

What Caused the High Cl-38 Radioactivity in the Fukushima Daiichi Reactor #1?^[1]

福島第一原発 1 号機(タービン建屋)で見つかった高濃度放射性塩素-38 の原因は何か？^[1]

F. Dalnoki-Veress with an introduction by Arjun Makhijani

F. ダルノキーベレス アージュン・マキジャーニによる解説文付

This is a first for The Asia-Pacific Journal: publication of a technical scientific paper addressing critical issues pertaining to the leakage of radioactive water at the Fukushima reactors. Our goal is to make this information available to the Japanese and international scientific communities, to Japanese government authorities, and TEPCO as they address the formidable issues of cleanup and safety. But we also believe that the information is of importance to informed citizens and the press in the face of further dangers that have gone unmentioned not only in government statements, but also in the press. Arjun Makhijani's introduction provides a lucid explanation of the problem and the issues, followed by F. Dalnoki-Veress's paper. Asia-Pacific Journal

アジア太平洋ジャーナルは、今回初めての試みをした。福島第一原発の原子炉において、高い濃度の放射性物質を含む水が漏れたことに関連する重要な事柄を議論する科学技術論文の掲載である。この論文が、汚染水の除去と作業員の安全確保という大変な課題を扱うものであり、私たちは、日本の、そして世界の科学技術学界、日本政府当局、東京電力にこの論文を提供したいという目的をもって掲載に至った。また、この論文の内容は、政府関係の書類や報道ではまだ触れられていない危険性について論じており、一般市民やメディアにとっても重要であると信ずる。まずアージュン・マキジャーニ博士の解説文によりこの論文の扱う問題を明らかにした後、F・ダルノキーベレス博士の論文を紹介する。

アジア太平洋ジャーナル



Introduction by Arjun Makhijani

解説文 アージュン・マキジャーニ

The presence of highly radioactive water in three turbine buildings at the Fukushima Daiichi nuclear plant is widely understood to be from the damaged fuel rods in the reactors. This has rightly raised concerns because it indicates several problems including extensive fuel damage and leaks in the piping system. Less attention has been paid to the presence of a very short-lived radionuclide, chlorine-38, in the water in the turbine building of Unit 1. The following paper evaluates whether its presence provides evidence of a serious problem - one or more unintended chain reactions (technically: unintended criticalities) - in the reactor. Such chain reactions create bursts of fission products and energy, both of which could cause further damage and aggravate working conditions that are already very difficult.

福島第一原発の3つのタービン建屋（訳者注：1号機から3号機のタービン建屋）の溜まり水の
高放射線の原因は、原子炉の炉心が損傷を受けていることであると広く理解されている。これは
炉心の損傷が進んでいることと、配管システムに漏れが生じていることをはじめとする数々の問
題を示唆しており、懸念が高まるのは当然である。しかし1号機のタービン建屋の溜まり水に、
塩素38という短命の放射性核種があることにはあまり関心が注がれていない。この論文は、こ
の物質の存在が深刻な問題、つまり、意図しない連鎖反応が1回か複数回起こっている（技術的
には、「意図しない再臨界」といえる）ことの証拠になっているかどうかを検証する。このよう
な連鎖反応は、核分裂生成物とエネルギーの急速な放出をもたらし、その両方が損傷を悪化させ、
すでに非常に困難な作業環境をさらに悪化させる可能性がある。

Chlorine-38, which has a half-life of only 37 minutes, is created when
stable chlorine-37, which is about one-fourth of the chlorine in salt,
absorbs a neutron. Since seawater has been used to cool, there is now a
large amount of salt - thousands of kilograms - in all three reactors. Now,
if a reactor is truly shut down, there is only one significant source of
neutrons, namely, the spontaneous fission of some heavy metals which are
created when the reactor is working and remain present in the reactor
fuel. The most important ones are two isotopes of plutonium and two of
curium. But if accidental chain reactions are occurring, it means that
the efforts to completely shut down the reactor by mixing boron with the
seawater have not completely succeeded. Periodic criticalities, or even
a single accidental one, would mean that highly radioactive fission and
activation products are being (or have been) created at least in Unit 1
since it was shut down. It would also mean that one or more intense bursts
of neutrons, which cause heavy radiation damage to people, have occurred
and possibly could occur again, unless the mechanism is understood and
measures taken to prevent it. Measures would also need to be taken to
protect workers and to measure potential neutron and gamma radiation
exposure.

塩素38は半減期が37分と短く、天然の塩素に4分の1ほど含まれる塩素37が中性子を吸収
するときに作られる。海水が冷却に使われたために、3つの原子炉すべてに何千（何万）キロも
の大量の塩がある。原子炉が本当に停止しているのなら、中性子の出所は1つしかないはずだ。
それはすなわち、原子炉が稼働しているときにつくられ、炉心の中に存在し続けるいくつかの重
金属（訳者注：超ウラン）の自発的な分裂のことである。一番重要なものとして、プルトニウム
2つ、キュリウム2つの同位体がある。しかし、もし予想外の連鎖反応が起きているとしたら、
ホウ素を混ぜた海水で原子炉を完全に停止しようとする努力は、完全には成功していないという

ことになる。断続的な臨界が起きているとしたら、いや、1回だけ偶発的に起きたにせよ、高い放射能を持つ放射性核分裂生成物と放射化生成物が、原子炉停止後も（少なくとも1号機では）生成され続けている（もしくは生成された）ということの意味している。それはまた、人に多大な放射線被害をもたらす中性子の集中的な発生が、1度かそれ以上起きていたという意味であり、その仕組みがわかり、もう起こらないような予防策が取られない限り、さらに起こる可能性があるということである。作業員の安全を確保し、発生している可能性がある中性子とガンマ線被ばくを測定するための対策を取るべきである。

This paper examines whether spontaneous fission alone could be responsible for the chlorine-38 found in the water of the turbine building of Unit 1. If that could be the only explanation, there would be less to be concerned about. However, the analysis indicates that it is quite unlikely that spontaneous fission is the sole or even the main explanation for the measured concentration of chlorine-38. Presuming the reported measurements are correct, this leaves only one other explanation - one or more unintended chain reactions. This paper is presented in the spirit of encouraging discussion of whether further safety measures might be needed, and whether supplementary measures to bring the reactors under control should be considered. It is also presented as a preliminary analysis for scientific discussion of a terrible and technically challenging nuclear crisis at the Fukushima Daiichi plant.

