

## 阿蘇黄土リモナイト（褐鉄鉱）のセシウム放射線量低減効果

### 一原発事故による放射線汚染土壌改良対策及び復旧・復興に向けてのリモナイトの活用と今後の展望一

矢島 博文  
Yajima Hirofumi

#### 1. はじめに

筆者らは、環境浄化作用等多様かつ有用な潜在能力を持つ鉄の酸化物を主成分とする阿蘇黄土リモナイト（LM，褐鉄鋼）をいわき市地区等の放射能汚染土壌 1 m<sup>2</sup> に当たり 2 cm の厚さで散布したところ、LM が <sup>134</sup>Cs 及び <sup>137</sup>Cs からの  $\gamma$  線の放射線量に対し、約 65% に近い低減効果を有することを発見した。そして、それが LM の持つ“コンプトン効果”に基づくことを突き止めた。現在早急に解決しなければならない課題である“福島原発事故による汚染土壌改良”及び“除染の際に出る放射性物質で汚染された土や原発ゴミの処理”，更には“汚染水処理”や“原子炉の廃炉処理”等において LM は非常に有用であり、LM の活用は現行並びに将来に向けての“東日本大震災からの復旧・復

興”に活用できるものと期待される。

#### 2. LM の物理化学的特性

LM は、熊本県阿蘇赤水地方で多量に産出される天然粘土鉱物（褐鉄鉱）で、図 1 及び表 1 に示したように鉄の酸化物を主成分（約 70%）とし、ほかに Ca、Mg 等のミネラル分や炭水化物、粗タンパク質及び腐植物質等の有機物成分を含んでいる。LM の密度は約 3.5 で、一般の土（密度約 1.8~2.0）に比べ重い。LM は土壌改良剤として農作物や植物の生育、飼料添加剤として豚の健康維持や肉質改善、水質浄化剤として池・湖などの藻やアオコの除去、硫化水素やアンモニアガス等の有害物質に対し吸着剤の働きを持ち、その潜在能力の大きさに注目が集まっている。

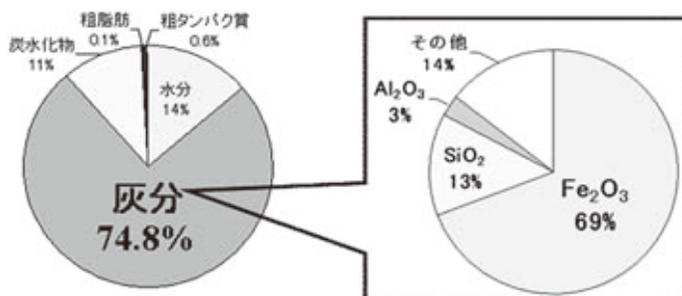


図 1 LM の構成成分

表 1 LM 灰分の成分

Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	69.08%	SiO <sub>2</sub>	13.70%
P	0.09%	K	0.20%
CaO	1.49%	Mn	0.03%
Mg	0.51%	S	0.58%
Na	0.05%	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	2.76%

