億年の年齢を経過した地球上でも、100億年に近い以前の宇宙での諸元素の合成をなぞらえるごとく、その量が増加しつつある。人類は地球の歴史に比してはごく最近に誕生したものである。このような人工放射性元素の増加の人類に対する影響とリスク評価は、これからの人類にとっては大きな問題であり、その事前評価とそれへの適切な対応が一つの課題となっている。ここでは主として保健物理的観点に目標をおきつつ、これに関係する諸事項につき解説検討してみよう。

まずこのような影響評価解析においては量×質=仕事(影響)であるから、超ウラン元素に属する諸放射性核種の量的側面および質的側面を吟味しなければならない。前者については、すでに長崎原爆をはしりとしてその後の大規模核実験などによりどの程度人間環境に超ウラン元素が散布され、また ^{241}Pu から生成する ^{241}Am のように、その後の壊変により親核種からどの程度生成しているかとともに、現在の原子力平和利用により、どのような原子炉でどのような運転照射条件のもとでは超

ウラン元素諸核種がどのような割合でどの程度生成するか、また核燃料工場も含む施設内でどの程度排出飛散するか、さらに再処理過程でどのような化学分離がなされ、最終的に廃棄物として人間環境にもたらされて後にならざるか、またその中で放射性核種の減衰と成長に伴う量的変化などが問題となる。

一方、後者の質的側面においては、各核種の放出する放射線の線質特性はもとより、ヒトの被爆などを考慮するさいの量的因子を支配するものとして、施設内での諸核種の閉じこめの条件、放出された廃棄物では、海洋放出、海洋投棄、地層処分等における工学的諸条件・地質学的条件・水理状況も含む地球化学的諸条件、さらに環境生態系および人体摂取後の体内での生物化学的諸条件などが関係する。このような諸条件のもとでの各核種の化学元素としての質的挙動が問題となり、それにより年間被曝線量も評価される。それにリスク係数(線量あたりのリスク)を考慮して最終的に「がん死」等疾病リスクが推算され、他の社会的諸活動によるリスクとも比較可能となり、これをもとに行為の正当性の判断、行為の適切な制御ができることとなる。

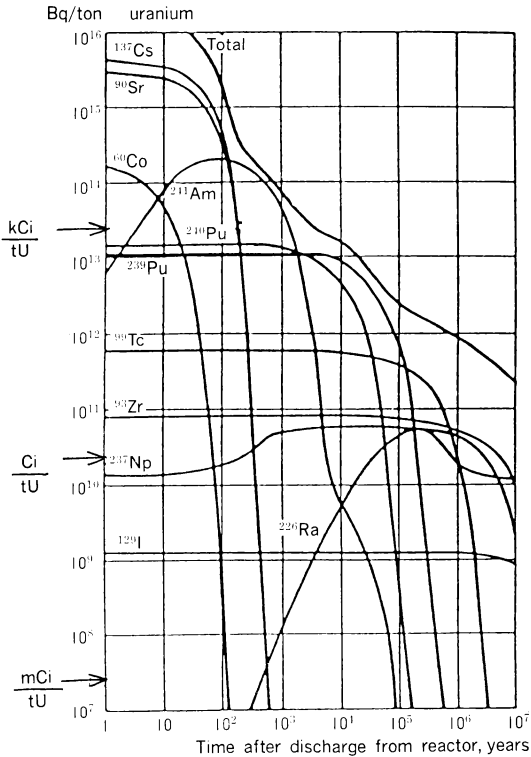
2. 超ウラン元素の生成量

天然にはすでに放射性元素であるウランおよびトリウムが存在し、その壊変に伴う系列をなす娘諸核種も地球全体としては放射平衡をなして存在している。ウランは岩石土壌中で平均数 ppm の濃度で存在し、地球上で ^{238}U は表層1cmでも全量 1.6×10^7 ton 約6 MCi、また ^{235}U は 1×10^5 ton、0.2 MCi 存在することとなる。

*1 金沢大学名誉教授; 宝塚市宮の町 14-20 (〒665)
Professor Emeritus, Kanazawa University; 14-20,
Miyano-machi, Takarazuka.

第1表 高レベル廃棄物中の存在量

ウラン 1 ton 核燃料, 再処理後1000年後の量 (Ci/ton)	セラフィールド再処理工場 1979年放出量 (kCi)
Pu-239	2.0
Pu-240	6.1
Pu-241	すべて Am-241 へ
Am-241	42
Am-243	16
Np-237	0.35
	(²⁴² Cm 0.01 ²⁴³⁺²⁴⁴ Cm 0.004)
U-238	0.0016
Tc-99	13
I-129	0.032
(U-233	0.27)



第1図 使用済核燃料中の放射能の時間的変化

3.2% ²³⁵U 濃縮核燃料ウラン 1 ton あたり出力 38.5 MW 燃焼率 38,000 MW 日の PWR 燃料の場合。

一方、トリウムも ²³²Th として 5×10^7 ton, 7.7 MCi は存在している。

これに対し、1945年の長崎原爆以来、環境中に約 3.5 ton の Pu-239 (半減期 2.4×10^4 年) と Pu-240 (半減期 6.57×10^3 年) が大気圏原水爆実験により導入され、さらに地表および地下核実験でも直接大地に約 1 ton 足らずが導入され、これらを放射能に換算すると全体で約 500 kCi (0.5 MCi) に達する。

