

表題：放射線のための物理化学基礎（5）

副題：放射線の用語と半減期公式

筆者：SCE-Net 環境研究会 郷 茂夫
(化学工学会 会員, 放射線影響学会 会員)

2021年7月15日作成

今回は紛らわしい放射能, 放射線に関わる用語および単位の複雑さについて触れたいと思います.

1. 用語 ; 放射性物質, 放射能, 放射線, 半減期の公式について

これらの用語は, 前節の基礎的事項を踏まえれば内容は容易ですので, 以下に表形式でまとめます. ただ, いくつか誤解しやすいことがあり, それも記しています.

表1 放射線の基本用語

用語	説明	備考
放射性物質 放射性原子	<ul style="list-style-type: none">● <u>放射線を発する能力ある物質</u>のこと.● <u>放射能を発する能力ある原子 (核種)</u> のこと.● ある放射性物質 (混在物質の場合, その中に存在する放射性原子すべて) がある時刻に同時に一斉に放射線を発するわけではない; ある時刻に放射線を出す原子 (出した後は元の放射性原子ではなくなる) もあれば, 出さずに潜在能力として保っている原子 (それが元の放射性原子である) もある.● ある時刻における, 対象の放射性原子の中の放射線発生原子の比率は<u>対象の放射性原子に特有の半減期(下参照)</u>により核種ごとに決まっている.	「放射能」という言葉は, 放射線や放射性物質や放射線で起こる現象などに対して, 一般世間では広く混同 されているが, 正確には左記
放射能 記号: A	<ul style="list-style-type: none">● ある量の放射性物質が <u>1秒間に発する放射線の(本)数</u>● 単位: ベクレル Bq : 発生放射線 (本) 数/秒.	のように独立した違う意味であることに注意.

	<ul style="list-style-type: none"> ● 通常は<u>一定量の薬剤や1 kg の物質</u>（人身，水，米，肉など）当たりの，その中の放射性核種から外部に発せられる放射線の本数をいう．<u>分母の量を明確にすること</u>． ● 分母として，物体や土地の<u>表面積</u>（m²，km² など），立体的な<u>空間体積</u>（m³ など）を規定する場合もある． いずれにしろ，分母を規定すること． ● 上記の3つ(重量，表面積，体積)の放射能の測定方法の実際はそれぞれ異なる． ● 通常は，1秒間に発せられる <u>γ線の本数</u>（α線，β線は，物質内部で自己吸収されてしまい，外部に出てくる数はわずかなので測らない）を測定し，検知効率で補正してから，その数値をベクレルという． 	
放射線の「線種」	<ul style="list-style-type: none"> ● 通常，<u>6種類</u>（α線，β⁻線，β⁺線，γ線，X線，中性子線）の線種を言う．但し，<u>β⁻線，β⁺線は合わせてβ線の1つ</u>で言う場合が多い．その場合は5種類となる． ● 上の6種の線種の性状は大いに異なること．（連載（3）の線種表1を参照） ● 注意：<u>同じ線種でも各放射線が持つエネルギーやその分布は大小いろいろに異なる</u>．つまり，同じ線種でも細かく規定し て言えば，すべて異なる． <u>下の表3のエネルギー範囲を参照</u>． ● 例えば，トリチウムは，エネルギーの弱いβ線しか発生しないが，¹³⁷Cs は中程度のβ線とγ線を発生する．従って，身体影響は両者で桁違いに差があること． ● しかし，ICRP は，6種類の線種で，身体影響の程度を各線種の1本で大まかに定めている．線種の影響は，エネルギー，透過度や飛跡（物質内でエネルギー転移をする放射線の足跡），被曝する物質(人体も含め)の電子密度などにより厳密にはかなり異なるが，それをICRPはラフに決めたものである． 	(同上)
半減期 記号：T	<ul style="list-style-type: none"> ● 一般的に放射性物質の中に，多くの放射性原子がある場合に，その核種は寿命に従って放射線を放出して，元の核種数は減少していき，他の核種に変化 	

する。その核種数が初めの放射能の半分まで減少する期間を半減期（英； half time）と言う。

- すべての放射性核種の半減期データは判明している。（日本アイソトープ協会発行の「アイソトープ手帳」を参照のこと。

従って、核種が決まれば、以下の公式により、その放射能の測定値から、過去又は将来の放射能の数と減少程度、または、今存在する放射性原子の数などを計算で求めることができる。