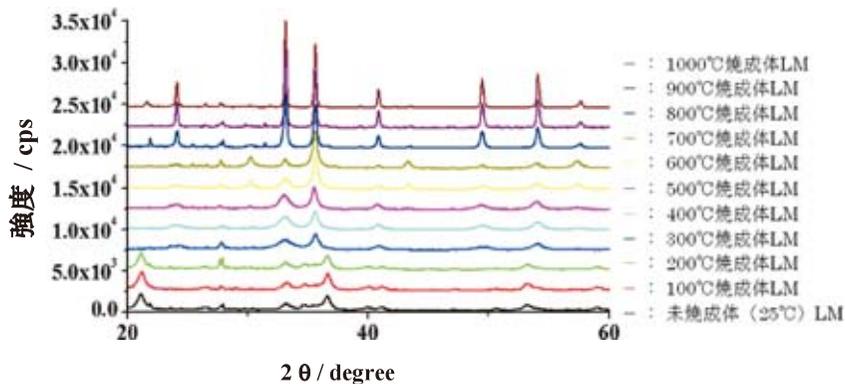


図2 LMのX線回折

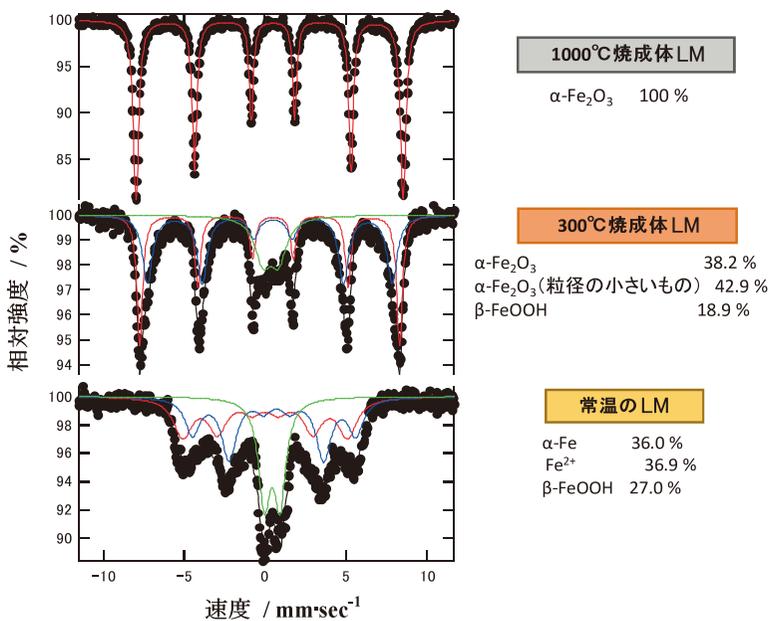


図3 焼成処理LMのメスバウアースペクトル及び鉄酸化物構造

LMの構造特性は多孔質であり、図2に示したように、焼成処理によりLMの鉄酸化物の結晶構造が室温でのゲータイト（針鉄鉱）から、300°C以上でヘマタイト（赤鉄鉱）に相転移すること、また図3に示したように、メスバウアー分光（ $^{57}\text{Co}$  14.4 keVの $\gamma$ 線）から鉄の化学構造が、室温では $\alpha\text{-Fe}$ 、 $\text{Fe}^{2+}$ 、 $\beta\text{-FeOOH}$ （ほぼ同率成分）を取るが、300°C以上では $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ が主成分となるとの知見を得ている。さらに、

ガス吸着実験から、LMの比表面積が焼成温度300°C付近で最大値を取り、その後で減少することが観測されている（図4）。

### 3. LMの放射線遮蔽効果機序

原発事故により放出された放射性元素のうち、その放出量及び放射線被ばくの面から、ヨウ素-131 ( $^{131}\text{I}$ , 半減期 8.0 日), セシウム-134 ( $^{134}\text{Cs}$ , 半減期 2.1 年), セシウム-137 ( $^{137}\text{Cs}$ ,

半減期 30.2 年), 中でも半減期から  $^{134}\text{Cs}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  が注目された。 $^{134}\text{Cs}$  からは 605 keV 及び 796 keV の  $\gamma$  線, また  $^{137}\text{Cs}$  からは 662 keV の  $\gamma$  線が放射される。筆者らは LM を福島県の放射能汚染土壤に散布し, A2700 型 Mr.Gamma (CLEAR-PULSE 社) を用いて測量した結果, LM が土壤からの  $\gamma$  線の放射線量に対し, 約 65% に近い低減効果を有することを発見した。LM の放射線の遮蔽効果の機序を明らかにするため, 京都女子大学の水野義之グループとの共同研究の下, Ge 半導体型  $\gamma$  線検出器を用いて, 福島県相馬郡飯館村より採取した土壤からの  $\gamma$

線を測定した結果, 図 5 のスペクトルを得た。測定における土壤サンプル及び検出装置の配置図を図 6 に示す。図 5 は, LM 層の面積 0.25  $\text{m}^2$ , 厚さ 6 cm, 放射線源地上 20 cm において検出されたスペクトルを示す。スペクトルには  $^{137}\text{Cs}$  及び  $^{134}\text{Cs}$  とともに,  $^{40}\text{K}$  からの  $\gamma$  線が観測された。250 keV 以下の領域はブロードで  $\gamma$  線のエネルギーの低下に伴い増加する傾向を示した。LM 層を通過した結果,  $^{137}\text{Cs}$  及び  $^{134}\text{Cs}$  からの放射線量は減少した。ただし, 250 keV 以下の領域の強度にはほとんど変化が見られない。

一般に“ $\gamma$  線と物質の相互作用”には, “光電効果”, “コンプトン効果”, “電子対生成”の 3 つの効果が発現していることが知られている<sup>1-3)</sup>。これらの効果は  $\gamma$  線のエネルギーに依存し, 低エネルギーでは“光電効果”, 高エネルギーでは“電子対生成”が主であり,  $^{137}\text{Cs}$  及び  $^{134}\text{Cs}$  から中程度の  $\gamma$  線のエネルギーに対しては“コンプトン効果”が支配的である。また, 図 7 に示した“種々の金属の  $\gamma$  線に対する減衰係数  $\mu$  ( $\text{cm}^{-1}$ ) のエネルギー依存性”に見られるように, 250 keV 以下で  $\mu$  が急激に増加することが分かっている<sup>2)</sup>。この急激な増加は光電効果によるものである。

