

放射性キセノンの測定

—その意義と課題—

米沢 仲四郎

Yonezawa Chushiro

1. はじめに

^{131m}Xe , ^{133m}Xe , ^{133}Xe 及び ^{135}Xe の放射性キセノン（本稿では今後 RX と略す）は、 ^{235}U や ^{239}Pu 等の核分裂反応によって生成される。RX の壊変特性を表 1 に示す。RX は核分裂収率が大きいこと、化学的に不活性なガスであるため、地下で行われた核爆発でも岩石の割れ目などから浸み出してくる可能性が高く、核爆発の検知に使われている。しかし、RX は医療用 ^{99}Mo の製造施設や原子力発電所等の原子力施設、そして核医学施設からも放出されるため、これらの RX がバックグラウンドを上昇させ、核爆発の検知を難しくしている。

核爆発の監視は、包括的核実験禁止条約 (CTBT) の下、世界中に張り巡らされた合計 321 か所の観測所での地震波、微気圧振動、水中音波、そして放射性核種の観測によって行わ

れる。放射性核種は、80 か所の観測所で空気中の粒子状のものと RX の測定が行われる。これまで、観測施設の約 80% が完成し、条約が発効するまで暫定的に運用されている。核爆発の事象は地震波等によって検知することができるが、それだけでは化学爆発と区別することができず、これを核爆発と断定するには、核爆発によって生成する放射性核種の検出が必須である。本稿では、我が国の RX 観測所のバックグラウンド源となり得る各放出源の年間 RX 放出量を推定し、それらの発生源を特定するための方法を考察する。

2. 世界における RX 観測

CTBT の RX 測定装置として、スウェーデン、フランス、ロシア製の 3 種類の自動測定装置が開発され、これまで 27 か所の放射性核種観測

所に設置された。最終的には 40 か所に設置されることになっており、我が国では群馬県高崎市に設置されている。これらの装置では、空気から RX をモレキュラーシーブや活性炭等で分離・精製し、 β - γ 同時計数、又は γ 線計数によって RX の放射能を測定している。RX の測定方法等の詳細は、文献 1) を参照

表 1 核爆発の検知に使われる RX 核種の壊変特性

核種	半減期	壊変様式	放出する放射線とそのエネルギー, keV		核分裂収率* ^{235}U (^{239}Pu)
			電子線	電磁放射線 (%放出率)	
^{131m}Xe	11.84日	IT	内部転換 K 電子 129.4	Xe-X 線 γ : 163.9 (1.91)	0.045 (0.054)
^{133m}Xe	2.19日	IT	内部転換 K 電子 198.7	Xe-X 線 γ : 233.2 (10)	0.192 (0.240)
^{133}Xe	5.2475日	β^-	β 線 346.4	Cs-X 線 γ : 80.9 (38.0)	6.72 (6.97)
^{135}Xe	9.14時間	β^-	β 線 901.2	Cs-X 線 γ : 249.8 (90)	6.60 (7.54)

* 核分裂中性子による ^{235}U と ^{239}U の累積核分裂収率 (%) を示す

されたい。

世界各地のRX観測所で測定された ^{133}Xe 濃度を基に作成された地球上の ^{133}Xe 濃度分布を図1に示す²⁾。原子力施設が多い北半球のRX濃度は南半球のものより高く、特に原子力施設が集中する北米と西ヨーロッパにおいて非常に高い。また、北米と西ヨーロッパの高濃度RXの主な放出源は、医療用 ^{99}Mo の製造施設であることが明らかにされている^{3,4)}。同様の施設がある南アフリカの濃度が高いのもこのためと考えられる。2009年における高崎観測所の ^{133}Xe 濃度変化を図2に示す。高崎観測所のRX濃度は北米や西ヨーロッパよりも低いが、時々 ^{133}Xe と $^{131\text{m}}\text{Xe}$ が検出されている。図から分かるように、 ^{133}Xe は約1か月の長期間にわたる検出と、1又は2日間の短期間の検出がある。このような ^{133}Xe と $^{131\text{m}}\text{Xe}$ の検出は、核爆発によって放出されたRXとの区別を難しくさせている。信頼性の高い核爆発の検知には、原子力の平和利用活動によるRXから核爆発のRXを区別して測定しなければならない。

