

プルトニウムの起源を推定する

プルトニウムは、ウラン 238 が中性子を吸収することで生成されます。アフリカのガボン共和国のオクロ鉱山で 1972 年に発見された天然原子炉でも、ウラン鉱石中に僅かにプルトニウムができていましたが、プルトニウムの殆どは、発電用や研究用の原子炉内で人工的に作られます。プルトニウム（元素記号 Pu）には、約 20 の同位体が確認されています。同位体は、同じ元素で原子の質量数が違っているもののことです。その中で主なものとして、質量数が 238、239、240、241 そして 242 が挙げられます。これらの全てが α 線や β 線を放出します。

現在、環境中に存在する Pu 同位体の中で濃度が高いのは ^{239}Pu （半減期 2 万 4110 年）と ^{240}Pu （半減期 6563 年）であり、原子力施設のモニタリング等で対象とされているのも ^{239}Pu と ^{240}Pu です。この 2 つの Pu 同位体は、通常の分析では α 線検出器で測定されますが、両者が放出する α 線のエネルギーの差が小さいため、この 2 つの核種を区別して測定することが出来ません。そこで、これらの核種が測定された場合には、両者を合計した値ということで「 $^{239+240}\text{Pu}$ 」と記述されます。モニタリングでは、 α 線検出器でも十分対応出来ますが、質量分析装置を使うと、この ^{239}Pu と ^{240}Pu を区別して測定することが可能であり、 ^{240}Pu と ^{239}Pu の比（ $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比^{注1}）を求めることが出来ます。

世界 60 地点の表層土壌試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を調査した結果、その平均値は 0.176

と報告されています [1]。日本の土壌の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比も、これに近い値が報告されています [2]。世界の土壌中に広く存在する Pu は、1960 年代に盛んに行われた大気圏核実験により地球規模で大気中に放出された Pu（フォールアウト Pu）が地表に沈着したものです。分析した試料の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比が 0.18 付近の値である場合には、その Pu の起源は大気圏核実験であると推定できます。

それ以外の値としては、長崎県の西山地区で 0.03 と小さな値が報告されていますが、これは長崎に投下された Pu 爆弾の同位体比組成を反映しているものと考えられています [3]。また、イギリスのセラフィールド再処理施設周辺のアイリッシュ海の堆積物や魚では、フォールアウト Pu の同位体比よりも少し大きな値（約 0.21）が報告されており、再処理施設で処理された使用済核燃料の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を反映しているものと推測されています [4]。旧ソ連（現ウクライナ）のチェルノブイリ原子力発電所の周辺土壌では、約 0.4 と大きな Pu 同位体比が報告されています [5]。これは、燃焼度の高い核燃料中の Pu（注2）が事故により周辺環境に放出されたことを意味しています。チェルノブイリ原子力発電所は黒鉛炉というタイプの原子炉でしたが、他のタイプの原子炉とは、核燃料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比が異なることが知られています [6]。

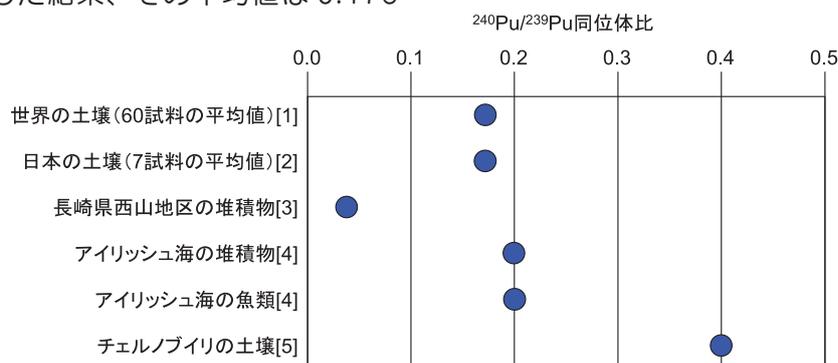


図 1 様々な試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

このように $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は、放出源によって異なります。従って、プルトニウムができる条件（原子炉のタイプ、核燃料の組成や燃焼度など）の違いによる $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比のデータを調べておけば、環境試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比を正確に求めることで、Puの起源推定に役立つのです。国内外において様々な環境試料について $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比が測定され、データの蓄積及び公表が進められています。

