

—夏期大学講座内容②—

自然界の放射性物質の動態

室蘭工業大学 望月 定

はじめに

人間の生活環境大気中に出る自然放射性物質は気象要素、発生源である地表面の状態、地質などに影響され一様に分布しているのではなく、場所あるいは地域毎に、又日毎、季節毎に異なった複雑な挙動を示します。

特に、近年大気中に浮遊する自然放射性物質ラドン（Rn-222）とその短寿命娘核種による呼吸器官の被曝の危険性（肺ガンの一因となっている）が指摘され、これらによる体内被曝線量評価と対策にかかる保健衛生の面からも関心が高まり研究が活発になってきています。

自然大気中のラドンとその娘核種の動態に関する研究はラドンが発見されて以来継続され、多量のデータが蓄積されています。

そこで、今回は多数の自然放射性物質のうち我々の身近な空気中に浮遊するラドン（Rn-222）とその短寿命娘核種を例として、実際に測定することから始めて、自然放射性物質の性質を理解し、その量、生成・消滅過程、気象との関連性などについて学びましょう。

放射性物質の崩壊則、半減期、放射線、放射能

1900年にはまだ原子核の存在は知られていなかった。1896年ベクレルが、“ウランが「自然」転化して他の物質になる”ことを発見して以来、キュリー夫妻、ラザフォードをはじめ多くの研究者により、原子核の研究がなされ、原子核が α 線もしくは β 線を放出して別の原子核に変わる現象が

追求され今日に至っている。

後でもう一度定義を述べるが、この変わらる現象を崩壊、この性質を放射能といい、放射能を持つ原子核を放射性核（放射性物質）という。崩壊前の核を親核、崩壊後の核を娘核、崩壊しない核を安定核という。

放射性核がいつ崩壊するかは偶然によって支配される事象であって、その物質特有の時間間隔で指数函数的に崩壊し減っていく。すなわち、最初 N_0 個あった親核は崩壊していって、時間 t のちには $N = N_0 e^{-\lambda t}$ 個が残ると表わせる。これは単位時期に崩壊する数、崩壊率 dN/dt が N に比例すること、

$$dN/dt = \lambda N = \lambda N_0 e^{-\lambda t}$$

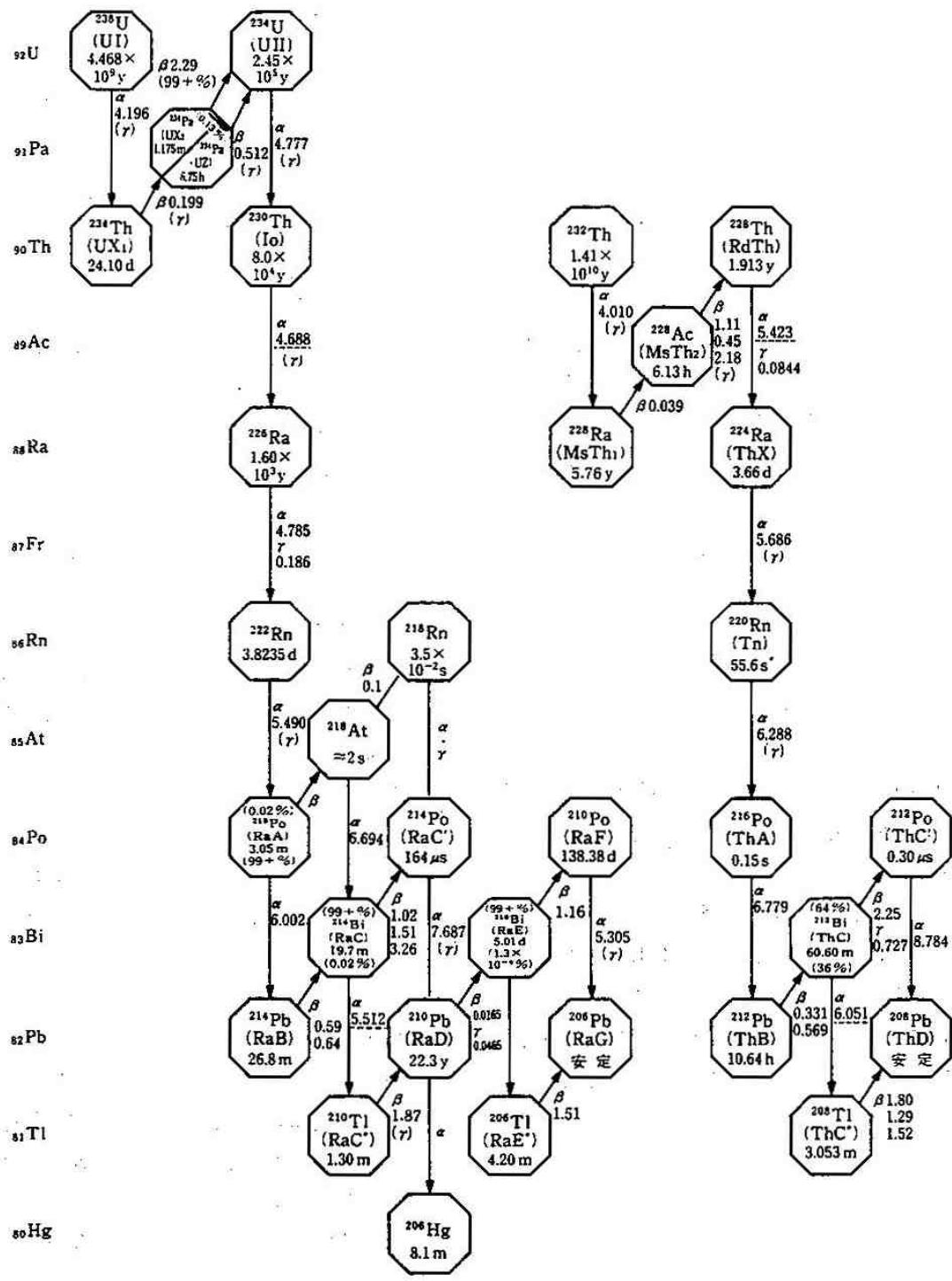
と同等である。この式で λ は単位時間に崩壊が起る確率で、それぞれの原子核に固有な定数で崩壊定数という。