3. 我が国のRX発生源

我が国におけるRXの発生源としては、1) 原子力発電所、2) 研究用原子炉、臨界実験装置及び粒子加速器、3) 使用済み核燃料再処理施設、4) 核医学施設、5) 自然バックグラウンド、6) 海外からの流入、7) 原子力艦船等が考えられる。しかし、6)と7)は情報が乏しく、評価が難しいので、ここではこれらを除く項目について、RX放出量又は使用量を評価する。

3.1 原子力発電所

発電用原子炉には、 ^{235}U の核分裂反応によって生成したRXが核燃料中に蓄積されており、燃料棒のピンホールや小規模の燃料破損によってRXが原子炉外に放出されることがある。また、燃料棒表面の汚染ウランや炉心構成材料中の不純物ウランの核分裂によって生成したRXが放出される可能性もある。2010年10月現在、稼働中の我が国の発電用原子炉を図3に示す。我が国では、総発電量の約31%の電気(49,117 MW)が、54基の軽水炉によって発電されている。軽水炉には、沸騰水型原子炉(BWR)

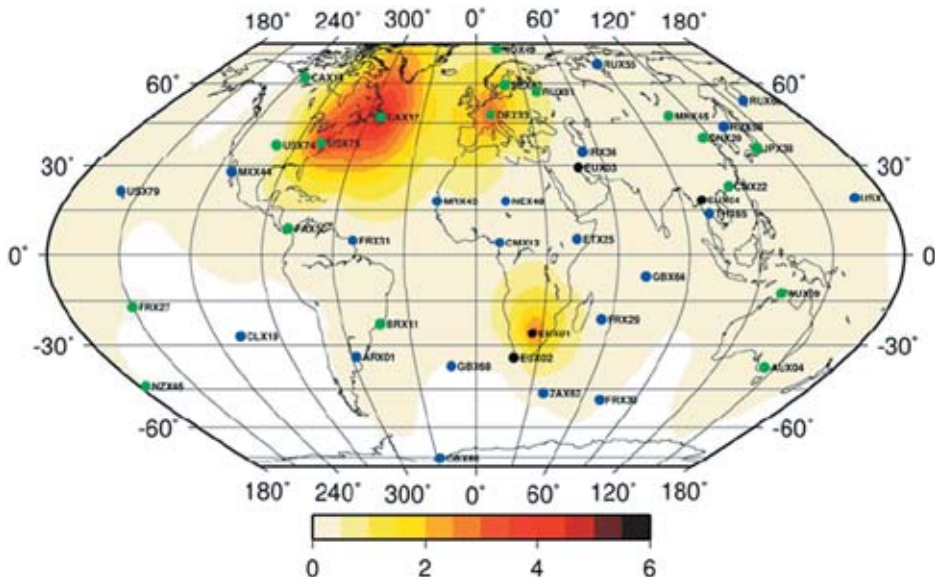


図1 地球上の ^{133}Xe 濃度分布

図中の青と緑色の点はCTBTのRX観測所とその観測所コード名を示す(文献2)から引用)

