

CTBT 検証制度における放射性希ガスの探知と意義

日本国際問題研究所 軍縮・不拡散促進センター
主任研究員 米澤 伸四郎

1. はじめに

核爆発によって作られるキセノン (Xe) 及びアルゴン (Ar) 等の放射性希ガスは、核実験と疑われる爆発事象を核爆発と断定するための最終手段である。

現在、包括的核実験禁止条約 (CTBT, Comprehensive Nuclear-Test-Ban Treaty) の発効に向け、核実験の検証制度の整備が国際的に進められている。核実験の検証は、国際監視制度 (IMS, International Monitoring System) による地震波、水中音波、微気圧振動、放射性核種の連続監視と現地査察 (OSI, On-Site Inspection) の科学的方法に加え、協議及び説明、そして信頼の醸成についての措置によって行われることになっている。

爆発事象は地震波、水中音波、そして微気圧振動の連続監視により検知することは可能であるが、それだけでは核爆発であると断定することは出来ない。地震波等によって検知された事象が核爆発であったかどうかを確定するためには、核爆発によって生成される放射性物質の検出に頼らざるをえない。

核爆発によって数多くの放射性物質が生成される。その中で、放射性希ガスと呼ばれる放射性キセノンは核分裂によって直接作られるし、放射性アルゴンは核分裂で発生する中性子と地中にあるカルシウム (Ca) との核反応によって間接的に作られる。そして、これらの放射性希ガスは、化学的に不活性なガスであるため、たとえ、核爆発が地下で行われたとしても大気中に漏れ出してくる事があるので、それらを地上で検出することができる事もある。

このように、放射性希ガスは核爆発の有力な手懸りとなるため、これまで INGE (International Noble Gas Experiment) と呼ばれる国際的な専門家グループによって放射性希ガス測定装置の開発と測定法の研究が行われてきた。開発された測定装置は、これまでに IMS の観測所などに設置され、地下核実験の検知に暫定的に運用されている。本稿では、放射性希ガスの測定装置とその測定法、IMS の放射性キセノン観測網、更に希ガスによる地下核実験検知の問題点などを解説する。

2. 放射性希ガスとは

希ガスは、元素の周期律表で一番右端のカラムに位置するヘリウム (He)、ネオン (Ne)、アルゴン (Ar)、クリプトン (Kr)、キセノン (Xe)、ラドン (Rn) の総称で、存在量が少ないガスのため、このように呼ばれている。また、これらの元素は化学的に不活性であるため、“不活性ガス”とも呼ばれる。希ガスには、ラドン (^{222}Rn 、半減期 3.8 日) やトロン (^{220}Rn 、半減期 55.6 秒) と呼ばれる自然放射性核種のほか、数多くの人工放射性核種が有

る。人工放射性希ガスのうち、表1に示す4つの放射性キセノンと放射性アルゴン(^{37}Ar)は、核爆発によって生成され、それらの核種の半減期(放射能が半分になる時間)が9時間から35日と適当な長さで、放出する放射線も測定しやすいため、核爆発の検知に利用される。本稿では、“放射性キセノン”という用語が度々出てくるので、これをRX(Radioactive Xenon)と省略する。

表1 放射性希ガス核種の壊変特性

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		^{235}U %核分裂収率 ¹⁾
			電子線 (%放出率)	電磁放射線 (%放出率)	
$^{131\text{m}}\text{Xe}$	11.84 日	IT ²⁾	129.4 内部転換電子 (K 電子)	29.46 (15.6) X線 29.78 (28.8) X線 163.93 (1.91) γ 線	0.045
$^{133\text{m}}\text{Xe}$	2.19 日	IT ²⁾	198.7 内部転換電子 (K 電子)	29.46 (16.2) X線 29.78 (29.9) X線 233.22 (10) γ 線	0.192
^{133}Xe	5.243 日	β ³⁾	346.4 β 線	30.62 (14.4) X線 30.97 (26.5) X線 80.99 (38.0) γ 線	6.72
^{135}Xe	9.14 時間	β ³⁾	901.2 β 線	30.62 (1.49) X線 30.97 (2.75) X線 249.77 (90) γ 線	6.60
^{37}Ar	35.04 日	EC ⁴⁾	2.38 (81.7) オージェ電子	2.62 (2.8) X線 2.62 (5.6) X線	—