$N = N_0 / 2$ になるまでの時間 T を半減期といい、 $T = 0.693 / \lambda$ である。

娘核がなお放射性核である場合、崩壊は連続して起り、最後に安定核に至って崩壊は終結する。これを逐次崩壊といい、ウラン系列（図2-1）、トリウム系列、アクチニウム系列、ネプツニウム系列など地球が誕生した時でき、今なお地殻中に残存するU-238、Th-232、U-235、Np-237を親核とする系列のほか、ウランの核分裂生成物などの中に見出される。なお自然界には表2-1に示したような放射性核も広く分布している。

放射線とか放射能という言葉は、新聞やテレビにしばしば出るようになり一般にもよく知られて

放射性核種の壊変系列



ウラン系列 (4n+2) 系列

トリウム系列 4n 系列

図2-1 放射性核種の崩壊系列、ウラン系列とトリウム系列

表 2-1 自然界の放射性核種

壊変系列を構成しない一次天然放射性核種

核種	同位体存在比 [%]	半減期 [y]	壊変方式
⁴⁰ K	0.0117	1.28×10^9	β^- (89%), EC(11%), β^+ (僅微)
⁵⁰ V	0.25	$>6.9 \times 10^{16}$	β^- (~30%), EC(~70%)
⁸⁷ Rb	27.83	4.72×10^{10}	β^-
¹¹⁵ In	95.7	5.1×10^{14}	β^-
¹²³ Te	0.89	1.2×10^{13}	EC
¹³⁶ La	0.089	1.12×10^{11}	β^- (~30%), EC(~70%)
¹⁴² Ce	11.1	$\sim 5 \times 10^{15}$	α^*
¹⁴⁴ Nd	23.8	2.1×10^{15}	α
¹⁴⁷ Sm	15.1	1.06×10^{11}	α
¹⁵² Gd	0.20	1.08×10^{14}	α
¹⁷⁶ Lu	2.61	3.79×10^{10}	β^-
¹⁷⁴ Hf	0.16	2.0×10^{15}	α
¹⁸⁷ Re	62.60	4.3×10^{10}	β^-
¹⁹⁰ Pt	0.013	6.9×10^{11}	α

* ¹⁴²Ce の α 放射能を否定する報告がある。半減期は $>5 \times 10^{16}$ y
[C. M. Lederer and V. S. Shirley: "Table of Isotopes", 7th ed., John Wiley & Sons, New York (1978)]

天然における原子核反応で生成する放射性核種

核種	半減期	核反応
³ H	12.33 y	宇宙線による ¹⁴ N(n, t) ¹² C
⁷ Be	53.3 d	{ 宇宙線による大気中の N, O の破碎反応
¹⁰ Be	1.6×10^6 y	¹⁴ C
¹⁴ C	5 730 y	宇宙線による ¹⁴ N(n, p) ¹⁴ C
²² Na	2.602 y	{ 宇宙線による大気中の Ar の破碎反応
³² Si	~650 y	³² P
³² P	14.28 d	Ar に対する宇宙線の作用
³³ P	25.3 d	³⁵ Cl(n, γ) ³⁶ Cl
³⁵ S	87.4 d	Ar に対する宇宙線の作用
³⁶ Cl	3.00×10^5 y	²³⁵ U, ²³⁸ U または ²³² Th の核分裂
³⁹ Cl	56 m	²³² Th(n, γ) ²³³ Th $\xrightarrow{\beta^-}$ ²³³ Pa $\xrightarrow{\beta^-}$ ²³³ U
核分裂生成物		²³⁸ U(n, 2n) ²³⁷ U $\xrightarrow{\beta^-}$ ²³⁷ Np
²³⁵ U	1.592×10^5 y	²³⁸ U(n, γ) ²³⁹ U $\xrightarrow{\beta^-}$ ²³⁹ Np $\xrightarrow{\beta^-}$ ²³⁹ Pu
²³⁷ Np	2.14×10^6 y	
²³⁹ Pu	2.41×10^4 y	

いるが、その中味は依然として何か分らないが恐いものという感覚で受けとめられているようである。その原因としては、放射線は人間の五官で感知できないこと。量の概念がなかなか理解しにくいくこと、その性質が日常生活における現象とはかなり異なっていること等によると思われる。放射線の性質を正しく認識し、放射能という言葉の意味を正確に理解しておくことは、この意味で重要なことである。

放射線という言葉は本来、可視光線、赤外線や紫外線も含むが、ここでは放射線とは α 線、 β 線、 γ 線、 χ 線、 中性子など電離を起す放射線を指す

ことにする。電離を起すとは、電気的に中性の原子や分子から電気（たとえば電子）を奪ったり、付加したりすることをいう。したがってそれらの原子や分子は正または負の電気を帯びることになる。この現象が起るとき、分子は正または負の電気を帯びた断片にこわれる。電気を帯びた原子、分子または分子の断片をイオンと呼ぶ。 χ 線および γ 線は光と同じ仲間の電磁波であり、その他の放射線は粒子の流れである。

α 線：正の電気を帯びた粒子（ヘリウムの原子核）で、ある種の放射性核の崩壊に際して放出され、そのエネルギーは核種ごとに定っている。 α 線は物質を通過するとき、その道筋に沿って密度の高い電離を起す。しかしその飛程（飛び距離）は短く空気中で 3 ~ 8 cm、水中または生物の組織中で普通 0.1 mm 以下である。

β 線：放射性核の崩壊に際して原子核から出てくる電子である。そのエネルギーは連続でエネルギー範囲は広い。これも通過した物

質中に電離を起す。 β 線の飛程は α 線よりもずっと大きく大気中で数 m、水中または生物の組織中では 2 cm 以下である。

γ 線：放射性核の崩壊にともない原子核から出てくる電磁波であって、核の種類によって、そのエネルギーは定っている。 γ 線は間接的に電離する。 γ 線が物質に吸収されるとき、物質から電子をたたき出し、その電子が強い電離作用を引き起す。 γ 線の場合は一定の飛程というものはない。そのわけは、どんな厚さの物質でも透し、連続的に次第に強度が減少するからである。 γ 線の強度を半分にする物質の厚さを半価層といふ。