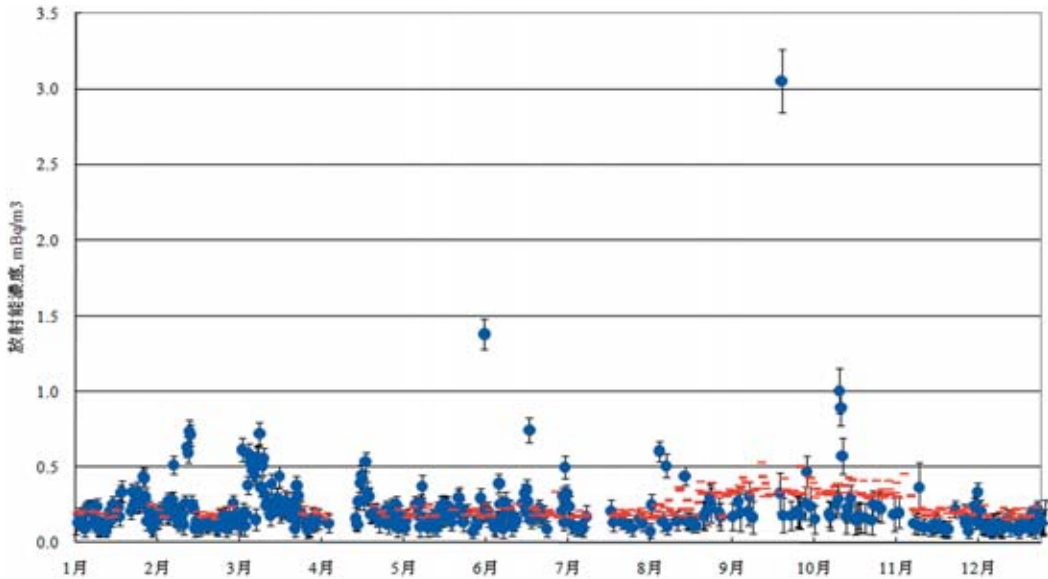


図2 2009年におけるCTBT高崎観測所の¹³³Xe濃度変化
 図中の青印は¹³³Xeの棄却限界以上の放射能濃度とその不確かさ、そして赤印は棄却限界以下の
 の場合の最低検出可能放射能(MDA)濃度を示す。本図は、CTBT機関(CTBTO)が認定し
 た者だけがアクセスすることができる、IDC Secure Web siteからデータを入力して作成し
 た。本データの使用は、我が国におけるCTBTの国内当局である外務省の許可を得た

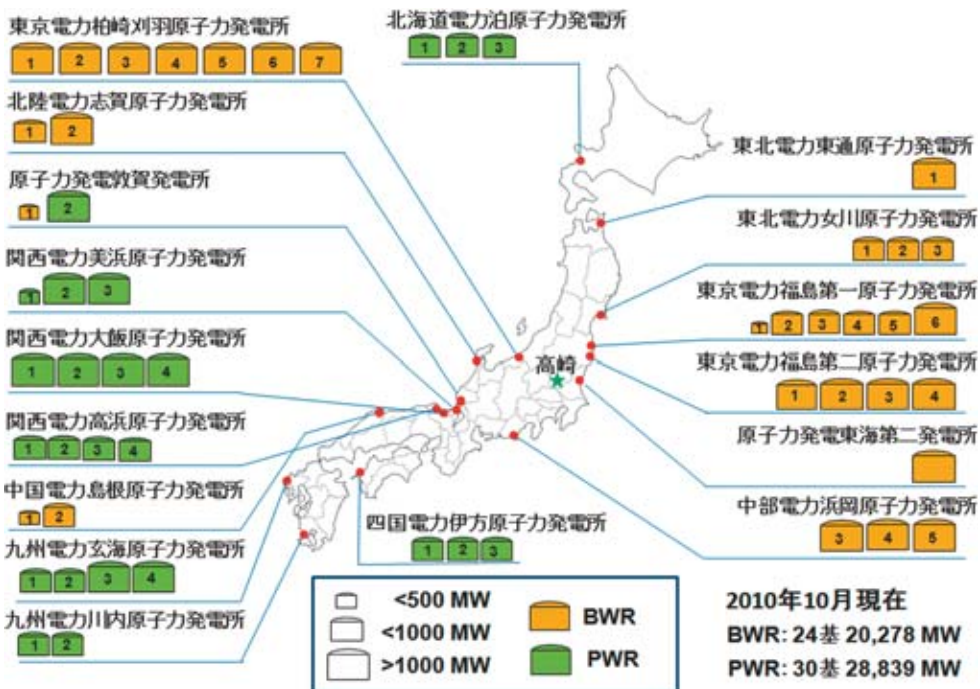


図3 我が国の運転中の発電用原子炉
 本図は、各発電所のホームページのデータを基に作成した

と加圧水型原子炉 (PWR) があるが、2010 年におけるそれらの内訳は、BWR 型：24 基 (発電総量：20,278 MW)、PWR 型：30 基 (発電総量：28,839 MW) となっている。原子炉から発生する RX は、活性炭を充填した希ガスホルドアップと呼ばれる装置に通され、その滞留時間を利用して放射能を減衰させた後、排気塔から大気中に放出される。排気塔から放出される気体廃棄物の放射能は放射線測定器によって連続的に測定され、その放射能量は“全希ガス”放射能として公開されている。

