

自発核分裂による大気中の放射性クリプトン Radiokrypton Originated by Spontaneous Fission

井 上 一 正

Abstract

The natural radiokrypton in the atmosphere originated by spontaneous fission is calculated, assuming that a part of ^{85}Kr generated in the sea water and on the surface of the ground is released into the atmosphere. It is estimated that the krypton activity by spontaneous fission may be less than 1.6×10^{-9} pCi per gram of air.

I 序 言

大気中に含まれる放射性クリプトン (^{85}Kr : 半減期10.76年)⁽¹⁾ には、天然の放射性クリプトン (自発核分裂により発生し永年放射平衡にあるもの) と、人工放射性クリプトン (原子力工業施設および核爆発実験等によるもの) に区分される。後者の人工放射性クリプトンは原子力工業の稼働容量・時間、廃棄物処理方法により変化するが、天然放射性クリプトンは常時おおむね一定の値をもつものと考えられる。

著者らはさきに T. Suzuki and K. Inoue; "Radiokrypton in the Atmosphere", Journal of Nuclear Science and Technology, Vol. 9, 55(1972) において大気中の放射性クリプトンの測定結果を発表したが、ウラン・トリウム自発核分裂すなわち外からのエネルギーの供給なしに量子力学的効果による核分裂によって発生する ^{85}Kr の量については詳述していないので本誌によりその計算結果を報告する。

II 自発核分裂による放射性クリプトンの量

重い原子核はたくさんの陽子を含み、それらの間に働く電氣的斥力のために安定性が低くなり、より小さい2つの原子核 (同程度の質量) に分裂しようとする傾向をもっている。天然放射性物質の核分裂活性エネルギーは約 5 Mev 以上のため、量子力学的トンネル効果による自発核分裂の確率は小さくその半減期は $t_{1/2}$ (SF) は非常に大きい。現在までに測定されている放射性物質の $t_{1/2}$ (SF) は第1表のとおりである。

自発核分裂も主に重い核種で生ずる。ここでとりあげる核種は天然に存在するウラン (U) とトリウム (Th) であるが、これらはある半減期をもってアルファ崩壊をし、最終的には鉛の同位体になる。それらの放射平衡によって成生される ^{230}Th (ウラン系列) と ^{221}Pa (アクチニウム系列) についても考慮してみた。天然の放射性クリプトン (^{85}Kr) の生成過程は、すべてこれらの核種の自発核分裂によるものである。自発核分裂によるクリプトンの量 (自発核分裂収量) は、 ^{232}Th については Wetherill⁽²⁾ が、 ^{238}U については Young と Thode⁽³⁾ が報告している (第2表)。質量数85の ^{85}Kr については報告されていないので、内挿法によって求めると ^{232}Th では約 0.5%, ^{238}U では約 0.4% と推算さ

第1表 各核種の諸数値

核 種	同位体存在比(%)	アルファ崩壊の 半減期 $T_{1/2}$ (年)	崩壊定数 λ (秒 ⁻¹)	自発核分裂の半 減期 $t_{1/2}$ (SF)(年)	自発核分裂の崩 壊定数 λ_{SF} (秒 ⁻¹)
²³⁸ U	99.276	4.51×10^9	4.87×10^{-18}	6.5×10^{15}	3.38×10^{-24}
²³⁵ U	0.719	7.10×10^8	3.09×10^{-17}	1.9×10^{17}	1.16×10^{-25}
²³⁴ U	0.005	2.47×10^5	8.09×10^{-14}	2×10^{16}	1.10×10^{-22}
²³² U		72	3.05×10^{-10}	8×10^{13}	2.75×10^{-22}
²³¹ Pa	アクチニウム系列	3.25×10^4	6.76×10^{-13}	$>10^{16}$	$<2.00 \times 10^{-24}$
²³² Th	100	1.41×10^{10}	1.56×10^{-16}	$>10^{21}$	$<2.00 \times 10^{-29}$
²³⁰ Th	ウラン系列	8.00×10^4	2.75×10^{-13}	1.5×10^{17}	1.46×10^{-25}

第2表 自発核分裂収量 (%)

核 種	²³² Th	²³⁸ U
⁸³ Kr	0.036	0.033
⁸⁴ Kr	0.180	0.122
⁸⁶ Kr	0.87	0.95

れる。⁸⁵Krは^{85m}Krの核異性体転移(nuclear isomer transition)によるものでその分岐比は23%⁽¹⁾である。したがって²³²Thと²³⁸Uの自発核分裂による⁸⁵Krの核分裂収量は、それぞれ0.12%と0.09%になる。実際に²³²Thと²³⁸U原子1個からは、それぞれ $2.53 \times 10^{-32}/1$ トリウム原子/1秒($\lambda_{SF}N \times 0.12\%$), $3.04 \times 10^{-27}/1$ ウラン原子/1秒($\lambda_{SF}N \times 0.09\%$)の割合で⁸⁵Krが生成される。その他の核種については同位体存在比、自発核分裂の崩壊定数 λ_{SF} の比から、またアル