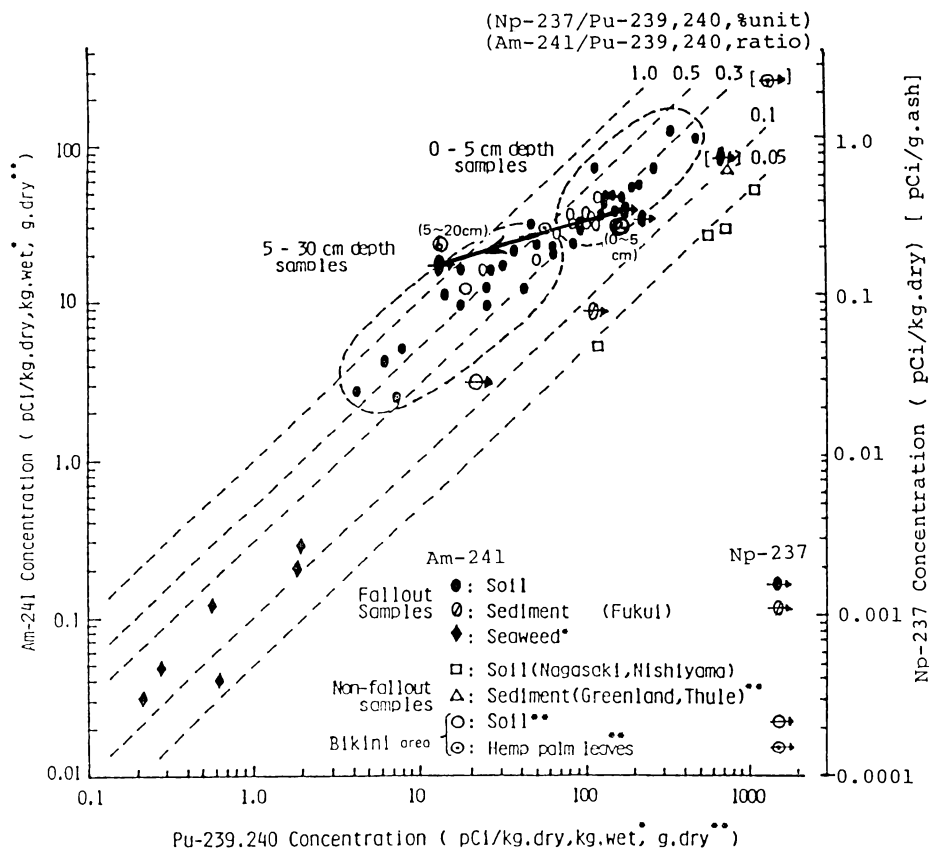
なおプルトニウム以外の超ウラン元素としては、多重中性子捕獲によって生じたプルトニウムの重い同位体 Pu-241 (半減期 14.4年) も生成し、これは β -放射体なのでその壊変により α 放射体 Am-241 (半減期 433年) が生れる。核実験によるこの導入量は約 95 kg, 放射能に換算して約 320 kCi (0.32 MCi) とされている。

これらのほかに原子力利用の進展に伴い、核燃料の原子炉内での中性子照射により超ウラン元素が生成するが、その量がどの程度で諸核種の量比が時間的経過も含めてどうなっているかも重要である。このような計算に

ついては、米国オークリッジ研究所で開発された計算コード“ORIGEN”があり、新しい核反応断面積、核分裂収率、その他のデータを用いた ORIGEN2 が 1980 年にだされている。第1図には加圧水型原子炉 (PWR) で U-235 3.2% 濃縮の核燃料ウラン 1 ton あたりにつき、出力 38.5 MW で、38,000 MW 日運転したときに生じる種々の放射性核種の量と時間的経過を示す。この図でわかるように数十年の間は Cs-137 および Sr-90 の放射能が圧倒的であるが、その後は Pu-241 から生成した Am-241 およびプルトニウム、さらに Np-237 などのような超ウラン元素が、Tc-99, Zr-93 そして I-129 などのような長寿命核分裂生成物とともに重要になる。

たとえば 1000 年を経過した高レベル廃棄物中にどの程度の超ウラン元素諸核種が存在するかを、ウラン 1 ton あたりについて計算すると第1表のようになる。ただしこの場合は加圧水型原子炉で 33 GW 日のエネルギー生産をウラン 1 ton あたり行つてのち、160 日冷却してからウランおよびプルトニウムを 99.5% 回収除去した廃棄物についての値である。なお同表右欄 () 内には参考のために実際に英国のセラフィールド再処理工場から 1979 年に放出された量を示した。なおここでこの年に再処理された核燃料の発電量は 2.5 GW (e) 年とされている。

しかし現在の環境中の超ウラン元素を考える場合は、上掲の英国の工場の影響をうけた Irish 海などのような再処理施設周辺および、米国 Rock Flat などのような核燃料工場などの周辺のみがこのような原子力利用に関連するものとしてとくに問題となるだけである。環境に現



第2図 環境土壌試料等における $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am および ^{237}Np の濃度とその関係

存するものの大部分は核実験によるものであり、一方、高レベル廃棄物についての環境影響は将来大きな課題を含むものである。

3. 環境における超ウラン元素の存在量

現在地球上の諸環境に主として原水爆実験に起因した超ウラン元素が、どのように量的に分布しているかについては種々の研究が行われており、金沢大学における諸研究のまとめも最近行った¹⁾。その一例として第2図には土壌および沿海底堆積物中にどの程度のプルトニウムおよびアメリシウムが存在するかを示すとともに金沢大学低レベル放射能実験施設において最近その分析法を検討開発し、それを適用して得られた環境試料中の Np-237 の濃度も示してある。なお同図には Pu-239+240 に対する Am-241 および Np-237 の濃度比が点斜線でわかるように示されているとともに、参考のため長崎西山地区、プルトニウム爆弾をもった航空機事故のあったグリーンランド Thule の試料および核実験場ビキニ地域の試料についての値も示した。 Np-237 は $^{238}\text{U}(n, 2n)^{237}\text{U} \rightarrow$ および Am-241 の壊変生成物として生成するが、

その環境での挙動がプルトニウムと異なることは、同図において福井丹生湾海底土の試料で $^{237}\text{Np}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比が通常の $0.2 \sim 0.1\%$ より低く、一方奥越高原土壌の深度別試料については表層 ($0 \sim 5\text{cm}$) ④ではその比が $0.22 \pm 0.03\%$ であるのに、深さ ($5 \sim 20\text{cm}$) ⑤では $1.4 \pm 0.2\%$ となっていることにうかがわれ、このことは後述の超ウラン元素の化学的特性との関連で説明される。

