

表 1 核反応でよく登場する“素粒子” [1]

分 類	名 称	記 号	静止質量		寿命/s；壊変モード
			MeV	u	
バリオン ^{a)} ： (核子)：S, P+, s=1/2	中性子	n	939.6	1.008 665	889；p+e ⁻ + $\bar{\nu}_e$
	陽子	p	938.3	1.007 276	安定
中間子：S, P-, s=0	K 中間子 (ケーオン)	K ⁺ , K ⁻	493.7	0.530 009	$\approx 10^{-8}$ ；K ⁺ → μ^+ + ν_μ , π^+ + π^0 など ^{b)}
	パイ中間子 (パイオン)	π^+ , π^0 , π^-	139.6 ^{c)}	0.149 867	$\approx 10^{-8}$ ； π^- → μ^- + $\bar{\nu}_\mu$ ^{b)}
レプトン ^{d)} ：W, P-no, s=1/2	ミュー粒子	μ^-	105.6	0.113 366	2×10 ⁶ ；→e ⁻ + $\bar{\nu}_e$ + ν_μ
	電子	e ⁻	0.5110	0.000 548 6	安定
	ニュートリノ	ν_e , ν_μ	0?	0?	安定
光子：電磁 相互作用, P-no, s=1	光子, ガンマ	γ	0	0	安定

S=強い相互作用；W=弱い相互作用；P±=パリティが保存される，±符号はパリティの符号；
no=パリティが保存されない；s=スピン量子数，これらのすべての粒子には反粒子が存在する。
だし，光子と π^0 を除く，これらはそれ自身が反粒子でもある。

a) バリオンは核子 (n と p)，ハイペロン (奇妙な“バリオン”ともよばれる， Λ^0 の質量 (m_0)
1116 MeV， Ω^- は 1673 MeV，寿命は 10⁻¹⁰ s のオーダーである) およびすべての核を含む。

b) K⁻と π^+ は同様に対応する反粒子に壊変する。

c) π^0 の静止質量は 135.0 MeV である。

d) 表 10.2 もみよ。

(2) 宇宙線による核種生成

- 大気の宇宙線照射によって生成する中性子や陽子は、N₂、O₂、Arなどと反応し、放射性核種を生成する。(表 2) (30 p の表 3 も参照)

(a) 隕石および雨水中にみられる長寿命の宇宙線生成核種

核 種	半減期/y	壊変形式および 粒子のエネルギー/MeV	大気中での生成速度 atoms m ⁻² s ⁻¹
³ H	12.32	β^- 0.0186	2500
¹⁰ Be	1.52×10 ⁶	β^- 0.555	300
¹⁴ C	5715	β^- 0.1565	17 000~25 000
²² Na	2.605	β^+ 0.545	0.5
²⁶ Al	7.1×10 ⁵	β^+ 1.16	1.2
³² Si	160	β^- 0.213	1.6
³⁵ S	0.239(87.2 d)	β^- 0.167	14
³⁶ Cl	3.01×10 ⁵	β^- 0.709	60
³⁹ Ar	268	β^- 0.565	56
⁵³ Mn	3.7×10 ⁶	EC(0.596)	
⁸¹ Kr	2.2×10 ⁵	EC(0.28)	

EC の後の括弧の値は壊変エネルギー。

(b) 雨水中にみられる短寿命の宇宙線生成核種

核 種	半減期	壊変形式および 粒子のエネルギー/MeV	核 種	半減期	壊変形式および 粒子のエネルギー/MeV
⁷ Be	53.28 d	EC(0.862)	³² P	14.28 d	β^- 1.710
²⁴ Na	14.96 h	β^- 1.389	³³ P	25.3 d	β^- 0.249
²⁸ Mg	21.0 h	β^- 0.459	³⁹ Cl	55.6 min	β^- 1.91

括弧内の値は壊変エネルギー，生成速度 (atoms m⁻² s⁻¹)：⁷Be 81，³⁹Cl 16

- 低い濃度でしか生成されないが、地球規模では少なくない量。
- 地球圏の貯留系（大気、海洋、湖沼、土壌、植物など）では、生成速度と消滅速度は同じとなり、いずれの貯留系においても元素の比放射能は一定である。
- もし、この貯留系が周りの環境から閉鎖されると、比放射能は減少する。
→隕石が宇宙線にさらされている時間の決定。海底堆積物（ ^{10}B 、 ^{26}Al を用いる）、地下水（ ^{36}Cl ）、氷河（ ^{10}Be ）、死んでいる生体物質（ ^{14}C ）などの年代決定。
宇宙線起源の短半減期核種は、大気の混合と沈降過程に関する天然のトレーサーとして使用される。

トリチウム

- 衛星による観測→地球は太陽が放出したトリチウムを受けている。
- より大量のトリチウムが次の反応により大気中で生成される。
$$n(\text{速}) + {}^{14}\text{N} \rightarrow {}^{12}\text{C} + {}^3\text{H}$$

地表で $\sim 2500[\text{個}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}] \cdots$ 全地球で $1.3 \times 10^{18}[\text{Bq}]$
- 半減期 12.3[年]、 β^-
- 生成したトリチウムは、すぐに水に取り込まれ、地球上の水循環系に加わる。大気中の平均滞在時間 ~ 2 [年]
- U の核分裂でも生成される。原子力施設（とくに再処理施設）より一部放出。
- 1950～1960 年初頭、大気圏内、水素爆弾実験→地表に大量のトリチウム注入。1962 年の最終実験までに $2.6 \times 10^{20}[\text{Bq}]$
- 1952 年（第 1 回目水爆実験）以前は、水の年代測定（いつ大気との接触がなくなったか）に役立つ。現在はできない。

^{14}C

- 様々な反応によって大気中に生成される。
もっとも重要なものは、
$$n(\text{速}) + {}^{14}\text{N} \rightarrow {}^{14}\text{C} + {}^1\text{H}$$

 $\sim 22,000[\text{個}/\text{m}^2 \cdot \text{sec}] \cdots$ 全地球で年間約 1[PBq]、所有量 $\sim 8500[\text{PBq}]$ （ $\sim 75[\text{ton}]$ ）
このうち、約 140[PBq]は大気に溜まり、残りは地球上の物質に取り込まれる。生体物質（体内組織を含む）は約 227[Bq/kg]を含有。
- 半減期 5715[年]、 β^-
- 核実験でも $n + {}^{14}\text{N} \rightarrow {}^{14}\text{C} + {}^1\text{H}$ で生成。
- 1～2 年で環境中の他の炭素と平衡状態になる。
- 化石燃料（ほとんど ^{14}C を含まない）の燃焼は、環境中の CO_2 を増大させる。→ ^{14}C の比放射能を減少させる。
- 環境中の全ての人類起源の ^{14}C を考えると、現在 $13.56 \pm 0.07[\text{dpm}/\text{g} \cdot \text{C}]$ 。

