

原子力事故により放出された 放射性セシウムの $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比について

河田 燕*, 山田 崇裕**

Kawada Yasushi Yamada Takahiro

1. はじめに

東京電力(株)福島第一原子力発電所の災害事故により大量の放射性物質が環境中に放出された結果、広範な地域が放射能によって汚染され、農作物や海産物についても深刻な被害もたらされた。事故当初は ^{134}Cs , ^{137}Cs のほか、 ^{132}Te , ^{131}I , ^{132}I など多くの核種が観測されたが、災害から1年経過した昨今、短い半減期を持つ核種は減衰し、大部分の汚染は ^{134}Cs と ^{137}Cs によるものとなった。現在、土壤等の除染基準や食品中の規制値は ^{134}Cs と ^{137}Cs の合算値で規定されることが多い。しかしながら、 ^{134}Cs と ^{137}Cs とでは、化学的には同一な挙動を示すものの、半減期は2.06 y, 30 y と大幅に異なる上に、1 cm 線量当量率定数は ^{137}Cs の場合 $0.0927 [\mu\text{Sv}\cdot\text{m}^2\cdot\text{MBq}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}]$ であるのに対して、 ^{134}Cs の場合は $0.249 [\mu\text{Sv}\cdot\text{m}^2\cdot\text{MBq}^{-1}\cdot\text{h}^{-1}]$ であって、同じ放射能に対して、 ^{134}Cs は ^{137}Cs の約2.7倍の外部被曝を与えることとなる。また、内部被曝評価に際しても、 ^{134}Cs の実効線量係数は ^{137}Cs よりも大きいとするICRPの報告がある一方、その反論(ECCR)もある。したがって、将来の批判に耐えうるデータを示すためには、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比について正しい認識を持ち、 ^{134}Cs , ^{137}Cs について個別のデータを集積することが重要である。

今回の災害によってもたらされた放射性セシ

ウムの $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比について報告されたデータを見ると、災害直後の値に換算するとほぼ1.0となっていて、我々の測定した値もこれに近い値を得ている。また、地域によって大きな隔たりはない。しかしながら、チェルノブイリ原子力発電所事故の時は約0.5~0.6という値が報告されていて、これとは大きな差がある。このように $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比が状況によって異なるのはなぜか、その理由について考えてみたい。

2. ^{134}Cs と ^{137}Cs の生成過程

$^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比について考えるためには、 ^{134}Cs と ^{137}Cs は全く異なる過程で生成することを覚えておかなければならない。核分裂生成物の収率の質量数依存性、いわゆる収率曲線の形は多くの教科書等に掲載され^{1,2)}、原子力や放射線の学習をしたり、関連業務に携わっている人々にとって、この収率曲線の形は頭に擦り込まれている。図1に示すように、熱中性子による核分裂収率曲線は、質量数90前後と質量数130前後に2つの山を持つ。質量数で見ると ^{134}Cs と ^{137}Cs とは、第2の山のピーク付近に位置し、核分裂片として“能率的に”生成されそうに思える。しかしながら、実体はそうではない。