各発電所の“全希ガス”放射能の年間放出量は、大部分が検出限界以下であるが、原子炉によってはそれを超えるものもあり、平成 18 年度における検出限界を超えた“全希ガス”放射能の積算値は 1.5×10^{12} Bq であった⁵⁾。放射性希ガスには RX 以外に ^{85}Kr も含まれるが、それらの組成は明らかでない。文献 5) によると、大部分の BWR の全希ガス放出量は検出限界以下であるが、PWR の場合は検出限界を超えているものがある。しかし、それらの放出量は管理目標値を大きく下回っているため、安全上の基準は十分に満たされている。

ヨーロッパと北米の原子力発電所では、核種ごとの RX 放出量が測定され、公表されている。M. B. Kalinowski と M. P. Tuma は、公表されたヨーロッパと北米の RX 年間放出量から炉型別の RX 年間放出量を求め、我が国の全原子力発電所の全 RX の年間放出量を 1.6×10^{14} Bq と推定している⁶⁾。我が国の原子力発電所の放射性廃棄物の発生量は、欧米のものより少ないとされているので、この値はかなり過大評価となっている可能性がある。

文献 5) の“全希ガス”放射能の年間放出量の積算値と文献 6) の全 RX 年間放出量の推定値の間には、大きな開きがある。前者は、検出限界以下の濃度は含まれていなく、また“全希ガス”中の RX の濃度が不明なため、これには大きな不確かさが含まれている。各発電炉の“全希ガス”放射能の検出限界は明らかにされ

ているので、もし発電炉ごとの放射性気体廃棄物の排気総量が分かれば、より正確な“全希ガス”放射能の上限値が得られる。さらに、各発電用原子炉の“希ガス”の放射性核種組成データが得られれば、より正確な RX の年間放出量の推定が可能になる。

3.2 研究用原子炉、臨界実験装置及び粒子加速器

現在、我が国では 12 基の研究用原子炉*と 4 基の臨界実験装置が稼働している⁷⁾。研究用原子炉と臨界実験装置でも排気塔から排気される気体放射性廃棄物の放射能がモニターされている。しかし、それらの排気データには RX の情報が少なく、公表された気体放射性廃棄物のデータから推定することは難しい。研究用原子炉と臨界実験装置の熱出力の総量は、原子力発電所の総熱出力の 1/578 と小さく、Kalinowski らの発電炉の推定量にこの熱出力の比を掛けて求めたとしても、その全希ガス放射能量は 3×10^{11} Bq 以下と少ない。

2004 年 9 月現在、162 基⁸⁾ の粒子加速器が科学研究及び医学の研究と診療に使用されている。しかし、加速器の RX 放出に関する情報は見当たらない。加速器は、原子炉に比べて RX の発生量は少ないと思われるが、 ^{133}Xe は $^{130}\text{Te}(\alpha, n)$, $^{134}\text{Xe}(n, 2n)$, $^{132}\text{Xe}(d, p)$, $^{133}\text{Cs}(n, p)$, $^{136}\text{Ba}(n, \alpha)$ 反応や中性子誘起核分裂反応で生成する可能性があるため、その影響は完全に無視することができない。特に、高崎市の RX 観測所から近距離にある加速器については、排気塔からの排出データと RX の測定データとのつき合わせが必要である。

3.3 使用済み核燃料再処理工場

現在我が国には、茨城県東海村の日本原子力研究開発機構と青森県六ヶ所村の日本原燃(株)