7.2 原始の放射性核種

※「3. 天然放射性核種」も参照

(1) 鉛より軽い長半減期核種

- 検出法の進歩→自然界での多くの長半減期核種の確認
- 太陽系や地球の誕生と同じくらいの時期に生成。地殻が固まったとき、岩盤環境に閉じ込められた。放射線年代測定。

(2) 天然放射壊変系列

- トリウム系列 ($4n$)

天然Th… 100%

$$^{232}\text{Th } 1.41 \times 10^{10} [\text{y}], 4.06 [\text{MBq/kg}]$$

- ウラン系列 ($4n + 2$)

^{238}U 天然存在度 99.3% , $4.46 \times 10^9 [\text{y}], 12.44 [\text{MBq/kg}]$

天然U

^{238}U 99.2745%

^{235}U 0.7200%

^{234}U 0.0055%

25.4[MBq/kg]

ウラン系列は、Ra, Rn(ガス), Poを供給。

- アクチニウム系列 ($4n + 3$)

^{235}U , $7.04 \times 10^8 [\text{y}], 8 \times 10^4 [\text{MBq/kg}]$

表 3 Z < 82(Pb)の原始の放射性核種 [1]

核 種	同位体存在度 (%)	壊変形式および粒子のエネルギー/MeV	半減期/y
^{40}K	0.0117	β^- EC 1.31	1.26×10^9
^{90}Y	0.250	β^- EC(0.601)	$> 1.4 \times 10^{17}$
^{87}Rb	27.83	β^- 0.273	4.88×10^{10}
^{115}In	95.72	β^- 1.0	4.4×10^{14}
^{123}Te	0.905	EC(0.052)	1.3×10^{13}
^{138}La	0.092	β^- EC	1.06×10^{11}
^{144}Nd	23.80	α	2.1×10^{15}
^{147}Sm	15.0	α 2.23	1.06×10^{11}
^{148}Sm	11.3	α 1.96	7×10^{15}
^{176}Lu	2.59	β^- (1.188)	3.8×10^{10}
^{174}Hf	0.162	α	2×10^{15}
^{187}Re	62.60	β^- 0.0025	4.2×10^{10}
^{190}Pt	0.012	α	6.5×10^{11}

括弧内の値は壊変エネルギー。

7.3 天然の超ウラン元素とネプツニウム壊変系列

- ネプツニウム系列 ($4n + 1$)

^{237}Np , $2.14 \times 10^6 [\text{y}]$ 、地球年代よりもかなり短い。原始の ^{237}Np は地球上に存在しない。しかし、ウランやトリウムを含む鉱物中では存在する。 ^{238}U の自発核分裂で生成される中性子や、鉱物中でのウランやトリウムとの(α, n)反応や(γ, n)反応による中性子による(n, γ)反応+ β 壊変で。ピッチブレンド（瀝青ウラン鉱、約 50%の U を含有）中の中性子の生成率は $50 [\text{n/kg} \cdot \text{sec}]$

7.4 トリウム

- ^{232}Th 100%
- 天然では、ウランよりもいくぶん多い。
地殻の平均含有量 10[ppm] (鉛：16[ppm])
海水のトリウム含有量 $< 0.5 \times 10^{-3} [\text{g}/\text{cm}^3]$ ウランより少ない
- トリウム鉱物：モナザイト
インド、エジプト、南アフリカ、米国、カナダに多い。
- 金属トリウム
放電灯の電極材料、高真空技術での残留ガスの吸着材
- ThO_2 (m.p. 3300°C)・・・高い耐熱性、高温炉の内張
- 将来トリウム増殖炉に使用

7.5 ウラン

- 天然ウラン・・・弱い放射線障害を起こす可能性。化学的毒性もあり、ウラン塵の吸収は予防すべき。
- ウランは様々な鉱物中に含まれる（～60 種類）。地殻には 3～4[ppm]（ヒ素やホウ素と同程度）
- ウラン鉱物の生成
17 億年前、大気が酸化されるにつれて岩石の割れ目や細孔に雨が侵入。ウランを 6 価状態にして（炭酸錯体 $[\text{UO}_2(\text{CO}_3)_n]^{2-2n}$ や硫酸錯体 $[\text{UO}_2(\text{SO}_4)_n]^{2-2n}$ ）溶出。
→下流へと移行。還元剤である無機物質（ex.黄鉄鉱）や、有機物質（ex.フミン酸）が存在する領域に遭遇。
→ウランは 4 価に還元。ほとんどの 4 価ウランの化合物は不溶性
→硫化物あるいは水酸化物として沈殿
- ほとんどの鉱物中でウランは 4 価
センウラン鉱 50～90%ウラン含有量
カルノー石（バナジン酸ウランカルシウム） 54%

7.6 環境中のラジウムとラドン

- $^{238}\text{U} \rightarrow ^{226}\text{Ra}, ^{222}\text{Rn}$

気体、ラドンとその子孫核種は地下水や大気の放射線源

地面からのラドンの平均放出率	5～50[mBq/m ² ・sec] 状態によってばらつきあり（地下の岩石 etc）
地表付近のラドン濃度	1～10[Bq/m ³]
室内の空気のラドン濃度	1～1000[Bq/m ³] 立地と建築材に依存。 換気、床、隙間

➤ 石炭

少量のウランを含む。4~300[kBq/t]。標準20[kBq/t]。

石炭が燃えると、揮発性の子孫核種の化合物は大気に放出される (Rn など)。揮発しにくいものはフィルターに吸着。

7.7 放射線壊変による年代測定

➤ 放射能による年代測定手法の画期的な進歩

➤ 原子時計 (nuclear clock)