この論文での分析結果は、1号機の溜まり水から検出された塩素38の原因として考えられるのは自発的な核分裂だけなのかということである。それしか説明として考えられいのであれば、それほど心配することではない。しかし、この論文の分析では、計測された塩素38の濃度は、自発的な核分裂が唯一の原因であるどころか、主要な原因でさえない可能性が高いということを示唆する。報告されている計測値が正確であると仮定すると、残された可能性は一つしかないことになる。それは、1回かそれ以上の連鎖反応である。この論文は、安全策のさらなる強化が必要なのか、また、原子炉を安定させるための追加策が必要なのかという問題意識のもとで提示している。また、福島第一原発における、悲惨で、技術的にも困難な核の危機の、科学的議論の予備的分析を提供するものである。

Arjun Makhijani March 30, 2011

アージュン・マキジャーニ 2011年3月30日

I have been consumed over the last few weeks by the events unfolding in Japan. I keep alternating between complete disbelief and acceptance of the gravity of the situation, but mostly disbelief. And I am not the only one. Most of the nuclear physicists and engineers with whom I have spoken since the incident cannot - will not - believe that it is possible that some of the fuel that is melting could somehow produce little pockets that could go critical. I believed them for the longest time until the following appeared on the Kyodo news website (relevant text italicized below for emphasis) and I did the following analysis. FD-V March 30, 2011

この数週間私は日本で次第に明らかになってくる事ごとに気を奪われるばかりであった。とても信じられないという思いと事態の重大性を認めざるを得ないという思いの間を行きつ戻りつしていたが、殆どは不信であった。そして私だけではない。この事故以来私が話し合った核物理学者や原子力エンジニアは殆どが、溶融している燃料の幾らかが何らかの理由で臨界に至る可能性のある小さなポケットを形成することがありうる、そんな可能性を信ずることはできないし、信じようとしな。共同通信のニュースウェブサイトに次のようなニュース(関連する部分を強調のため下ではイタリック体にした)が出される迄、私が以下の分析をし終えるまでは、この間ずっと彼らと思いを共にしてきた。

FD-V(F. ダルノキーベレス) 2011 年 3 月 30 日

“Neutron beam observed 13 times at crippled Fukushima nuke plant

「中性子ビームを損傷した福島原子力発電所で 13 回観測

TOKYO, March 23, Kyodo

東京、3 月 23 日、共同

Tokyo Electric Power Co. said Wednesday *it has observed a neutron beam, a kind of radioactive ray, 13 times the Fukushima Daiichi nuclear plant after it was crippled by the massive March 11 quake-tsunami disaster.*

東京電力株式会社は水曜日、3 月 11 日の地震-津波大災害で福島第一原子力発電所が損傷を受けて以降、敷地内で放射線の一種である中性子ビームを 13 回観測した、と述べた。

TEPCO, the operator of the nuclear plant, said the neutron beam measured about 1.5 kilometers southwest of the plant's No. 1 and 2 reactors *over three days from March 13* and is equivalent to 0.01 to 0.02 microsieverts per hour and that this is not a dangerous level.

この原発を操業している東京電力は、1号機と2号機の西南約1.5kmのところで3月13日から3日間にわたって測定された中性子ビームは0.01から0.02マイクロシーベルト毎時相当であり、これは危険なレベルではない、と述べた。

The utility firm said it will measure uranium and plutonium, which could emit a neutron beam, as well.

電力会社は、中性子ビームを放射する可能性のあるウランウムとプルトニウムも測定するつもりであると述べた。

In the 1999 criticality accident at a nuclear fuel processing plant run by JCO Co. in Tokaimura, Ibaraki Prefecture, uranium broke apart continually in nuclear fission, causing a massive amount of neutron beams.

茨城県東海村の株式会社ジェー・シー・オーが運転する核燃料加工プラントで1999年に起こった臨界事故では、ウランウムが核分裂で連続的に分裂し、大量の中性子ビームの原因となった。

In the latest case at the Fukushima Daiichi nuclear plant, such a criticality accident has yet to happen.

今回の福島第一原子力発電所の場合、そのような臨界事故はまだ起こっていない。

But the measured neutron beam may be evidence that uranium and plutonium leaked from the plant's nuclear reactors and spent nuclear fuels have discharged a small amount of neutron beams through nuclear fission."

しかし、測定された中性子ビームは発電所の原子炉や使用済核燃料から漏出したウランウムとプルトニウムが核分裂によって少量の中性子ビームを放出した証拠かもしれない。」

==[Kyodo News](#)

==共同ニュース[訳者注：日本語の共同ニュースのサイトにはこの記事は見当たらない。[読売の記事](#)を参照。]

Also, on March 25th, TEPCO made public a measurement of the contributions of different isotopes to the extremely high measured radioactivity of the seawater used to cool reactor #1. The reasons why these measurements were taken so late in the crisis (or why the information was released so late) is unclear at present.

また、3月25日、東京電力は、1号機の冷却に使われた海水で測定された極めて高い放射能への種々の同位体からの寄与を測定した結果を公表した。このような危機の時に何故これほど遅れてこの測定を行ったのか(或いは何故情報開示がこんなに遅れたのか)は今のところはっきりしてない。

Radioactive Nuclide	Concentration (Bq/cm ³)
Cl-38	1.6e6
As-74	3.9e2
Y-91	5.2e4
I-131	2.1e5
Cs-134	1.6e5
Cs-136	1.7e4
Cs-137	1.8e6
La-140	3.4e2

放射性核種	濃度 (Bq/cm ³)
Cl-38	1.6×10 ⁶
As-74	3.9×10 ²
Y-91	5.2×10 ⁴
I-131	2.1×10 ⁵
Cs-134	1.6×10 ⁵
Cs-136	1.7×10 ⁴
La-140	3.4×10 ²

Table 1: The contribution of different isotopes to the radioactivity from a sample taken in the turbine building of reactor #1^[2]

表1 1号機タービン建屋で採取された放射能に対する種々の同位体の寄与^[2]
[訳者注：表及び文中で「e6」などは「×10⁶」などを意味するが、訳文中では後者に置き換えた。]

The measured levels of Cesium and Iodine, Cs-137 and I-131, were expectedly very high. The very high concentration of one isotope however - Cl-38 - was the figure that drew my attention. Why worry? Cl-38 has a 37-min half-life beta decay; in a couple of days it will be gone. However, the fact that it was there at all, and in such high concentration, puzzled me. Could it be that the incident flux of neutrons converted the 24% Cl-37 present naturally in salt to Cl-38 through radiative neutron capture (a simple reaction: add a neutron give up a gamma, and you have Cl-38)? What flux could have produced the observed radioactivity? In what follows, I attempt to calculate the neutron flux that would have been able to produce the observed radioactivity. There is a bit of math, but you can skip to the conclusions. All calculations assume that the TEPCO measurements reported in Table 1 are correct.