このような一般環境の土壌のプルトニウムは、核実験より大気中から直接もたらされるか、または $^{238}\text{U}(n, \gamma)^{239}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Np} \rightarrow$ により生成したものである。大気中のプルトニウムについては諸研究機関での測定値があり、10年ばかり前には数 $10 \sim 100 \text{ aCi/m}^3$ の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が観測され、あきらかな季節変動(成層圏からの降下の多くなるいわゆるスプリング・リーク時に多く秋から冬にかけては少い)も認められていた。しかし、最近では数 aCi/m^3 ($10,000 \text{ m}^3$ の空気をハイボリューム・エアサンプラーで吸引浮遊塵を採取しても数 dph) 以下となっている。部分的核実験停止条約締結直後の放射性降下物の多

かった 1964~1965 年年頃は当時の大気中 ^{90}Sr 濃度から推算して年平均でも 200 aCi/m^3 はあったとみられ、年間降水量も 100 pCi/m^2 近くから数 10 pCi/m^2 さらに数 pCi/m^2 以下と減少している。全降下蓄積量としてはわが国では東京での降水量をもとに 1.2 mCi/km^2 (1.2 n/m^2) と推定されており、降下物の多い日本海側ではこの約 2 倍の蓄積量がある。全世界的にみても北半球では約 2 mCi/km^2 で、核実験の少なかった南半球ではこの約 1/5 と地球上での分布の差はあるものの、大気圏核実験で生成し地球に導入されたプルトニウム量約 400 kCi のうち核実験場周辺への導入量約 70 kCi を差引いた量に見合う蓄積量である。

なお浅い湖や沿海では降下したプルトニウムの 96% 以上はすでに沈殿し堆積物中に見出され、海洋においても海域により異なるが、表層では海水 $1,000 \text{ l}$ 中で現在はほぼ $0.2\sim 0.6 \text{ pCi}$ であるが、むしろ $300\sim 800 \text{ m}$ の深度の海水の方が $1,000 \text{ l}$ 中に $1\sim 2 \text{ pCi}$ のプルトニウムを含む。これはプルトニウムが粒子状態濁物に吸着沈降しやすいため、これも後述する超ウラン元素の化学的特性に起因する。これと比較してウランは海水中に $3.3 \mu\text{g/l}$ すなわち海水 1 l でも数 pCi 存在し、これはウラン VI 価の Dioxy イオンであるウラニルイオン (UO_2) $^{2+}$ が可溶性の炭酸錯体を作りやすいことと関係する。このことはトリウムは地圏ではウランに匹敵する濃度でありながら、海水中では約 $6\times 10^{-4} \mu\text{g/l}$ しか見出されず、+4 価の原子価状態で加水分解や吸着沈降しやすいということも比較される。

4. 化学的特性からみた挙動

プルトニウムを含むアクチニド諸元素は化学元素の周期系では内部遷移元素として、4f 電子殻の充填されるランタニド元素と類似して、5f・6d 元素として欄外におかれている。しかし、4f・5d 元素のランタニドに比し、5f 軌道と 6d 軌道のエネルギーレベルの差はあまりなく、必ずしも原子番号順に電子が順次 5f 殻に入るわけではなく、6d 状態をとることもある。そのため、7s・6d 電子がとれて陽イオンになるときも +3 価の原子価状態のみでなく、Hf~Hg の第 3 遷移元素 (5d 殻に順次電子充填) に似て種々の酸化状態をとりうる。この点からみて、93 番元素ネプツチウムは周期律表上で名誉ある位置 (a place of honor) を与えられる興味ある元素とされ、環境挙動を考える場合でもその前後のウランと超ウラン元素の挙動のいろいろな典型を与えるものとして関心がもたれる。すなわち (+3), +4, +5, +6, (+7) といった種々の酸化状態をとり得るアクチニド元素のうち、トリウムが +4 価、プロト

