

氏名	村田祥全
生年月日	
本籍	愛知県
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博甲第489号
学位授与の日付	平成14年3月22日
学位授与の要件	課程博士(学位規則第4条第1項)
学位授与の題目	JCO敷地内土壤中の誘導放射性核種による東海村臨海事故中性子フルエンスの評価
論文審査委員(主査)	小村 和久(理学部・教授)
論文審査委員(副査)	山本 政儀(理学部・助教授) 中西 孝(理学部・教授) 大村 明雄(理学部・教授) 天野 良平(医学部保健学科・教授)

学位論文要旨

Abstract

On September 30, 1999, a criticality accident occurred at the uranium conversion building in the JCO campus, Tokai-mura, Japan. The distinct feature of this accident was the continuous release of fission neutrons to the environment without an appreciable release of fission products. To evaluate the neutron doses to residents living near the JCO campus and environmental effects, radionuclides, induced by leakage neutron, in soils, concrete and chemical reagents was determined by γ -ray spectrometry. ^{24}Na , ^{46}Sc , ^{54}Mn , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{82}Br , ^{122}Sb , ^{134}Cs and ^{140}La were detected in the samples. Low level ^{54}Mn , which is produced by $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ reaction with fast neutron was determined by combination of chemical separation and low background well-type Ge detector installed at Ogoya underground laboratory. By using c.a. 280 data of measured specific activities of neutron-induced radionuclides, thermal, epithermal and fast neutron fluence were roughly estimated. Neutron transport calculation was performed by using MCNP code. The calculated value corresponded with the measured value on thermal neutron fluence and fast neutron. Directional dependence of neutron fluence was not obviously recognized. Origin of abnormal $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ isotopic ratio in soils was investigated from the viewpoints of radioactive equilibrium between ^{238}U and ^{230}Th . The results of analysis of U and Th isotopes showed many kinds of U contamination were existed independent of the criticality accident.

1. 序論

1999年9月30日、茨城県東海村にあるJCO東海事業所のウラン加工施設である転換試験棟において、日本初となる臨界事故が発生した。物理的な破壊を伴わなかったため、 ^{235}U の核分裂生成物の漏出は少なく、主に中性子が漏洩したことが本事故の特徴である。外部に放出された中性子により、JCO内部の労働者だけでなく、周辺に住む一般住民までもが被曝を受けるとともに、さまざまな環境物質が放射化された。日本において、過去最悪の原子力事故となった。事故後、科学技術庁の臨界事故調査委員会が設置され、臨界事故の影響の調査が行われた。1999年12月24日に事故調査委員会の最終報告が発表され、ホールボディカウンター、フィルムバッジ、モニタリングポストのデータなどを利用してJCO社員ならびに住民の被曝線量評価がなされた。しかし、肝心の周辺住民の被曝線量評価は、十分な実測がなされないまま、JCO敷地周辺のモニタリングポストのデータと経験式を用いて簡潔に評価したにすぎない。また、評価法の違いにより報告値が約2倍変化したこともあり、行政側の線量評価に対する信頼性を疑問視している住民も多い。事故調査委員会の信頼性を確認するためにも、第三者的な立場からの線量評価が重要である。

中性子線量の評価には、放出された中性子のフルエンスおよびエネルギースペクトルの情報を得る必要がある。事故により漏洩した中性子により放射化された環境物質中の誘導放射性核種の比放射能値を測定することが、中性子の被曝線量推定の大きな手がかりとなる。得た実測地は、中性子輸送計算を行う際に有用な情報となる。広島・長崎原爆から50年以上が経過しているにもかかわらず、中性子誘導放射性核種の実測値を得ようという試みが現在も行われている状況を考えると、本事故においても時間の経過と共に壊変消滅していく中性子誘導放射性核種の実測値を残すことは重要であると考えられる。

本研究では、JCO敷地内にある土壌、コンクリートおよび化学試薬試料から中性子誘導放射性核種の実測値を非破壊 γ 線スペクトロメトリーにより得る。広島・長崎原爆と同様に、速中性子によって誘導される放射性核種の実測値は、今後の事故による中性子被曝線量再評価の際に、貴重なデータとなる。そこで、測定妨害となる核種の除去のため目的元素について化学分離・精製を行い、低バックグラウンド井戸型HP-Ge検出器を用いて、できる限り多数のデータを得ることを試みる。MCNPを用いた中性子輸送計算を行い、計算値と実測値との比較を行う。また、JCO敷地内および土壌中のウラン同位体比の異常を ^{238}U と ^{230}Th 放射平衡の観点から考察する。