* ここでは、発電用原子炉を除くすべての原子炉を研究炉に含めた。高速増殖炉“もんじゅ”は、RX の測定が行われた期間中には運転が停止されていたか、あるいは運転が行われても低出力だったので、ここでは考慮していない。

の核燃料再処理工場がある。六ヶ所再処理工場は、一旦は試験運転を開始したが、今は運転を停止しているため、ここでは東海再処理工場だけを考慮する。再処理工場では、使用済み核燃料の切断と溶解の工程で燃料中に閉じ込められていたRXが ^{85}Kr 等のほかの希ガスとともに放出される。これらの放射性希ガスは、オフガス処理装置では回収されないでそのまま排気塔から放出される。東海再処理工場における放射性物質の放射能収支⁹⁾から ^{133}Xe と $^{131\text{m}}\text{Xe}$ の年間放出量を求めた結果、それらは 3.6×10^8 Bq (^{133}Xe)、及び 3.0×10^{12} Bq ($^{131\text{m}}\text{Xe}$)であった。これらの値は、使用済み燃料の冷却時間として軽水炉の場合は180日以上、新型転換炉の場合は2年以上としてORIGENコードによって計算された1日の放出量に、年間稼働日数130日を掛けて求めたものである。しかし、ここでの冷却時間の前提条件は実際のものよりも短いので、得られた推定値はかなり過大評価となっている。

3.4 核医学施設

シンチグラフィ等々の核医学の診断と治療に使われる ^{133}Xe と ^{131}I もRXの放出源となる。シンチグラフィは、人体に放射性核種の標識化合物を投与して、その γ 線をシンチカメラと呼ばれる放射線測定器で測定し、臓器内の放射性核種の分布を画像化して病気を診断する方法である。 ^{133}Xe は脳血流と肺換気シンチグラフィに、そして ^{131}I は甲状腺シンチグラフィに用いられるほか、甲状腺がんと機能亢進症の治療に用いられている¹⁰⁾。これらの診療法に使われる両核種の年間使用量を表2に示す。 ^{133}Xe は核医学以外の用途にも輸入されたが、それらの合計は核医学用の約1/1,000以下と少ない。

^{131}I はRX核種ではないが、 β 壊変によってRX核種の $^{131\text{m}}\text{Xe}$ を生成する。2005～2009年における ^{131}I の年間供給量は $(9.85 \sim 12.9) \times 10^{12}$ Bq¹¹⁾で、 ^{131}I から $^{131\text{m}}\text{Xe}$ に壊変する分岐比0.48%を用いて

$^{131\text{m}}\text{Xe}$ の放射エネルギーを求めると $(32 \sim 42) \times 10^9$ Bqであった。 ^{131}I は核医学以外の用途にも輸入されているが、その年間供給量は核医学用の約1/100以下と少ない。

3.5 自然バックグラウンド

近年S. Hebelは、地殻中におけるRX濃度について研究を行い、RXは主にウランの自発核分裂によって生成されること、そして種々のウラン濃度の岩石中におけるRX濃度を明らかにした¹²⁾。これによると、ウランが比較的高濃度の花崗岩質(ウラン4.5 ppm)土壌中の ^{133}Xe 濃度は、 0.152 Bq/m³とされている。この濃度は、RX測定装置の最低検出可能放射能レベルに近い値であり、大気中の ^{133}Xe はそれよりも低いと考えられる。

3.6 我が国におけるRXの推定放出量

各放出源の推定RX年間放出量を表3にまとめた。表中の推定年間放出量はいずれも大きめに見積もられたものが多く、不確かさも大きい。しかし、表より我が国におけるRXの放出源として、原子力発電所と核医学施設は無視することができない。

4. 大気輸送モデル計算によるRX放出源の特定

地球上の大気の流れは、大気輸送モデル(ATM)によって計算することができるので、これまでATM計算によるRXの放出源の特定が行われた^{4,13)}。オーストラリアでは、新しく建設されたANSTO (Australian Nuclear Science