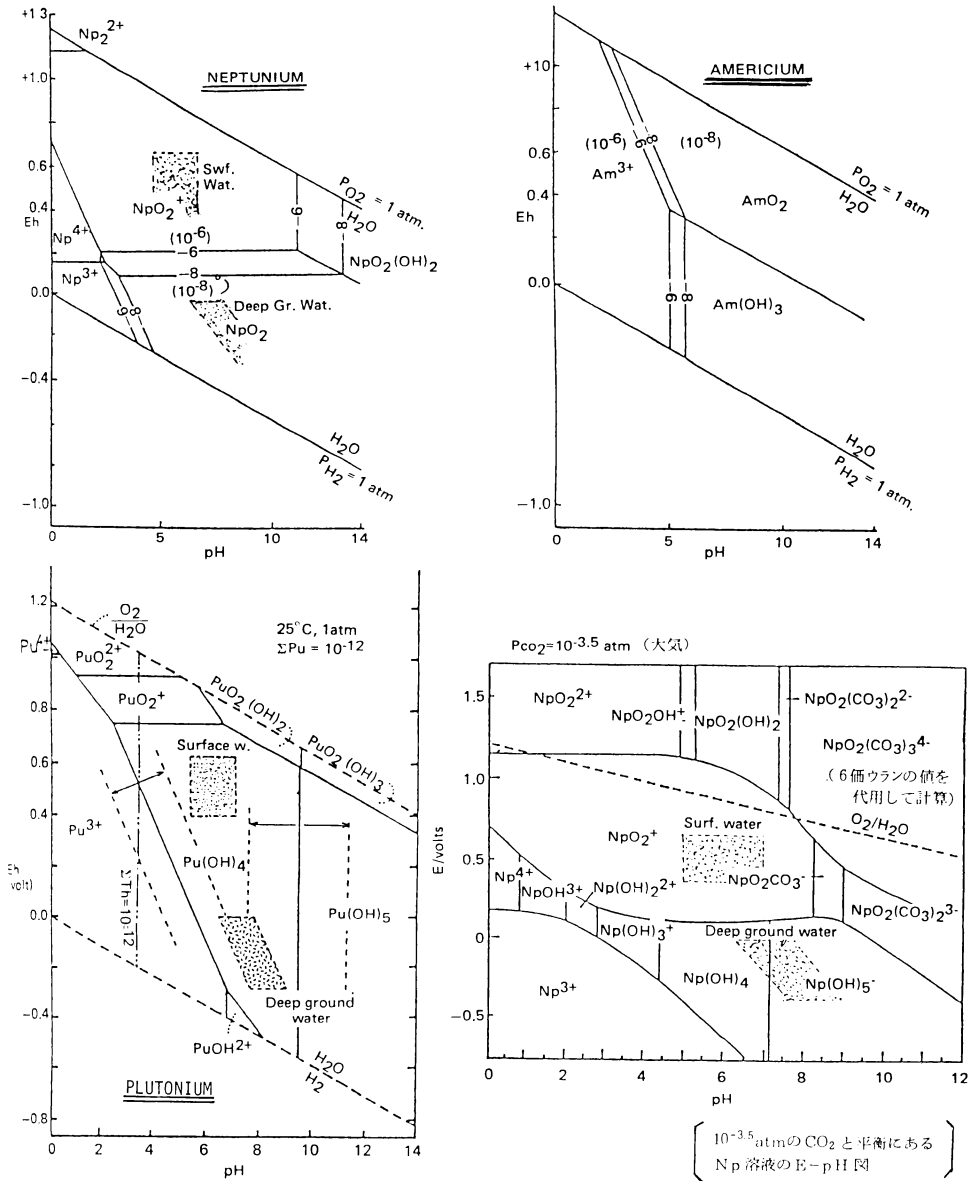
アクチニウムが +5 価を主とするのと異なり、ウランはむしろ +6 価が安定で Dioxy イオン (UO_2) $^{2+}$ となることが多く、さらにネプツチウムは +5 価が割合安定で水溶液中では (NpO_2) $^+$ の 1 価の陽イオンとなり、他の超ウラン元素の +4 価のプルトニウムや +3 価のアメリカニウムと比較して吸着沈殿しにくく、酸化状態の環境では溶存、移動しやすい。このことが前節の第 2 図と関連して説明した海底堆積物や土壌中の深度分布にみられた $^{237}\text{Np}/^{239+240}\text{Pu}$ 比を生む要因とみられる。このように超ウラン元素では酸化還元状態が重要なので、その元素について熱力学的データにもとづく E_h (酸化還元電位)-pH 図を第 3 図に示す。たとえばプルトニウムは +3 から +6 までの酸化状態を、いろいろな状況で考えられる天然の pH, E_h 範囲の水溶液でとり得るが、酸性条件では低原子価が安定であるが、塩基性の増加に伴い高原子価状態がより安定となる。

実験室内においても種々のトレーサーを用いて超ウラン元素についてテクネチウムやストロンチウム、セシウムなどとも比較して、種々の岩石や鉱物への吸着実験が行われるようになってきている²⁾。いわば岩石と水の相互作用における各元素の分配係数値 K_d (岩石 1 g の吸着量を溶液 1 ml あたりのトレーサーに用いた放射性核種量で割った値) (ml/g 単位) を求めることは、核種の移行の難易を推定するために重要であり、前述の挙動の差もこの点で認められている。

なお種々の環境においてはこれら諸元素と無機イオンおよび有機物との錯体形成も重要な因子である。例えばプルトニウムについても、錯化能の大きさはその酸化状態にも関連し $\text{Pu(IV)} > \text{Pu(III)} \geq \text{Pu(IV)} > \text{Pu(V)}$ とされており、Dioxy イオン生成は錯化能を小さくする。一方、Pu(IV) は粒子に吸着したり、加水分解して pH 2~3 以上の溶液中からは除かれることが多い。また土壌および陸水中のフミン酸その他有機物の濃度も超ウラン元素の状態とその環境挙動に大きく影響するものとして研究がはじめられており、高レベル廃棄物の安全な地層処分にも関連するものとして興味を持たれている。

5. 環境および生態系での移行と被曝線量評価

一般環境中の放射性核種が最終的にヒトにどの程度の被曝線量を与えるかについては、超ウラン元素については高エネルギー γ 線を放出するものは少く、大部分が α 放射体として外部被曝より内部被曝が問題なので、放出された諸核種がどのような移行経路をとってヒトに摂取されるか、その過程でどのように量的に希釈または濃縮されるか、またヒトに摂取されてからもどのように量取に各臓器に到達するかが問題である。



第3図 超ウラン元素の E_h (酸化還元電位)-pH 図

超ウラン元素の摂取については、主として大気中へ放出されたものの吸入摂取と農畜産物の経口摂取および海洋放出されたものを濃縮した海洋生物の経口摂取を考えればよいであろう。

まず大気中に核実験により放出されて存在するプルトニウムの直接吸入被曝については、大気中に存在するプルトニウムの空気力学的放射能中央径 (AMAD) についてもその範囲が $1.0 \sim 1.9 \mu\text{m}$ で平均 $1.5 \mu\text{m}$ であること

第2表 諸元素の濃縮係数 (IAEA)

	U	Np	Pu	Am	Cm
表層魚	1×10^0	1×10^1	4×10^1	5×10^1	5×10^1
甲殻類可食部	1×10^1	(1×10^2)	3×10^2	5×10^2	5×10^2
軟体動物(頭足部を除く)	3×10^1	4×10^2	3×10^3	2×10^4	3×10^4
大型海藻	1×10^2	5×10^1	2×10^3	8×10^3	8×10^3
プランクトン	動物性	5×10^0	(1×10^2)	(1×10^3)	(2×10^3)
	植物性	2×10^1	1×10^2	1×10^5	2×10^5

も測定し、原研の笠井氏は、ICRPの肺モデルを用い各年度の推定または実測大気中濃度から、呼吸率 $20 \text{ m}^3/\text{日}$ として、体内摂取量と肺およびリンパ腺、肝臓に対する沈着負荷量を求めている³⁾。そして1961年から1981年までの臓器線量当量預託として肺では 0.035 mSv 、リンパ腺で 0.25 mSv 、肝臓では 0.05 mSv 、骨では 0.022 mSv とし、実効線量当量預託としては 0.021 mSv を算出している。

