

<概要>

地球を構成する重い元素は、太陽系形成の原料元素を供給した超新星爆発の際の r プロセスにより生成したと考えられている。その瞬間には非常に重い核種（～質量260）も生成し、不安定な核種は、その後の様々な壊変を経て安定な核種に変じたとされる。従って、核分裂生成物（FP）と定義される核種についても、地球誕生時に既に構成物として存在した始原FPと、後から、重い核種の自発核分裂反応と中性子誘起の核分裂反応により生成したFPがある。以上の天然核種とは別に、20世紀に始まった人類の原子力利用活動により新たに追加された人工のFPがある。本章では、人間活動が及ぶ大気圏と海洋、そして陸域：地表と地殻部分（平均厚み：陸地30km，海洋5km）を地球環境として、寿命の比較的長い放射性のFPのみを対象に、それらの全存在量をまとめている。

<更新年月>

2006年01月

<本文>

1. 天然放射性核種（NORM）として存在するFP

これまでに始原FP量を測定したという報告はない。地球には寿命の永い始原元素であるUとThが主として地殻中に濃縮されて存在する。これらの重い核種は、自発核分裂と中性子誘起の核分裂反応によりFPを生成している。

1.1 ^{238}U の自発核分裂反応からのFP

U、Th、Pu核種の自発核分裂半減期を表1に示した（参考文献1）。この中で下線を引いたものが天然核種である。自発核分裂の発生頻度は、その核種の存在量に比例し半減期に反比例するので、表中の有意の大きさをもつ天然核種は ^{238}U のみである（半減期は 8.2×10^{15} 年）。1モルの ^{238}U （原子核 6×10^{23} 個、238g）の自発核分裂頻度は、

$$\begin{aligned}\lambda N &= [0.69315 / (8.2 \times 10^{15})] \times 6 \times 10^{23} = 5.07 \times 10^7 / \text{年} \\ &= 1.39 \times 10^5 / \text{日} = 1.61 / \text{秒}\end{aligned}$$

1 kgの ^{238}U なら核分裂数は6.76回/秒となる。

地殻内の全U量は、U含有率を1.8ppmとすると約 4.32×10^{16} kgとなるので、地殻中で1年間に起きる総核分裂回数は 9.2×10^{24} となる（海水中ではその約0.01%）。これはウラン3.65kgに相当する。言い換えれば、地殻内では、年間約3.7kgの ^{238}U 原子核が分裂してFPに変化していることになる。

生成したFPは、その生成速度と崩壊速度が等しくなった時点で平衡状態（永続平衡）になり、その関係は次式で表記される。

$$\lambda M \text{Neq} = A M \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここで、 λM ：Mの崩壊定数、Neq：平衡時のMの原子数、AM：核分裂による生成速度

(1) 式からは次のことが解る。生成速度AMが大きいとNeqは大きくなる。AMが同じ場合、半減期の比較的短い核種は崩壊定数 λM が大きくNeqは小さくなる。寿命が極めて長いFP核種では崩壊定数 λM が小さいので、Neqは大きくなる。 ^{238}U の自発核分裂における ^{99}Tc の核分裂収率は6.07%なので、

$$(0.69315 / 2.14 \times 10^5) \cdot \text{Neq} = 9.2 \times 10^{24} \times 0.0607$$

$$\text{Neq} = 1.72 \times 10^{29} \text{ 個} = 2.87 \times 10^5 \text{ モル} = 2.84 \times 10^7 \text{ g} : \text{約} 28 \text{ t}$$