最初に ^{137}Cs について見てみよう。アイソト

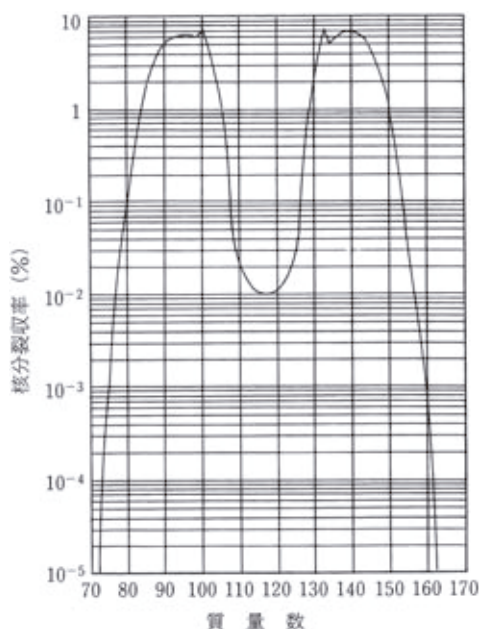


図1 熱中性子による核分裂収率曲線

ープ手帳など、ほとんどあらゆる内外の教科書等に、 ^{137}Cs は核分裂生成物 (fission products : FP) と記載されている。もちろん、これは間違いではないが、若干の注釈を必要とする。前述の収率曲線を見ると、 ^{137}Cs は核分裂によって、たっぷりと生成されそうに思われがちであるが、図2に示すように、直接、核分裂によって ^{137}Cs が生成する確率は極めて少なく(0.06%)、大部分は核分裂によって生成された ^{137}Te 、 ^{137}I 、 ^{137}Xe 等が順次壊変してできた“子孫”なのである。したがって、より正確に言えば、 ^{137}Cs はFPの子孫核種と言うのが正しい。とは言うものの、 ^{137}Cs の母、祖母、曾祖母にあたる ^{137}Te 、 ^{137}I 、 ^{137}Xe はいずれも、寿命が短いので(^{137}Xe の半減期: 3.9 min)、核燃料棒中では、ただちに ^{137}Cs となる。こうした御先祖経由の収率を合算すると、ほぼ収率曲線の示す値の6.9%に近づく。

一方、 ^{134}Cs の場合、生成の様相は全く異なる。 ^{134}Cs の場合も、核分裂によって、 ^{134}Cs はほとんど生成しない($4.4 \times 10^{-6}\%$)。では、 ^{137}Cs

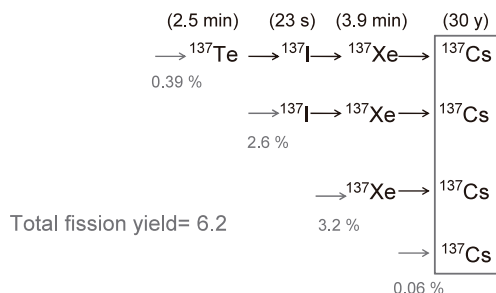


図2 核分裂における ^{137}Cs の生成

の場合と同じように、 ^{134}Te 、 ^{134}I 、 ^{134}Xe などの壊変生成物かと言うと、そうではない。これは、 ^{134}Xe が安定核種であるからである。核分裂によって ^{134}Sb 、 ^{134}Te 、 ^{134}I 、 ^{134}Xe などは、大量にできるが、幸いにして ^{134}Xe が安定核種であるために、図3に示すように、 ^{134}Sb 、 ^{134}Te 、 ^{134}I 、 ^{134}Xe の系列は ^{134}Xe をもってお家断絶となってしまうのである。最終的に ^{134}Xe に行きつくA=134系列の収率の和は7.84%に達する。もし仮に ^{134}Xe が β 崩壊核種であるとする、 ^{137}Cs と同程度以上の原子数の ^{134}Cs が結果的に生成され、半減期の関係から ^{134}Cs の放射能は ^{137}Cs の放射能のおよそ18倍(最大)にも達することになる。ここで、改めて ^{134}Xe の安定性に感謝しなければならない。ちなみに、キセノンは同位体が27もあり、そのうち ^{134}Xe を含む7つが安定で、残りが放射性である。

話が奇妙な仮定の話にそれてしまったが、それではどのようにして ^{134}Cs が原子炉内で生成されるのであろうか。これは主に $^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}$ 反応によるものである。 ^{133}Cs はセシウム同位体の中で唯一の安定同位体であるが、これが最初から燃料中に含有されているわけではない。核分裂の結果生成された ^{133}Sb 、 $^{133,133\text{m}}\text{Te}$ 、 ^{133}I 、 ^{133}Xe (半減期 5.3 day)などが順次 β 壊変し、それらが最終的に安定な ^{133}Cs になり、原子炉の運転に伴い蓄積される。原子炉の運転制御にこれが影響を与えるか否かは別問題として、これが放射能を有しているわけではない。ところが、この ^{133}Cs は中性子捕獲断面積が約