2. 試料採取と γ 線スペクトロメトリー

土壌試料の採取地点を図1および図2に示す。第1次調査では、50mm ϕ ×5cm採取器を使用して試料を採取した。短寿命核種である ^{24}Na ($T_{1/2}=14.96\text{ h}$) や ^{140}La ($T_{1/2}=40.27\text{ h}$) の存在を考慮して、試料採取後、未処理のまま60mm ϕ ×37mmのプラスチック容器に詰めたものを γ 線測定用試料とした。Ge半導体検出器を使用し、各試料半日の測定時間で短寿命放射性核種の定量を行った。測定が一通り終了した後、試料を乾燥機で乾燥させ、2mmのふるいにかけて、乳鉢を用いて均質化した。60mm ϕ ×22mmのプラスチック容器に詰め、測定時間約2日で γ 線スペクトロメトリーを実施し、 ^{46}Sc ($T_{1/2}=83.82\text{ d}$) や ^{59}Fe ($T_{1/2}=44.50\text{ d}$) などの寿命が比較的長い核種の定量を行った。第2次調査では、沈殿槽のある転換試験棟周辺および中性子の遮蔽となる大きな障害物がない、転換棟から見て北西方向、南西方向で試料を採取した。試料の採取には、47mm ϕ ×10cm採取器を主に使用し、3地点のみスコップで表層土壌を採取した。また、誘導放射性核種の深度分布を調べるため、4地点で47mm ϕ ×30cm採取器を使用し、コア試料を採取した。コア試料は、

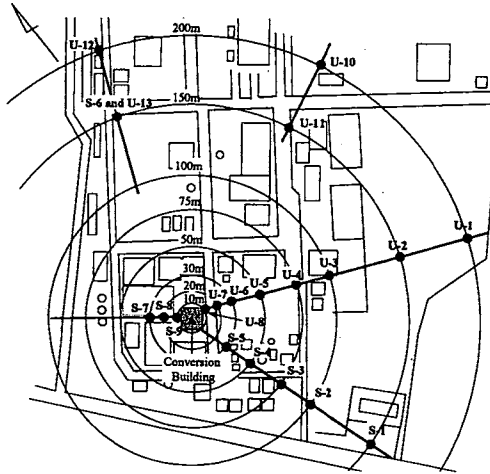


図1 第一次 JCO 敷地内調査時の土壌試料採取地点

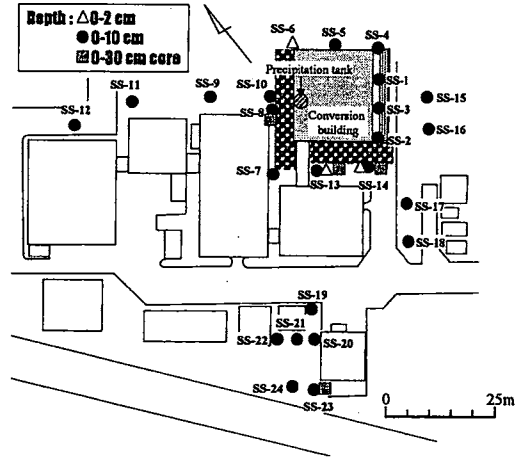


図2 第二次 JCO 敷地内調査時の土壌試料採取地点

表層から 5 cm 毎に分割し、それぞれを測定試料とした。第 2 次試料はすべて風乾し、乳鉢で均質化した後に 2 mm のふるいにかけて。これを 60 mm ϕ × 22 mm のプラスチック容器に詰めたものを γ 線測定用試料とした。Ge 半導体検出器で 2 日間ずつ各誘導放射性核種の濃度を測定した。沈殿槽から 2.2 m の地点からコンクリートブロックを採取した。コンクリートブロックは 12 試料に分割し、砕いて均質化し、60 mm ϕ × 22 mm のプラスチック容器に詰めたものを γ 線測定用試料とした。沈殿槽から南東約 65 m に位置する湿式試験棟内から化学試薬 21 試料を採取した。試薬は処理をせず、60 mm ϕ × 22 mm のプラスチック容器に詰めたものを γ 線測定用試料とした。立教大学原子炉にて中性子放射化分析を行うことにより、各試料の安定元素を定量した。