- 1) 核分裂中性子による ^{235}U の核分裂収率。これは、100個の ^{235}U 原子の核分裂によって生成される注目する核種の壊変系列核種の積算原子数(累積核分裂収率)。
- 2) 核異性体転移(Isomeric Transition)と呼ばれる壊変様式で、準安定状態の原子核が γ 線を放出して安定化する。つまり、 $^{131\text{m}}\text{Xe}$ は ^{131}Xe に、そして $^{133\text{m}}\text{Xe}$ は ^{133}Xe になる。
- 3) 安定核種の原子核に比べて中性子数が多い原子核の壊変様式で、1個の中性子が陽子と β 線と呼ばれる陰電子とニュートリノに変化して、安定化する。この壊変では β 線とニュートリノが放出される。
- 4) 安定核種の原子核に比べて陽子数が多い原子核の壊変様式の一つで、原子核が軌道電子を捕獲して原子核中の陽子が中性子になる。原子核に最も近いK電子が捕獲されやすく、これに伴ってK核の外側の電子がK軌道に移るのでその際、X線とオージェ電子が放出される。

4つのRXは、 ^{235}U や ^{239}Pu などの核分裂によって直接作られる。その生成量（核分裂収率と呼ばれる）は数多くの核分裂生成物の中でも大きい。また、これら4つのRXは、種々の放射線を放出するが、簡単には各々電子線と電磁放射線を同時に放射することが出来る^{注1)}。

^{37}Ar は、核分裂によって発生する高速の中性子と地殻に含まれるカルシウム（Ca）との核反応によって間接的に生成される^{注2)}。カルシウムは地殻中に多量に含まれる元素の一つで、石灰岩地層の場合約40%も含まれるので、核爆発によってかなりの量が生成される。 ^{37}Ar は、軌道電子捕獲（EC）と呼ばれる壊変様式によって壊変する。 ^{37}Ar 原子核は、一番内側のK殻と呼ばれる電子を捕獲し、2.38 keVの電子線（オージェ電子と呼ばれる）とX線を放出して安定核種の塩素（ ^{37}Cl ）になる。

注1)

厳密にはβ線及び内部転換電子などの電子線、そしてX線やγ線などの電磁放射線を放出するが、これらは放出の過程やエネルギー、そしてその分布が異なるだけで、簡単に分類すると電子線と電磁放射線になる。そして、電子線と電磁放射線が放出される時間差は、放射線測定器の時間分解能に比べ無視できるほど短く（ $1/10^9$ ）、実際上はこれらを同時として扱うことができる。

注2)

この核反応式は、 $^{40}\text{Ca} (n, \alpha) ^{37}\text{Ar}$ のように表される。

3. 放射性希ガスの測定装置

これまで、CTBTの核実験検証用に開発された放射性希ガスの測定装置を表2に示す。

表2 希ガス測定装置

装置名	開発国	測定対象	放射線測定
SAUNA	スウェーデン	RX	β-γ同時計数
SPALAX	フランス	RX	γ線計数
ARIX	ロシア	RX	β-γ同時計数
ARSA	米国	RX	β-γ同時計数
MARDS	中国	^{37}Ar	比例計数管

3.1 RXの測定装置

SAUNA、SPALAX、ARIX及びARSAと呼ばれる4種類のRX測定装置は、IMSの観測所用として開発された。これらの測定装置の概要を図1に示す。RXガスは、ポンプで集められた空気試料から分離精製され、ガスクロマトグラフによってキセノン量を定量後、