χ 線： γ 線と同じ電磁波であり、 γ 線と同じ方式で物質と反応し、電離を生ずる。 γ 線と異なる所は、その出所であって γ 線の出所が原子核内であるのに、 χ 線は核外である。人工的に発生させることができ、特に医学の分野で利用されており良く知られているので、性質についての詳細はここでは割愛する。

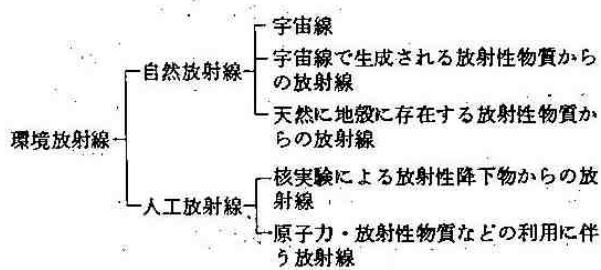
中性子：核分裂のような核過程で放出されて出てくる。中性子は電気を帯びておらず直接電離をしない。中性子については最近話題の常温核融合で特に注目されているものであるが、その特性についてはここでは割愛する。

宇宙線：銀河系や太陽系に起源をもつエネルギーの異なる重い粒子の集合であり、これを第一次宇宙線という。これらエネルギーの高い第一次宇宙線は地球上空に存在する原子と反応し、粒子や電磁波からなる多くの第二次宇宙線を発生する。第二次宇宙線はそれぞれの特性により電離を起す。

放射線のエネルギーは普通電子ボルト(eV)単位で計られる。キロ電子ボルト(KeV)、ミリオノ電子ボルト(MeV)など。放射線の量、すなわち照射線量、吸収線量、線量当量の定義、単位等についてはここでは割愛する。

我々の生活している環境は、どこでも放射線が存在している。したがって、いつも放射線を受けているわけで、人類は、この世に生を受けて以来前述のような放射線とともに生活し、進化してきたといえる。

今から100年以前であると、環境にある放射線は自然に存在するものだけであったが、近年では人工のものが加わってきていている。これら環境放射線を分類して示すと次のようになる。



放射能という言葉はしばしば誤り混同して使われることがある。

a) 本来の定義、放射能 (radioactivity)

物質が放射性崩壊によって放射線を放出するとき、“この物質は放射能をもつ”という。物質に関する1つの性質であり、放射能という1つの現象である。

b) 放射能の強さ (activity)

毎秒何個の原子核が崩壊するかという数量で、“放射能は何キュリーまたは何ベクレルである”という表現がこれである。

c) 放射性物質 (radioactive material)

放射能をもつ物質そのものを放射能という場合がある。“放射能が洩れた”という表現がこれであるが、本来の定義から云うとこれはおかしな表現である。

日本語で放射能という言葉を使うときは、上の3の場合のうちどれに当るか、よく注意しなければならない。

ここで、よく用いられる単位について簡単に述べておく。

崩壊率：単位時間(秒または分)当たりの崩壊数をいい、d p s (disintegration per second)、又は d p m (disintegration per minute)、単位体積当たりでは d p s / m³ 又は d p m / m³

放射能：1秒間当たりの崩壊数が 3.7×10^{10} 個であるような放射性核種の量で、キュリー：Ci、 $1\text{Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ d p s}$ 、最近では、ベクレル：Bq、Ciとの換算は、 $1\text{Ci} = 3.7 \times 10^{10} \text{ Bq}$

放射性物質濃度：大気中の場合は、空気の単位体積当たりに含有される放射性物質の量をいい、atoms / m³、Ci / m³、Bq / m³

発散率：単位面積、単位時間当たり発散する放射性物質の量をいい、atoms / m² · sec.、Ci / m² · sec.、Bq / m² · sec.

なお、単位については、SI単位系が用いられるようになってきているが、C.G.S. 単位系もまだ用いられており、文献により混合して用いられているので、特に注意されたい。

自然放射性物質ラドンとその娘核種の性質および測定

放射性物質、半減期、放射線、放射能やそれらを表す単位などが一応理解できたとして、次に、自然放射性物質について我々の周囲の大気中に最も多く出現するラドン ($Rn-222$) とその短寿命娘核を例として、前項に述べたうちのいくつかについて実際に測定してその性質を理解しよう。

ラドン ^{222}Rn とその娘核種は図 1 に示されているように ^{238}U を親核とする崩壊系列に属している。ラドンには 3 つの同位体がありいずれも希ガス元素である。一般にはラジウム (^{226}Ra) の崩壊で生成するラドン (^{222}Rn 、半減期 3.825 日、 α 崩壊、 α 線エネルギー 5.48 MeV) だけをさしてラドンという場合が多い。この崩壊系列は地球上のどこにでもみられ、人類とのかかわりも深いので、ラドンの元祖であるウランと親核であるラジウムについてふれておく。

ウランの同位元素は質量数 234、235、238 の 3 種である。ラドンの元祖である ^{238}U の存在比は 99.28 % であり、原子力として利用することから重要な核である ^{235}U の存在比は 0.71 % で、これはアクチニウム系列の元祖である。ウランは地殻を形成するあらゆる岩石や土壤、海水に含まれている。したがって、極微量ながら大多数の工業製品はもとより、土壤や肥料中に含まれていることから食物や人体中にもウランは存在することになる。表 2-2 に各種岩石中に含まれるウラン、ラジウムの平均濃度を示した。

表 2-2 各種岩石中のラジウム、ウラン、トリウム、カリウムの平均濃度

岩石の種類	^{226}Ra (pCi/g)	^{238}U (pCi/g)	^{232}Th (pCi/g)	^{40}K (pCi/g)
火成岩	1.3	1.3	1.3	22
堆積岩				
砂岩	0.71	0.4	0.65	8.8
頁岩	1.08	0.4	1.1	22
石灰岩	0.42	0.4	0.14	2.2