一方、原子力施設から大気中への年間放出量 $Q(\text{Ci}/\text{年})$ から地表付近大気中の年間平均濃度を求めるには、超ウラン元素をどの程度施設内に閉じ込めうるかの係数をもとに Q を知るとともにサイト周辺の地理的、気象的条件からある地点 (r, θ) での年間平均濃度を推定する必要がある。これにはいろいろなモデルが提案されており、米国原子力規制委員会 (U.S. Nuclear Regulatory Commission) の1977年 Regulatory Guide 1.109 (10 CFR, Part 50, Appendix 7) のモデルが基本となっている。なお大気中濃度については地表に降下沈着した超ウラン元素諸核種が地表土壌粒子とともに風などによって再浮遊することも重要な因子であり、そのさいの再浮遊係数 (Suspension factor: Sf) [地表の蓄積量 Ci/m^2 に対する再浮遊による大気中濃度 Ci/m^3 の比] も検討されており、 10^{-9} m^{-1} 程度の値が用いられている。しかし今後わが国でも国土表面の状況、その地での風速等の気象条件の差異も考慮して、エアロゾル粒子の粒径分布等とともに大気中濃度の高度別変化の有無等に関する研究が進むことが期待される。

経口摂取に関係する農作物については、大気中からの直接沈着と、地表沈着したものからの経根吸収が考えられるが、これについても沈着速度や農作物からの有効除去率、また土壌から可食部への移行係数などが検討される必要がある。しかし、超ウラン元素についての土壌からの取り込みは、 $(\text{NpO}_2)^+$ の化学形のネプツニウムを除けばあまり大きくないとされている⁴⁾。一方海産物については、海水から海産物への移行比 ($\text{pCi}/\text{kg-wet}$

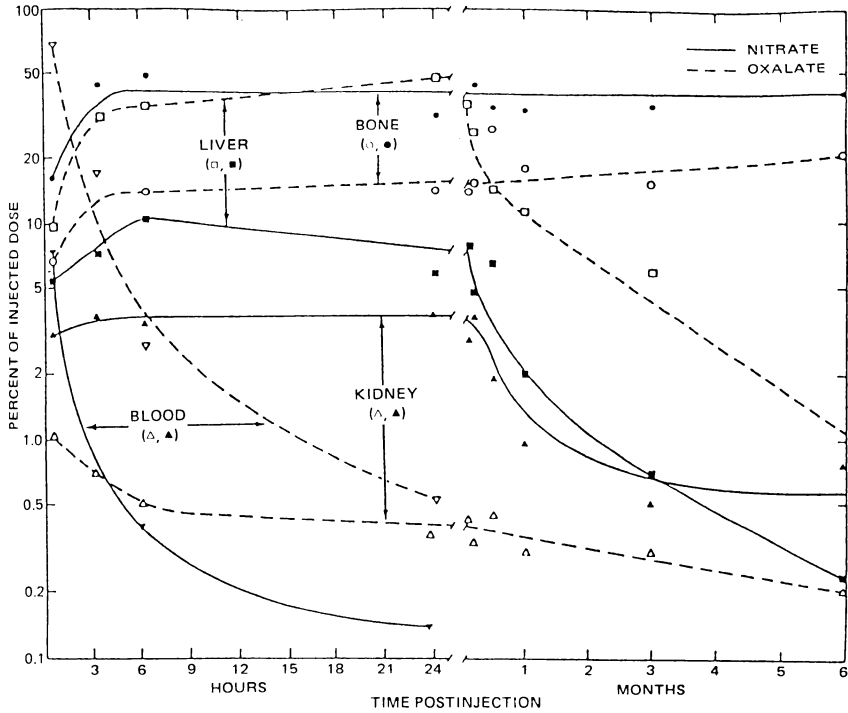
海産物を pCi/l 海水で割った値) である CF (Concentration factor: 濃縮係数) が重要な因子となる。これについても超ウラン元素それぞれについて種々の値が出されているが、一応 IAEA では Technical Report Series No. 247 (1985) では上の第2表の値を勧告しているのでウランとも比較して示す。

これらの値はいろいろな実験室内でのトレーサー実験や環境での実際のデータ等から推定されたもので、その値も表示の値の $1/10$ から数倍に及ぶ範囲がある。

このようなことと関連して生態系および動物内代謝、トレーサーを附加した土壌による植物の育成、ラットなどによる動物実験等の成果を要領よくまとめた総説⁴⁾ もあり、その引用文献には数々の参考となる原論文をみることができる。ここには第4図にラットにネプツニウムを硝酸塩またはシュウ酸塩の形で注射したときの各臓器への時間的な移行の状況を示しておこう。

さて人体に摂取された場合の各臓器の被曝線量 (rad) を評価するために重要なのは線量換算係数 (dose conversion factor), すなわち各核種 1 Ci 摂取あたりの線量 (rad/Ci) である。これには化学元素としての各核種の人体内代謝と排泄因子および各核種の核特性すなわち放出する放射線のエネルギー等が関連する。ICRP (International Commission on Radiological Protection) は国際的にこの課題にとりくみ、各国の研究をもとに総合的な指針を出版している。わが国の放射線防護の法体系も1959年出版の [ICRP 2] を基礎としていた。ICRP は1979年には種々の新知見を入れて [ICRP 30] が出版され、人体内代謝についての移行係数にかなりの改訂がみられた。これにより求められた各核種の rad/Ci の値を COHEN の論文⁵⁾ によって示したのが第3表である。ICRP 30 では Sv/Bq 値を与えているが、第3表ではこれらの計算に使用された線質係数その他の仮定を吟味して rad/Ci を求めて示されている。