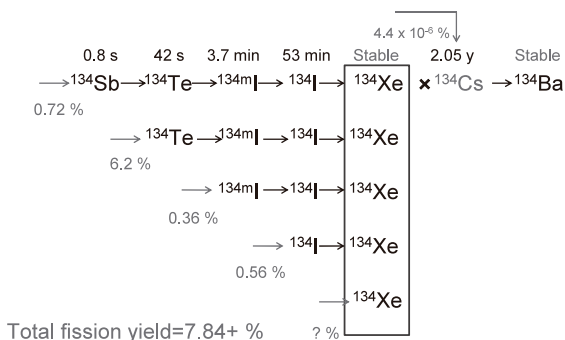


図3 A=134における核分裂生成物とその壊変 chain

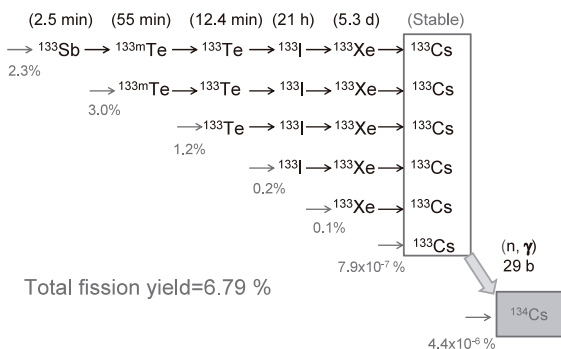


図4 核分裂における¹³³Cs (安定)の生成と¹³³Cs(n,γ)¹³⁴Cs反応による¹³⁴Csの生成

30 barnもあるため、原子炉内の強い熱中性子束によって照射され、 $^{133}\text{Cs}(n, \gamma)^{134}\text{Cs}$ 反応を介して放射性的 ^{134}Cs を生み出すに至る。これらの因果関係を図4に示す。したがって、 ^{134}Cs はターゲット物質 ^{133}Cs の生成と中性子捕獲という2段階の過程を経るため、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は、燃料棒の使用実績(燃焼度: burn-up)により大幅に異なり、古い燃料棒の場合、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は1.5程度に達する³⁾。すなわち、 ^{134}Cs は原子炉の中で核燃料が“照り焼き”にされて初めて生成する。逆に、燃焼度の低い新しい燃料の場合、この比率は低くなる。また、チェルノブイリ原子力発電所の場合、黒鉛減速沸騰水型炉であって、炉型が異なり、燃料の燃焼度も違う故か、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比は約0.5~0.6と報告されている^{4,5)}。いずれにしても、今回の事故で痛感するのは、我々の身の回

りに降り注いだ ^{134}Cs がこのような複雑な過程を旅してきた因果者だということである。

今回の福島第一原発事故は1~4号機までが一度に緊急事態に立ち至った未曾有の事故である。各原子炉の燃料集合体も古いもの、新しいものを取り混ぜて均質化を図っていると聞いたが、各原子炉によって燃料棒の燃焼度(burn-up)の違いは想定され、これが $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比に反映することも考えられる。さらに、東北地方、東日本の放射能汚染マップを見ると、汚染地域のグルーピングができるが、各地域での放射能の到達時間、風向、降雨の状況等から、汚染経過の説明が試みられている⁶⁾。これらの各地域の放射性セシウムについて、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比を精密測定することによって、地域ごとのセシウム汚染は発生源が何号機の(水素)爆発によるものであるか、推測を補完できるかもしれない。なお、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比の精密測定に際しては、かつての核爆発実験のfall-outの影響が排除できない場合もあるので、注意が必要である。

3. 核爆発実験に伴うfall-outとの違い

さらに話を推し進めると、 ^{134}Cs は核爆弾の投下や核爆発実験などに際しては、ほとんど発生しない。これは、核爆発においては、熱中性子による長時間照射という過程が存在しないという事実から想定できる。アメリカや中国の核爆発実験が頻繁に行われた時代のデータを見てもfall-out中に ^{134}Cs の存在は報告されていない^{7,8)}。文部科学省(旧科学技術庁)制定の文部科学省マニュアルNo.7の「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」⁹⁾の巻末付録に記載されているスペクトル集のうち、原子炉施設から放出された場合の放射能試料のスペクトルと核爆発によるfall-outのスペクトルを対照してみても、そのことがうかがいしれる。これらのスペクトルのうち、700 keV付近のγ線のエネルギー領域について