3. 中性子誘導放射性核種の濃度と中性子フルエンス評価

γ 線スペクトロメトリーにより得た中性子誘導放射性核種比放射能の結果の一部を表 1 に示す。土壌、コンクリート、試薬試料から、熱中性子誘導放射性核種を 19 核種 (^{24}Na , ^{46}Sc , ^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{82}Br , ^{85}Rb , ^{85}Sr , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{103}Ru , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{122}Sb , ^{134}Cs , ^{140}La , ^{141}Ce , ^{152}Eu , および ^{154}Eu)、速中性子誘導核種を 2 核種 (^{54}Mn , ^{58}Co) を検出し、定量した。原子炉中性子および核分裂スペクトルの反応断面積を用いて、比放射能から暫定的に熱中性子、熱外中性子および速中性子フルエンスを見積もった。沈殿槽からの距離に対して中性子フルエンスをプロットしたものを図 3 に示す。これらの、約 28 個の比放射能実測値および暫定的に評価した中性子フルエンスは、中性子輸送計算に有用な情報を与えると考えられる。

表 1 土壌試料中の誘導放射性核種の比放射能

Sampling points	Specific activities (Bq/g-element)			
	$^{46}\text{Sc}/\text{Sc}$	$^{59}\text{Fe}/\text{Fe}$	$^{60}\text{Co}/\text{Co}$	$^{54}\text{Mn}/\text{Fe}$
SS-1	290 \pm 20	0.055 \pm 0.009	23 \pm 5	No detection
SS-2	450 \pm 20	0.12 \pm 0.01	42 \pm 7	No detection
SS-3	460 \pm 20	0.11 \pm 0.01	31 \pm 5	No detection
SS-4	230 \pm 20	0.077 \pm 0.010	18 \pm 6	No detection
SS-5	540 \pm 20	0.14 \pm 0.01	42 \pm 5	No detection
SS-6	880 \pm 40	0.23 \pm 0.01	57 \pm 8	No detection
SS-7	2420 \pm 50	0.56 \pm 0.02	122 \pm 7	0.0073 \pm 0.0018
SS-8	3990 \pm 70	1.01 \pm 0.03	197 \pm 10	0.028 \pm 0.004
SS-9	1920 \pm 50	0.48 \pm 0.02	121 \pm 11	No detection
SS-10	5480 \pm 10	1.49 \pm 0.04	309 \pm 14	0.039 \pm 0.005

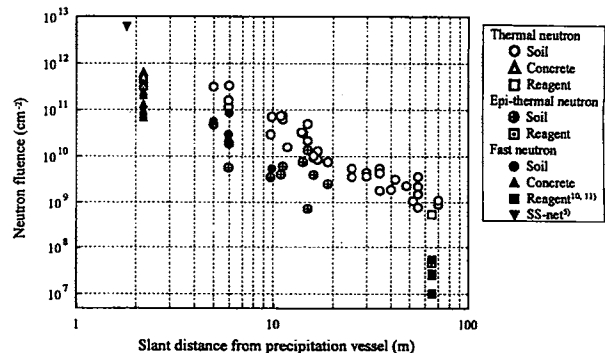


図3 誘導放射性核種の比放射能から評価した中性子フルエンス

4. 土壤中の低レベル ^{54}Mn の定量

非破壊 γ 線スペクトロメトリーでは、検出した速中性子誘導放射性核種の種類が少ない (^{54}Mn , ^{58}Co) うえに、検出した試料の数も少ない。速中性子のほうが熱中性子よりも被曝線量に大きく寄与するため、速中性子により生成する核種のデータは重要である。本研究では、沈殿槽から 10 m 以内の 4 地点の土壤試料および 2.2 m のコンクリート試料でのみ検出した ^{54}Mn に注目し、土壤中の妨害元素を除去することでより多くの地点における検出を試みた。