→下記の公式を参照。

- 代表的放射性核種の半減期データを再掲する；

時間表示：y; year, d; day, h; hour, m ; min, s; sec=秒で示す。

³ H	12.3 y	⁹⁹ Mo	65.9 h	²⁰⁹ Bi	1.9*10 ¹⁹ y
¹⁴ C	5.70*10 ³ y	^{99m} Tc	6.02 h	²²² Rn	3.82 d
¹³ N	9.97m	¹²⁵ I	59.4 day	²³² Th	1.4*10 ¹⁰ y
¹⁸ F	109.8m	¹³¹ I	8.02 d	²³⁵ U	7.04*10 ⁸ y
⁴⁰ K	1.25*10 ⁹ y	¹³⁴ Cs	2.06y	²³⁸ U	4.47*10 ⁹ y
⁶⁰ Co	5.27 y	¹³⁷ Cs	30.17y	²³⁹ Pu	2.41*10 ⁴ y
⁹⁰ Sr	28.8 y	²⁰⁸ Tl	3.05min		

など 秒から何十億年まで大幅な半減期の違いがあります。

放射線壊変の半減期にかかわる公式；

引用：アイソトープ手帳，（社）日本アイソトープ協会

放射線壊変

（１）壊変法則

$$-\frac{dN}{dt} = \lambda N = A \quad N = N_0 e^{-\lambda t} \quad A = A_0 e^{-\lambda t} = A_0 \left(\frac{1}{2}\right)^{t/T}$$

$$T = \frac{\ln 2}{\lambda} \doteq \frac{0.693}{\lambda} \quad \tau = \frac{1}{\lambda} = \frac{T}{\ln 2} \doteq 1.443T$$

N, N_0 ：時間 t および最初の時刻における原子数

A, A_0 ：時間 t および最初の時刻における放射能

λ ：壊変定数 T ：半減期

t ：経過時間 τ ：平均寿命

ここでは、 T 半減期は既知であるから、 λ がわかり、放射性核種の現在の原子数と将来の放射能の減少程度を計算できる。

(2) 放射平衡

2. 放射平衡

(1) 過渡平衡 ($\lambda_2 > \lambda_1$ すなわち $T_1 > T_2$ のとき)

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} e^{-\lambda_1 t} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1$$

$$A_2 = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_{10} e^{-\lambda_1 t} = \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} A_1$$

(2) 永続平衡 ($\lambda_2 \gg \lambda_1 \approx 0$ すなわち $T_1 \gg T_2$ のとき)

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 \quad A_1 = A_2 \quad \frac{N_1}{T_1} = \frac{N_2}{T_2}$$

ウラン系列, トリウム系列などの長い壊変系列の場合

$$\lambda_1 N_1 = \lambda_2 N_2 = \lambda_3 N_3 = \dots = \lambda_n N_n$$

$$\frac{N_1}{T_1} = \frac{N_2}{T_2} = \frac{N_3}{T_3} = \dots = \frac{N_n}{T_n}$$

$N_1, N_2, N_3, \dots, N_n$: 放射平衡における各核種の原子数

$\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3, \dots, \lambda_n$: 各核種の壊変定数

$T_1, T_2, T_3, \dots, T_n$: 各核種の半減期

前連載 (4) で述べました長い壊変系列の場合の計算がここでできます。ウランやトリウムを平均的に含む 1 トンの地殻から、どの程度のラドンが発生するかということとを簡単に計算できます。ただ、ラドンが岩石の中から表面の大気までに浸みだしてくる速度は別に計算しなければなりません。

(2) ' 放射平衡のつけたし

上の過渡平衡で、その系に N_1 が常時一定量の供給がある場合の放射平衡はどうなるのでしょうか？ おそらく、 N_1, N_2 は、時間がたつと、比率一手の一定値になると思われます。

後で、微分方程式を解いて図示する予定です。

(3)

3. 長半減期核種の壊変による娘核種の生成

$$A_2 = A_1 (1 - e^{-\lambda_2 t}) = A_1 \left\{ 1 - \left(\frac{1}{2} \right)^{t/T_2} \right\}$$

A_1 : 半減期の長い親核種の放射能

λ_2 : 娘核種の壊変定数

A_2 : 時間 t における娘核種の放射能

T_2 : 娘核種の半減期

放射性医薬品 (検査用には短半減期の放射性原子を含む) を作る場合、原料としてかなり長半減期の原子を含む化学品を使うことが多い。その場合、目的の医薬品の生成程度と消失程度を見て計画するので、その基本公式です。

2. 挿話 — 20 億年前の天然原子炉

ここでは放射性同位体にかかわる挿話で、20 億年前の天然原子炉 について触れます。

引用文献：

- 1) [天然原子炉（オクロ原子炉）（04-02-01-10） - ATOMICA - \(jaea.go.jp\)](#)

<タイトル> 天然原子炉（オクロ原子炉）（04-02-01-10）

- 2) [2012 Vol.61 No.6 総説 日高洋 \(jst.go.jp\)](#)

オクロ天然原子炉についての基礎知識と最近の同位体研究の進歩, 日高 洋, 広島大学, RADIOISOTOPES, 61, 2012.