* UNSCEAR (1980)による

ウランの子孫であるラジウム (^{226}Ra) も又あらゆる岩石や土壤に含まれているが、岩石の種類により相当異なっている。海水中にももちろん含まれ、海洋毎にかなり濃度変化はあるものの同一海洋中ではほぼ均一に分布しているのに対して、河川水や井戸水中に含まれるラジウムは場所によって濃度はそれぞれ大きく異なっている。人体中にもウラン同様に食物を通して取り込まれている。

前述のようにラドンは不活性希ガスであり、親核でラジウムが地殻中のあらゆるところに存在していることから、ラドンも地殻中のあらゆるところで生成されている。気体であり、半減期が 3.82 日であることから、地殻の岩石、あるいは土壤中で生成されたラドンの一部は地中空気中に漏出し地下水中に溶け込んだり、又地表面から大気中に発散し、拡散していく。

ラドンは図 1 の系列に示されているように崩壊し、ラジウム A (RaA , ^{218}Po)、ラジウム B (RaB , ^{214}Pb)、ラジウム C (RaC , ^{214}Bi)、ラジウム C' (RaC' , ^{214}Po)、ラジウム D (RaD , ^{210}Pb) ……のようなそれぞれ重金属元素である放射性核種を生成する。系列図に示されているように、半減期、崩壊形および放射線エネルギーは、 RaA (3.05 分, α , 5.998 MeV)、 RaB (26.8 分, β^- , 0.59, 0.65 MeV)、 RaC (19.7 分, β^- , 1.65, 3.17 MeV)、 RaC' (1.64×10^{-4} 秒, α , 7.68 MeV)、 RaD (22 年, β^- , 0.023 MeV) である。これらのうち RaA 、 RaB 、 RaC 、 RaC' を短寿命娘核種、 RaD 以下を長寿命核種といっている。又いずれも常温では単体の固体原子であるため、空気中に拡散したラドンから逐次生成されたこれら放射性核はエアロゾルに付着し、放射性エアロゾルを形成する。それ故空気中に浮遊するエアロゾルの一部が放射能をもつことになる。

RaA から RaC' の間でもっとも半減期の長い核は RaB の 26.8 分であり、約 2 時間で Rn と RaB の間で放射平衡に達する。この放射平衡という現象は空气中で生成されたラドンの娘核種の特性、各娘

核間の関係、親核であるラドンとの関係などを理解するうえで重要な概念であり、

λ 親 N 親 = λ 娘 N 娘 = λ 孫 N 孫 = ……の関係があることである。 λ : 崩壊定数、N : 放射性核の個数、すなわち、親が知れば娘、孫を知ることができ、逆に孫から娘、親を知ることができることである。

それでは、これらを知るための放射線の測定に一つろう。放射線の測定と一口に言っても、その目的により方法は多種多様であるので、ここでは、気体の電離作用を利用した検出器として G M 計数管（ガイガーカウンタ）をとりあげその原理と応用例、固体中の電離作用を利用した半導体検出器の応用例について紹介する。図 2-2 に原理図を示した。ヘリウム、アルゴン、空気などの気体中に放射線が入射すると、その飛跡に沿って多くの電子とイオンが作られる。図に示されるように、もしそこに電場がかかっていると、電子は陽極の方へ、イオンは陰極の方へ移動して電気信号を生ずる。これをパルスとして計数する検出器の一例が G M 管で、一般には図 2-3 に示したような構

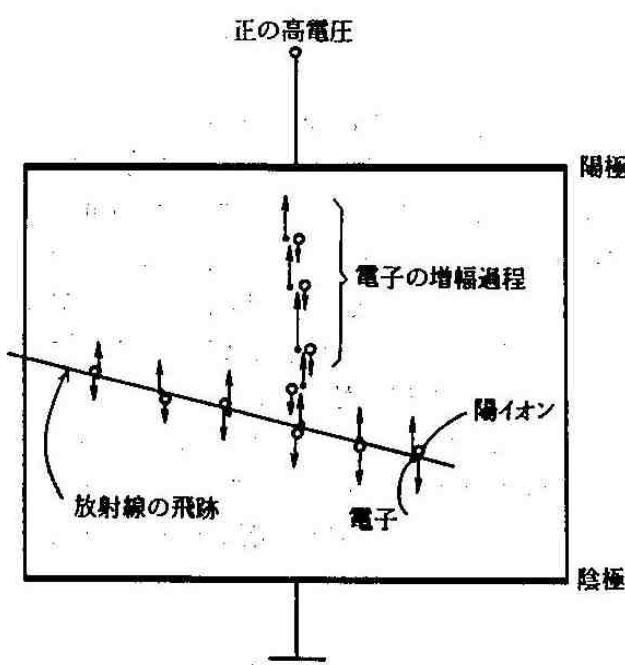


図 2-2 気体の電離を利用する検出器の原理

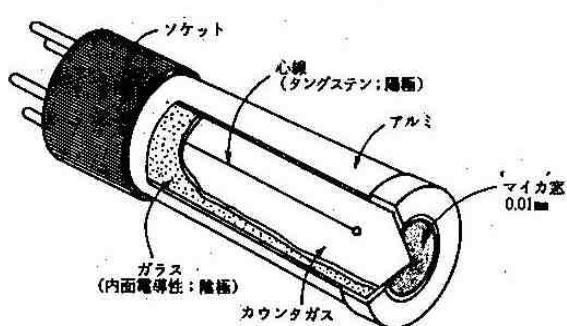


図 2-3 端窓型 G M 計数管の構造

造になっている。

この G M 管を大気中での測定に応用したのが図 2-4 に示した測定系である。フィルタ上に集めながら計数していくので、蓄積、減衰の状況がよくわかる。フィルタ上に集めた放射性エアロゾルの増加、減衰の実測記録例を図 2-5 に示した。