その放射能が測定される。測定が終わった試料は、再測定が必要になったときのため、アーカイブと呼ばれる容器に保管される。

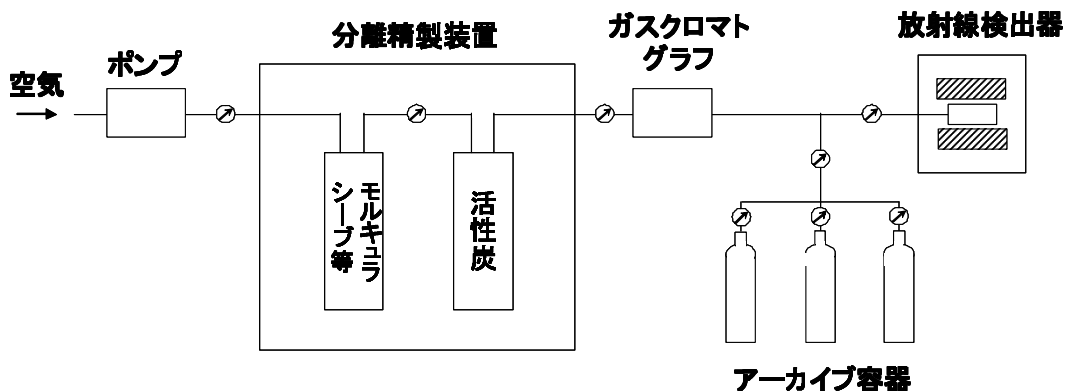


図 1 RX 測定装置の概略

RX ガスの分離精製は、各ガス分子の大きさの違い（これは分子ふるい効果と呼ばれる）を利用して行われる。これには、モルキュラシーブや多孔質膜が用いられ、液体窒素等による冷却と高温加熱操作を繰り返し、希ガスを分離精製する。最終的に放射性希ガスは活性炭に捕集される。

RX の放射能測定は、各核種が電子線と電磁放射線を同時に放射するという特性を利用した $\beta - \gamma$ 同時計数法 (SAUNA, ARIX, ARSA) と、放出する電磁放射線の固有エネルギー差を利用した γ 線計数法 (SPALAX) によって行われる。 $\beta - \gamma$ 同時計数法には、検出器として放射線との相互作用によって発光するシンチレータと呼ばれる物質が使用される。この場合、検出する放射線は透過力の小さな電子線と透過力の大きな電磁放射線なので、夫々を分別して検出するため、プラスチックシンチレータとヨウ化ナトリウムシンチレータ（これは NaI(Tl) 表される）が用いられる。 $\beta - \gamma$ 同時計数用検出器システムの概略を図 2 に示す。RX 核種は中空のプラスチックシンチレータに入れられ、放射される透過力の小さな電子線はプラスチックシンチレータで、そして透過力の大きな電磁放射線はプラスチックシンチレータを透過してその外側の NaI(Tl) 検出器によって検出される。 γ 線計数法は、X 線や γ 線などの電磁放射線を高エネルギー分解能の半導体ゲルマニウム検出器で測定する方法である。

開発された RX 装置は、試料の採集から分離精製、そして測定までを何れも自動で行うことができる。更に、これらの装置は 1 mBq/m^3 以下の ^{133}Xe を測定することができ、核爆発の検知を目的とした IMS 用 RX 装置の基本仕様が全て満たされている。また、測定データは十分な信頼性を持っていることも、2000 年ドイツの Freiburg で行われた共同比較分析によって確認されている。