セシウムとヨウ素、Cs-137 と I-131、の測定値は予想通り大変高かった。しかし同位体の一つ、Cl-38、の濃度の値が大変高いことが私の注意を惹いた。何故気になるのか。Cl-38 のベータ崩壊の半減期は 37 分であり、数日のうちに消滅してしまうだろう。しかし、この同位体がそこに存在したことそのこと自体、そしてそんなに高濃度で存在していたことが私を当惑させた。中性子入射フラックスが天然の食塩中に 24% 存在する Cl-37 を放射中性子捕獲（単純な反応：中性子を加えガンマ線を放出すれば Cl-38 を得る）で Cl-38 に変換した、ということが起こり得るのだろうか。どのくらいのフラックスなら観測された放射能を生成できるだろうか。以下に、観測された放射能を生成することが可能である中性子フラックスの算出を試みる。数学が少しあるが、飛ばして結論に行くことができる。すべての計算で表 1 に報じられている東電の測定値が正しいものと仮定している。

First we calculate the number of Cl-38 nuclei that are present that would explain the observed radioactivity. The half-life of Cl-38 = 37.24 min which corresponds to a decay constant of $\lambda_{38} = 0.00031021 \text{ s}^{-1}$. So that: $dN_{38}/dt = -\lambda_{38}N_{38}$ where, $dN_{38}/dt = 1.6\text{e}6 \text{ s}^{-1}$ and $N_{38} = 5.16\text{e}9$ Cl-38 nuclei. This means that the activity measured is consistent with the production of 5.16e9 Cl-38 nuclei. The next question is how much Cl-37 was present in the seawater in the first place? The mass of chlorine in seawater is 19345 mg/kg = 19.345g Cl/kg^[3]. Also, the fraction of Cl-37 in natural Cl is = 24.23% (see Table 2 below).

最初に、観測された放射能を説明できる Cl-38 核の存在数を計算する。Cl-38 の半減期=37.24min は崩壊定数 $\lambda_{38} = 0.00031021 \text{ s}^{-1}$ に対応する。それ故： $dN_{38}/dt = -\lambda_{38}N_{38}$ ここで $dN_{38}/dt = 1.6 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$ なので $N_{38} = 5.16 \times 10^9$ Cl-38 核である。これは測定された放射能強度は 5.16×10^9 個の核生成に相当することを意味する。次の問題は最初に海水中にどれだけの Cl-37 が存在したかである。海水中の塩素の質量は $19345 \text{ mg/kg} = 19.345 \text{ g Cl/kg}^{[3]}$ である。また、天然の Cl 中の Cl-37 の割合は=24.23% (下の表 2 を見よ)。

Isotope	Molar Mass	%
Cl-35	34.9688527	75.77
Cl-37	36.9659026	24.23

同位体	モル質量	%
Cl-35	34.9688527	75.77
Cl-37	36.9659026	24.23

Table 2: The isotopic abundance and molar mass of chlorine

表 2 塩素の同位体存在比とモル質量

The mass of Cl-37 can then be found to be 25% (we must account for the difference in molar mass of the two isotopes: it is a very small difference but it adjusts the fraction Cl-38 by mass to be 25%) of $19.345 \text{ g Cl/kg} = 4.89 \text{ g Cl-37/kg}$. Using Avogadro's number we can calculate the total number of Cl-37 nuclei/g of seawater to be $N_{37} = 7.96 \times 10^{19}$.

Cl-37 の質量はしたがって 19.345 g Cl/kg の 25% (二つの同位体のモル質量の差を考慮に入れなければならない：差は極めて小さいが、Cl-38 の質量割合の修正値は 25%になる) = 4.89 g Cl-37/kg となることがわかる。アボガドロ数を用いて海水中の Cl-37 の合計数、核数/g は $N_{37} = 7.96 \times 10^{19}$ と算出できる。

We now know that $N_{37} = 7.96 \times 10^{19}$ Cl-37 nuclei/g of seawater, and we observed that 5.16×10^9 of these have been converted to Cl-38. The question then becomes what flux could have produced this many Cl-38 nuclei?

こうして海水中の $N_{37} = 7.96 \times 10^{19}$ Cl-37 核数/g であることがわかり、そしてこれらのうち 5.16×10^9 が Cl-38 に変換されていることを観測した。すると問題はこれだけ多くの Cl-38 核を生成したフラックスは幾らかということになる。

We now assume Cl-38 was produced as the seawater was being circulated through the fuel. What is the flux of neutrons we need to produce the observed N_{38} ?

今度は、Cl-38 は海水が核燃料の間を循環させられていた間に生成された、と仮定する。観測された N_{38} を生成するにはどれだけの中性子フラックスが必要か。

Since Cl-38 is radioactive with a decay constant given by λ_{38} the rate of change of the number of Cl-38 nuclei is given by:

$$\frac{dN_{38}}{dt} = \phi \sigma_{(\gamma,n)} N_{37} - \lambda_{38} N_{38}$$

Cl-38 は λ_{38} で与えられる崩壊定数で放射するので、Cl-38 の核数の変化の速度は

$$\frac{dN_{38}}{dt} = \phi \sigma_{(\gamma,n)} N_{37} - \lambda_{38} N_{38}$$

で与えられる。

This is the familiar equation of series decay where one isotope is being produced and at the same time is decaying. This equation can be easily solved (see for example I. Kaplan, Nuclear Physics, 1958, p 463.):

$$N_{38}(t) = \phi \left[\frac{\sigma_{(\gamma,n)} N_{37}}{\lambda_{38}} \right] (1 - e^{-\lambda_{38} t})$$

これは一つの同位体が生成されると同時に崩壊する系列崩壊の身近な式である。この式は容易に解くことができる(例えばカプラン、核物理、1958 年、p463 参照)。

$$N_{38}(t) = \phi \left[\frac{\sigma_{(\gamma,n)} N_{37}}{\lambda_{38}} \right] (1 - e^{-\lambda_{38} t})$$

Where, ϕ is the flux in $n/cm^2 \cdot s$, and $\sigma_{(\gamma,n)} = 383.7 \text{ mb}$ is the radiative capture cross-section which would result in the production of Cl-38 at the

Maxwellian distribution average temperature. Note that the thermal neutron cross-section is not very different at 432 mb so similar results would be obtained if we assumed that all the neutrons are thermalized.