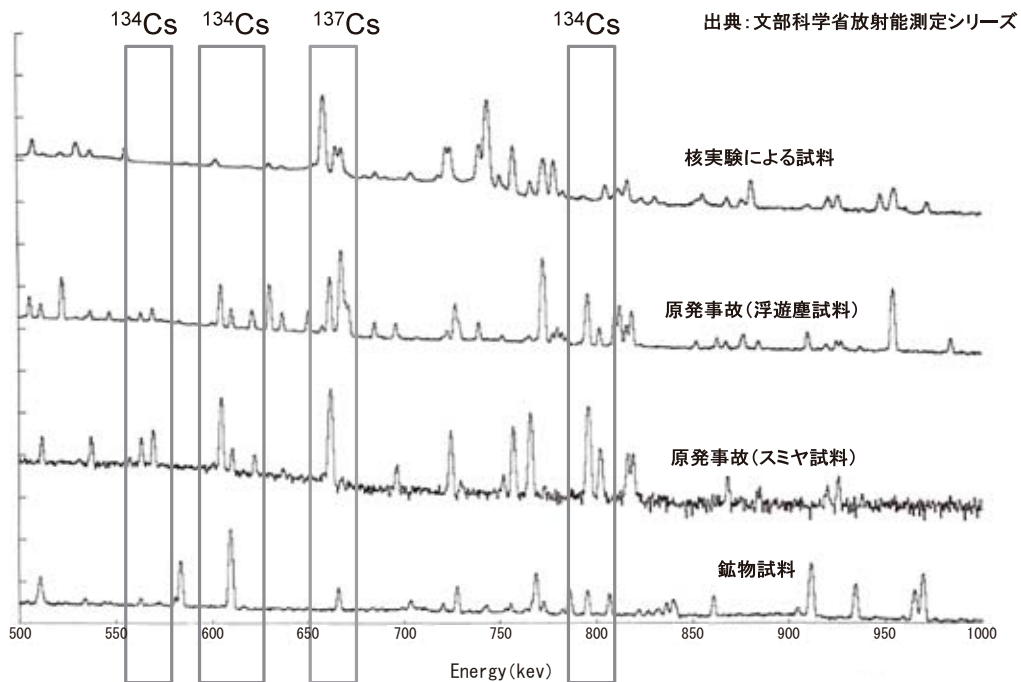


図5 原子力発電所由来の試料と核爆発実験 fall-out 試料の γ 線スペクトルとの違い (部分図)
 鉱物試料の γ 線スペクトルも併せて示してある。データは文献9) による

抜粋したものを図5に示す。原子炉施設由来の試料については顕著な ^{134}Cs からのピークが認められるのに対して、核爆発による fall-out 試料については、605 KeV、796 keV 等の ^{134}Cs からの γ 線スペクトルが全く認められていない。

^{137}Cs について、これは正確には、核分裂生成物が β 壊変してできたもので、直接核分裂によってできたものではないことは既に言及した。この場合、その親、祖母、曾祖母等と寿命が短いために、見掛け上は ^{137}Cs が直接生成された状況と大差がないようにも思える。しかしながら、これは燃料棒の中での話である。核爆発の場合には、環境中に放出されるのは、放射性のテルル、ヨウ素、キセノンなどである。これらは揮発性ないしは稀ガスであって、環境中に放出された後に ^{137}Cs に変わる。テルル、ヨウ素、キセノンとセシウムとでは化学的性質が異なる。したがって、今回の福島第一原発事故の場合のように、蓄積された ^{137}Cs が直接環境

中に放出される場合と核爆発実験の場合とを比較すると、粒子の降下やエアロゾルの生成、沈着過程に差があると予想される。また、微視的に見ると、沈着物の粒径等に差があって、これが動植物への取り込み等に差が出ることはないのだろうか。筆者はこの方面の専門家でないので、詳しい学識を有していないが、こうした事柄についてご存知の方からご教示をお願いしたい。

4. おわりに

本稿を通じて、一口に放射性セシウムと言っても、 ^{134}Cs と ^{137}Cs とでは、生成の過程が全く異なり、その比率は原子力施設の種類、燃料棒の使用実績 (燃焼度) に依存する。また、核爆発の fall-out の場合とでは様相が異なることもあわせて知っておく必要がある。本稿がこれらの事柄を理解する一助になれば、幸いである。

参考文献

- 1) 例えば, 日本アイソトープ協会編, 「放射線取扱の基礎 [第1種放射線取扱主任者試験の要点] 第6版」, p.102 (2009)
- 2) Nicholas Tsoulfanides 原著: 阪井英次訳, 「放射線計測の理論と演習, 上巻基礎編 (第2版)」, 現代工学社 (2003)
- 3) Croff, A.G., "ORIGEN2-A Revised and Updated Version of the Oak-Ridge Isotope Generation and Depletion Code", ORNL-5621 (1980)
- 4) UNSCEAR, "Sources, Effects and Risks of Ionization Radiation, 1988 Report" (1988)
- 5) Carbol, P., *et al.*, *J. Environmental Radioactivity*, **68**, 27-46 (2003)
- 6) 山県登, 岩島清, 松田俊治, 田島栄作, 日本におけるセシウム-137の地表蓄積量, 公衆衛生院研究報告 **15**, 119-133 (1965)
- 7) 檜野良穂, 福島第一原発の事故とサーベイメータを用いた放射能汚染測定について, *Isotope News*, No.690, 20-24 (2011)
- 8) 青山道夫, 大気と海洋深層における核実験起源フォールアウトの超低レベル放射能測定, *RADIOISOTOPES*, **55**, 429-438 (2006)
- 9) 文部科学省, 「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」(1992, 3訂)

(*産業技術総合研究所 招聘客員研究員,
** 日本アイソトープ協会)