➤ 半減期の比較的短い宇宙線生成核種

最近に形成された物質の年代の決定に利用。

^3H (12.2[年]) : 地殻の水の動き

^{24}C (5700[年]) : 考古学的関心のある物質について

➤ 実質的には、全ての原始から存在する放射性核種は、地質物質の年代測定に利用可。

$^{40}\text{K}/^{40}\text{Ar}$: 火成岩

$^{87}\text{Rb}/^{87}\text{Sr}$: 変成岩や堆積岩

$^{147}\text{Sm}/^{143}\text{Nd}$: 造岩鉱物

$^{187}\text{Re}/^{187}\text{Os}$: 硫化物、隕鉄のような金属物質

➤ ^{14}C による年代決定

□ 少なくとも、ここ 100 万年については、大気中の ^{14}C の生成は一定と考えられる。

→大気中の ^{14}C の生成と壊変間に平衡

□ ^{14}C の半減期は、大気、海洋 (海底堆積物を含む)、自然物質の交換可能な炭素間で平衡になるのに十分長い。

→炭素の比放射能の測定から、いつその試料が自然環境体系から分離されたかがわかる。

□ リビーの仮定 (生体物質の年齢を決定する方法)

① 宇宙起源の ^{14}C の生成速度は一定

② 人類起源の ^{14}C 量は、宇宙起源のものに比べて無視できるくらい小さい

③ 生体物質内の有機体が死んだあとは、炭素原子が周囲の原子と交換しない

→このような物質中では、 ^{14}C の原子数は、その半減期に従って減少する。

□ 分析には、細心の注意と高性能な設備が必要。新しい年代ほど比放射能が大きくなるので、より正確に決定できる。(300~50,000 年前の試料を 10~100 年の誤差で)

□ むかし、 $\text{C} \rightarrow \text{CO}_2 \rightarrow$ 内部 GM 計数管

その後、 $\text{C} \rightarrow \text{CH}_4 \rightarrow$ 内部比例計数管

現在、最も感度の高い測定法は、試料をタンデム型ヴォンデグラフ加速器のイオン源に導入し、質量分析により $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ を測定する方法である。

7.8 海洋の天然放射能

海洋中での 全²³⁸U 量 : 4.3×10^{12} [kg]
全²³²Th 量 : 6.9×10^{10} [kg]

- 海は、岩石中の存在割合から予測されるよりはるかに高い濃度のウランを含む。トリウムは岩石中にはウランよりも多くあるが、海洋中の濃度はウランのほうがはるかに高い。(トリウムは易溶性の錯体をもたない)
- 表層水中の²²²Rn と²²⁶Raとは非平衡
⇔ラドンが熱や乱流などで放出
- 海洋中の全⁴⁰Kは 74×10^{12} [kg]・・・海洋の最大放射能源
- 少量ではあるが、³H…HTO、¹⁴C…CO₂や HCO₂⁻として存在

7.9 天然における人工放射能

- 試料中の天然放射能について分析する際には、その試料が人工の放射性物質によって汚染されていないかどうかの可能性を考える必要がある。
- 核兵器実験、大気中での原子力人工衛星の焼失、原子力発電所の事故等による放射能の放出

(1) 核兵器

- 1990 年まで大気圏内で実施。微量のプルトニウム同位体を含む。
FP の全放出量は 2×10^{20} [Bq]。
対流圏に入った破片の平均滞留時間は約 30 日。
→実験場の近くでフォールアウト、破片の一部は対流圏を超えて成層圏に入った(地球を周回)。
成層圏での滞留時間は、3~24 カ月、緯度に依存。

表 4 大気中の放射性核種が大量に放出されたできごと [1]

できごと	国	発生年	放射能/Bq	主要核種
広島、長崎	日本	1945	4×10^{16}	FP, アクチノイド
大気圏内核実験	米国, 旧ソ連	1963 まで	2×10^{20}	FP, アクチノイド
ウィンズケール	英国	1957	1×10^{15}	¹³¹ I
チェリヤビンスク (キシュテム)	旧ソ連	1957	8×10^{16}	FP, ⁹⁰ Sr, ¹³⁷ Cs
ハリスバーグ	米国	1979	1×10^{12}	希ガス, ¹³¹ I
チェルノブイリ	旧ソ連	1986	2×10^{18}	¹³⁷ Cs

FP: 核分裂生成物。

- 大気圏内核実験、1990 年終了
→FP はその後壊変し、⁹⁰Sr、¹³⁷Cs、Pu、³H、¹⁴C のみ。トリチウム、¹⁴Cを除くと、地球上の自然放射能に比べれば、現在これらの核種の環境への寄与は無視できる。

(2) 原子力発電所の事故

- 1957 年、英国 Windscale : ガス冷却黒鉛炉で火災

放射性物質	放出量
¹³¹ I	700 [TBq]
¹³⁷ Cs	20 [TBq]
⁸⁹ Sr	3 [TBq]
⁹⁰ Sr	0.3 [TBq]

堆積した Cs 放射能 ≤ 4 [kBq/m²] → 現在は正常

□1979 年、米国スリーマイル島発電所（TMI）：部分的な炉心融解

FP はほぼ完全に格納容器内。Xe、Kr、I の一部が環境に放出。原子炉棟外での地表堆積なし。

□ 1986 年、旧ソ連チェルノブイリ原子力発電所：爆発、火災

数日間にわたり多量の FP とアクチノイドが放出。

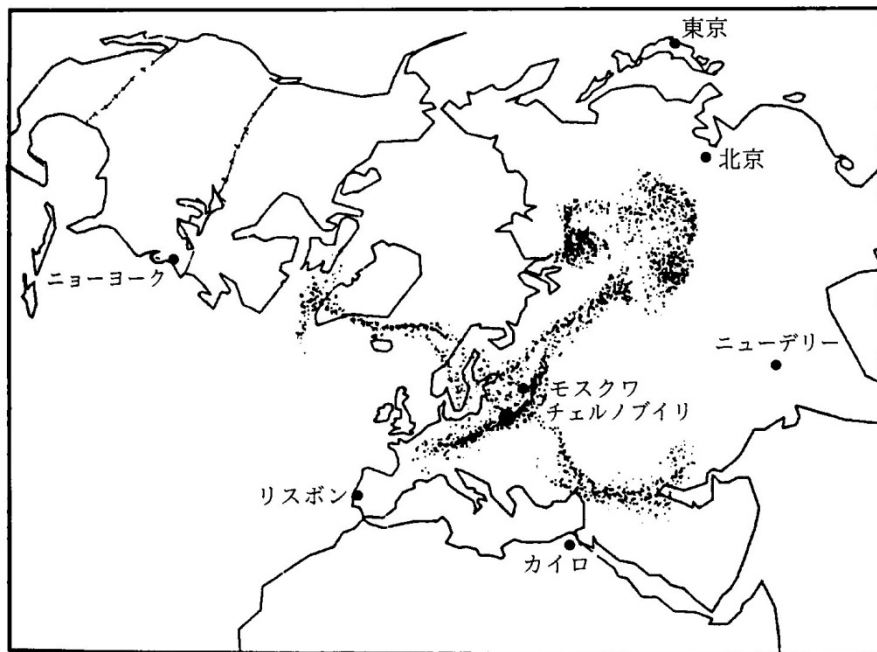


図 2 チェルノブイリからの放射能の拡散 [1]