^{835}Mn の放出する 834.8 keV の γ 線とほぼ同じエネルギーを持ち、 ^{835}Mn 検出の最大の妨害となる、

^{228}Ac の親核種である ^{228}Ra や、コンプトン散乱により妨害となる ^{60}Co や ^{40}K などを除去し、Mn を単離するための化学分離法をトレーサー実験により構築した。図 4 にその分析スキームを示す。開発した化学分離法と、尾小屋地下測定室の低バックグラウンド井戸型 Ge 検出器を組み合わせることにより、沈殿槽から 20 m 以内の 9 試料で ^{54}Mn を検出することができた。SS-14 試料の化学分離前の非破壊 γ 線測定および化学分離後の γ 線測定のスペクトルを図 5 に示す。非破壊測定では、 ^{228}Ac に妨害されて ^{54}Mn を検出できなかったが、化学分離後は明瞭な ^{54}Mn のピークを得ることができた。得た ^{54}Mn の比放射能を表 2 に示す。

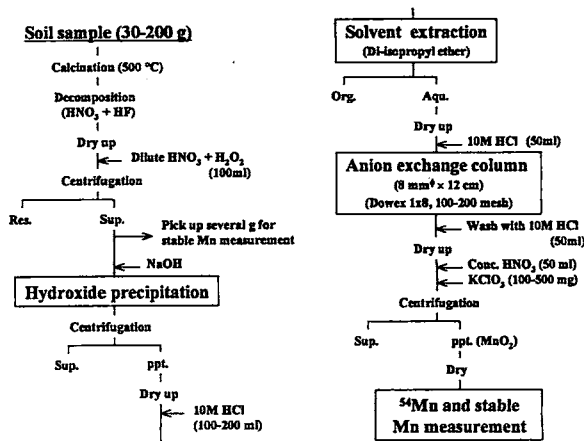


図 4 土壤中の低レベル ^{54}Mn 測定のための分離スキーム

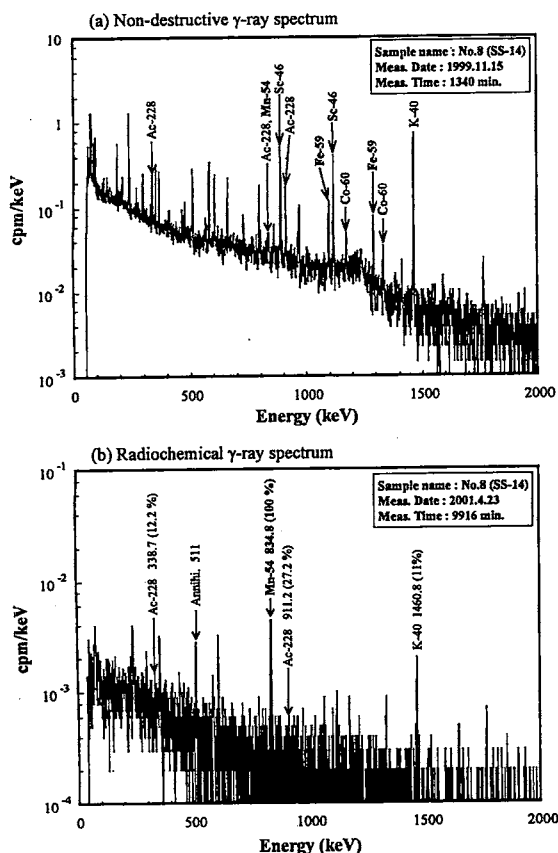


表 2 化学分離法と低バックグラウンド Ge 検出器を用いて測定した JCO 土壤中の ^{54}Mn 濃度

Sampling points	$^{54}\text{Mn}/\text{Fe}$ specific activity (mBq/g-Fe)	
	Radiochemical	Non-destructive
SS-1	0.47 ± 0.07	No detection
SS-2	1.19 ± 0.13	No detection
SS-3	2.6 ± 0.8	No detection
SS-4	0.26 ± 0.05	No detection
SS-5	1.01 ± 0.15	No detection
SS-6	3.33 ± 0.43	No detection
SS-7	No measurement	7.3 ± 1.8
SS-8	30.6 ± 2.5	28.1 ± 4.1
SS-9	6.52 ± 0.61	No detection
SS-10	38.2 ± 2.7	38.9 ± 5.3
SS-13	8.1 ± 0.9	No detection
SS-14	5.91 ± 0.53	No detection
S-9	No measurement	75.4 ± 4.6