これらの知見を踏まえて, 図 5 の LM による  $^{137}\text{Cs}$  及び  $^{134}\text{Cs}$  からの  $\gamma$  線の減少率を考慮し, 250 keV 以下の領域のスペクトルの性状は, コンプトン効果により生成した  $\gamma$  線の低エネルギー散乱成分が寄与した結果と言える。このことは, 図 7 における鉄の減衰係数の  $\gamma$  線エネルギー依存性に対する近似曲線の理

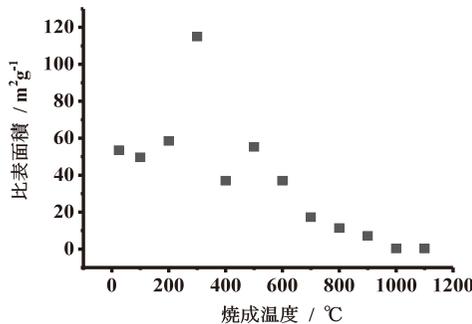


図 4 LM の比表面積の焼成温度依存性

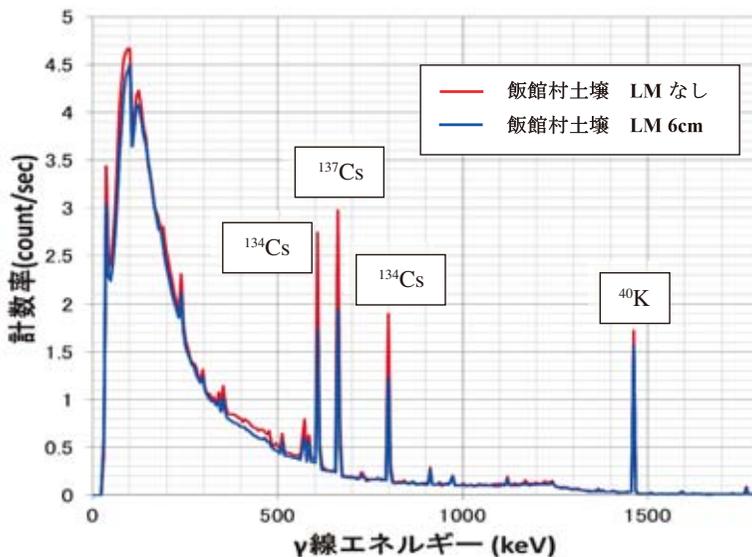


図 5 飯館村土壤の  $\gamma$  線スペクトルに及ぼす LM の影響

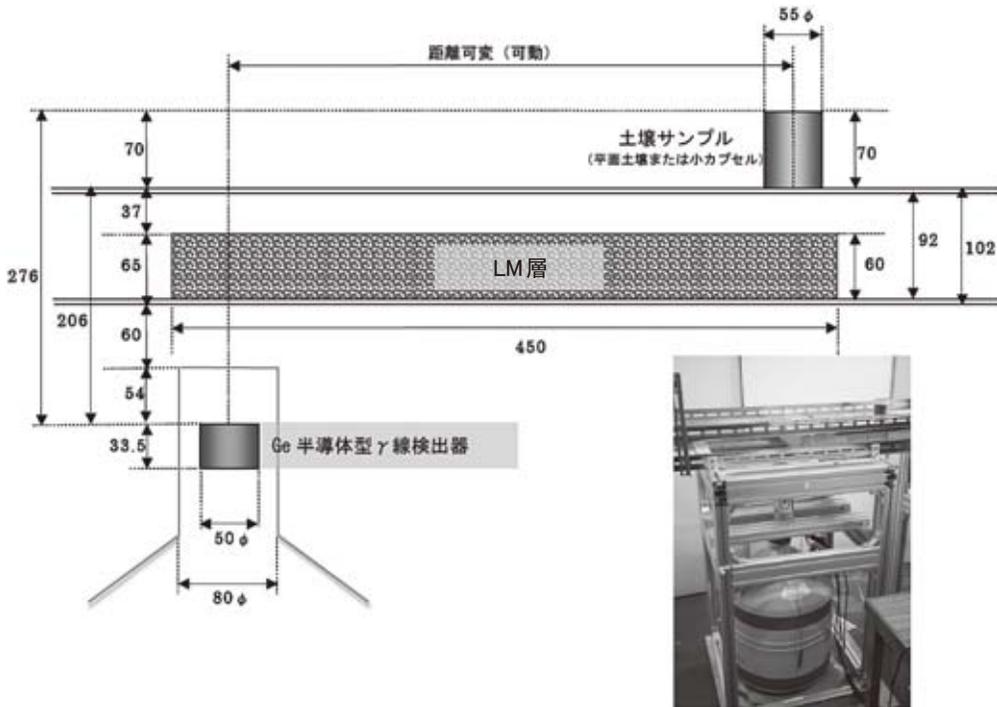


図6 土壌サンプルからのγ線測定における装置等配置図

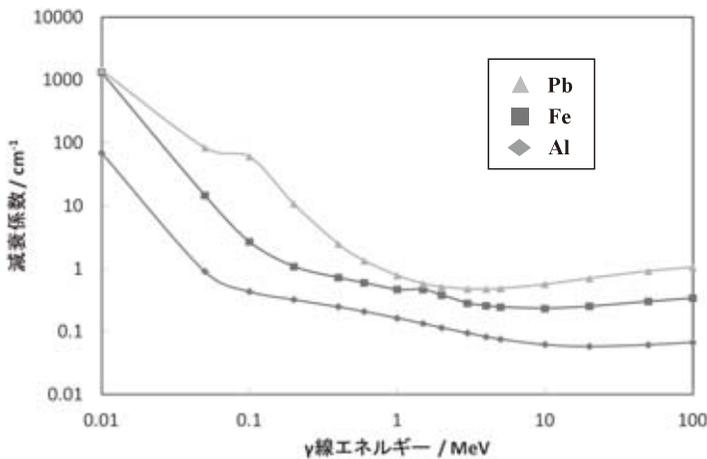


図7 種々の金属のγ線に対する減衰係数のγ線エネルギー依存性

論式を用いて、コンプトン効果の寄与分を算出することにより確認された。なお、検出器の真上に置いた土壌を封入したサンプル瓶をγ線の点光源として、LMによるγ線に対する減衰率

の厚さ依存性から、LMの減衰係数 $\mu$ は $9.28 \times 10^{-2} \text{ cm}^{-1}$ と求められた。また、水野ら<sup>4)</sup>により、地表に無限遠方まで一様に広がる放射線源（地表の放射能密度 $p$  [Bq/m<sup>2</sup>])において、地上から高さ $h$  [m]の地点における空間線量率よりLMの減衰率式を理論的に導出した結果、LMによるγ線遮蔽効果に対して、LM散布量の厚み2 cmに対するγ線の減衰率は約65%と評価された。この理論解析は実際の測量結果を裏付けるものである。

以上より、汚染土壌中の<sup>137</sup>Cs及び<sup>134</sup>Csからのγ線に対するLMの遮蔽効果は、LM中の主成分である鉄のコンプトン効果が主原因であると結論された。