土壌汚染の状況(単位面積あたりの^{134,137}Cs蓄積量、4/29現在の値に換算)

福島第一

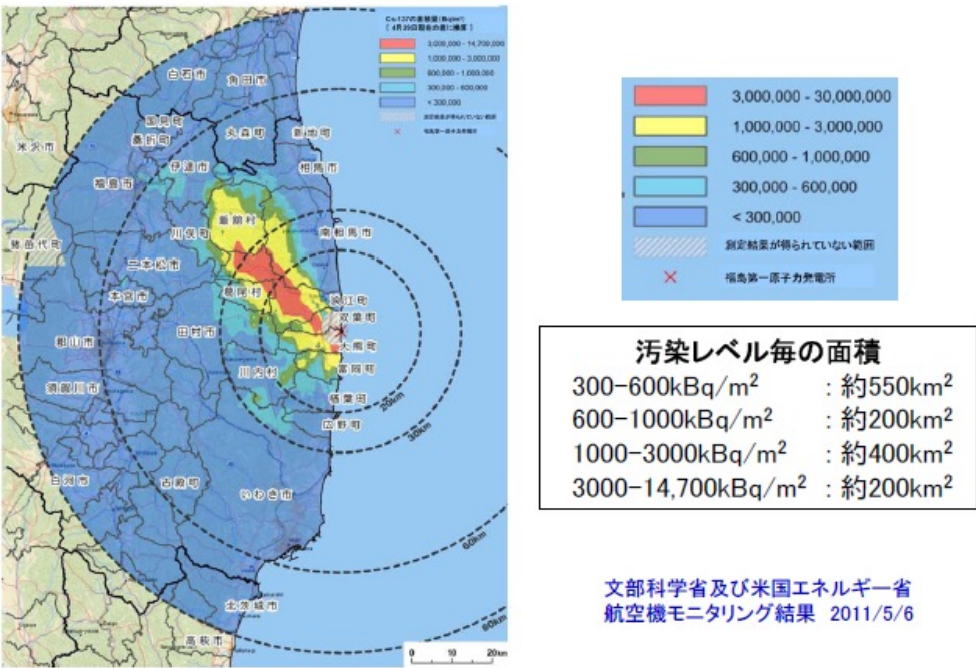


図 3 福島第一付近の土壌汚染 [3]

3. 土壌汚染の状況(単位面積あたりの沈着量)

チェルノブイリ

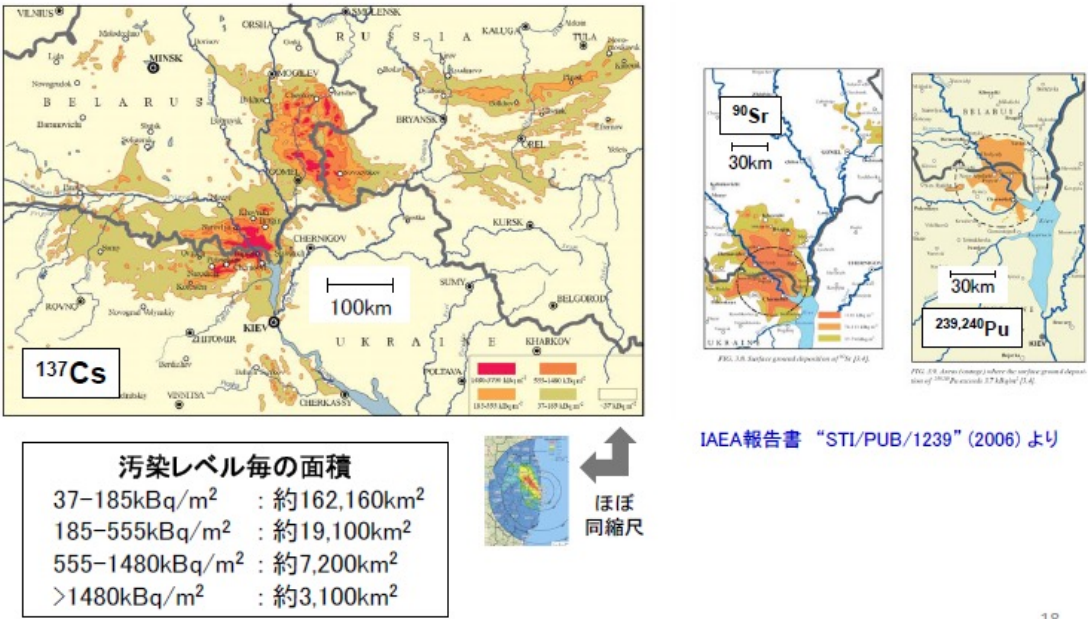


図 4 チェルノブイリ事故の土壌汚染 [3]

8. 環境中における放射性核種の挙動

- 事故時に放出された放射性核種の挙動
- 放射性廃棄物から漏出した放射性核種の挙動

FP（放射性廃棄物）
アクチノイド元素
→ 毒性の高い放射性核種を有する。

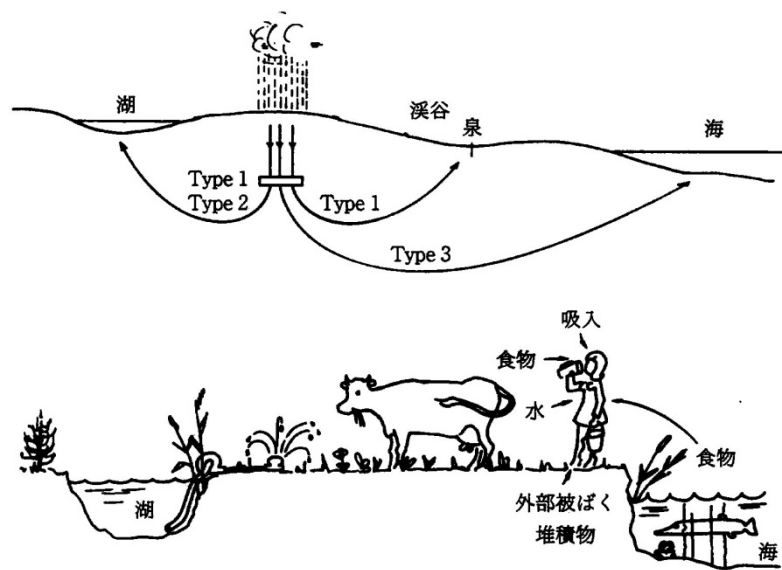


図 5 廃棄物貯蔵施設から人類までの放射性核種の移行経路 [1]