図 5 非破壊 γ 線スペクトルと化学分離後の γ 線スペクトルの比較

5. MCNP を用いた中性子輸送計算

MCNP を用いて、中性子輸送計算を行った。転換試験棟および周辺の建物の構造および化学成分を実際に近い形で計算に組み入れ、沈殿槽から中性子を発生させた。発生させる中性子は 1×10^9 個とした。各土壌試料採取地点に $50 \text{ cm}^{\phi} \times 5 \text{ cm}$ の大きさで検出部を配置し、モンテカルロ計算により入射する中性子の数とエネルギーを記録した。記録した中性子数とエネルギーから、熱中性子、熱外中性子、中速中性子、速中性子および全中性子のフルエンスを計算し、実測値から得た値と比較した。比放射能実測値と中性子輸送計算から得た各地点の中性子フルエンスを表 3 に示す。熱中性子、熱外中性子、速中性子とも計算と実測値は 3~4 倍の範囲内でよく一致していると

いえる。中性子フルエンスの方向依存性を調べるために、建物は転換試験棟のみを考慮し、沈殿槽から 16 方位にある 18 m の位置に $50 \text{ cm}^{\phi} \times 5 \text{ cm}$ の大きさで検出部を置き、中性子輸送計算を行った。熱中性子、

熱外中性子、中速中性子、速中性子および全中性子の方向分布を図 6 に示す。最も方向依存性がある速中性子でも、最大と最小の差は 4 倍程度であり、転換試験棟周辺の明確な報告依存性を認めることはできなかった。

表 3 MCNP を用いて評価した中性子フルエンス

Sampling points	Neutron fluence (cm^{-2})				
	Thermal neutron	Epithermal neutron	Intermediate neutron	Fast neutron	Total neutron
SS-1	$(1.11 \pm 0.08) \times 10^{10}$	$(1.55 \pm 0.08) \times 10^9$	$(7.6 \pm 0.5) \times 10^8$	$(4.8 \pm 0.5) \times 10^8$	$(1.39 \pm 0.08) \times 10^{10}$
SS-2	$(2.9 \pm 0.2) \times 10^{10}$	$(4.4 \pm 0.1) \times 10^9$	$(3.5 \pm 0.1) \times 10^9$	$(2.4 \pm 0.1) \times 10^9$	$(4.0 \pm 0.2) \times 10^{10}$
SS-3	$(2.1 \pm 0.1) \times 10^{10}$	$(3.0 \pm 0.1) \times 10^9$	$(2.07 \pm 0.09) \times 10^9$	$(1.54 \pm 0.09) \times 10^9$	$(2.8 \pm 0.1) \times 10^{10}$
SS-4	$(1.4 \pm 0.1) \times 10^{10}$	$(2.00 \pm 0.09) \times 10^9$	$(1.08 \pm 0.06) \times 10^9$	$(7.4 \pm 0.6) \times 10^8$	$(1.8 \pm 0.1) \times 10^{10}$
SS-5	$(3.7 \pm 0.2) \times 10^{10}$	$(5.1 \pm 0.1) \times 10^9$	$(3.5 \pm 0.1) \times 10^9$	$(2.6 \pm 0.1) \times 10^9$	$(4.8 \pm 0.2) \times 10^{10}$
SS-6	$(9.1 \pm 0.3) \times 10^{10}$	$(1.47 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(1.04 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(7.5 \pm 0.2) \times 10^9$	$(1.24 \pm 0.03) \times 10^{11}$
SS-7	$(1.13 \pm 0.04) \times 10^{11}$	$(1.93 \pm 0.03) \times 10^{10}$	$(1.54 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(1.32 \pm 0.03) \times 10^{10}$	$(1.61 \pm 0.04) \times 10^{11}$
SS-8	$(2.95 \pm 0.06) \times 10^{11}$	$(5.70 \pm 0.05) \times 10^{10}$	$(5.02 \pm 0.04) \times 10^{10}$	$(5.44 \pm 0.06) \times 10^{10}$	$(4.56 \pm 0.06) \times 10^{11}$
SS-9	$(4.6 \pm 0.2) \times 10^{10}$	$(6.8 \pm 0.2) \times 10^9$	$(4.4 \pm 0.1) \times 10^9$	$(2.17 \pm 0.01) \times 10^9$	$(5.9 \pm 0.2) \times 10^{10}$
SS-10	$(2.89 \pm 0.06) \times 10^{11}$	$(5.80 \pm 0.05) \times 10^{10}$	$(5.23 \pm 0.05) \times 10^{10}$	$(5.31 \pm 0.06) \times 10^{10}$	$(4.53 \pm 0.06) \times 10^{11}$
SS-13	$(9.8 \pm 0.3) \times 10^{11}$	$(1.47 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(1.02 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(6.6 \pm 0.2) \times 10^9$	$(1.29 \pm 0.03) \times 10^{11}$
SS-14	$(6.3 \pm 0.2) \times 10^{10}$	$(1.03 \pm 0.02) \times 10^9$	$(7.8 \pm 0.2) \times 10^8$	$(6.0 \pm 0.2) \times 10^8$	$(8.7 \pm 0.2) \times 10^{10}$
S-9	$(3.87 \pm 0.07) \times 10^{11}$	$(8.22 \pm 0.06) \times 10^{10}$	$(7.52 \pm 0.05) \times 10^{10}$	$(8.08 \pm 0.07) \times 10^{10}$	$(6.25 \pm 0.07) \times 10^{11}$