同様に ^{129}I （収率0.0266%）の平衡時の量を求めると、約12 tとなる。

1.2 ^{235}U の中性子誘起核分裂反応からのFP

^{235}U の中性子誘起核分裂 (n, f) 反応の影響を推定するには、地殻中に存在する U 原子近辺における中性子束を知る必要がある。Taylor は地殻中の NORM としての Pu 濃度について考察し、 ^{239}Pu 濃度：約 2×10^{-14} g/kg としている（参考文献 2）。これは、地殻内の Pu 全量として約 5×10^5 kg となるが、 ^{239}Pu の半減期：24,390 年を考えると、始原核種の ^{239}Pu は既に消滅しており、後から ^{238}U (n, γ) 反応により生成した ^{239}Pu が永続平衡の状態で存在していると考えられる。そこで (1) 式の Neq に上記値を入れて ^{239}Pu の地殻内での生成速度 [(n, γ) 反応の発生頻度] を求めると、約 3.5×10^{25} 反応/年 (14kg/年) となる。同じ中性子場で ^{235}U の (n, f) 反応が起きるので、その時の両反応の比： ^{235}U (n, f) 反応/ ^{238}U (n, γ) 反応は、核反応断面積と同位体比から約 1.5 となる（両反応とも熱中性子の寄与のみとした）。その結果 ^{235}U (n, f) 反応速度は約 5×10^{25} 回/年となり、上記自発核分裂反応の回数 9.2×10^{24} 回/年の約 5 倍となる。 ^{235}U (n, f) 反応における核分裂収率は、自発核分裂のものと比べ、 ^{99}Tc はほぼ同じだが ^{129}I では 20 倍である。したがって ^{235}U (n, f) 反応による FP の平衡量は、 ^{99}Tc は約 150 t、 ^{129}I では約 1,500 t となる。この様にして推定した長寿命 FP の地殻内存在量を表 2 に示す。

2. 原子力発電による FP

世界の商用原子力発電については、IAEA 等のデータから 2003 年までの全世界総発電量は、約 4.7×10^{13} kWh である。この発電のために分裂消費したアクチノイドの量を求める。原子炉内で核分裂するのは ^{235}U のみならず、(^{238}U の中性子捕獲で生じる) ^{239}Pu 、そして ^{238}U である。ここでは、軽水炉を念頭に、これらアクチノイドの 1 回の核分裂で利用できる熱エネルギーの代表値を 190 MeV、その電力への転換効率を 33% として計算すると、上記 4.7×10^{13} kWh の電力量を得るには、約 6,550 t のアクチノイドの核分裂が必要である。すなわち、発電の結果生成した FP の総量も 6,550 t となる。わが国の原子力発電では、2003 年までの総原子力発電量約 5.3×10^{12} kWh、アクチノイドの核分裂量は約 740 t となる。現在、全世界の発電炉によるアクチノイド核分裂量は、年間約 350 t（わが国のそれは約 40 t）である。

長寿命 FP 核種： ^{85}Kr 、 ^{90}Sr 、 ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{137}Cs の生成量（～2003 年迄）を、核分裂収率から求めた結果を表 3 に示した。

3. 軍用 Pu 生産からの FP

軍用 Pu 生産炉の場合、信頼出来る運転実績は公開されていないので、生産された Pu 量から FP 生成量を予測する。2000 年時点では『兵器級 Pu』の量として概算値 300 t とされている（米国約 100 t、ロシア約 180 t、仏国 5 t、中国 5 t、英国 3 t）（参考文献 3）。『兵器級 Pu』とは、保障措置上は ^{240}Pu の同位体組成が 7% 以下とされている（それ以上であっても核弾頭として使用できる事も自明である）。Pu 生産用の天然ウラン金属-熱中性子炉において『兵器級 Pu』を得る時は、燃料の燃焼度を 1000 MWD/t 以下に抑える必要がある（米国では 600～1000 MWD/t、Hanford においてスーパー級 Pu を生産するために 125 MWD/t といった条件が採られた）（参考文献 4）。ウラン燃料を燃焼すると『 ^{235}U の核分裂反応』と『 ^{238}U の中性子捕獲→Pu 生成反応』が平行して進むが、両者の比率をそれぞれの反応断面積 ($\sigma_f(^{235}\text{U}) = 580\text{b}$, $\sigma_c(^{238}\text{U}) = 2.72\text{b}$) と天然ウランの核種組成から求めるとほぼ 1.5 となる。『兵器級 Pu』生産における燃焼度は極めて低いので、生成した Pu の燃焼は無視でき、Pu 生成反応が優勢になる照射条件が採られる等の理由から、この比率はさらに小さくなる。以上の点から、Pu が 300 t 生成した時には、同時に約 400 t の ^{235}U が核分裂したと推定できる。この量は FP 生成量にも相当する。その時の主要な FP 生成量を表 3 に示す。