ここで ϕ は $\text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ で表したフラックスであり、 $\sigma_{(\gamma, n)} = 383.7 \text{ mb}$ はマクスウェル分布平均温度での Cl-38 を生成する放射捕獲断面積である。熱中性子断面積はそれほど違いは無い 432mb であることに注意すると、すべての中性子は熱中性子化されていると仮定すれば同じような結果が得られるはずである。

Now, we know that after activation we produced $N_{38}(t) = 5.16 \text{e}9 \text{ Cl-38/cm}^3$, so we let $t = T$, the time when activation stopped so that $N_{38}(T) = 5.16 \text{e}9 \text{ nuclei/cm}^3$. We also know the value of the factor $\sigma_{(\gamma, n)} N_{37} / \lambda_{38} = 0.098445192$.

ところで、励起後 $N_{38}(t) = 5.16 \times 10^9 \text{ Cl-38/cm}^3$ を生成したことがわかっている
ので、 $t = T$ 、励起が止まった時間と置くと、 $N_{38}(T) = 5.16 \times 10^9 \text{ Cl-38/cm}^3$ である。我われはまた係数の値 $\sigma_{(\gamma, n)} N_{37} / \lambda_{38} = 0.098445192$ もわかっている。

So that the flux can be expressed very simply as a function of irradiation time T :

$$\phi = \frac{5.2415 \text{e}10}{(1 - e^{-\lambda_{38} T})}$$

したがって、フラックスは照射時間 T の関数として大変簡単に以下のように表すことができる。

$$\phi = 5.2415 \times 10^{10} / \{1 - \exp(-\lambda_{38} T)\}$$

We assume that the production of Cl-38 started with the deliberate introduction of seawater on March 23rd (according to the TEPCO press briefing^[4]) into reactor #1. Therefore, since the measurement appears to have been done on March 25th it means that we have a maximum activation time of 2 days. In fact, we really have two regions of flux that are significant. The first region is where the denominator is < 1 (corresponding to activation time $T < 0.4$ days).

我われはCl-38の生成は1号機の原子炉に意図的に海水を導入した3月23日(東電の記者会見^[4]に従って)に始まったと仮定する。従って、測定は3月25日に行われたようなので、最長活性化時間は2日間であることを意味する。実際には二つの領域でのフラックスが重要である。第一の領域は上式の分母が < 1 の領域である(活性化時間 T_0 4日に対応する)。

A lower limit in the flux is set when T is long (i.e. > 0.5 d) so that the denominator approaches unity. We call this flux ($\phi = 5.241 \times 10^{10}$ n/cm².s) and it is the lower limit of the flux that could have produced the Cl-38 nuclei radioactivity observed.

フラックスが下限になるのは T が長く(すなわち > 0.5 d)分母が1に近づくときである。これをフラックス($\phi = 5.241 \times 10^{10}$ n/cm².s)と呼ぶと、それはCl-38核の観測された放射線量を生成することのできるフラックスの下限である。

What might have caused the concentration of Cl-38?

このCl-38濃度をもたらしたのは何か？

The first possible explanation to consider is that the seawater was circulated among the core intercepting neutrons from natural spontaneous fission of the used nuclear fuel. The second possible explanation to consider is localized criticalities.

考えるべき第一の可能な説明は海水が、使用されていた核燃料の自然の自発核分裂から発生した中性子を捕獲しながら炉心を循環させられていたことである。考慮すべき第二の可能な説明は局所的な臨界である。

Recall that nuclear fuel changes its isotopic composition upon irradiation in a reactor. This is the reason why we are concerned about plutonium production in nuclear reactors from a nonproliferation point of view. We investigated this by calculating the number of spontaneous fissions from a typical BWR with 4% enriched fuel after 45 MWdth/kg burnup (see IAEA-TECDOC-1535, pg. 74). The inventory we get for 1 metric ton fuel for the primary neutron producing isotopes are shown in Table 2.

原子炉中で照射されるにつれて核燃料はその同位体組成を変えることを思い起こそう。我われが原子炉内でのプルトニウム生成に核不拡散の観点から関心を

持つ理由がここにある。我われは 4%濃縮燃料を装填した典型的な BWR の燃焼度 45 MWdth/kg (IAEA-TECDOC-1535、p74 を見よ) の燃料からの自発核分裂の数を計算することでこれを調べた。一次中性子を発生する同位体について、燃料 1 トンに対する核種の存在量を表 2 に示す。[訳者注：MWdth/kg =megawatt days thermal/kg]

Isotope	Isotope Inventory $M_{iso}=\#$ g/MTHM	Number of Isotope Nuclei/g $=\rho_{iso}$	$Br_{SF} = SF$ Isotope Branching Ratio (%)	Half- Life $=T_{1/2}$ in years	Decay Constant of isotope $=\lambda_{iso}$ in s^{-1}	Number of neutrons produced/sec
Pu-238	2.66E+02	2.53E+21	1.85E-07	8.77E+01	2.51E-10	9.35E+05
Pu-240	2.57E+03	2.51E+21	5.75E-06	6.56E+03	3.35E-12	3.72E+06
Pu-242	6.79E+02	2.49E+21	5.54E-04	3.73E+05	5.89E-14	1.65E+06
Cm-242	2.02E+01	2.49E+21	6.37E-06	1.63E+02	1.35E-10	1.29E+06
Cm-244	5.26E+01	2.47E+21	1.37E-04	1.81E+01	1.21E-09	6.49E+08

同位体 子生成	同位体 存在量	同位体の 個数	$Br_{SF}=SF$ 同位体 分岐比	半減期 $= T_{1/2}$ 単位：年	同位体の 崩壊定数 $= \lambda_{iso}$ 単位： s^{-1}	中性 子生成 数/sec
	$M_{iso} = \#$ g/MTHM	核/g $= \rho_{iso}$	(%)			
Pu-238	2.66×10^2	2.53×10^{21}	1.85×10^{-7}	8.77×10^1	2.51×10^{-10}	9.35×10^5
Pu-240	2.57×10^3	2.51×10^{21}	5.75×10^{-7}	6.56×10^3	3.35×10^{-12}	3.72×10^6
Pu-242	6.79×10^2	2.49×10^{21}	5.54×10^{-4}	3.73×10^5	5.89×10^{-14}	1.65×10^6
Cm-242	2.02×10^1	2.49×10^{21}	6.37×10^{-6}	1.63×10^2	1.35×10^{-10}	1.29×10^6
Cm-244	5.26×10^1	2.47×10^{21}	1.37×10^{-4}	1.81×10^1	1.21×10^{-9}	6.49×10^8

Table 2: The isotopic inventory, nuclei/g, branching ratio for spontaneous fission, half-life, and decay constant for different neutron producing isotopes present in spent nuclear fuel. The largest flux comes from even Pu isotopes and Cm. Note: MTHM= metric ton heavy metal and refers to the active component of the fuel SF= spontaneous fission. Isotopic inventory obtained from IAEA-TECDOC-1535, pg 74.