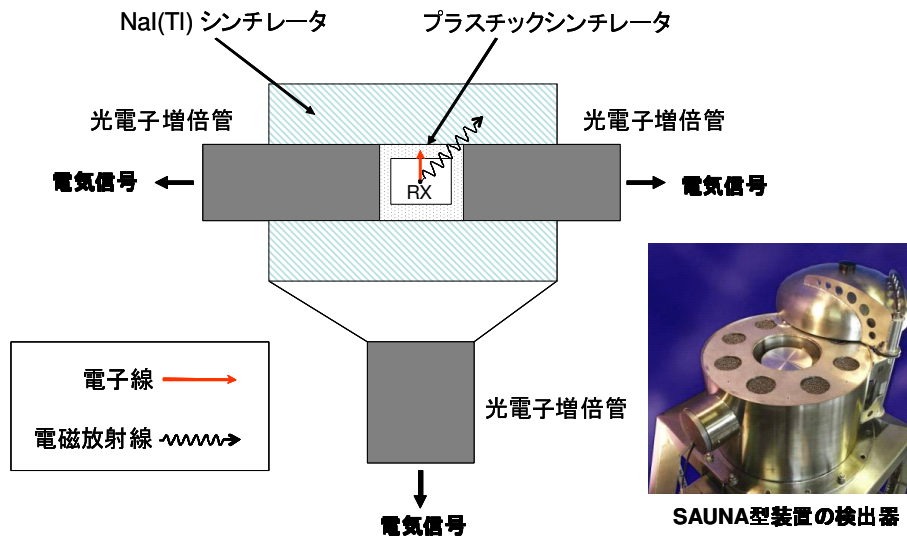


図2 $\beta - \gamma$ 同時計数型放射線検出器の概略図

3.2 ^{37}Ar の測定装置

^{37}Ar 測定装置 (MARDS) は、OSI 用として中国で開発された。空気試料は、地中に差し込まれたピンホールの開いた鉄パイプから吸上げられ、RX 装置と同様な方法で分離精製し、ガスクロマトグラフでアルゴン量を定量後、その測定が行われる。 ^{37}Ar は 2.38 keV と非常に低エネルギーの電子線と同じエネルギーの X 線しか放出しないため、試料は比例計数管と呼ばれる銅製の管に入れられ、その電子線が測定される。MARDS は、測定できる ^{37}Ar の最低放射能濃度は 0.5 Bq/m^3 とされ、1 キロトン (kt) 以上の地下核爆発の検知が可能とされている。

4. RX の観測所

CTBT では 321 箇所の IMS 観測所の設置が決められており、その内 80 箇所が放射性核種 (RN, Radio-Nuclide) の観測所となっている。この 80 箇所の RN 観測所には、放射性粒子の γ 線測定装置が設置されるが、更にその内の 40 箇所に RX 測定装置が設置されることになっている。現在までのところ、RX の測定装置は図 3 と表 3 に示す 25 箇所の観測所に設置され、CTBT が発効するまで暫定的に運用されている。設置されている測定装置の内訳は、SAUNA 12、SPALAX 10、ARIX 3 となっている。現在 ARSA 型装置は IMS の観測所には設置されていないが、初期には設置されたこともある。我国では、群馬県高崎市の観測所 (JPX38) に SAUNA 型の装置が設置されている。各観測所の観測データは、オーストリアのウィーンにある国際データセンター (IDC) に人工衛星の回線を使用して送られ、解析されている。さらに、世界中の観測データは、茨城県東海村の日本原子力研究開発機構にある国内データセンター (NDC-2, National Data Center No.2 と呼ばれる) でも独自に解析が行われている。