4. 船用炉からの FP

原子力艦船用動力炉（全世界で約 500 基）は、高濃縮ウランを用いた軽水発電炉と考えられるが、運転実績、再処理量等の記録は公開されていない。1997 年の米国海軍省報告では、運転実績として総航続距離 1 億マイル以上 4,700 炉・年以上が示され、Idaho Chemical Processing Plant には原子力艦船からの使用済み核燃料：13 t を保管、2035 年にはそれが 65 t になるとされている（参考文献 5）。1990 年代以降は再処理を行わないこととなっているので、これが全量である。また、1996 年時点の旧ソ連海軍所有の使用済み燃料は 30 t (5.6×10^{17} Bq) であるが（参考文献 6）、高レベル廃棄物量は少ないことから再処理は実施されなかったと想像される。いずれも燃料の燃焼度が不明なので、FP 生成量の詳細は解らない。

5. 核爆発による FP

これ迄に知られている核実験は、大気圏内 543 回、地下 1,876 回であるが、そこでのアクチノイドの核分裂量（あるいは FP の生成量）に関しては、国連科学委員会報告；UNSCEAR（参考文献 7）がある。上記大気圏内核実験の総収量 440 Mt（メガトン）の内訳として、全核分裂収率 189 Mt が示されている。そこで、 $1 \text{ Mt} = 1.4 \times 10^{26} \text{ fission} = 56 \text{ kg}$ のアクチノイドの核分裂を用いて全核分裂量に換算すると約 11 t となる。地下核実験の総収量 90 Mt は報告されているが、核分裂

収量の記述は見当たらない。総収量90Mtの約50%を核分裂反応によると仮定すると、アクチノイドの核分裂量は約2.6 t となり、両実験の合計は、13.6 t である。これらの値に基づき、核実験により生成した主な長寿命FP核種の生成量を計算し、表4に示した。

6. 地球環境に存在するFPの総量

地球環境のFPについて、前章までに様々な生成源毎の存在（生成）量を報告した。ところで、原子炉には、上記以外にも研究炉、実験炉などがある。これらの炉は、数が多いが発電炉に較べて出力も低く、運転時間も限られているので生成したFP量は無視できる。以上をまとめて、表5に示す。ここで、 ^{85}Kr 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs は半減期が比較的短いので、生成後の時間と共に減衰しているため、表5の値は現存する量ではないことに注意すべきである。

<関連タイトル>

再処理施設から放出された核分裂生成物 (06-03-05-08)

<参考文献>

- (1) N.E. Holden and D.C. Hoffman : Spontaneous Fission Half-Lives for Ground-State Nuclides, 2000IUPAC, Pure and Applied Chemistry, 72, 1525-1562 (2000)
 - (2) D.M. Taylor : Environmental plutonium ? creation of the universe to twenty-first century mankind, in "Plutonium in the Environment" Edited by A. Kudo, Elsevier Sci. Ltd. 1-14 (2001)
 - (3) ISIS (Institute for Science and International Security) : "Status and Stocks of Military Plutonium in the Acknowledged Nuclear Weapon States", (2004), <http://www.isis-online.org>
 - (4) P.P. Parekh et.al. : Radioactivity in Trinitite six decades later, J. Environ. Radioactivity, 85, 103-120 (2006)
 - (5) "Record of Decision for a Dry Storage Container System for the Management of Naval Spent Nuclear Fuel", Federal Register, 62, No.5, (Jan.8.1997)
 - (6) International Science and Technology Center : "Brief Review of the Nuclear Complex of Ex-USSR",
 - (7) Sources and Effects of Ionizing Radiation : UNSCEAR 1993 Report (1993) , UNSCEAR 2000 Report (2000)
 - (8) 館盛勝一：放射化学ニュース、第11号（2005年）、p.34
-