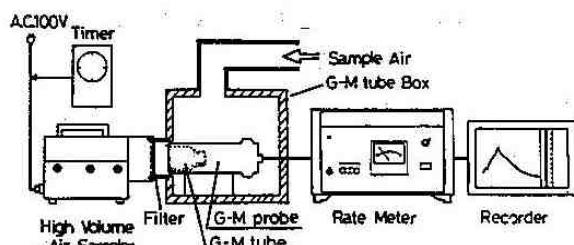


図 2-4 G M 管を用いた測定系

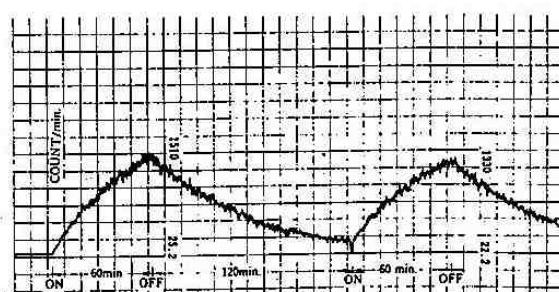
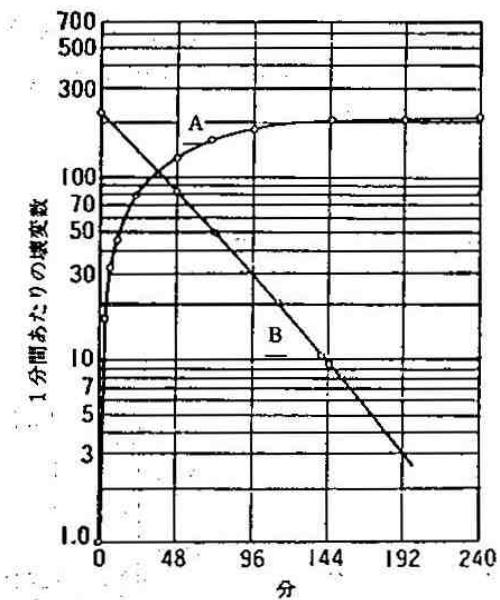


図 2-5 G M 管とレートメータによる捕集中および捕集後の生成および壊変曲線

放射能の増加、減衰についての理解のために、その一例として、空気中の放射性エアロゾルをフィルタで捕集した場合のフィルタ上の放射能の変化について考察する。図2-6は、 5×10^{-14} Ci/lのラドンと放射平衡になっている娘核種を含む通常の空気を試料としたものである。図中Aは捕集中で時間の経過とともにフィルタ上の放射能は徐々に増加し、この増加傾向は約2時間続くが、以後は捕集される量と崩壊していく量がつり合うようになり一定の値になる。この捕集平衡状態は空気の流量やラドンの濃度に変化がなく、且つエアロゾル濃度に極端な変化がなければ変わらない。捕集を止めるとフィルタ上の放射能は曲線Bに示されているような実効半減期約40分で減衰していく。おおまかにいえば、空気中のラドン娘核種をフィルタで集める場合、2時間以上集めてもそれ以後フィルタ上の放射能はあまり増加することなく（濃度を知るために2時間以上の時間を費して



A : ^{210}Pb は含まないがそれまでの娘核種が放射平衡になっているラドンを 5×10^{-14} Ci/l含む空気を吸引した涙紙の α の放射能の増加
B : 吸引を止めたのちの α の放射能の減衰

図2-6 フィルター上に捕集した放射性エアロゾルの放射能変化

集めてもあまり意味がない）、捕集を止めてから2時間たつと止めた時点にフィルタ上にあった放射能は1/8になってしまふということである。

G管の測定では核種を識別することはできない。核種識別のために α 線を測定する図2-7に示したような半導体放射線検出器を利用した測定系がよく用いられている。

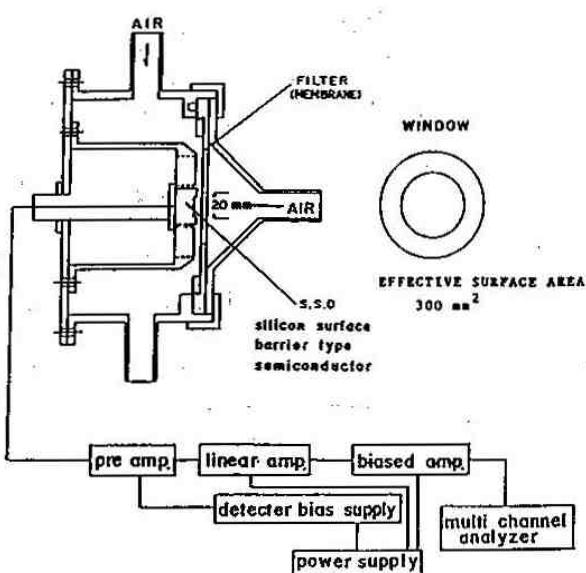


図2-7 シリコン表面障壁型半導体放射線検出器を利用した測定系

大気中のラドンとその娘核種の動態 (観測例)

地表面から大気中に発散したラドンは図2-8に示したような経過をたどり、いろいろな淘汰を経ていずれ長寿命娘核種は地上にもどってくる。この間の経緯を実測例に基づいて紹介しよう。

ラドンが地表面から大気中に発散していく機構は地域毎の土壤および気象状態により大きく影響され、地域毎に日毎に異なる変動を示すが、地質学的あるいは気象学的因素との相互関係はまだ完全には解明されていない。しかし、一般的には発散率は大気圧の低い時に増加し、地面が湿っている時には土壤の気孔が狭まり、かつラドンの溶