- 3) [オクロの天然原子炉 - Wikipedia,](#)

- 4) [20 億年前の地球に存在した「オクロの天然原子炉」に学ぶ原子力エネルギーエコシステムとは? - GIGAZINE](#)

「20 億年前の地球に存在した「オクロの天然原子炉」に学ぶ原子力エネルギーエコシステムとは?」

筆者は地球の歴史, 生命の歴史には疎いですが, 20 億年前というと, その頃までに地球の大気中の酸素濃度が増えてきて, 海洋のイオンの状態も変化が起きており, 生命の系統樹も変わり始めたと言われますが, 正確な時期は知りませんが, その後では, 酸素濃度がかなり減少した時代が続いたようです. また, 大陸の地殻移動も活発だったようです.

(1) 天然原子炉の発見の経緯

さて, 天然原子炉の発見の経緯の詳細は上記の文献を見てください. ここでは主な筋だけを記述します.

1972 年, フランス原子力庁は「10 数億年前の先史時代に, 中央アフリカのガボン共和国の南東, フランスビルの近くにある露天掘りのオクロ・ウラン鉱床中に天然原子炉が作動していた証拠が発見された. 」と公表しました. この発表によれば, この天然原子炉は, ウラン鉱床の中に自然に形成されたもので, ^{235}U が約 3% の同位体存在比を持つウランが存在していた頃の約 20 億年前に, 同鉱床のウランが自然発生的に連鎖反応を起こした後, ^{235}U の濃度が臨界の達成に必要な水準以下となったため自然に停止し, 化石となったのではないかと推定されています. なお, 世界の他の地域のウラン鉱床からはこのような経緯, 現象は発見されていないということです. つまり, オクロ・ウラン鉱床だけに「偶然に」起こったことだったということなのです.

天然原子炉発見のきっかけは、フランスのウラン濃縮工場において、天然の組成に近いウラン同位体分析用の標準を作成中に ^{235}U の同位体存在比の異常値が観測されたことです。現在の天然ウラン中の3つの核種 ^{234}U 、 ^{235}U および ^{238}U の同位体存在比は、それぞれ 0.0054、0.720 および 99.25 a/o=百分比 であるのです（実測値の誤差は 1/1,000 以下）が、 ^{235}U の同位体存在比として 0.7171a/o とか 0.7088a/o という値が観測されたのです。しかしご覧のように、普通に見れば、ごくわずかな差異です（誤差に近いような差異です）。はじめは、汚染による事故として処理されたようですが、やはり異常を感じた人が居たらしく、 ^{235}U の同位体存在比が少ないウランの存在原因についての調査が行われました。原因として、まずは、ウランを取り扱う工場におけるコンタミ(汚染混入) が考えられ、徹底的に調査が行った結果、いずれの可能性も否定されたため、採掘されたウランそのものに原因が存在する可能性について調査検討されました。さらに、1972年5月9日の出荷分から ^{235}U の同位体劣化が認められることが判明し、これに対応する原料のウランは、ガボン共和国からの粗製 U3O8 であることが判ったのです。 ^{235}U の同位体存在比が 0.440a/o という、誤差どころではなく、相当に低い値の試料も見出されました。この結果、汚染によるのではと考えられてきた ^{235}U の同位体存在比の劣化の原因は、（今サンプリングできる）天然起源のウランにあることが明らかになり、この異常現象を説明するため、天然に発生した原子炉を想定し、その可能性の検討が進められたわけです。これがその後の詳細分析比較検討の発端です。