8.1 放射性核種の放出量と考えられる影響

表 5 1995～97 年の核燃料サイクルからの排出物で放出された放射性核種から受ける一般市民の集団線量 [1]

原因	規格化した集団実効線量 manSv GW _e ⁻¹ y ⁻¹
局地的な影響	
採掘	0.19
粗精錬	0.008
鉱さい (5 年を超えて放出)	0.04
燃料製造	0.003
原子炉の運転	
気体	0.4
液体	0.04
再処理	
気体	0.04
液体	0.09
運搬	<0.1
固体廃棄物と全地球的な影響	
鉱さい	
10 000 年を超えるラドン放出	7.5
原子炉の運転	
低レベル廃棄物の処分	0.000 05
中レベル廃棄物の処分	0.5
固体廃棄物の再処理	0.05
地球全体に分散する放射性核種 (10 000 年間で)	40

表 6 大気圏内核実験によって放出された放射性核種 [1]

放射性核種	半減期	推定放出量 総量/EBq	放射性核種	半減期	推定放出量 総量/EBq
³ H	12.33 y	186	¹²⁵ Sb	2.73 y	0.741
¹⁴ C ^{a)}	5730. y	0.213	¹³¹ I	8.02 d	675
⁵⁴ Mn	312.3 d	3.98	¹³⁷ Cs	30.07 y	0.948
⁵⁵ Fe	2.73 y	1.53	¹⁴⁰ Ba	12.75 d	759
⁸⁹ Sr	50.53 d	117	¹⁴¹ Ce	32.50 d	263
⁹⁰ Sr	28.78 y	0.622	¹⁴⁴ Ce	284.9 d	30.7
⁹¹ Y	58.51 d	120	²³⁹ Pu	24 110. y	0.006 52
⁹⁵ Zr	64.02 d	148	²⁴⁰ Pu	6560. y	0.004 35
¹⁰³ Ru	39.26 d	247	²⁴¹ Pu	14.36 y	0.142
¹⁰⁶ Ru	1.023 y	12.2			

気体ではない核分裂生成物については、⁹⁰Sr の堆積量から得られた全量 160.5 Mt という非局所的な核分裂燃焼率を総放出量を計算する際に仮定した。
a) 簡略のため、¹⁴C はすべて核融合によって生成したと仮定する。

放射性核種	原子炉からの放出/PBq	再処理による放出/PBq
希ガス	3631	3190
³ H	269	144
¹⁴ C	1.97	0.44
⁹⁰ Sr	—	6.6
¹⁰⁶ Ru	—	19
¹²⁹ I	—	0.014
¹³¹ I	0.046	0.004
¹³⁷ Cs	—	40
微粒子	0.121	—
その他	0.839	—
総量	~3900	~3400

放射線の影響に関する国連科学委員会
(United Nations Scientific
Committee on the Effects of Atomic
Radiation : UNSCEAR) による 2000
年の 1 人当たり平均年間放射線被ばく
線量 :

自然放射線	2.4[mSv]
医療診断	0.4[mSv]
核実験	0.005[mSv]
チェルノブイリ事故	0.002[mSv]
核燃料サイクル	0.0002[mSv]

核種	半減期	放出量		汚染 全 EBq	空気 (Bq m ⁻³) ストックホルム ^{a)}	汚染 地面 (kBq m ⁻²) Gävle 地区 ^{b)}
		全 EBq	%			
⁸⁵ Kr	10.73 y	0.033	≈100	0.033		
⁸⁶ Sr	50.5 d	0.094	4.0	2.4		
⁹⁰ Sr	28.6 y	0.0081	4.0	0.20		
⁹⁶ Zr	64.0 d	0.16	3.2	5.0	0.6	5.9
¹⁰³ Ru	39.4 d	0.14	2.9	4.8	6.4	14.6
¹⁰⁶ Ru	368 d	0.059	2.9	2.0	1.8	4.0
¹³¹ I	8.04 d	0.67	20	3.3	15	179
¹³³ Xe	5.24 d	1.7	≈100	1.7		
¹³⁴ Cs	2.07 y	0.019	10	0.19	2.4	14.4
¹³⁶ Cs	13.2 d				0.7	6.0
¹³⁷ Cs	30.2 y	0.037	13	0.28	4.5	24.7
¹⁴⁰ Ba	12.8 d	0.28	5.6	5.0	25.6	2.1
¹⁴¹ Ce	32.5 d	0.13	2.3	5.6	0.5	5.9
¹⁴⁴ Ce	284 d	0.088	2.8	3.1	0.3	3.7
²³⁹ Np	2.36 d	0.97	3.2	30		2.7
²³⁸ Pu	87.7 y	3.0×10 ⁻⁵	3	0.001		
²³⁹ Pu	24100 y	2.6×10 ⁻⁵	3	0.0009		
²⁴⁰ Pu	6570 y	3.7×10 ⁻⁵	3	0.0012		
²⁴¹ Pu	14.4 y			0.170		

参考 : ^{a)} 事故当初, 1986 年 4 月 28~29 日, ^{b)} Gävle 郊外の Ullbolsta, ロ
シア以外で堆積量をもっとも多かった都市の一つである, 1986 年 4 月 28 日
に放射線量の補正がなされた。

8.2 環境問題となる放射性核種

- 核分裂生成物
- アクチノイド元素 (²³⁶U、²³⁷Np、²³⁸⁻²⁴²Pu、²⁴¹Am など)
- 放射化生成物

放射性核種が人体に害を及ぼす可能性評価

→放射性核種の地球化学的、生物学的挙動

8.3 生体圏におけるアクチノイド化学

(1) 酸化還元挙動

- pH5~9 (天然水の pH 領域)
- An (アクチノイド)・・・水溶液中で II~VII 価の酸化状態をとるが、II、VII 価は生態系では生成しない。
- 酸化状態、還元状態で取る酸化状態が異なる。