表 2 使用済核燃料中に存在する種々の中性子生成同位体の、同位体存在量、核数/g、自発核分裂に対する分岐比、半減期、及び崩壊定数。最大のフラックスが実に Pu および Cm 同位体から生じている。注：MTHM=metric ton heavy metal(重金属 1 トン)で燃料の活性成分を表す。SF=spontaneous fission(自発核分裂)。同位体存在量は IAEA-TECDOC-1535、p74 から引用した値。

The neutron production rate from spontaneous fission can be calculated for each isotope by summing the contribution of spontaneous fission by each isotope.

それぞれの同位体について、自発核分裂からの中性子生成速度は各同位体の自発核分裂からの寄与を合計して算出することができる。

$(dN_{\text{n}})/dt = \sum_{i=1:iso} [\lambda_i M_i \rho_i (Br_{i,SF}) / 100] \nu_i$; where ν is the average number of neutrons. We will assume that all neutrons will be thermalized and about 3 neutrons are produced per fission. The total neutron production rate found is $6.56e8$ neutrons/sec for 1 metric ton. However, the full mass of fuel in the core is 69 metric tons. Therefore, the source strength of the core due to spontaneous fission is $4.53e10$ neutrons/sec.

$(dN_{\text{n}})/dt = \sum_{i=1:iso} [\lambda_i M_i \rho_i (Br_{i,SF}) / 100] \nu_i$ 、ここで ν は中性子の平均数である。中性子はすべて熱中性子であり、1 核分裂あたり 3 個の中性子が生成されると仮定しよう。見出された全中性子生成速度は 1 トン当たり 6.55×10^8 中性子数/sec である。しかし、炉心の全質量は 69 トンである。したがって、自発核分裂による炉心の線源強度は 4.53×10^{10} 中性子数/sec である。

At this rate we can use the formula for simultaneous production and decay to calculate the number of Cl-38 produced as a function of time.

$$N_{38}(t) = \phi \left[\frac{\sigma_{(\gamma,n)} N_{37}}{\lambda_{38}} \right] (1 - e^{-\lambda_{38} t})$$

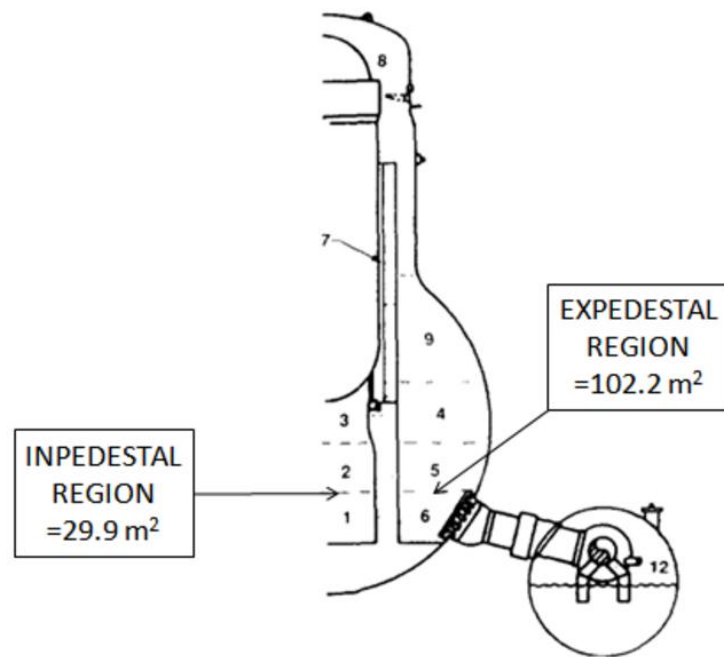
この速度で、生成される Cl-38 の数を時間の関数として算出するために、同時の生成と崩壊に対する公式を用いることができる。

$$N_{38}(t) = \phi \left[\frac{\sigma_{(\gamma,n)} N_{37}}{\lambda_{38}} \right] (1 - e^{-\lambda_{38} t})$$

However, knowing the source strength does not tell us the flux. To determine the flux we have to know the configuration of the fuel with respect to the seawater. This is difficult to determine given the little information that is known about the status of reactor #1. To get an estimate we will consider several hypothetical scenarios:

しかし、線源強度を知ってもフラックスはわからない。フラックスを決定するには海水から見た核燃料の配置を知らなければならない。1号機の状態について知られている情報はほとんどないことから、これを決定することは困難である。推定値を得るために幾つか仮定したシナリオを考える：

- 1) Scenario 1: The fuel has melted, and has assembled in the bottom of the inpedestal and expedestal regions of the reactor vessel (the “bulb”) as shown in Figure 1. The seawater is assumed to come into contact and cover the melting fuel as shown in Figure 2. This scenario was predicted in C. R. Hyman’s report (“Contain calculation of debris conditions adjacent to the BWR Mark I drywell shell during the later phases of a severe accident” , Nucl. Engin. and Design., 121, 1990, p 379-393.).
- 1) シナリオ 1：核燃料は溶融し、図 1 に示されるように原子炉容器(「バルブ」)の脚柱内および脚柱外領域の底に堆積した。海水は図 2 で示されるように溶融燃料と接触して覆うと仮定する。このシナリオは C. R. ハイマンの報告(「重大事故後期段階での BWR Mark I ドライウェル本体に接する残骸の含有物の計算」、Nucl. Engin. and Design.、121、1990、p 379-393)の中で予言された。



$=102.2 \text{ m}^2$

脚柱内領域

$=29.9 \text{ m}^2$

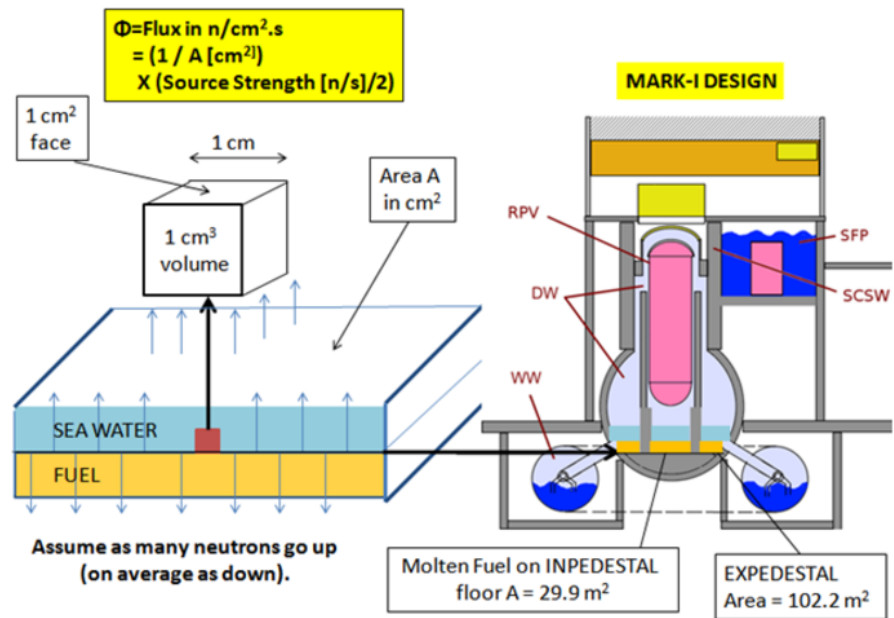
Figure 1: Figure showing the pressure vessel and Mark I containment and the inpedestal and expedestal regions which are the regions where it is assumed that the melted fuel would assemble (Figure adapted from C. R. Hyman, Nucl. Eng. and Des., 121, 1990, Fig 2).