なおこれに用いられた新しく提起された ICRP 30 における体内移行係数および排泄の生物学的半減期の一部を



第4図 ラットに注射されたネプツニウムの生動態挙動

第3表 線量換算係数と移行係数

	rad/Ci($\times 10^6$)			移行係数と T_b		
	骨 髄	骨 表 面	肝 臓	血 液 f_1	骨 f_2 [T_b]	肝 臓 f_2 [T_b]
Np(^{237}Np)	2.8	3.6	7.6	10^{-2}	0.45 [100年]	0.45 [40年]
Pu(^{239}Pu , ^{240}Pu)	0.3	0.4	0.08	10^{-4}	0.45 [40年]	[40年]
Am(^{241}Am , ^{243}Am)	0.16	2	0.4	$5 \cdot 10^{-4}$	0.45	0.45 [40年]
U(^{238}U)	0.013	0.19		0.05	0.023 [14年]	

も示したが、 f_1 は消化管から血流への移行係数、 f_2 は血流から各臓器への移行係数、 T_b は生物的半減期(排出係数の逆数と関連)である。とくに ^{237}Np については血流への移行係数がICRP 2での値の100倍、血流から肝臓への移行係数が9倍大きくなったことは注目すべきことである。これらを総合的に考えるとNpのrad/Ciは骨については144倍、肝臓について760倍となり、Puではそれぞれについて2.7倍と8倍、Amについてはそ

れぞれ12倍と15倍と増大したのと比較しても大幅な増大で放射線生物学的にも、ネプツニウムは他の超ウラン元素に比し環境放出量はプルトニウムやアメリシウムに比し少ないものの、体内での移行沈着が著しい最重要の α 放射体となっている。

6. リスク評価と安全規制

リスク評価には、最終的にある線量に被曝したとき、どの程度のリスク(がん死など)が生ずるかのリスク係

第4表 リスク係数 (risk/rad) (×10⁻⁶)

	Low-LET	α放射体
全身	120	—
骨髄→白血病	22	21
骨表面	0.47	27
肝臓	6.5	300
腸	6.3	200
甲状腺	7	—
胃	12	—

数が必要である。これについては1972年のBEIR (Biological Effects of Ionizing Radiation) 委員会報告 [BEIR 1] が見解を示しているが、それがさらに改訂され1980年に [BEIR III] として報告された。そこでの種々の人体組織についての「致死のがん」となるリスク係数を第4表に示した。この表で見ると、Np などのようなα放射体でのリスク係数は low-LET のβ放射体に比してリスク係数 (risk/rad) が高く、1 rad あたりの被曝で肝臓での致死のがんの発生は、100 万人あたり 300 件と他に比して大層多く見積られていることは注目すべきである。

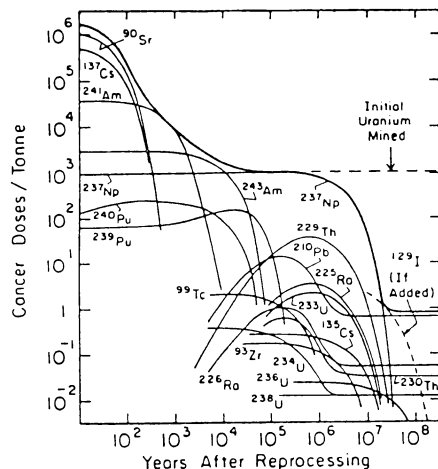
以上のように、それぞれの核種についての 1 Ci あたりの線量換算係数 (rad/Ci) とリスク係数 (risk/rad) の数値が与えられると、それぞれの核種 1 Ci あたりのリスク (がん死数) が、両者の積として各臓器ごとに求められ、それらを合計しての「がん死」の総数も第5表のように求められる。この場合、リスク確率の大小は線量の大小と直線関係にあるとの仮定にたっているため、全体として 1 Ci をとりこむ人間集団の対照人数が多ければ 1 人あたりの Ci 数は少くなり、確率はへるが、実数は確率×人数なので変わらないから、対照人数とは無関係に「がん死」実数の発生が推算されることとなる。このようにして求められた 1 Ci あたりのリスク総数 (risk/Ci) にウラン核燃料 1 トンあたりの高レベル廃棄物中の各核種の存在量 (Ci/t) に乗ずると一応それに対応するリスク実数 (CD: Cancer Dose がん死数) が得られる。再処理後の高レベル廃棄物 (HLW) 中の各核種それぞれについては 1000 年後について第1表と第5表からその値を求めると ²⁴¹Am, ²⁴³Am とならんで ²³⁷Np の寄与の大きいことがわかる。

以上のようにしてウラン燃料 1 トンあたりの高レベル廃棄物中の各核種のリスクが、その半減期や親核種からの生長減衰のため時間的にどのように変動するかを示したのが第5図と第6図である。第5図は核燃料を 160 日

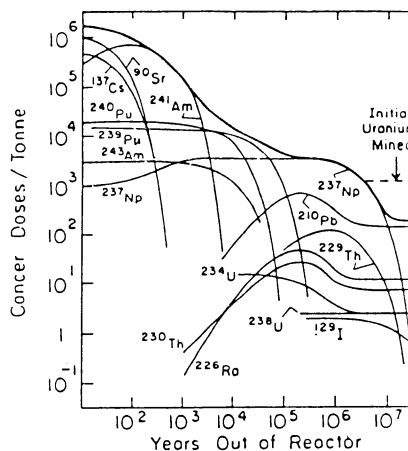
第5表 諸核種 1 Ci 摂取あたりのリスク

	白血病	骨	肝臓	全体
Np (²³⁷ Np)	59	970	2,300	3,300
Pu (²³⁹ Pu, ²⁴⁰ Pu)	0.6	11	24	38
Am (²⁴¹ Am, ²⁴³ Am)	3.4	54	120	180
U (²³⁸ U)	0.27	5.1	—	8

参考 (Tc-99) 0.15, (I-129) 65.