←An の酸化還元電位によって決まる。

- pH は酸化還元挙動に著しく影響

^U III	-0.631 V -1.95±0.17 -2.78±0.35	^U IV	+0.613 V +0.08±0.12 -0.03±0.24	^U V	+0.063 V -0.23±0.05 -0.69±0.24	^U VI
			+0.338 V -0.07±0.06 -0.36±0.12			
^{Np} III	+0.155 V -1.13±0.14 -1.88±0.24	^{Np} IV	+0.739 V +0.15±0.13 -0.09±0.24	^{Np} V	+1.136 V +0.81±0.08 +0.38±0.24	^{Np} VI
			0.938 V +0.48±0.09 +0.15±0.12			
^{Pu} III	+0.962 V -0.39±0.15 -1.04±0.24	^{Pu} IV	+1.170 V +0.70±0.12 +0.52±0.24	^{Pu} V	+0.916 V +0.60±0.04 +0.16±0.24	^{Pu} VI
			+1.043 V +0.65±0.08 +0.34±0.12			

元 素	酸 化 状 態
⁸⁹ Ac	(2) 3
⁹⁰ Th	[(2)] [(3)] 4
⁹¹ Pa	[(3)] 4 5
⁹² U	3 4 5 6
⁹³ Np	3 4 5 6 7
⁹⁴ Pu	3 4 5 6 7
⁹⁵ Am	[2] 3 4 5 6
⁹⁶ Cm	(2) 3 4
⁹⁷ Bk	[(2)] 3 4
⁹⁸ Cf	(2) 3
⁹⁹ Es	(2) 3
¹⁰⁰ Fm	2 3
¹⁰¹ Md	(1) 2 3
¹⁰² No	2 3
¹⁰³ Lr	3

太字の状態は最も安定な酸化状態
括弧 () 内の真の酸化状態は不明
括弧 [] 内の酸化状態は固体状態のみで存在

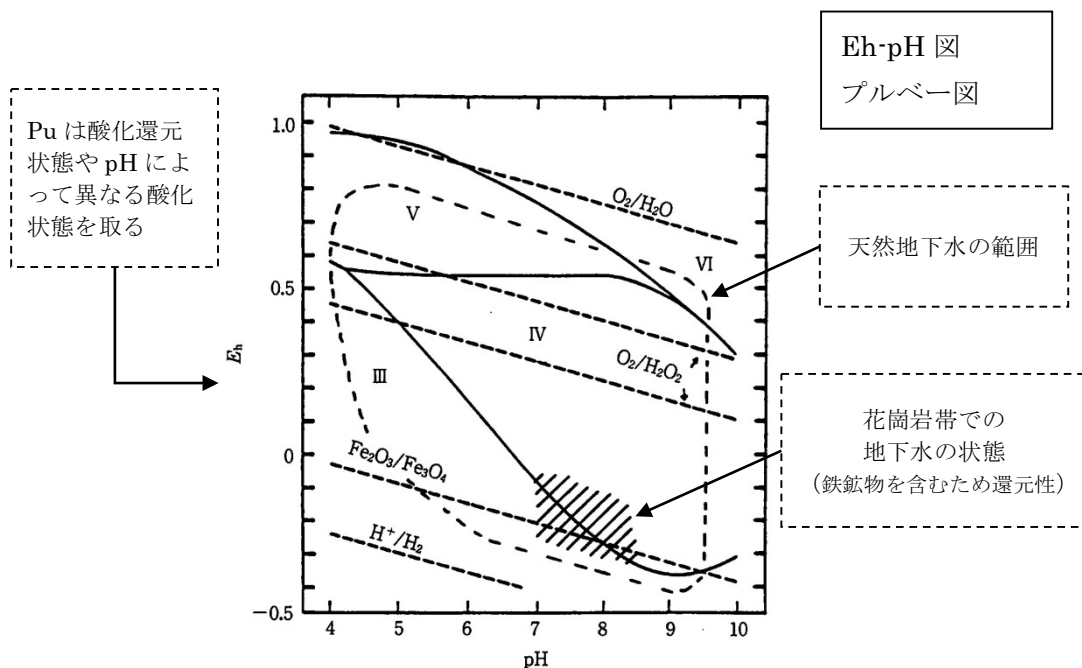
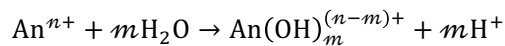


図 7 Pu^{III}、Pu^{IV}、Pu^{VI}の安定領域を示したE_h - pH (プルベール) 図。

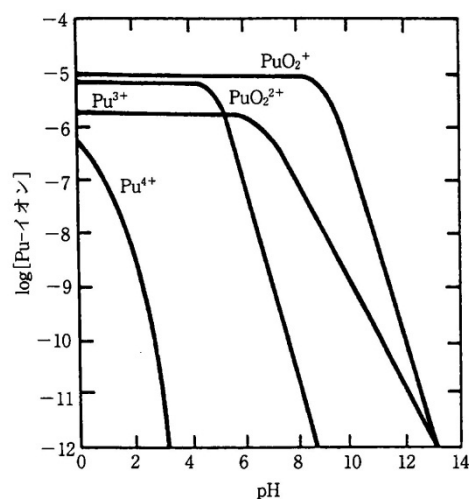
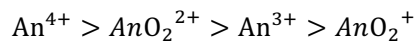
線上においては二つの酸化状態の濃度が等しい。 [1]

(2) 加水分解

加水分解は天然水中でのアクチノイドの挙動について重要な要因



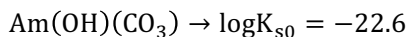
平衡定数：安定度定数



(3) 溶解度

- 沈殿性の錯体を形成すると溶解度が低下する。
- 海水中および天然水中で溶解度を制限するのは、通常、炭酸塩か酸化状態、pH、炭酸塩濃度に依存する水酸化物

(例) $\text{Am}(\text{OH})_3(\text{c})$ の溶解度積 ($\log K_{s0} = -26.6$)、 $K_{s0} = [\text{Am}^{3+}][\text{OH}^-]^3$



pH6 において、 $[\text{CO}_3^{2-}]_{\text{free}} > 10^{-12}[\text{M}]$

pH8 において、 $[\text{CO}_3^{2-}]_{\text{free}} > 10^{-18}[\text{M}]$ であれば

Am^{3+} の溶解度は $\text{Am}(\text{OH})(\text{CO}_3)$ の生成で律される。

- 海水および天然水での Pu の溶解度は、 $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$ (アモルファス) または、 $\text{PuO}_4(\text{c})$ の生成によって制限される。 K_{s0} を測定することは、ポリマーの生成もあって難しい。 $\text{Pu}(\text{OH})_4(\text{am})$ の測定値は $\log K_{s0} = -56$
- Np は、 NpO_2^+ を形成しやすく、比較的、錯形成と加水分解の傾向が弱く、多くの地球化学的条件下で $10^{-4}[\text{M}]$ の溶解度。還元性の環境中では、 Np^{IV} が支配的な酸化状態。Np の溶解度は $\text{Np}(\text{OH})_4(\text{am})$ または $\text{NpO}_2(\text{c})$ の低い溶解度で律されている。
- 好気性の中水では、ウランは U^{VI} として存在し、炭酸塩と強く錯形成する。(例：海水中では、 $\text{UO}_2(\text{CO}_3)_3^{4-}$ として $10^{-8}[\text{M}]$ のウランが溶存)