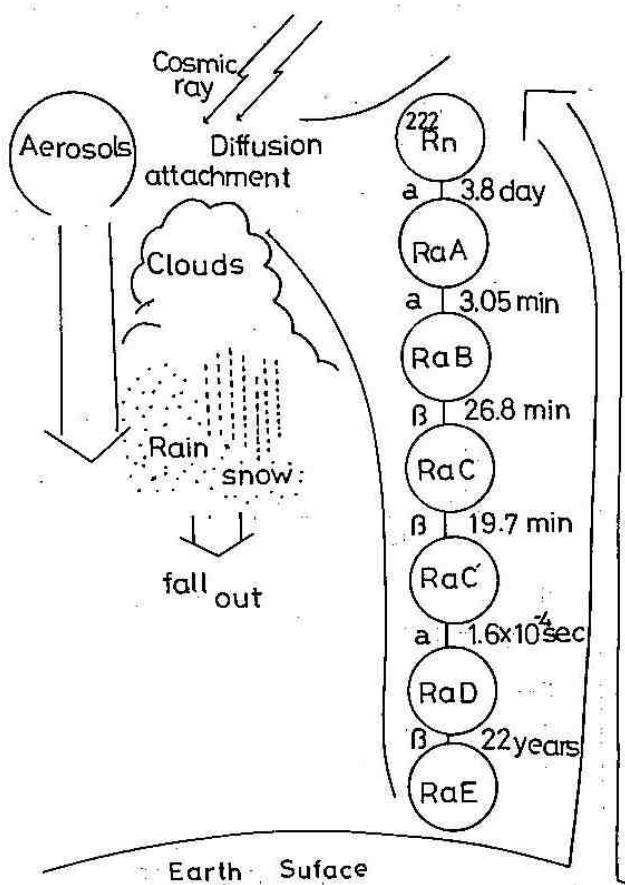
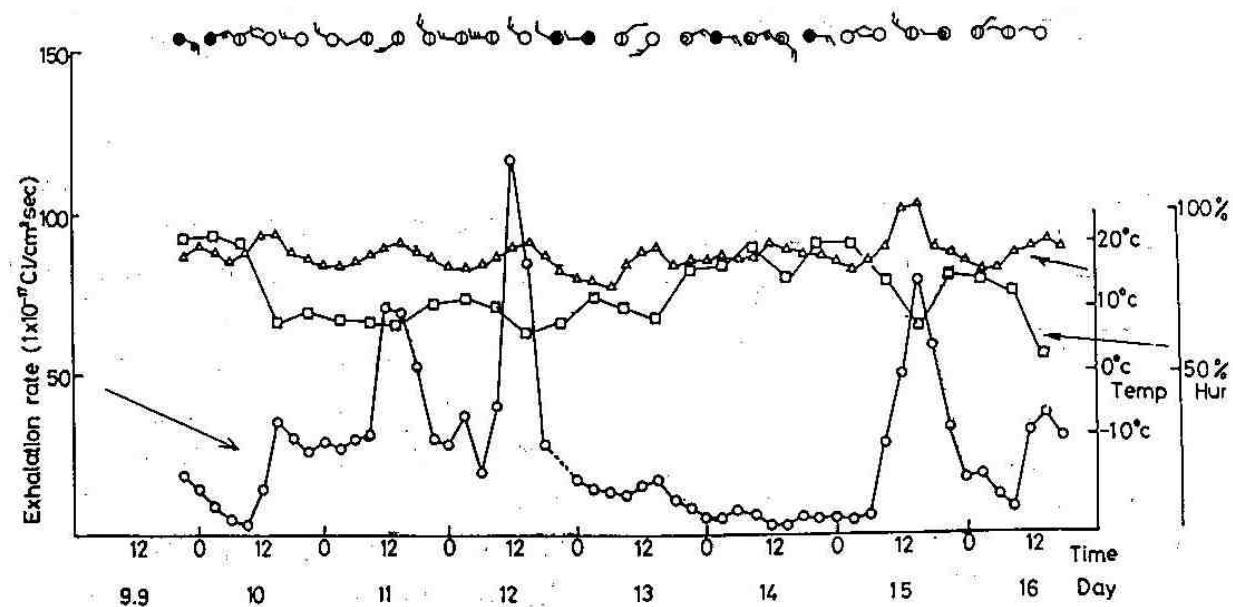


図2-8 ラドン娘核種循環モデル

解度が大きいため減少する。さらに北国のように雪によって大地が覆われたり、地表面が凍結するようなところでは減少する。その一例を図2-9に示した。雨が降って地面がぬれると減少しているのがよくわかる。

地表面より発散したラドンは大気中に拡散していくのであるが、大気中のラドン濃度は一般に大きく変動し、かつ海上や堆積層の上よりは火成岩地帯の方が濃度が高い。その要因の第1は発生源である地表面からの発散率が上述のように土壤および気象学的因素の影響を受け変動しているためであり、第2には気団に伴って輸送されることからその地域を通過する気団の経歴によって大きな影響を受けるからである。静穏日における日変化には周期性がみられ、最高濃度は早朝に現われ午後遅く最低となる変動傾向を示す。この日変化は多くの要因により生じるものであり、地面からの発散は地面の温度が上昇し空気の動きが活発化する午後に増加するが、これは大気が安定している早朝にはあまり寄与しないためである。又季節変化も地域によって顕著にみられ、この場合には、

図2-9 室蘭工大の露場における²²²Rnの発散率の変化(1986年9月)

土壤中の水分量の変動、凍結、積雪、気団の差異が重要な要因となって生じるものである。

陸地起源のラドンは、季節によっては洋上はるか遠方まで輸送される。ラドンとその娘核種は地面より発散後、前述のように大気中に拡散していく、娘核種それぞれの寿命がわかっているので、大気拡散、気団のエイシング（時間経過）、上層大気の混合などを知るためのトレーサ（追跡指標）として利用されている。

これらの裏づける資料として、日変化、季節変化、地上より洋上へ拡散する様子を示す測定例を

図2-10～図2-14に示した。図2-10では、日変化と月別変化の様子が明瞭にみられる。又図2-11ではニセコという積雪地における特異な変動状態がみられるし、さらに図2-12と図2-13を比較することから、名古屋（西日本）が室蘭（北海道、東北地域）より平均濃度が高いこと、冬期において変動差が著しいことなどがわかる。図2-14では冬期季節風が卓越する頃、アジア地域起源のラドンが洋上はるか遠方まで輸送されていることがわかる。