(2) オクロ天然原子炉の存在の証明／物的証拠

まず精密な分析検討がなされましたが、その分析検討の前提に少し触れますと、もし、その昔、天然の原子炉が成立し核分裂現象が起こったというならば、その時に核分裂片（以下 FP という）が多数生成したはずで、その時の FP が今現場の周辺に残っていれば、それを検知できればいいのですが、それは無理です、何故なら、FP はほぼすべて放射性物質であり、放射線を出して他の安定元素に変わってしまいますし、大体 FP の半減期は短く、数十億年という超長い年月との比較では、すべて壊変し、今の世には残存していないからです。しかし、FP が元になって生成した安定元素ならばこの世に長く残ることになります。つまり、FP の残骸の安定元素を調べることができれば、何か手掛かりを得ることができると考えられました。その残骸安定元素の可能性の1つが希土類元素ネオジウム Nd でした。なお、Nd には多くの核異性体があり、その中には安定体や放射性体があり、FP であるセリウム Ce や プラセオジウム Pr がベータ崩壊して Nd が生成してきま

す。そして、その中の安定体だけが長期間後にも残留するのです。それを調べたわけ
です。

フランスの研究センターでは、オクロから採取された2つの試料、OKLO/M（ウラン濃
度：38.5%、 ^{235}U 同位体存在比：0.4400 a/o）およびOKLO/310（ウラン濃度：
14.9%、 ^{235}U 同位体存在比：0.592 a/o）から希土類元素ネオジウムNdを化学的精製法
で分離しました。そして、Ndは、量は多くないものの、普通に地球上に天然安定Nd元
素どこにでもありますから、その天然Ndの同位体組成とオクロサンプルから得たNd同
位体組成が分析比較されたわけです。

比較の結果は、オクロの2つの試料のNdの同位体組成は、天然および核分裂起源の
Ndの組成のいずれにも一致してはいないが、核分裂起源のNdの同位体組成に近いこと。
天然起源および核分裂起源のNdの同位体組成の最も顕著な相違は、天然に存在する
 ^{142}Nd が核分裂起源には存在しないことでした。そこで、2つのOKLO試料から分離され
たNdは、起源が異なる2つのNdの混合物と考えることができることでした。何せ、何
十億年も前のことです、現場の地殻の組成が純度高く残っているなど不可能でしょう。自
然の地殻の大きな地球的変動の中で見つけれられたものです。いろいろな起源の元素がある
程度入り混じってしまうことなどは仕方ないことであり、それがむしろ自然でした。細か
いことは除きますが、過去現在の物質が入り混じってはいますが、オクロ鉱床から採取さ
れた2つの試料の分析結果は、様々な分析試算から、核分裂起源のNdの同位体組成（こ
れは今の原発などの核分裂結果でわかる）と良い一致を示していることが結論できたので
す。これが、その昔に天然の核分裂が起こっていたことの物的証拠です。

(3)オクロ天然原子炉に関する推定と研究／現代人が学べる事があるか？

それでは、なぜ自然界に「原子炉」というきわめて特殊な状態が生じたのかについて、
当時のいくつかの環境要因が挙げられています。

- (i) 20億年前（その時期については以下で説明しています）まではウラン中に3%を超
える高濃度の ^{235}U が存在していたこと。この値は、現代の原子炉の濃縮ウランのし
きい値に近い値であること。

補足) ^{235}U の半減期（7億年）は ^{238}U （47億年）よりかなり短いので、今のウ
ラン鉱石中の ^{235}U の組成比は0.72%ですが、地球史の大昔では、 ^{235}U の組成比
はずっと高かったということです。それが原子炉の核分裂燃料用の濃縮ウランのし
きい値を超えていた時代もあったはずです。

(ii) ウランは地球の岩石中に自然に存在していて、核分裂性物質の ^{235}U の濃度は臨界に達する前は常に 3%以上だったはずですが、しかし、オクロの天然原子炉が 20 億年より前の時点で反応を開始しなかった理由は、おそらく大気中の酸素濃度の上昇が関連していると言います。20 億年以前においては、大気中の酸素濃度が十分高くなかったということが環境原因ではないかと言います。ということは、ウランは酸素存在下でしか水に溶けないため、大気中の酸素レベルが上昇するにしたがって、ウランが地下水に溶けて運ばれて、ウランが十分に濃縮された鉱床を形成したと考えられるとのこと。

(iii) オクロ・ウラン鉱床が、豊富な地下水に接触していたこと。

オクロの天然原子炉が安定的にエネルギーを創出し続けたメカニズムのカギを握るのは「水」と言われます。天然原子炉では、ウランに富んだ鉱床に地下水が染み込んで、水が中性子減速材として機能することで核分裂反応が起こります。逆にウラン燃料が必要な量の水と接触していないと核分裂の連鎖反応は起こりません。オクロの天然原子炉も水を減速材として用いた、いわば「軽水炉」として機能していたことが分かっています。