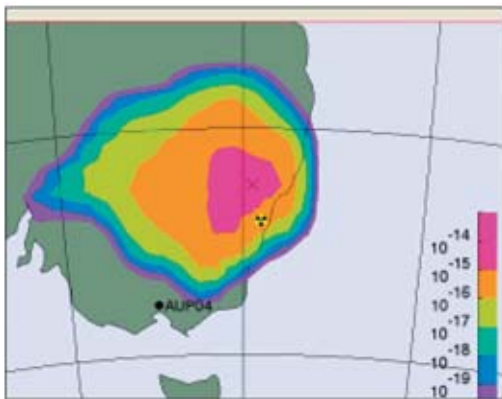
表2 ^{133}Xe と ^{131}I の核医学利用(年間推定)

核種	^{133}Xe		^{131}I	
	脳血流	肺換気	甲状腺	副腎皮質
投与量, 10^9 Bq	1508	653	813	99
平均投与量, 10^9 Bq	2.34	0.390	0.003~0.183	0.31
投与件数	688	1,707	8446	3210
検査実施施設数	8	51	50	169

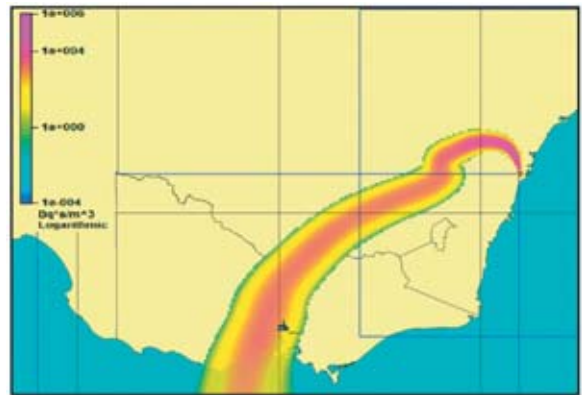
本表のデータは文献10)から引用した

表3 我が国におけるRXの推定年間放出量

放出源	年間放出量又は使用量, Bq	備考
原子力発電	$< (0.5 \sim 1.5) \times 10^{12}$ (全希ガス) 1.6×10^{14} (全RX)	2004~2008年における年間積算放出量 ⁵⁾ M. B. Kalinowski らの推定量 ⁶⁾
研究用原子炉, 臨界実験装置, 粒子加速器	不明	
使用済み核燃料再処理工場	3.6×10^8 (^{133}Xe) 3.0×10^{12} (^{131m}Xe)	ORIGEN コードによる計算値 ⁹⁾ からの推定量
核医学利用	$(1.1 \sim 4.6) \times 10^{12}$ (^{133}Xe) $(3.2 \sim 4.2) \times 10^{10}$ (^{131m}Xe)	2005~2009年における年間供給量 ¹¹⁾ 2005~2009年における ^{131}I 年間供給量 ¹¹⁾ から計算
自然バックグラウンド	無視できる	S. Hebel による計算値 ¹²⁾ を基に推定



(a)



(b)

図4 オーストラリアにおけるATMによるRX放出源の特定
(a) : FLEXPART-(WEB-GRAPe) によるバックトラッキング計算結果,
(b) : RIMPUFF による Integrated 濃度の計算結果 (文献 13) から引用)

Technology Organization) の OPAL 炉 (出力 20 MW) を使用し, 医療用 ^{99}Mo の製造を 2008 年 11 月から開始した。ここでは, ^{235}U 濃縮度 19.75% の濃縮ウランを照射し, その後, 化学分離をして ^{99}Mo を製造している。この施設から南西に約 750 km のところに CTBT の放射性核種観測所があるが, ここでは時々 RX を検出していた。種々の ATM プログラムを使用し, バックワードトラッキング計算を実施したところ, これらの RX 核種の発生源は図 4 に示すようにシドニー市の近郊にある ANSTO の ^{99}Mo の製造施設と特定された¹³⁾。同様な試みはヨー

ロッパでも実施され, 2008 年 7 月 14 日ドイツの CTBT 観測所で観測された RX は, ベルギーの ^{99}Mo 製造施設 IRE (National Institute for Radioelements) から放出されたことが明らかにされた⁴⁾。