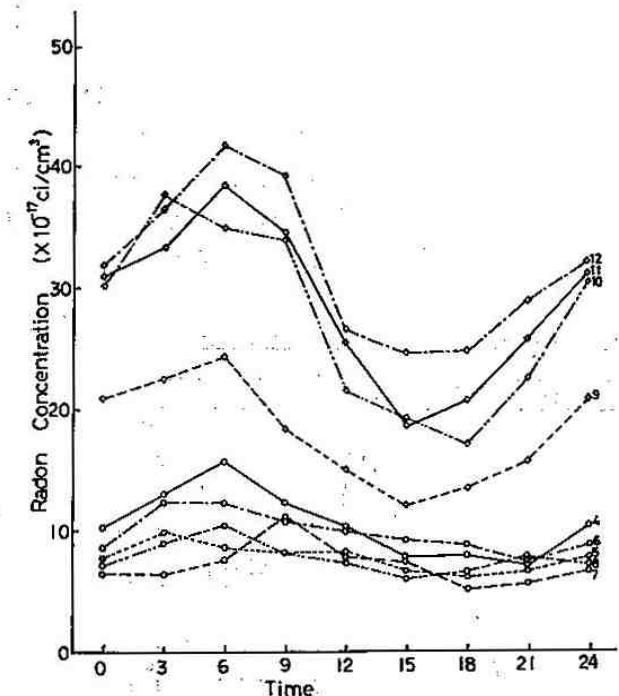


図2-10 東京の都心部（神楽坂）における ^{222}Rn の日変化と月別変動（図中数字は各月を示す）

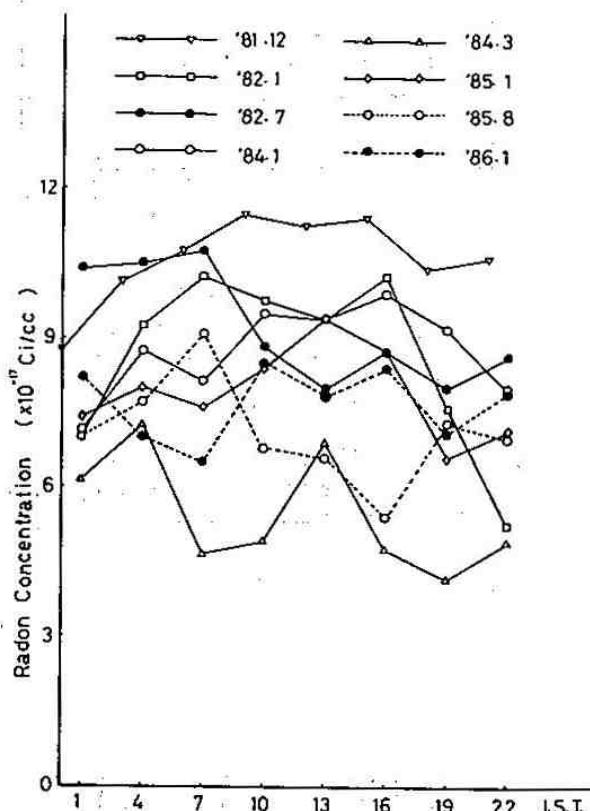


図2-11 北海道ニセコにおける ^{222}Rn の日変化と季節変動（夏及び冬）

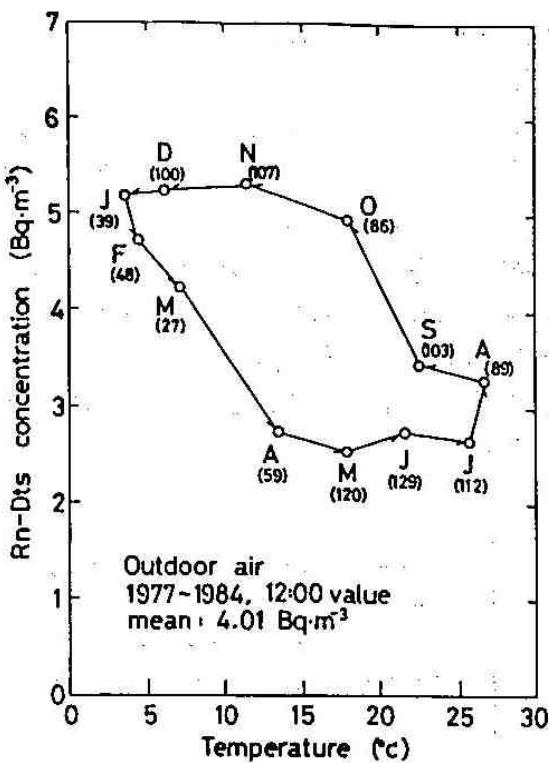


図2-12 名古屋におけるラドン娘核種の季節変動を示す radioclimograph (図中の数字は測定数、ラドン娘核種と気温との相関図)

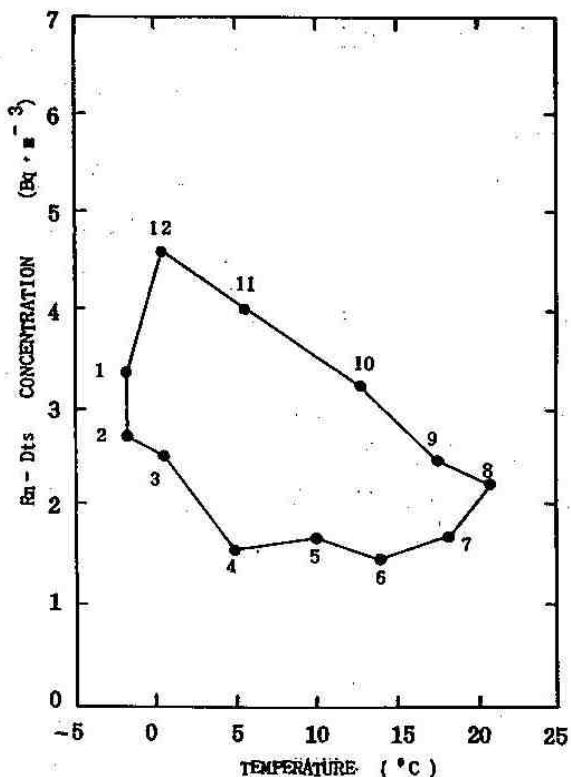


図2-13 室蘭におけるラドン娘核種の季節変動を示す radioclimograph (図中の数字は各月を示す)