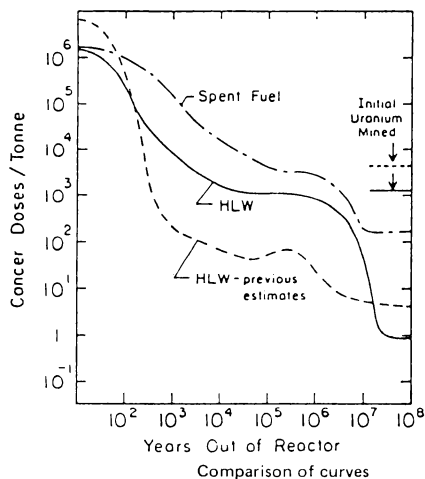


第5図 再処理後のウラン燃料 1 ton あたりの高レベル廃棄物中の各核種による CD 推定 (「がん死数」) の時間的变化



第6図 再処理前の核燃料ウラン 1 ton あたりの使用済燃料中の各核種による CD の時間的变化

冷却後、再処理を行って、その時期における 99.5% の Pu および U 同位体を除去したのち高レベル廃棄物の場合である。廃棄物生成後 200 年ぐらまでの初期は半減



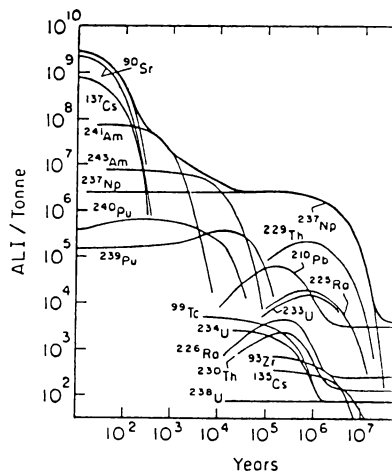
第7図 ウラン1 ton あたりの CD 総計の時間変化比較

使用済燃料と再処理後の高レベル廃棄物 (HLW) についての新旧値

期約 30 年の ^{90}Sr , ^{137}Cs の寄与が大きいが、間もなく ^{241}Am が主要核種となる (再処理をしないと ^{241}Pu からの生長のため、その寄与がより大きく、30 年ぐらゐから有力なことが第 6 図からわかる)。つぎに半減期 7400 年の ^{243}Am が約 1 万年までは有力で、それ以後は半減期 214 万年の ^{237}Np によるリスクが圧倒的に寄与し、1000 年近くまでつくこととなる。なお第 6 図に示す使用済燃料そのままでは初期の 30 年ごろから Pu および Am の寄与の大きなことはもとより、ウラン系列娘諸核種の寄与も 10 年後位からかなり大きく、 ^{237}Np 減衰後はこれらの寄与がかなり残ることとなる。

全体としてのリスクの時間的経過を、以前の [ICRP2] や「BEIR 1」をもとに計算した場合と比較して示したのが第 7 図である。点線で示す以前の評価では、初期の ^{90}Sr , ^{137}Cs のリスクがかなり高く、その減衰でリスクは大幅に減少することになっていたが、新しい評価では、長寿命核種の多い超ウラン元素諸核種の寄与が大きく残る (1000 年でも毒性は初めの 10%, 7000 年でやっと 1%)。また鎖線で使用済燃料そのままの場合を示したが、Pu や U を核燃料再処理で廃棄物から除去することの意義は大きい。さらに ^{90}Sr や ^{137}Cs など廃棄物処分の初期に発熱効果が大きく、容器損傷につながりやすい諸核種を、長寿命で長期間残存する ^{237}Np などから群分離する意義も大きいと思われる。

なお、第 5 ~ 7 図の右縦軸に接して示した水平の点線または実線は、核燃料 1 トンを製造するために鉱山から



第8図 核燃料ウラン 1 ton あたりの各核種の ALI (年摂取限度) をもとにした量的変化

濃縮工場に供給される約 5 トンのウランに潜在するリスクのレベルである。このさい、5 トンの天然ウラン中に 1.65 Ci 存在する ^{238}U については 520 CD/Ci, 0.075 Ci 存在する ^{235}U については 1540 CD/Ci のリスク値を用いて評価しているが、この値は新しい評価では、ICRP 2, BEIR II による評価よりも少し低くなる。

なお、第 8 図は、各時期において各核種の量が、ICRP 30 により指定されたそれぞれの 1 年間摂取限度 (ALI: Annual Limit of Intake) の何倍くらい存在するかを表わしたものである。たとえば、図から 10^5 年の時点では ^{237}Np は約 2×10^6 分の 1 に薄めれば、1 年間摂取限度となることがわかる。

一方、このような考察をガラス固化体について行くと、容器 1 個あたりのガラス固化体 0.2 m^3 (約 550 kg, 10 年間に約 1 kW の発熱) 中には、ほぼウラン燃料 1 トンから生ずる高レベル廃棄物が存在するので、そのリスク合計は処分直後では第 5 図により 1.5×10^6 CD に評価される。ガラス固化体量として 1 件のがん死に相当する致命的な量 (lethal dose) を求めると、処分直後では $550 \times 10^3 / 1.5 \times 10^6 = 0.3 \text{ g}$ が摂取された場合となり、100 年後は 3 g, 600 年後は約 0.3 kg, 1500 年後は約 3 kg と推算される。

以上のリスク計算はあくまでもすべてが人間に摂取されたときのリスク評価、いわば最大の潜在的リスクを評価したものであり、主として米国 Pittsburgh 大学の Bernard L. COHEN の推算⁵⁾をもとにして解説した。しかしこのような高レベル廃棄物を、ガラス固化体として耐蝕性のチタン合金容器等に入れて地層処分した場合、どの程度のものがどの時期に人間にまで到達して摂取さ

れるかの確率が安全評価のために必要であり、これに乗じてはじめて実際に発現するリスクが評価されるところとなる。このような工学的、地質学的、地球化学的因子の評価は一部前述したがまだ未解決の問題が多い。多くの研究者がこれにとりくむようになってきたが、核種別に評価するには、各核種の元素としての地球化学的挙動、生態化学的挙動など、環境における移行特性を、前もって推論し、また実験的にさらに検討することが必要である。

高レベル廃棄物中のリスクが現実にとどの程度発現するか安全解析には、ガラス等に固化された固体廃棄物中の諸放射性核種が1年にどの程度の割合で水溶液系にうつるか、水溶液系の放射性核種が1年にどの位の割合で人間に摂取されるかの評価が大きくかかわってくる。このような安全解析でも、地層処分後のそれぞれの時期に重要な寄与をする⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、²⁴¹Am、²⁴³Amについてはそれらの半減期が相対的に短く、また水・岩石相互作用で吸着・保持されやすいので、潜在リスクの評価では半減期がより長く、酸化環境で保持されにくく毒性のつよい²³⁷Npが指標核種としてあげられる。