5. おわりに

これまで述べたように, 我が国の RX 濃度は北米と西ヨーロッパに比べて低いが, CTBT の高崎観測所で時々検出される ^{133}Xe と ^{131m}Xe は核爆発の検知を難しくしている。我が国における RX の主な発生源は原子力発電所と核医学施

設と考えられるので、今後 ATM によってそれらの発生源の影響を調べる必要がある。ATM 計算には、RX の放出データが必要であるが、その入手は簡単でない。RX の放出データとして、原子力発電所や研究用原子炉等の原子力施設では排気塔から放出される放射性気体廃棄物の放射線モニタリングデータ、そして核医学施設では放射性同位元素の使用記録を利用することができる。RX の発生源と考えられる施設は、関連する法律で定められた規定に従って運用されている。しかし、もし高崎観測所への影響が判明したときの影響を考えると過去の放出データを簡単に公表してもらえそうもない。しかし、核実験の検知は我が国の安全保障上も重要であるので、規制側、そして発生源側にもこの問題を理解してもらい、RX バックグラウンドへの各発生源の影響を明らかにする必要がある。本稿では、海外から流入する RX の影響は検討しなかったが、海外の医療用 ^{99}Mo 製造施設から放出される RX の影響はかなり広範囲であることが知られている³⁾。本稿で指摘した国内施設の影響に加え、海外の医療用 ^{99}Mo 製造施設等からの影響も調べる必要がある。

本稿を執筆後、本年 3 月 11 日の巨大地震と津波によって引き起こされた東京電力(株)福島第一原子力発電所の爆発事故によって、多量の放射性核種が空气中に放出された。これらの放射性核種は、地球上に張りめぐらされた CTBT の RX と粒子状放射性核種観測所のうち、北半球のすべてと南半球の一部の観測所で検出された。事故発生から 3 か月以上経過した現在、大部分の観測所からは検出されなくなったが、高崎観測所ではいまだに検出され続けている。

CTBT の放射性核種観測網による福島第一原子力発電所からの放射性核種測定の詳細は、文献 14) を参照されたい。

参考文献

- 1) 米沢伸四郎, ぶんせき, 222-228 (2010)
- 2) M. Matthews, *et al.*, PNNL-19294 (2010)
- 3) G. Wotawa, A. Becker, M. Kalinowski, P. Saey, M. Tuma, M. Zähringer, *Pure Appl. Geophys.*, **167**, 541-557 (2010)
- 4) P. R. J. Saey, *J. Env. Radioactivity*, **100**, 396-406 (2009)
- 5) (独)原子力安全基盤機構編, 原子力施設運転管理年報(平成 21 年度版)(2009)
- 6) M. B. Kalinowski, M. P. Tuma, *J. Env. Radioactivity*, **100**, 58-70 (2009)
- 7) IAEA Research Reactor Data Base (RRDB) (2009) : <http://nucleus.iaea.org/RRDB/RR/ReactorSearch.aspx?rf=1>
- 8) 日本加速器学会誌「加速器」編集委員会, 国内主要加速器関連施設 : <http://www.pasj.jp/kanrenshisetu.html>
- 9) 大森栄一, 須藤俊幸, 清水武彦, 駿河谷直樹, 高谷暁和, 小山暁, 中村博文, 横彰, 山内孝道, JNC TN8410 99-002 (1999)
- 10) (社)日本アイソトープ協会 医学・薬学部会 全国核医学診療実態調査専門委員会, *RADIO-ISOTOPES*, **57**, 491-558 (2008)
- 11) (社)日本アイソトープ協会, アイソトープ等流通統計 (2010)
- 12) S. Hebel, *Pure Appl. Geophys.*, **167**, 463-470 (2010)
- 13) R. Tinker, B. Orr, M. Grzechnik, E. Hoffmann, P. Saey, S. Solomon, *J. Env. Radioactivity*, **101**, 353-361 (2010)
- 14) 米沢伸四郎, 山本洋一, ぶんせき, 451-458 (2011)

((財)日本国際問題研究所
軍縮・不拡散促進センター)