図 1 : 圧力容器と Mark I 原子炉格納容器、および、溶融した燃料が集積すると仮定する領域である脚柱内および脚柱内領域を示す図 (C. R. ハイマン、Nucl. Eng. and Des.、 121、1990、図 2)。

The flux is calculated by assuming a simple slab geometry as is shown in Figure 2 where the neutron source is assumed to rest underneath the layer

of water and half of the neutrons are expected to go on average up and half down. The flux is defined by the number of neutrons that intersect a 1 cm² area which is half the source strength divided by the area of the slab. We assume that the slab area is the sum of the inpedestal and expedestal areas (according to C. R. Hyman op cit).

フラックスは図 2 で示される単純なスラブ状配置を仮定して計算し、中性子源は水の層より下部に収まり、平均して中性子の半数が上方に半数が下方に行くものと仮定する。フラックスは面積 1 cm² を通過する中性子数と定義され、線源強度の 1/2 をスラブの面積で割ったものである。スラブ面積は脚柱内および脚柱外領域の面積の和と仮定する (C. R. ハイマン、既出、による)。



$\phi = n/cm^2 \cdot s$ で表したフラックス
 $= 1/(A[cm^2])$
 \times (線源強度 $[n/s]/2$)

MARK-1 の見取り図

面	1cm		
1cm ²	体積		
	1cm ³	cm ² で表した	
		面積	
		RPV	SFP
		原子炉圧力容器	使用済燃料プール

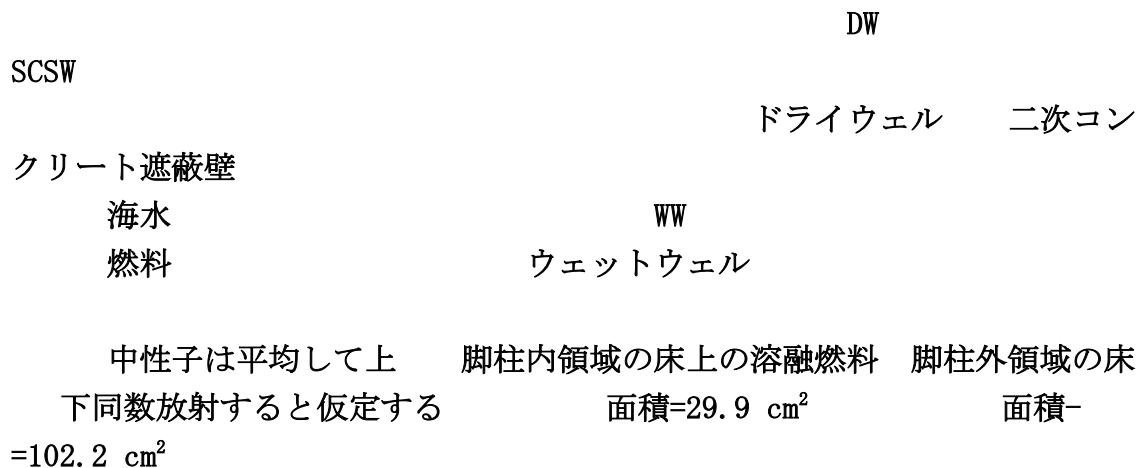


Figure 2: Figure showing how the neutron flux is calculated. We assume a simple slab geometry where the seawater covers the fuel and $\frac{1}{2}$ of the neutrons source travels up and half travels down. The flux intersecting the neutrons is the ratio of the area of 1 cm³ to the area of the slab which is assumed to be the sum of the inpedestal and expedestal areas (illustration of Mark-I adapted from [Wikipedia](#)).

図2 中性子フラックスの計算法を示す図。単純な層形状で、海水が燃料を覆い放射中性子の1/2が上方に半分が下方に向うと仮定する。遮られる中性子のフラックスは1 cm³の立方体の面積の、脚柱内と脚柱外の面積の和と仮定しているスラブ面積に対する比である(Mark-Iの模式図は[Wikipedia](#)からのものに手を加えた)。

We use the familiar equation from before and find that:

$$N_{38}(t) = \phi \left[\frac{\sigma_{(γ,n)} N_{37}}{\lambda_{38}} \right] (1 - e^{-\lambda_{38} t})$$

$$N_{38}(T) = 1.71e4 (1 - e^{-\lambda_{38} T})$$

前にあげた使い慣れた式を用いると次のようになる：

$$N_{38}(t) = \phi \left[\sigma_{(γ,n)} N_{37} / \lambda_{38} \right] \{1 - \exp(-\lambda_{38} t)\}$$

$$N_{38}(T) = 1.71 \times 10^4 \{1 - \exp(-\lambda_{38} T)\}$$

Now, the maximum number of Cl-38 nuclei are produced when T is long and is maximum at 1.71×10^4 Cl-38 nuclei. As time increases as many Cl-38 nuclei are produced as decay and an equilibrium is established. So assuming that the seawater covers the fuel in the floor of the “bulb” it is clear that in this proposed scenario not enough neutrons are produced to account for a 1.6 MBq Cl-38 radioactivity.