さらに、いくつかの計算により、天然原子炉の誕生した時期（何億年前か？）、原子炉の大きさ（放出エネルギー＝発熱量？）、その原子炉の寿命、などが推定されています。核反応の形式や半減期は、周囲の地球的環境によらず、物理的に完全に固定しているために、遠い過去の減少について様々な推定計算、研究ができるのです。

(a) 天然原子炉の誕生した時期は、 ^{235}U の核分裂数から算出する方法（ ^{235}U の原子数/ ^{238}U の原子数の比）と中性子を吸収した ^{235}U の崩壊により生成される ^{232}Th を利用して算出する方法（ $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ の原子数の比； ^{232}Th （半減期 14 億年）は核分裂以外では生成しない）を用いて計算されました。いずれの方法によっても、天然原子炉は、今からおよそ 20 億年前に誕生したものと推定されています。

理由：原子炉の年齢の推定計算は、例えばオクロ鉱床の Nd サンプル同位体比から、核分裂時の $^{235}\text{U} / ^{238}\text{U}$ の原子数の比を推定でき、その推定値を用いて、前掲の壊変の法則の式から、経過時間 t を計算できます。

(b) オクロ天然原子炉ゾーンで放出された合計のエネルギーの計算値は、約 6×10^6 MWd あるいは $16.5 \times 10^3 \text{MW} \cdot \text{yr}$ ですが、このサイズは、瞬間出力としては、ごく小さいものだったと言います。現在の原子力発電所から出力される大量のエネルギーとは比べられないほど小さいものでした。

- (c) しかし、その核分裂は、実に数十万年にわたって、平均で 100 kW 相当の出力（平均瞬間出力）の反応が起きていたと言われます。この値は、数十万年にわたって続いたのですから、現在の 100 万 kW 級の原子力発電所の原子炉 5 基を全出力で 1 年間運転したときに発生する熱エネルギーにほぼ等しいというような計算になります。鉱床のキセノンガスの同位体比を調べることで、20 億年たった現在でも核分裂サイクルの周期を知ることができるそうです。その計算ではおよそ 30 分活動したあと 2 時間 30 分休止するサイクルだったと言います。
- (d) 天然原子炉が機能していた期間は、約 60 万年間と言われます。この計算では、一定の中性子束のもとで連鎖反応が持続していたとしていますが、実際には反応は間欠的であった可能性があります。いずれにしても、この原子炉の放出エネルギーの総和から考えると、これらの原子炉は、非常に低い出力を長期間維持していたと想像されま
す。

さて、自然界が生み出した原子炉「オク口の天然原子炉」が実際に存在したことは科学的に結論が導かれているわけですが、今の私たちにとって何か学ぶことがあるのかが興味の 1 つです。

オク口の天然原子炉は、ちょっとした太陽光発電 1 基で得られるのと同程度の小規模エネルギーを、およそ 30~60 万年という長期間、安定的に排出していたと考えられてお
り、それを「絶妙なエコシステムであった」と言っている報告もありますが、そんな小さな出力が長く続いたところで、今の私たちにとってどんな意味があるのでしょうか？そして、その放射性廃棄物は当時は天然原子炉周囲に散在したはずですが、その天然原子炉が廃絶した後の 20 億年間で、放射性廃棄物は皆壊変し霧消しただけの話です。放射性廃棄物がすぐに無害の天然元素に戻ったわけではありません。そのような意味では、学ぶことはほとんどないと筆者は思います。

ただ、天然原子炉がその機能を停止してから約 20 億年という長い時間が経過しており、その間に、自然環境の中で多くの地質学的あるいは地球化学的変化を受けてきました。この天然原子炉の中で生成された核分裂生成物、廃棄物や超ウラン元素が、どのような振舞いをして、どんな状況になっているかを調べて知ることは、高レベル放射性廃棄物の処理・処分の問題に対して貴重な先例データになることから、それらの研究も行われています。研究の結果により、天然原子炉の化石は、約 20 億年前の非常に古い時期に持続した核反応によるものですが、その状況を当時のままの状態が保持されていたことが明らかになっています。

危険な放射性廃棄物を地中深くに何千年～何万年もの間、保管することを余儀なくされる現在の原子力発電所の在り方を根本的に見直す（または、長い過去の実績を見つめる）よいきっかけになるかもしれません。

（連載 016 終わり）