

不溶性 Cs 粒子中のウランおよびセシウムの同位体比の測定と放出源推定の可能性

栗原雄一
高橋嘉夫

くりはら ゆういち
東京大学大学院理学系研究科
たかはし よしお
東京大学大学院理学系研究科

背景

2011年に発生した福島第一原子力発電所の事故(以下、福島第一原発事故)によって、大量の放射性物質が大気中に放出された(ヨウ素換算^{注1}: 900 ペタ^{注2}ベクレル)¹。事故から約2年後、Adachi et al.(2013)²により福島第一原発から約170 km離れたつくば市において放射性セシウム(Cs)を多く含む不溶性の放射性微粒子($\sim 2 \mu\text{m}$)が発見された。この不溶性 Cs 粒子は、事故当時の原子炉内の情報を保持している可能性が高く、事故時の炉内事象の解明に役立つと期待されている。

福島第一原発事故から遡ること25年前、1986年4月26日に発生したチェルノブイリ原発事故では、ヨウ素換算で5200 ペタベクレル^{注3}の放射性物質が大気中に放出されたが³、その際にも固体で不溶性の高い放射性粒子が生成している。Devell et al.(1986)⁴による放射性微粒子($\sim 1 \mu\text{m}$)の発見以降、同事故由来の放射性粒子が周辺の汚染エリアをはじめとした環境中で数多く見つまっている。2011年に国際原子力機関(International Atomic Energy Association: IAEA)が取りまとめた環境中の放射性粒子に関する技術報告書⁵によると、チェルノブイリ原発事故由来の放射性粒子は、粒子の組成にもとづき3つのグループ(A~C)に分けられる。Victorova et al.(1993)⁶は、グループAおよびBは、主に核燃料・原子炉の構成物質由来で、グループCは環境中で二次的に形成された粒子とし、主としてCsによって構成された放射性粒子はグループCに属するとした。このようなチェルノブイ

リ原発事故由来の放射性粒子の特徴を踏まえ、Salbu and Lind(2016)⁷は、福島第一原発事故で放出された不溶性 Cs 粒子(タイプA)は原子炉からの直接放出ではなく、環境中で二次的に形成された可能性を指摘した。本稿ではウラン(U)とCsの同位体測定にもとづき、この結論は正しくないことを示し、さらに同位体測定から推定される不溶性 Cs 粒子の生成条件や機序、炉内事象について考察する。

核燃料の主成分は酸化ウラン(UO_2)であるから、U同位体比の分析は核燃料物質についての議論において最も重要である。不溶性 Cs 粒子中のUの存在は、Abe et al.(2014)⁸の放射光を用いた球形のタイプA粒子の分析で初めて確認された。その後、Kogure et al.(2016)⁹やFuruki et al.(2017)¹⁰によってもUが検出されているが、同位体比に関しては不明であった。一方、Cs同位体比に関しても、原子炉内で大量に生成される同位体であるため、その分析は粒子の生成プロセスや発生源の議論において非常に重要だが、ガンマ線(γ 線)測定が可能な ^{134}Cs および ^{137}Cs を除き、粒子中のCsの同位体に関する研究は少なかった。

ウランおよびセシウムの同位体について

ウランは原子番号92の放射性元素で、天然には質量数234, 235, 238の三種の同位体(^{234}U , ^{235}U , ^{238}U)が存在する。これらの天然存在比は、99.2745% (^{238}U), 0.7200% (^{235}U), 0.0055% (^{234}U)である。U同位体のうち、天然で唯一の核分裂性