注1 「 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比」には、両者の放射能の比を指す場合と原子数の比を指す場合がありますが、ここで示す値は全て原子数の比です。

注2 原子炉内では、核燃料中の ^{235}U （ウラン-235）が核分裂する際に放出する中性子が、別の ^{235}U に衝突して核分裂を引き起こすという連鎖反応が起きています。この中性子が核燃料中の ^{238}U に吸収されると ^{239}U （半減期 23.5 分）になり、これが β 崩壊を起こして、 ^{239}Np （ネプツニウム-239、半減期 2.4 日）になり、更に β 崩壊して ^{239}Pu になります。生成した ^{239}Pu が、もう一度中性子を吸収することで ^{240}Pu になります（図 2）。従って、同一組成の核燃料を同じタイプの原子炉に装填しても、核燃料中の ^{235}U が核分裂することにより放出した熱量の総量（燃焼度）が大きいほどたくさんの ^{240}Pu が生成され、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は大きくなります。

参考文献

- [1] P. W. Krey ら (1976) Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil, Proceedings of symposium on transuranium nuclides in the environment, IAEA-SM-199-39, pp. 671-678.
- [2] Y. Muramatsu ら (2001) ICP-MS analysis of environmental plutonium, Plutonium in the environment, Ed., A. Kudo, Elsevier Science Ltd., pp. 63-77.
- [3] Saito-Kokubo ら (2007) Plutonium isotopes derived from Nagasaki atomic bomb in the sediment of Nishiyama reservoir at Nagasaki, Japan, Appl. Radiat. Isotopes, 65, pp. 465-468.
- [4] Y. Muramatsu ら (1999) Determination of plutonium concentration and its isotopic ratio in environmental materials by ICP-MS after separation using ion-exchange and extraction chromatography, J. Anal. At. Spectrom., 14, pp. 859-865.
- [5] Y. Muramatsu ら (2000) Concentrations of ^{239}Pu and ^{240}Pu and their isotopic ratios determined by ICP-MS in soils collected from the Chernobyl 30-km zone, Environ. Sci. Technol., 34, pp. 2913-2917.
- [6] B. L. Cohen (1977) Hazards from plutonium toxicity, Health Phys., 32, pp. 359-379.

(大塚 良仁)

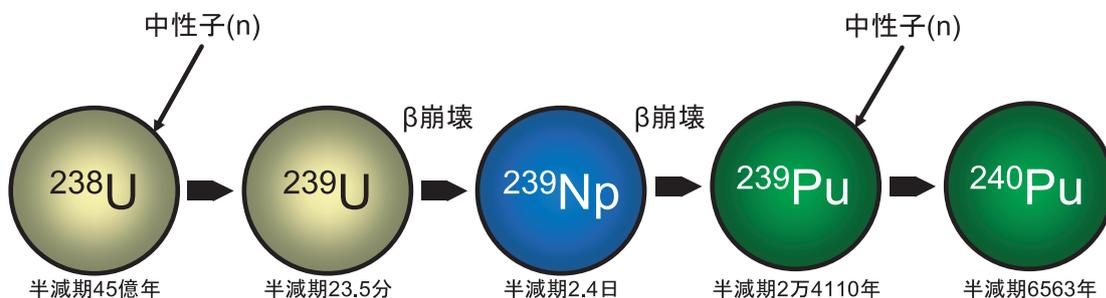


図 2 原子炉内での Pu の生成

このミニ百科は、文部科学省の委託を受けて環境科学技術研究所が発行しているものです。

財団法人 環境科学技術研究所 広報・研究情報室

〒039-3212 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駱字家ノ前1-7 電話0175-71-1200

平成19年12月27日 発行