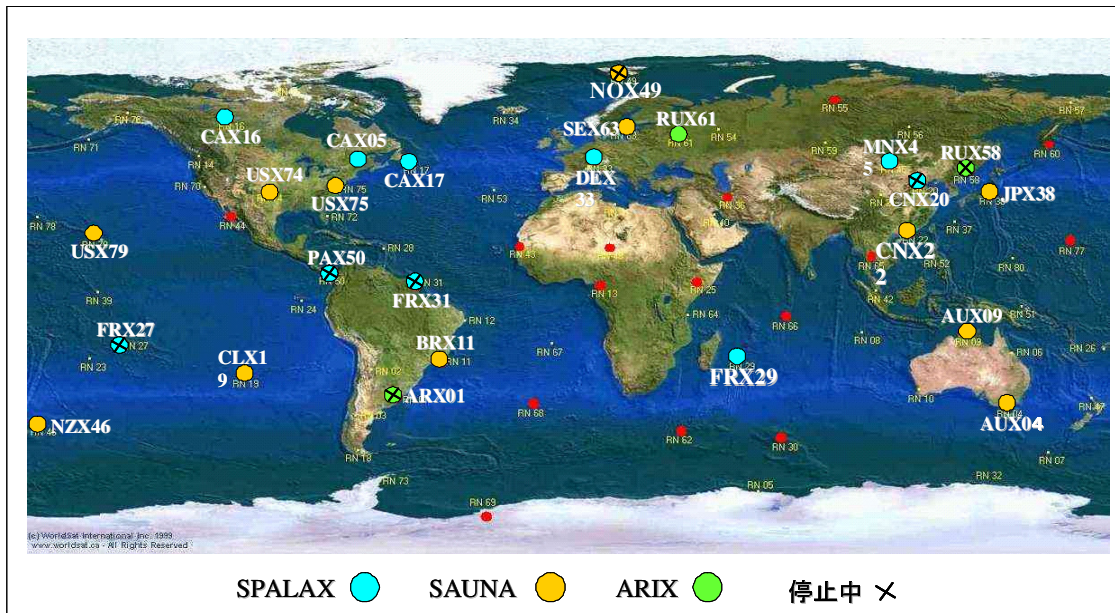


図3 IMSのRX観測所

表3 これまでに設置されたRXの観測所

コード名	設置場所	観測装置
ARX01	アルゼンチン、ブエノス・アイレス	ARIX
AUX04	オーストラリア、メルボルン	SAUNA
AUX09	オーストラリア、ダーウィン	SAUNA
BRX11	ブラジル、リオ・デ・ジャネイロ	SAUNA
CAX05*	カナダ、オタワ	SPALAX
CAX16	カナダ、イエローナイフ	SPALAX
CAX17	カナダ、セント・ジョンズ	SPALAX
CLX19	チリ、イースター島	SAUNA
CNX20	中国、北京	SPALAX
CNX22	中国、広州	SAUNA
FRX27	フランス、タヒチ	SPALAX
FRX29	フランス、レユニオン	SPALAX
FRX31	フランス、仏領ギアナ	SPALAX
DEX33	ドイツ、フライブルグ	SPALAX
JPX38	日本、高崎	SAUNA
MNX45	モンゴル、ウランバートル	SPALAX
NZX46	ニュージーランド、チャタム諸島	SAUNA
NOX49	ノルウェー、スピッツベルゲン	SAUNA
PAX50	パナマ、パナマ	SPALAX
RUX58	ロシア、ウスリースク	ARIX
RUX61	ロシア、ドゥブナ	ARIX
SEX63	スウェーデン、ストックホルム	SAUNA
USX74	米国、カンザス州アッシュランド	SAUNA
USX75	米国、バージニア州シャーロットビル	SAUNA
USX79	米国、ハワイ州オアフ島	SAUNA

*カナダの国営観測所

5. RXのバックグラウンド

5.1 バックグラウンド源

地球上には核爆発以外にもRXの発生源が数多くある。このため、これらのバックグラウンド放射能から如何に核爆発起源のRXを区別して測定するかが大きな課題となっている。RXのバックグラウンド源としては、1) 医療用放射性モリブデン (^{99}Mo) の製造施設、2) 原子炉、3) 核燃料再処理施設、4) 医療用RX、5) 自然バックグラウンド等が考えられている。

^{99}Mo (半減期 66.6 時間) は、その娘核種の放射性テクネチウム ($^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、半減期 6.01 時間) が癌の診断に有効であることから、世界中の医療施設で使われている。 ^{99}Mo は、主に原子炉で高濃縮ウランの中性子照射によって生成される核分裂生成物の中から化学分離して作られる。この核分裂生成物にはRXも多量に含まれており、回収されずに空気中に放出されるものがかなりの量にのぼる。主な ^{99}Mo の製造施設はカナダ、ベルギー、オランダ及び南アフリカにあり、これらの国の施設で合計95%の ^{99}Mo が製造されている。