ファ崩壊の放射平衡を考慮しても無視できるほど小さい。トリウムについては土壤中の存在度(9.6重量ppm)がウランよりも大きいので計算をおこなった。

$$\left[\frac{\lambda_{SF} \times N(^{232}\text{U})}{\lambda_{SF} \times N(^{238}\text{U})} = \frac{6.5 \times 10^{15}}{8 \times 10^{13}} \times \frac{72}{4.51 \times 10^9} = 1.3 \times 10^{-6} \right]$$

本報では、地球の全地表面から10m以内の深さまでに存在するトリウムとウランの寄与を考えた。この根拠は、大木の根が10m位の深さまで張り、木の水分・養分とともに葉から放出されるであろうことと、クリプトンがガス体であって短期間の内に地表面に達することが出来るものとして仮定した。

Ⅲ 地表附近からの放射性クリプトン

地球表面下10mまでの地球の体積は、地球の表面積を $5.10 \times 10^8 \text{ km}^2$ 、密度 2.67 g/cm^3 とすると $1.36 \times 10^{22} \text{ g}$ となる。その体積中に含まれる天然ウランは地殻存在度が2.7重量ppmより $3.8 \times 10^{16} \text{ g}$ である。そのうち²³⁸Uは $3.65 \times 10^{16} \text{ g}$ 、²³⁵Uは $2.65 \times 10^{14} \text{ g}$ 、²³⁴Uは $2.10 \times 10^{12} \text{ g}$ である。それぞれの原子数は 9.24×10^{37} 原子(²³⁸U 1原子の質量は $3.9526670 \times 10^{-22} \text{ g}$)、 6.78×10^{35} 原子(²³⁵U 1原子の質量は $3.9027401 \times 10^{-22} \text{ g}$)、 5.39×10^{33} 原子(²³⁴U 1原子の質量は $3.8860864 \times 10^{-22} \text{ g}$)である。

トリウム(²³²Th)に関しては、地殻存在度が9.6重量ppmであるので $1.31 \times 10^{17} \text{ g}$ となる。原子数は 3.39×10^{38} 原子(²³²Th 1原子の質量は $3.8526211 \times 10^{-22} \text{ g}$)である。

その結果地表附近の²³⁸Uと²³²Thから生成される⁸⁵Krの放射能は、²³⁸Uからに関し

ては、 $9.24 \times 10^{37} \times 3.04 \times 10^{-27} = 2.81 \times 10^{11}$ dps すなわち 7.59Ci ($1\text{Ci} = 3.7 \times 10^{10}$ dps), ^{232}Th からに関しては、 $3.39 \times 10^{38} \times 2.53 \times 10^{-32} = 8.57 \times 10^6$ dps すなわち 2.32×10^{-4} Ci もしくは $232\mu\text{Ci}$ である。

Ⅵ 海洋からの放射性クリプトン

海洋からの ^{85}Kr の寄与は主にウランからによる。海水中のウラン濃度は $1.4 \times 10^{-8} \text{mol/l}$ ($3.33\mu\text{g/l}$) と報告されている⁽⁴⁾。海水中の ^{238}U から生成される ^{85}Kr の放射能は、海洋の容積が $1.37 \times 10^{21} \text{l}$ であって ^{238}U の質量は $4.53 \times 10^{15} \text{g}$ となる。原子数は 1.15×10^{37} 原子である。したがって $1.15 \times 10^{37} \times 3.04 \times 10^{-27} = 3.49 \times 10^{10}$ dps すなわち 0.94Ci である。

Ⅶ 計算結果と考察

自発核分裂によって大気中に放出される ^{85}Kr はおもに ^{238}U による。そして地表面附近の ^{85}Kr と海洋中の ^{85}Kr の放射能 (8.53Ci) が全部大気中に放出されるならば、その濃度は常時空気 1 グラム中 $1.6 \times 10^{-9} \text{pCi}$ となる。この値は、実際に空気中の ^{85}Kr を測定する場合常に一定の値となって実測値に含まれるであろう。ちなみに著者らの測定値は空気 1 グラム中 $5.57 \times 10^{-4} \text{pCi}$ である (西ドイツ、リンデ社が1959年9月に空気中より分離したクリプトンガスで測定をおこなった)。

^{85}Kr は比較的長い半減期を持ち、かつまた不活性ガスであるためにいったん大気中に放出されると消滅するまでかなりの時間を必要とする。大気中の ^{85}Kr を測定することは、原子力エネルギーの利用に伴なり放射性気体廃棄物による空気の汚染度のモニタリング、またこれらによる自然放射線の増加により受ける国民の被曝線量等が推算出来る。本研究において数々のご助言をいただいた鈴木辰三郎教授に深謝いたします。

参考文献

- (1) Lbderer, C. M., Hollander, I. M., Perlman, I.: "Table of Isotopes", (9th Ed.), (1937), John Wiley & Sons, Inc., New Yonk.
- (2) Wetherill, G. E.: Phys. Rev., 92, 907 (1953)
- (3) Young, B. G., Thode, H. G.: Can. J. Phys., 33, 1 (1960)
- (4) 尾形昇, その他: 日本原子力学会誌 13[10].560 (1971)