□

8.4 化学種の推定

- 実際の水中に形成される化学種の予測が重要
- 水酸化物、炭酸塩、リン酸塩、フミン酸などの陰イオンとの錯形成が 溶液中の化学種を決定 する。
- コロイドへの吸着や浮遊物質は 水中のアクチノイド濃度を増加 させる。
- 加水分解種、リン酸塩、炭酸塩の沈殿や、鉱物や生体物質への吸着は 水相中の濃度を制限 する。

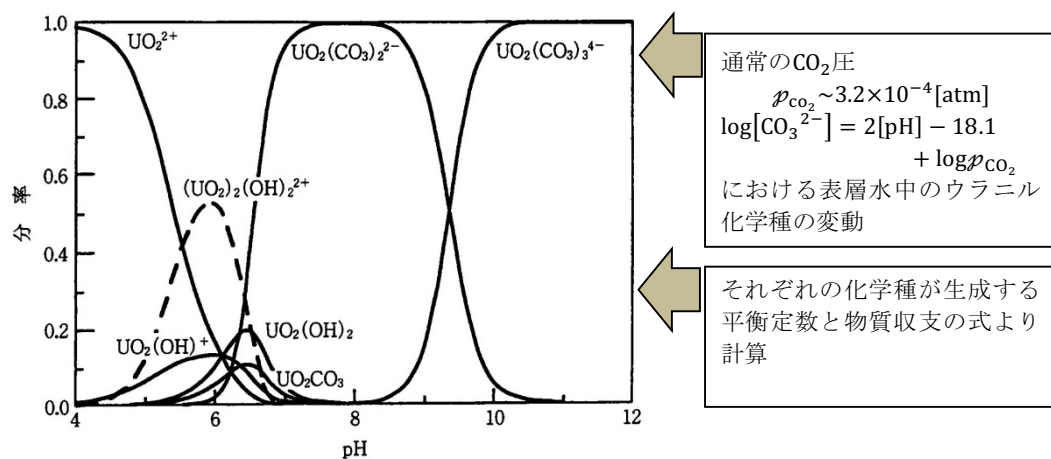
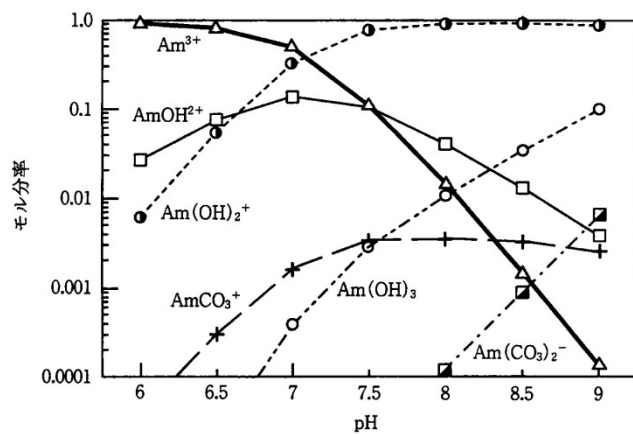


図 9 天然の二酸化炭素濃度での水中における pH の変化に伴うウラン化学種の分率。

この図は加水分解とCO₃²⁻との錯形成の割合を示しているものである。 [1]

化学種	$\log \beta_n$	化学種	$\log \beta_n$
Am(OH) ²⁺	6.44	Am(CO ₃) ⁺	5.08
Am(OH) ₂ ⁺	13.80	Am(CO ₃) ₂ ⁻	9.27
Am(OH) ₃	17.86	Am(CO ₃) ₃ ³⁻	12.12