発電用及び研究用の原子炉もRXの発生源となっている。燃料棒のピンホールや小規模の燃料破損による漏洩、そして燃料棒表面の汚染ウランや更には炉心材料中の不純物ウランの核分裂によるものも考えられる。使用済み核燃料の再処理施設からも、RXが放出される。これは燃料棒の切断と溶解などの化学操作の段階で放出されるものである。しかし、商業用の再処理の場合、使用済み燃料は約1年以上も冷却してあるので、短寿命の ^{135}Xe は減衰して無くなっているし、他のRXもかなり減衰している。

^{133}Xe は肺機能の検査に使われている。しかし、そのバックグラウンドへの影響は未だ知られていないようである。RXは地殻中に含まれるウランの核分裂によっても生成され、それらが放出される可能性もある。これは、ウランの自発核分裂や宇宙線起源の中性子による核分裂で、その量は少ないと考えられている。

5.2 バックグラウンドとの区別

RXのバックグラウンドは、原子力施設や医療用 ^{99}Mo 製造施設が集中する北半球が南半球に比べて高い。中でも、医療用 ^{99}Mo 製造施設と原子力施設が集中する北米と西ヨーロッパのバックグラウンドが際立って高いことから、医療用 ^{99}Mo 製造と原子力施設が最大の発生源と考えられている。このことから、医療用 ^{99}Mo 製造施設と原子炉施設からのRXの放出とそのバックグラウンドに関する研究が活発に行われてきた。初めの頃は、主なRXのバックグラウンド源は発電用原子炉と考えられていたため、原子炉から放出されるRXと核爆発によって放出されるRXの違いについて数多くの研究が行われた。核爆発では核反応が短時間のうちに終了するため、RXの同位体比は核分裂収率の比に近いものになる。しかし、原子炉では照射時間が長いため、放射能の減衰効果と生成されたRX核種の中性子核反応による消費により、核分裂収率の比とはかなりかけ離れたものになる。このことから、 $^{133\text{m}}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ と $^{135}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ 比は核爆発の有効な指標となっている。しかし、最近の研究によると、北米とヨーロッパの高RXバックグラウンド源は、医療用 ^{99}Mo 製造施設であるこ

とが明らかにされている。医療用 ^{99}Mo 製造では、高濃縮ウランの照射時間が発電用原子炉に比べてかなり短いので、RX の同位対比からその区別が可能かどうかは今後の研究を待たなければならない。

我国には医療用 ^{99}Mo 製造施設が無いことと、原子炉の運転管理がしっかりしていることから、群馬県高崎市の観測所における RX のバックグラウンドは欧米に比べてかなり低い。しかし、時々パルス状の ^{133}Xe の計数が観測されている。このパルス状の ^{133}Xe の計数が何によるものかは今のところ分からない。今後、RX による核爆発検知の感度と精度を上げるには、我国における RX のバックグラウンド発生源も明らかにしていかなければならない。

6. 北朝鮮の地下核実験の観測例

これまで、北朝鮮政府は 2006 年 10 月 9 日と 2009 年 5 月 25 日に地下核実験を行ったと発表した。これらの発表後、IMS の観測所と臨時に設置された RX 測定装置によって RX の観測が行われた。その結果、第一回目の実験のものと思われる RX が韓国に設置された装置で検出された。これは、OSI 用に開発された SAUNA 型装置のサンプリング装置で空気試料を採取し、予備濃縮された RX 試料をスウェーデンの防衛研究所 (FOI) で分析して得られたものである。図 4 に示すように、 ^{133}Xe だけでなく短寿命の $^{133\text{m}}\text{Xe}$ も検出され、 $^{133\text{m}}\text{Xe}/^{133}\text{Xe}$ 比は核爆発のものとも一致した。RX の測定と同時に大気輸送モデル (ATM, Atmospheric Transport Model) による大気拡散シミュレーションも行われ、RX の測定結果はシミュレーションの結果ともよく一致した。第一回目の RX は、カナダのイエローナイフの観測所 (CAX16)、そして米国の飛行機による空気試料からも検出された。