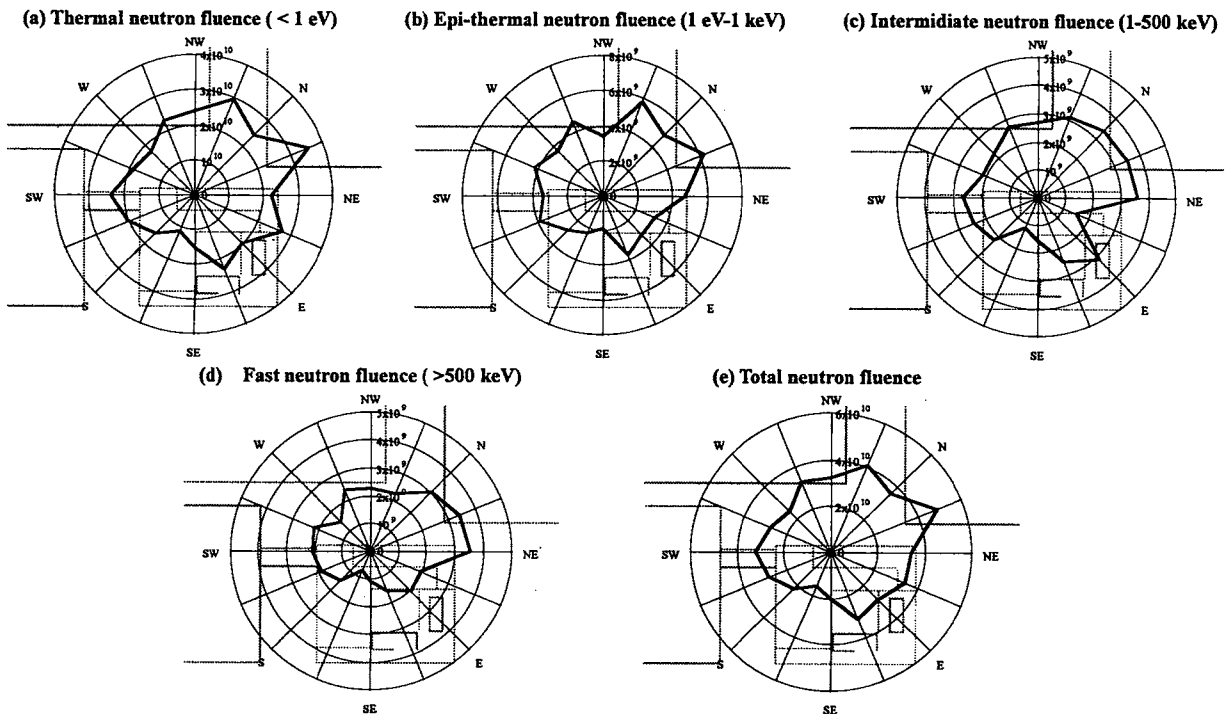


図 6 MCNP を用いて評価した転換試験棟周辺の中性子フルエンスの方向依存性

6. JCO 土壤中の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比

^{238}U と ^{230}Th 間の放射平衡の観点から $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比の異常を調べるために、JCO 敷地内の土壤中の U および Th 同位体を α 線スペクトロメトリーおよび ICP-MS により分析した。土壤試料をフッ化水素酸、硝酸および過塩素酸で溶解・抽出した後、 ^{232}U と ^{229}Th の収率トレーサーを加えた。鉄共沈操作および鉄除去を行い、陰イオン交換法により U および Th 同位体を化学分離・精製した。U および Th をステンレス板に電着したものを測定用線源とし、表面障壁型 Si 検出器を用いた α 線スペクトロメトリーにより、U および Th 同位体の放射能を測定した。ICP-MS を用いて、精製した U 溶液の一部から $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比を測定した。

U の汚染を受けていない土壤中の ^{238}U と ^{230}Th は放射平衡であると仮定して、土壤中の過剰 U を計算した。7 試料で U 過剰が明確であり、その過剰 $^{238}\text{U}/^{235}\text{U}$ 同位体比は、0.94~7.2 %であった。転換試験棟周辺だけでなく、転換試験棟から 50 m および 150 m 以上離れている場所でも過剰の U が存在していることから、これらの汚染は臨界事故と無関係であると考えられる。