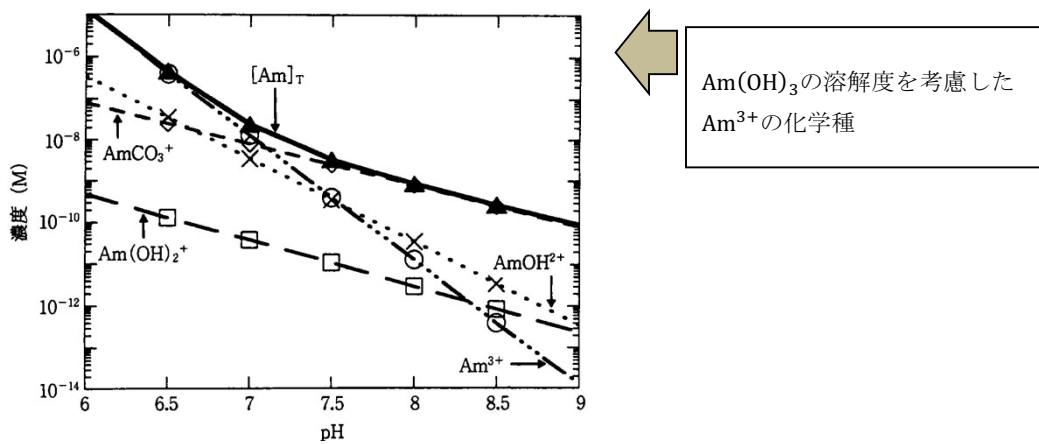
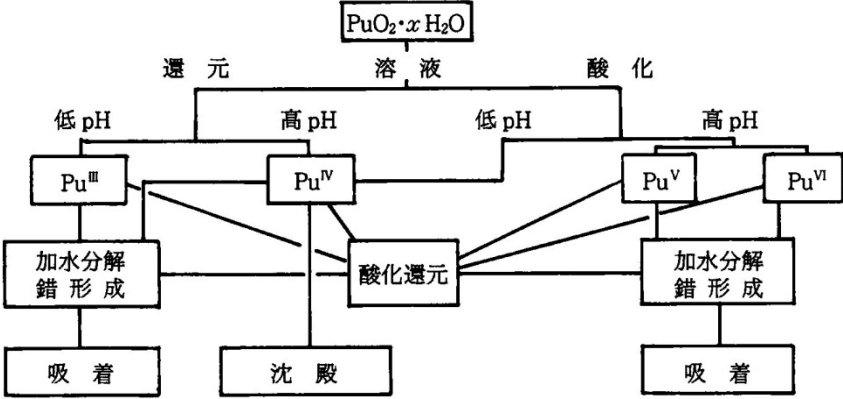
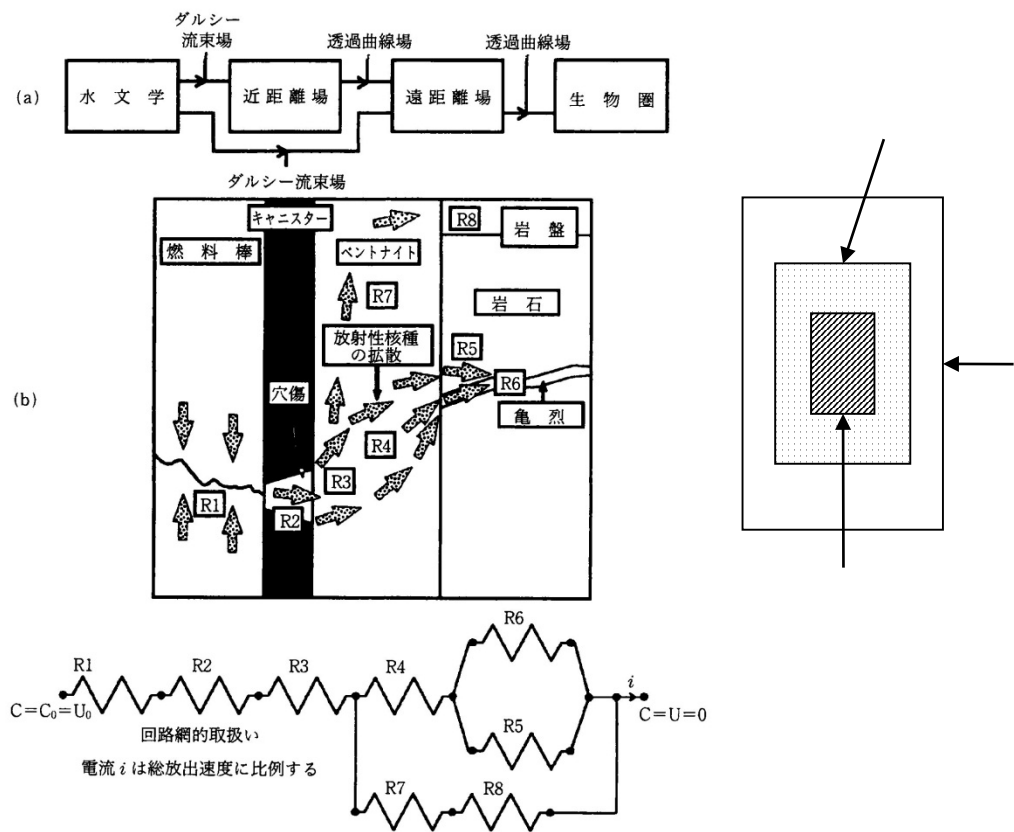


図 11 天然水中でのAm^{III}の化学種を計算した結果。Am(OH)₃の溶解度も考慮したもの。 [1]



8.5 放射性廃棄物処分後の放射性核種の挙動



- | | | |
|---|------------|----------------|
| { | ガラス固化体の溶解 | : 核種の溶出、沈殿 |
| | ベントナイト中の拡散 | : 吸着、沈殿 |
| | 岩石中の移行 | : 吸着、沈殿、コロイド付着 |
- 化学種 (speciation) によって異なる。
←pH、Eh、存在コロイド

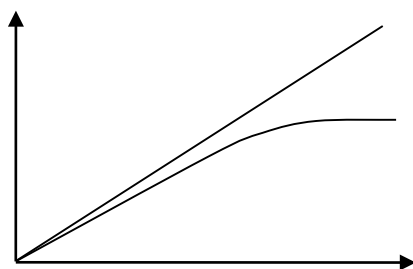
➤ 溶解と制限固相

表 9 還元性または酸化性の Finnsjo 湖淡水中における放射性核種の溶解度と制限固相 [1]

還元雰囲気			酸化雰囲気		
	溶解度 M	制限固相		溶解度 M	制限固相
Se	非常に低い	M_xSe_y	高い	—	—
Sr	1×10^{-3}	ストロンチアン石($SrCO_3$)	1×10^{-3}	ストロンチアン石($SrCO_3$)	
Zr	2×10^{-11}	ZrO_2	2×10^{-11}	ZrO_2	
Tc	2×10^{-8}	TcO_2	高い	—	—
Pd	2×10^{-6}	$Pd(OH)_2$	2×10^{-6}	$Pd(OH)_2$	
Sn	3×10^{-8}	SnO_2	3×10^{-8}	SnO_2	
I	高い	—	高い	—	—
Cs	高い	—	高い	—	—
Sm	2×10^{-4}	$Sm_2(CO_3)_3$	2×10^{-4}	$Sm_2(CO_3)_3$	
Am	2×10^{-8}	$AmOHCO_3$	2×10^{-8}	$AmOHCO_3$	
Pu	2×10^{-8}	$Pu(OH)_4$	3×10^{-9}	$Pu(OH)_4$	
Pa	4×10^{-7}	Pa_2O_5	4×10^{-7}	Pa_2O_5	

➤ 吸着

- 固体表面に付着する現象



- 分配係数 k_d

$$k_d = \frac{\text{土壌、岩石など } 1[\text{kg}] \text{ あたりの放射性核種の濃度}}{\text{水 } 1[\text{m}^3] \text{ あたりの放射性核種の濃度}}$$

元 素	k_d 値 $\text{m}^3 \text{ kg}^{-1}$	元 素	k_d 値 $\text{m}^3 \text{ kg}^{-1}$
ジルコニウム	1	炭 素	0.001
ラジウム	0.15	塩 素	0
プロトアクチニウム	1	パラジウム	0.001
トリウム	2	セレン	0.001
ウラン	2	ストロンチウム	0.015
ネプツニウム	2	セシウム	0.15
プルトニウム	0.2	ヨウ素	0
テクネチウム	1		

岩石 1m^3 あたりの比表面積 0.1m^2 、これは水 1m^3 あたりの比表面積 1000m^2 に相当する。マトリックス拡散係数 $3.2 \times 10^{-6} \text{m}^2 \text{y}^{-1}$ ：岩石マトリックス中の拡散空隙率 0.005.

9 引用文献

1. ショパン, ほか. 放射化学. 東京都 : 丸善, 2005.
2. 内藤奎爾. 原子炉化学. 東京都 : 東京大学出版会, 1978.
3. 日本原子力学会緊急シンポジウム(2011.5.21)発表資料より