第二回目の実験の発表後も IMS の観測所などで RX の観測が行われたが、RX は何れの観測施設でも検出されていない。

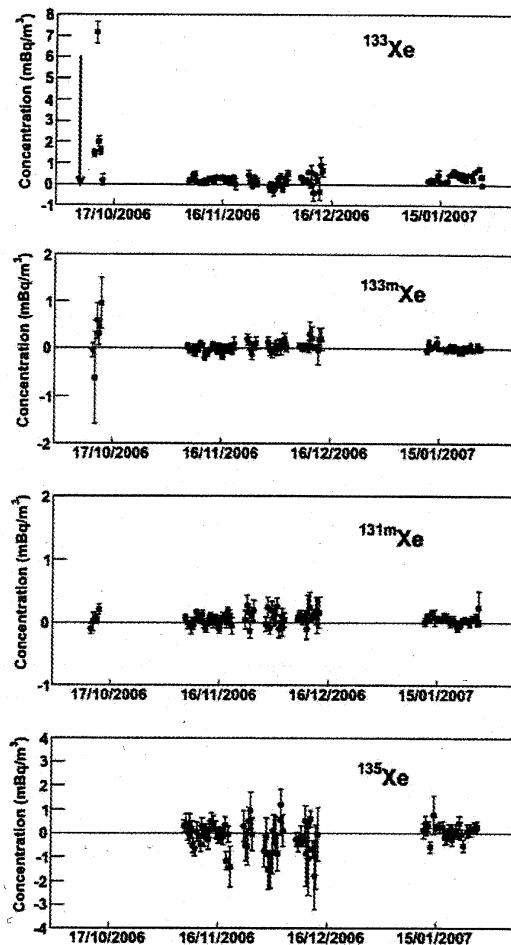


図 4 SAUNA 型測定装置による 2006 年 10 月 9 日の北朝鮮核実験の観測結果

(A. Ringbom et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem. Online Pub.* 25 July 2009 から引用)

7. おわりに

以上のように、放射性希ガスは地震波で検出された爆発事象を核爆発と判断するために必須の検知法であることを示してきた。このことは、2006年10月の北朝鮮の核実験の検証で実証された。これまでも述べたが、RXによる観測で最大の問題は、バックグラウンドとの区別である。このためには、まずは各RX観測所のバックグラウンドRX源を明らかにしていかなければならないだろう。RXの放出源が分かれば、放出源側との情報交換によりその予測も可能になり、更にその低減化についても道が開かれる可能性もある。さらに、RXの同位体比は放出源によって異なるので、同位体比は放出源を同定するための有効なフィンガープリントになる。これまで、原子炉については詳しく研究されてきたが、医療用⁹⁹Mo製造施設やその他の放出源についても詳しく研究し、それらのRX特性を明らかにしておく必要がある。放出源ばかりでなく、測定法に関しても更に改良が必要と考える。ラドンの混入やメモリー効果、さらにSPALAXのX線領域のピーク解析法などの確立し、RXの検出感度の増大とさせる努力も必要と考える。

RXの観測所は40箇所設置される予定であるが、最近の研究によると予定の40箇所の観測所を設置しても、大気の流れが遅い赤道付近には観測網にかからない空白領域があることが明らかになっている。RXの観測所は更に増やす必要があるだろう。

IMSのRX観測データは、茨城県東海村のNDC-2でも解析できるようになっている。現在のところ、NDC-2で解析できるデータはSAUNA型と最新のARIX型に限られている。RXは短時間のうちに地球表面を拡散してしまうので、できるだけ広い領域の観測データをモニターする必要がある。このためには、さらにSPALAXのデータもNDC-2で解析できるようにしておく必要がある。

IMSの観測所でのRXによる核爆発の検知は、RXが測定装置の測定できる最低放射能濃度(MDC)より高濃度の場合には有効であるが、核爆発が深い場所で行われた場合や、爆発の封じ込めがしっかりしているような場合には、RXの漏れが少なく、RX濃度がMDCよりも低く、核爆発を検知できない場合も考えられる。このような場合、核爆発かどうかの確認はOSIでの測定に頼るしかない。