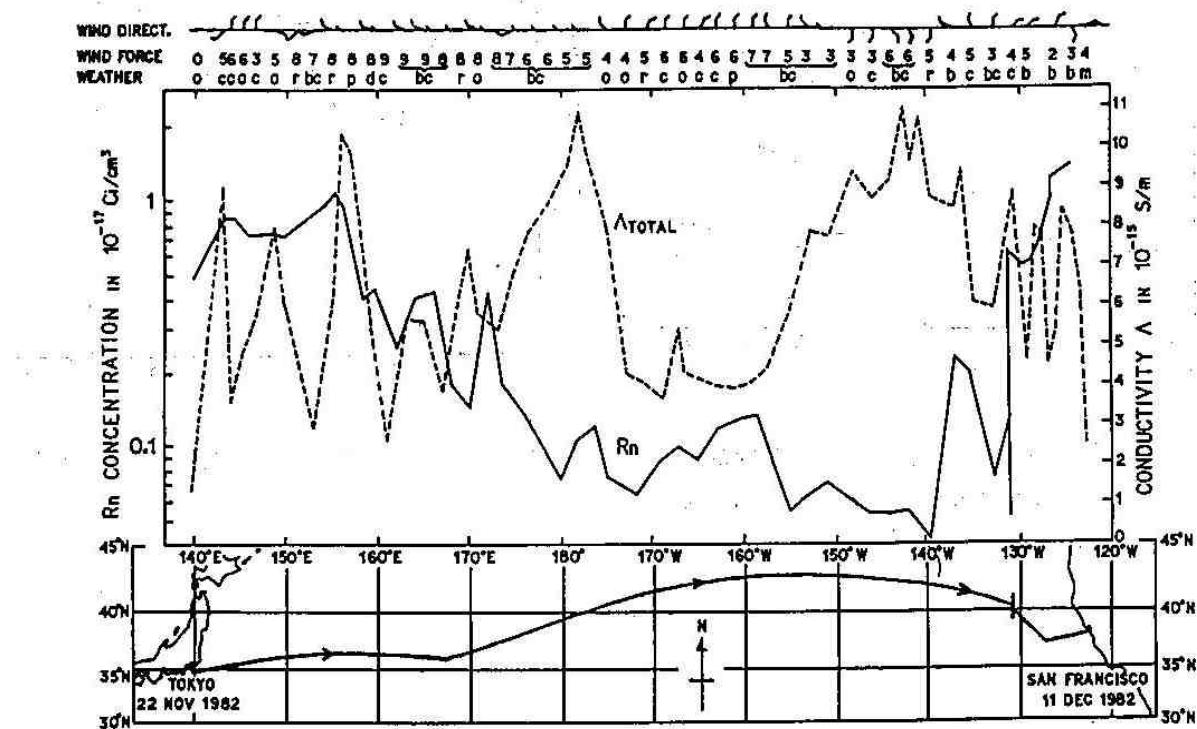
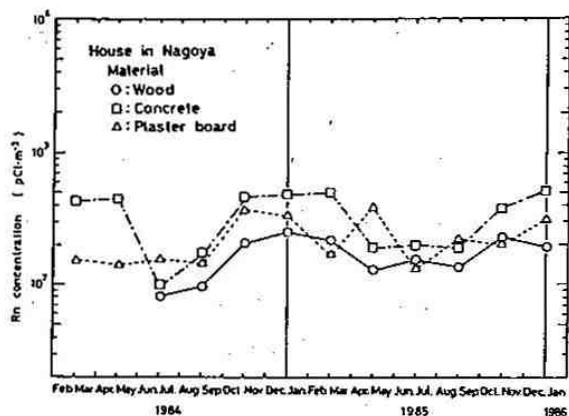


図2-14 1982年11月末から12月初旬における北太平洋における ^{222}Rn の濃度変化
(船による洋上観測)

今回は試料として、室内空気中のラドンとその娘核種をとりあげたので、最後に室内空気中のラドン濃度の例を紹介しておき、時間に余裕があつたら説明する(図2-15、表2-3)。

(a) 名古屋の住宅



(b) 札幌の住宅

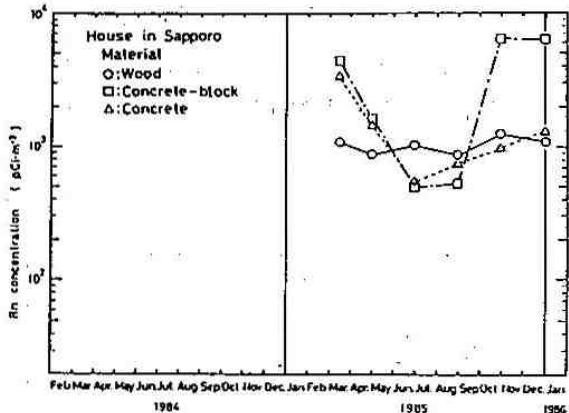


図2-15 一般家屋内のラドン濃度の例

表2-3 屋内ラドン濃度の例 [Bg/m³]

平均的な値		備考(建材など)
カナダ	5.2-51 10-96	特に高められていると考えられる地域
ノルウェー	48 74 37	木材 コンクリート レンガ
西ドイツ	25 14 12 8.3 20	コンクリート基礎混和建材 砂岩 レンガ 気泡コンクリート 軽量建材
ボーランド (集合住宅)	2.2-28 2.1-9.4 2.4-19 2.3-17	種々のコンクリート 木材 石灰岩 粘土
スウェーデン (集合住宅) (戸建)	4.4-52 170 (140) 180 (160) 56 200 270 410	スラッグとセメント コンクリート(換気装置ON) コンクリート、砂岩、気泡コンクリート 木造、レンガ 木材、気泡コンクリート(地盤) 気泡コンクリート)自然換気 木造

あとがき

かぎられた時間と紙面で、十分、詳しく説明できなかったが、我々の身辺に放射性物質があること、これらの崩壊にともなう放射線にさらされていること、測定を通しての自然の放射性物質の性質の一端、自然の放射性物質は気象状態と大きな関係があり、気象状況により変動することなどが理解されたら幸いに思います。

【参考文献】

1. M.アイゼンバット著、阪上正信監訳：環境放射能第2版