^{238}U の逆数に対して、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比をプロットしたグラフを図 7 に示す。土壤と U の単一の汚染による二成分混合ならば、プロットした点は 1 つの直線上に載る。しかし、図 6 はそのような傾向はなく、U の汚染源が単一の種類ではなく、さまざまな濃縮度の U の汚染があったことを示唆する。

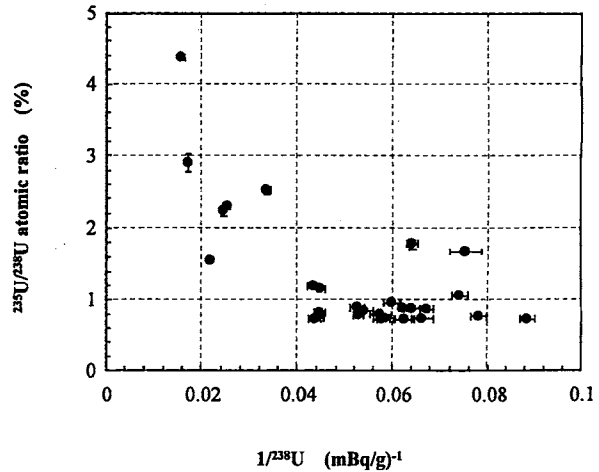


図 7 U 汚染成分と土壤との二成分混合の検討

学位論文審査結果の要旨

1 月 25 日に行い審査委員による審査を、2 月 1 日に学位論文の公聴会を行った。

本論文は東海村のウラン加工工場 JCO で発生した臨界事故により周辺環境に漏えいした中性子のフルエンスを放射化学的方法により評価したものである。著者は事故直後から現地に赴き試料採取活動に参加した。第 1 次調査時に採取した試料の非破壊 γ 線測定の結果をもとに、第 2 次調査時にはウラン転換試験棟周辺で土壤試料 (+化学試薬) を計画的に採取し測定試料とした。非破壊 γ 線測定で 10 数種の放射性核種を定量したほか、通常の高バックグラウンド測定でも検出困難な速中性子誘導核種 Mn-54 の精密測定に成功しているが、これは妨害する多くの放射性核種からマンガン純度をよく分離する放射化学的分離法の開発と尾小屋地下測定室の極低バックグラウンド井戸型 Ge 検出器の使用によって初めて可能になったものであり、他の研究機関ではなしえない成果である。実測値について MCNP モデルによる誘導核種の方位分布の計算を行い、3 倍以内で再現する事ができたが、建物の内部構造の詳細を計算に組み込むことでさらに再現性を高めることが可能であると結論した。さらに α 線測定および ICP-MS による土壤中ウラン同位体比の精密測定の結果から臨界事故以前にすでに濃縮ウランの漏えいがあったことを明らかにした。本研究は、上記のように臨界事故の環境影響の評価に多大な貢献をしたものと認められる。

本論文の成果はすでに学術雑誌に 3 編の論文として掲載されたほか、2 編の論文が受理されており、博士(理学)の学位を与えるに十分値するものと判断した。