#### 4. 放射能汚染物の除染作業における LM の活用と今後の展望

原発事故からの福島県の復旧・復興を図る上で、放射能汚染土壌、汚染水、汚泥等の汚染物を安全に除去・減容・貯蔵し、改良・浄化することは最重要課題である。この目標に向け、大きな放射線量低減効果を持ち、かつ環境浄化作用を有する LM を有効活用すべきと確信する。その提案と展望を以下に挙げる。

(1) 放射能汚染土壌改質に向け、現状で広く行われている“セシウム吸着土壌からの溶出・置換効果”及び“セシウムの農作物等への移行抑制効果”はゼオライト散布及びカリウム施肥に加えて、LM を散布する。これによって、いかなる場所でも年間 1 mSv 以下の環境を実現できると期待される。さらに、LM と黒ぼく土（腐植物質含有）との複合材料の使用によりセシウムの固定化と肥沃化、及び放射線量のより大きな低減効果が期待できる。

(2) ポリ塩化アルミニウム (PAC) 等の凝集剤（ゼオライト・腐植物質含有）と LM の併用で、汚染水・ヘドロ等を効率かつ安心・安全に除染・減容・濃縮・回収・保管・貯蔵等の処理を行う。

(3) 放射能汚染物・廃棄物（核のゴミ）の保管・貯蔵用コンクリート、コンテナ、フレコン等の複合材料への応用と廃炉処理利用。

(4) 壁紙や屋根材等の建材における複合材料への応用。

#### 【謝辞】

LM のコンプトン効果に対する実験的検証のための汚染土壌からの  $\gamma$  線スペクトル測定及び理論的解析を行っていただいた京都女子大学の水野義之教授に感謝いたします。

#### 参考資料

- 1) 富永 健, 佐野博敏 (著), 「放射化学概論」, pp.58-76, 東京大学出版会 (2011)
- 2) 海老原充 (著), 「現代放射化学」, pp.85-104, 化学同人 (2011)
- 3) 望月和子 (著), 「量子物理」, pp.1-16, オーム社 (1974)
- 4) Uesaka, L. and Mizuno, Y., “New Method for Radiation Shield of Cesium Isotopes Spread over an Infinitely Extended Land after Nuclear Accident”, *Proceedings of 12th Asia Pacific Physics Conference*, to be published (2013)

(東京理科大学)