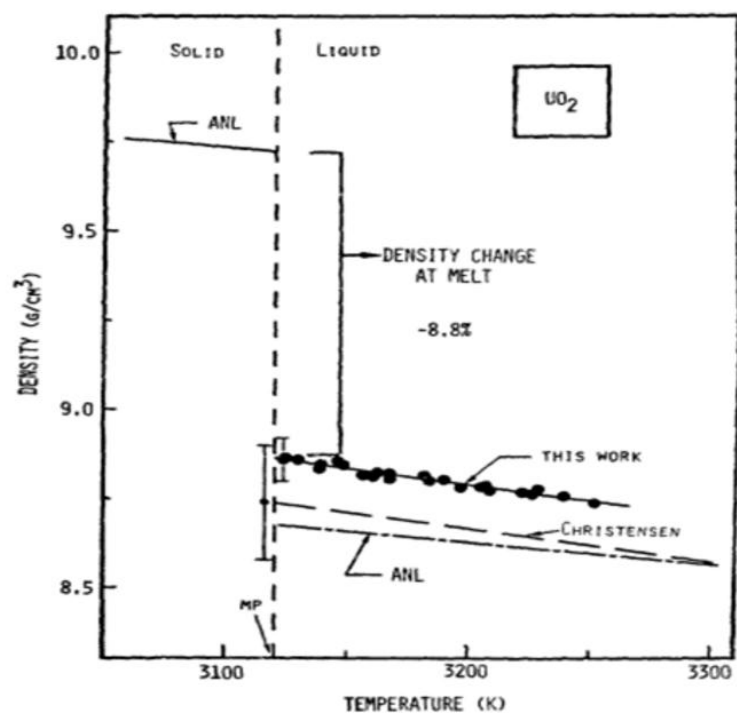
ここで、T が長い時に最大数の Cl-38 核が生成され、最大値は 1.71×10^4 Cl-38 核となる。時間が長くなるにつれ崩壊と平衡が成立し、多くの Cl-38 核が生成する。従って、海水が「バブル」の底面にある燃料を覆うと仮定して、ここに提示したシナリオでは 1.6 MBq Cl-38 の放射能を説明するに十分な中性子は生成しないことは明らかである。

2) Scenario 2: The second scenario is if the fuel partially melts but the core leaves crevices through which the seawater can flow. In this case the 1 cm^3 water is assumed to be surrounded by a homogeneous neutron emitting fuel.

2) シナリオ 2: 第 2 のシナリオは、燃料は部分的に溶融しているが炉心は隙間を残しそこを海水が流れることができる、というものである。この場合 1 cm^3 の水が中性子を放出する一様な燃料に囲まれていると仮定する。

The flux is calculated by calculating the ratio of the 1 cm^3 as compared to the complete volume of the fuel. We know that the total mass of the fuel is 69 metric tons and the density of the fuel changes considerably at high temperatures (see Figure 3).

フラックスは燃料の全体積に対する 1 cm^3 の比を計算して算出する。燃料の全質量は 69 トンであることと、燃料の密度が高温ではかなり変化する(図 3 を見よ)ことはわかっている。



10.0

個体

液体

ANL

UO₂

9.5

密度 (g/cm³)

融解に伴う密度変化

9.0

-8.8%

本研究

CHRISTENSEN

ANL

8.5

融点

3100

3200

3300

温 度 (K)

Figure 3: Figure showing how the UO2 fuel density changes as a function of temperature (Figure taken from W.D. Drotning, Thermal Expansion of Molten Uranium Dioxide, CONF-81069601).

図 3 温度の関数としての UO2 燃料密度の変化を示す図(図は W. D. ドロトニング、溶融二酸化ウランの熱膨張、CONF-81069601、から引用)

We assume that the density is approximately 8.86 g/cm³ at temperatures exceeding 3120 K so that the volume occupied by the fuel is 6.77e6 cm³. Therefore the fraction of the flux that is intercepted by the 1 cm³ volume is 1.48e-7. We assume that the flux through the 1 cm³ volume is also proportional to this fraction. Therefore, the flux is assumed to be = 4.53e10*1.48e-7 = 6703 n/cm².s. and the number of Cl-38 nuclei can be calculated as before:

$$N_{38}(t) = \phi \left[\frac{\sigma_{(y,n)} N_{37}}{\lambda_{38}} \right] (1 - e^{-\lambda_{38} t})$$

$$N_{38}(T) = 658.8 (1 - e^{-\lambda_{38} T})$$

密度は 3120K を越える温度ではほぼ 8.86g/cm³ であるので燃料が占める体積は 6.77×10⁶cm³ であると仮定する。したがって体積 1cm³ によって遮られるフラックスの割合は 1.48×10⁻⁷ である。我われは体積 1cm³ を通過するフラックスもこの割合に比例すると仮定する。よってフラックスは=4.53×10¹⁰×1.48×10⁻⁷=6703n/cm²s、そして Cl-38 核の数は前のように計算できる：

$$N_{38}(t) = \phi \left[\frac{\sigma_{(y,n)} N_{37}}{\lambda_{38}} \right] (1 - e^{-\lambda_{38} t})$$

$$N_{38}(T) = 658.8 (1 - e^{-\lambda_{38} T})$$

In this scenario we find that the number of Cl-38 nuclei reaches a maximum at 7x10² which again is certainly not enough to explain the observed Cl-38 radioactivity of 1.6 MBq. So this scenario is just as implausible as scenario

1 above, making it obvious that spontaneous fission cannot account for the reported concentration of Cl-38.

このシナリオではCl-38核の数は最大値 7×10^2 に達するが、この場合もまたCl-38の放射能の観測値 1.6MBq を説明するには明らかに不十分である。したがってこのシナリオも上のシナリオ1と同様ありそうになく、自発核分裂は報告されているCl-38の濃度を説明できないことがあきらかになる。

To summarize: We can compare the calculated number of Cl-38 nuclei determined from the measured Cl-38 radioactivity, to the upper limit of the number of Cl-38 nuclei assuming the two scenarios and express this as a percentage. We find that the scenario where the molten fuel pours into the inpedestal and expedestal areas suggests a Cl-38 number that is $3.3 \times 10^{-4}\%$ of what is needed to explain the observed Cl-38 radioactivity. Also, the second scenario in which a small 1 cm³ sample is embedded in a uniform neutron flux suggests a Cl-38 number which is even smaller at $1.3 \times 10^{-5}\%$. Barring significant information that we do not possess, neither spontaneous fission and seawater option explains the observed radioactivity.

まとめると：我われは測定されたCl-38の放射能から決められるCl-38核数の計算値を、二つのシナリオを仮定したCl-38核数の上限値と比較してパーセンテージで表すことができる。脚柱内と脚柱外の部分に熔融燃料が流入するというシナリオは、Cl-38の放射能の観測値を説明するに必要なCl-38核数の $3.3 \times 10^{-4}\%$ であることを示唆する。同様に、1cm³の小検体が一様な中性子フラックス中に入っているという第二のシナリオは、Cl-38核数としてさらに小さい $1.3 \times 10^{-5}\%$ という値を示唆する。我われが持っていない重要な情報がなければ、自発核分裂と海水、どちらの選択肢も放射能の観測値を説明するものではない。

Conclusions

結論

So we are left with the uncomfortable realization that the cause of the Cl-38 concentrations is not seawater intercepting neutrons from natural spontaneous fission of the used nuclear fuel. There has to be another reason.