表1 Th、U、Pu元素の主な自発核分裂核種とその半減期

核 種	自発核分裂半減期	核 種	自発核分裂半減期	核 種	自発核分裂半減期
Th-230	$> 2 \times 10^{18} \text{ y}$	U-232	$> 6.8 \times 10^{15} \text{ y}$	Pu-236	$1.5 \times 10^9 \text{ y}$
Th-232	1.2×10^{21}	U-234	1.5×10^{16}	Pu-238	4.75×10^{10}
		U-235	1.0×10^{19}	Pu-239	8×10^{15}
		U-236	2.5×10^{16}	Pu-240	1.14×10^{11}
		U-238	8.2×10^{15}	Pu-242	6.8×10^{10}
				Pu-244	6.6×10^{10}

[出典]N.E. Holden and D.C. Hoffman:Spontaneous Fission Half-Lives for Ground-State Nuclides, 2000IUPAC, Pure and Applied Chemistry, 72, 1525-1562(2000)

表2 地殻内に存在する長寿命FPの推定量

FP核種	半減期 (年)	^{238}U のspont. fiss. yield(%)	平衡量	^{235}U のn _{th} fiss. yield(%)	平衡量 (トン)	合計存在量 (トン)
			(トン)			
^{93}Zr	1.50×10^6	6.22	190	6.35	1100	1300
^{99}Tc	2.10×10^5	6.07	28	6.11	150	180
^{107}Pd	6.50×10^6	0.139	21	1.4	1200	1200
^{129}I	1.60×10^7	0.0266	12	0.543	1500	1500
^{135}Cs	2.30×10^6	5.21	360	6.54	2500	2900

[出典]館盛勝一：放射化学ニュース、第11号、34(2005年)

表3 世界の原子力発電およびPu生産活動で生成したFPの量(2003年迄)

主要なFP	半減期(年)	核分裂収率($^{235}\text{U}_{\text{th}}$, %)	生成量(トン)	
			発電用 ^{*1}	軍事用Pu生産 ^{*2}
^{85}Kr	10.76	0.285	6.7	0.41
^{90}Sr	28.7	5.85	150	8.9
^{99}Tc	2.14×10^5	6.08	170	11
^{129}I	1.57×10^7	0.63	22	1.3
^{137}Cs	30	6.21	240	14

注)*1:原子力発電;FP全生成量6,550トン *2:兵器級Puを300トン生産;FP全生成量;400トン

[出典]館盛勝一:放射化学ニュース、第11号、34(2005年)

表4 世界の核実験により生成したFP

主要なFP	半減期(年)	核分裂収率(%)		生成量(kg)	
		^{※1}	^{※2}	^{※3}	^{※4}
⁸⁵ Kr	10.76	0.125	0.215	5 - 8	1 - 2
⁹⁰ Sr	28.7	2.05	3.19	80 - 130	30 - 50
⁹⁹ Tc	2.14×10^5	5.98	5.71	260 - 280	60 - 65
¹²⁹ I	1.57×10^7	1.45	2.08	80 - 120	20 - 30
¹³⁷ Cs	30	6.58	5.15	320 - 410	70 - 90

注)*1:この列は²³⁹Puの速中性子による核分裂収率

*2:この列は²³⁸Uの14MeV中性子による核分裂収率

*3:この列は大気圏内核実験による生成量

*4:この列は地下核実験による生成量

[出典]館盛勝一:放射化学ニュース、第11号、34(2005年)

表5 地球環境におけるFPの存在(生成)量

(トン)

核種	NORM	発電	Pu生産	核実験	合計	比放射能 (Bq/トン)
⁸⁵ Kr	—	6.7	0.41	< 0.01	7.1	1.45×10^{19}
⁹⁰ Sr	—	150	8.9	0.11-0.18	160	5.10×10^{18}
⁹³ Zr	1300	1200	81	—	2600	9.30×10^{13}
⁹⁹ Tc	180	170	11	0.32-0.35	360	6.24×10^{14}
¹⁰⁷ Pd	1200	18	1	—	1200	1.90×10^{13}
¹²⁹ I	1500	22	1.3	0.10-0.15	1500	6.53×10^{12}
¹³⁵ Cs	2900	37	2.2	—	2900	4.20×10^{13}
¹³⁷ Cs	—	240	14	0.39-0.50	260	3.21×10^{18}

[出典]館盛勝一：放射化学ニュース、第11号、34(2005年)