このような観点に立って、²³⁷Npを主体に安全解析をPittsburgh大学のCOHENは試みている。彼はまず岩石など地中固体物質が1年にどのくらいの割合で水溶液系に入るかを、地下水の化学組成と地下水の規模(～100 km)およびその動き(地下水が100 m/年の速度で10%空隙率の岩石中を動くとして、1 m²あたり10 m²の水が岩石を通過する)から、岩石中の各元素が1年間に地下水系に移る率として、10⁻⁸/年を推定した⁶⁾。一方、地表の浸食率を、大洋に運ばれ物る質量を120 t/km³、岩石密度を2.7 t/m³として45 m/10⁶年と推定し、600 mの地下に埋められた廃棄物は約13×10⁶年経過するとすべて水溶液系に移ると仮定した。さらに、水溶液にうつるもののうちの1/10,000が人間に摂取されるとして、つぎの式で安全解析、いわば実際に出現する廃棄物の放射能が減衰・消滅するまでの全期間(>10⁹年)にわたるリスク数(がん死)の総数を推算した。

$$F = \int_0^T 10^{-12} (\text{CD})_0 e^{-\lambda t} dt + 10^{-4} (\text{CD})_0 e^{-\lambda t}$$

ただし、 T は廃棄物が地表に露出するなどして完全に水溶液にうつる時期、 10^{-12} は前述の元素が1年間に岩石から水溶液に移る割合 10^{-8} に人間摂取の割合 10^{-4} を乗じた値、 $(\text{CD})_0$ は固化体中のある核種の潜在的な初期リスクである。 $\lambda T \gg 1$ のとき、すなわち T が核種の半減期に比しかなり大きいときは

$$F = (\text{CD})_0 [10^{-12}/\lambda + 10^{-4} e^{-\lambda T}]$$

と近似できる。いま $T = 13 \times 10^6$ 年、²³⁷Npの $\lambda = 3.7 \times 10^{-7}$ 、 $(\text{CD})_0$ として $3.7 \times 10^4 \text{ CD/GW(e)年}$ (ウラン燃料1トンあたりの再処理廃棄物中の²³⁷NpのCDは1150、1 GW(e)年にはウラン燃料約33 tが必要として)とすると

$$F = 0.17 \text{ CD/GW(e)年}$$

と、1 GW(e)年の電気エネルギー発生当りのリスク数が推算される。

キャスクとその腐蝕の安全度、処分地層の不透過性、発熱や種々の事故(閉じこめ孔や、埋没の不完全)などは、完全に廃棄物が水溶液化してしまう時期 T を、遅らせたり、はやめたりする因子と考えられる。もし、 $T = 10^9$ 年と長い年数をとると、²³⁷Npはその時はほとんど残存してないので式の前項のみとなり、 $F = 0.11 \text{ CD/GW(e)年}$ となる。一方、 T が²³⁷Npの半減期 2.1×10^6 年よりかなり短い年数とすると、ほとんど式の後項のみとなり、 $F = 20 \sim 3.5 \text{ CD/GW(e)年}$ の大きな値となる。

なおわが国においても放射性固体廃棄物の陸地処分が緊急の課題となってきたので、その安全管理を確保するための規制の基準値を検討することが、原子力安全委員会放射性廃棄物安全規制専門部会で行われ、それをもとに廃棄事業に関する法律にある政令に定める「核燃料物質又は核燃料物質によって汚染された物の放射能濃度の上限値」を定めることが、放射線審議会にも諮問されるようになってきている。このさいは、ICRPやIAEA等国際機関でとられている考えとして、一般の社会通念では個人の日常行動決定のさいに、それに伴うリスクが非常に小さい場合はリスクを考えないとする無視できる程小さいリスクのレベルとして、個人に対する年実効線量当量は100 マイクロ・シーベルト(10 ミリレム)のオーダーであるとの考えを採用している。そして埋設処分地の諸条件や種々の各元素についての移行パラメーターを根拠に、超ウラン元素などについても、地上処分のさいの管理期間は300年として、その間のPu-241からのAm-241の生長にも配慮し、上限値として α 線を放出する放射性物質の全体の放射能濃度は上記期間において $3 \times 10^{-2} \text{ Ci/ton}$ 以上とならないようにとする線で検討がなされつつある。なお外国においては、米国では半減期5年を超える超ウラン元素諸核種について $1 \times 10^{-1} \text{ Ci/ton}$ 、²⁴¹Puについては $3.5 \times 10^0 \text{ Ci/ton}$ 、²⁴²Cmについては $2.0 \times 10^1 \text{ Ci/ton}$ を陸地処分の上限値としており、フランスではラマンシュに埋設する場合の濃度基準として、 α 核種の濃度が300年後でも $1 \times 10^{-1} \text{ Ci/ton}$ をこえないものとしている。なおスウェーデンでは1977年の国会での約束条件(Stipulation Act)通過後、種々のシナリオ

での放射性廃棄物の地層処分のさいのリスク評価の研究が行われ、KBS 報告として出されており、参考になる点も多い。

ともかく以上で述べてきたように、今後超ウラン元素とわれわれ人類社会とのかわりあいはずますます増加するので、その影響についての保健物理的研究も重要となると考えられる。

参 考 文 献

1) M. SAKANOU; *Radiochim. Acta* (1987), 印刷

中.

- 2) 原子力安全協会; 岩石と核種相互作用に関する研究(1981~1985), 原安協 (1985).
- 3) A. KASAI, T. IMAI and K. SEKINE; *Health Phys.*, **46**, 214 (1984).
- 4) R.C. THOMPSON; *J. Rad. Res.*, **90**, 1 (1982).
- 5) B.L. COHEN; *Health Phys.*, **42**, 133 (1982).
- 6) B.L. COHEN; *Nucl. Tech.*, **48**, 63 (1980).