したがって我われは、C1-38 濃度の原因は使用されていた核燃料の自然に起こる自発核分裂からの中性子線を海水が捕獲したためではない、という居心地の悪い認識を持ち続けている。他に理由がなければならない。

Assuming that the TEPCO measurements are correct, this analysis seems to indicate that we cannot discount the possibility that there was another strong neutron source during the time that the workers were sending seawater into the core of reactor #1. However, without knowing the details of the configuration of the core and how the seawater came in contact with the fuel, it is difficult to be certain. Given these uncertainties it is nonetheless important for TEPCO to be aware of the possibility of transient criticalities when work is being done; otherwise workers would be in considerably greater danger than they already are when trying to working to contain the situation. A transient criticality could explain the observed 13 “neutron beams” reported by Kyodo news agency (see above). This analysis is not a definitive proof, but it does mean that we cannot rule out localized criticality and TEPCO should assure that the workers take the necessary precautions.

東電の測定が正確であると仮定すると、作業員たちが第1号機の炉心に海水を送り込んでいるときに別の強い中性子線源が存在した可能性を捨て去ることができない、と今回の分析は示しているように思われる。しかし、炉心の位置関係および海水が炉心とどのように接触したのか、詳細がわからなくては、確信を持つことは困難である。このような不確かさはあるにしろ、作業が行われているときに過渡的な臨界の可能性のあることを東電が認識していることは重要である。そうでないと作業員は事態の抑え込み作業を試行している時に、これまでさらされていた危険よりもかなり大きな危険にさらされることになる。過渡臨界は、共同通信社が報じた「中性子ビーム」が13回観測されたこと(上を見よ)を説明することができるかも知れない。本分析は決定的証拠ではないが、局所的臨界を除外することはできないことを意味するものであり、東電は作業員が必要な予防策をとることを保証すべきである。

Arjun Makhijani is president of the Institute for Energy and Environmental Research (www.ieer.org). He holds a Ph.D. in engineering (specialization: nuclear fusion) from the University of California at Berkeley and has produced many studies and articles on nuclear fuel cycle related issues, including weapons production, testing, and nuclear waste, over the past

twenty years. He is the author of [Carbon-Free and Nuclear-Free: A Roadmap for U. S. Energy Policy](#) the first analysis of a transition to a U. S. economy based completely on renewable energy, without any use of fossil fuels or nuclear power. He is the principal editor of [Nuclear Wastelands](#) and the principal author of Mending the Ozone Hole. He can be contacted here: arjun@ieer.org.

アージュン・マキジャニはエネルギー環境研究所(www.iwvr.org)の所長である。カリフォルニア大学バークレー校からの工学(専攻:核融合)での Ph.D を持っており、兵器生産、試験、核廃棄物を含む核燃料サイクル関連事項で過去二十年以上にわたる多くの研究と論文がある。Nuclear Wastelands 誌の編集長であり、「Mending the Ozone Hole(オゾンホール修復)」の主要著者である。連絡先: arjun@ieer.org。

Ferenc Dalnoki-Veress is a Research Scientist at the James Martin Center for Non-Proliferation Studies of the Monterey Institute of International Studies. He is a specialist on nuclear disarmament and on aspects of global proliferation of fissile materials. He holds a PhD in high energy physics from Carleton University, Canada, specializing in ultra-low radioactivity background detectors. He can be contacted here: ferenc.dalnoki@miis.edu and 831- 647-4638.

フェレンク・ダルノキーベレスはモンテレイ国際関係研究所のジェームス・マーチン非拡散研究センター研究員である。核軍縮及び核分裂性物質の世界的拡散の諸問題の専門家である。カナダ、カールトン大学からの高エネルギー物理分野での PhD を持ち、極低放射能バックグラウンド検出器を専門とする。連絡先: ferenc.dalnoki@miis.edu および、Phone 831-647-4638。

Recommended citation: Ferenc Dalnoki-Veress and Arjun Makhijani, What Caused the High Cl-38 Radioactivity in the Fukushima Daiichi Reactor #1?, The Asia-Pacific Journal Vol 9, Issue 14 No 3, April 4, 2011.

推奨する引用: Ferenc Dalnoki-Veress and Arjun Makhijani, What Caused the High Cl-38 Radioactivity in the Fukushima Daiichi Reactor #1?, The Asia-Pacific Journal Vol 9, Issue 14 No 3, April 4, 2011.

Notes

注

¹ Thanks go to Dr. Patricia Lewis (CNS, MIIS) and Arjun Makhijani (IEER) for carefully reviewing this memo, and for thoughtful and stimulating discussions. Dr. Lewis may be contacted at patricia.lewis@miis.edu.

¹ このメモを注意深く精査し示唆に富み刺激的な討論をしてくれたことに対し、パトリシア・ルイス博士(CNS、MIIS)およびアージュン・マキジャーニ(IEER)に感謝する。ルイス博士の連絡先は patricia.lewis@miis.edu。

² [Nuclear and Industrial Safety Agency, Ministry of Economy, Trade and Industry, News Release](#), March 26, 2011.

² 核及び工業安全局、経済産業省、News Release、3月26日、2011年。

³ [Dr. J. Floor Anthoni, The Chemical Composition of Seawater](#) (2000, 2006).

³ J. フローア・アントニ博士、海水の化学組成(2000年、2006年)。

⁴ [Press Release \(Mar 26, 2011\) TEPCO News, Plant Status of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station \(as of 8:00 PM Mar 26th\)](#): “At approximately 2:30 am on March 23rd, seawater was started to be injected to the nuclear reactor through the feed water system.”

⁴ プレスリリース (3月26日、2011年)TEPCO ニュース、福島第一原子力発電所のプラント状況(3月26日 8:00PM 現在): 「3月23日 2:30am 頃、原子炉に注水システムを通して海水注入を開始した。」[訳者注: 第1号機についてである。相当することが日本語の TEPCO ニュース: <http://www.tepcoco.jp/cc/press/11032601-j.html> に出ている。]

Dalnoki-Veress' article was translated by Terao Terumi, TUP (Translators United for Peace)

ダルノキーベレス論文翻訳 寺尾光身(TUP)

Arjun Makhijani's introduction was translated by Norimatsu Satoko, an Asia-Pacific Journal coordinator

アージュン・マキジャーニ解説文翻訳 乗松聡子 (アジア太平洋ジャーナル・コーディネーター)