

V. M. ビャーコフ・S. V. ステパノフ
放射線化学の基礎—放射線分解初期過程—
第 1 回

産業技術総合研究所 小林 慶規*
日本原子力研究開発機構 岡 壽崇

Contents of the lecture note by Prof. V. M. Byakov and Dr. S. V. Stepanov (Institute of Theoretical and Experimental Physics, Russia) are described in a series of articles. The first article concerns basic concepts, classification and sources of ionizing radiations. Translation into the Japanese language is based on the arrangement between the Japanese Society of Radiation Chemistry and National Research Nuclear University “MEPhI”, Russian Federation.

Keywords: radiation chemistry, radiolysis, early process

ロシア連邦理論実験物理学研究所の V. M. ビャーコフ教授, S. V. ステパノフ博士の講義録を連載講座として紹介する。連載第 1 回は、基本知識、電離放射線の分類およびその線源について説明する。(全 5 回の連載を予定)

まえがき

我々の周りそして我々の体の中には、化学が満ちている。化学と化学技術なくしては、どんな概念も空疎なものになってしまう。物質、材料、装置、さまざまなプロセスに関する概念は、化学があってはじめて、意味をもつ。現在のマイクロエレクトロニクスの 99% は化学で

ある。原子力エネルギー分野では、ウランの入手から核燃料の加工まですべての操作は純粋に化学的である。燃料エネルギー分野、農業分野、食品分野などにおいても同様である。科学における化学の中心的な役割を理解するために、長い時間考え込む必要はない。

化学には物理学と同様に多くの分野がある。読者諸氏は、すでに、熱化学、電気化学、光化学などを勉強する機会があったはずである。化学は物質の変化に関する学問であり、多くの化学変化には、エネルギーの消費あるいは放出が伴う。発熱反応であっても、その開始にエネルギーが必要になる場合が多々ある。よく知られている古典化学(18世紀と19世紀の化学)は、本質的に熱化学である。つまり、熱の形で与えられるエネルギー源によって開始される化学過程を取り扱う。基本的なエネルギー源として電気が出現し、電気化学が誕生し(アルミニウムの生産法を思い出してほしい)、強力な光源が開発されたことにより、光化学が誕生した。放射線化学の課題は、電離放射線の作用によって引き起こされる物質の変化である。電離放射線は、物質を通過する際に物質原子から電子をはじき出すことができる。

人々が電離放射線と出会ったのは 100 年以上前のことで、1895 年のレントゲンによる X 線(しばしばレントゲン線とも呼ばれる)の発見と 1896 年のベクレルによる放射能の発見までさかのぼる^{*1}。この少し前の 1887 年に、ハインリッヒ・ヘルツは、光電効果と呼ばれる現象を発見している。これは、紫外線が原子を電離させる、

Foundations of Radiation Chemistry –Early Processes of Radiolysis– by V. M. Byakov and S. V. Stepanov, Part 1
Yoshinori KOBAYASHI* (National Institute of Advanced Industrial Science and Technology), Toshitaka OKA (Japan Atomic Energy Agency),
〒305-8565 茨城県つくば市東 1-1-1 産業技術総合研究所 つくば中央第五事業所,
TEL: 029-861-4886, FAX: 029-861-4622,
E-mail: y-kobayashi@aist.go.jp

^{*1} 放射能 (radio activity, ラテン語の「放射」を意味する “radio”, 「線」を意味する “radius”, 「作用」を意味する “activus” に由来する) は、原子核が自然に (自発的に) 別の核に変化して、高エネルギー電離放射線 (α 線, β 線, γ 線, X 線) を放出する能力を意味する。放射能は陽子あるいは中性子過剰による原子核の不安定性の現れである。過剰な陽子や中性子は、超新星内で原子核が非常に高速で合成されるために生じるものである。

つまり、原子から電子^{*2}を放出させることができるというものである。

電離放射線の物質に対する作用は、照射と呼ばれるようになった。照射によって引き起こされる化学効果は放射線分解（ラジオリシス）と呼ばれるようになった。放射線化学では、照射された物質のすべての物理化学的な効果が研究対象となる。放射能自身が、写真作用すなわち α , β , γ 線の放射線化学的な効果によって発見されたことからわかるように、放射線化学は、放射能の発見と同時に誕生したといえる。

初期の放射線化学の発展を後押ししたのは、放射線火傷に始まり最終的には人の死にいたる電離放射線の生物学的効果であった。放射線の生物効果は、レントゲンとベクレルによる発見のすぐあとに出現し、まもなく、照射により、分解や重合、酸化還元による変化が生じることが示された。

しかしながら、放射線化学の本格的な発展は、原子炉の出現によって始まったと言えるだろう。「放射線化学」という名称が1944年に、この分野の創始者のひとりであるパートン（M. Burton）によって導入され、放射線化学の基本的な課題は、物質、材料、化学システムの電離放射線に対する耐久性を調べることや耐放射線材料の開発、そして、放射線のエネルギーを考慮した材料の合成および改質へと変化した。

放射線化学は、物理化学という広い分野において、他の分野や近接した領域と密接に関連しながら発展した。放射線化学は、原子物理、核物理、プラズマ物理・化学、光化学、フリーラジカル化学、放射線生物学の境界領域である。多くの放射線化学の成果は、実用面における直接の成果をもたらしている。ユニークな特性をもつ新しいタイプの材料が見出されている。

このような事情により、放射線化学の中心的な課題のみですら、一冊の本、標準的な量の講義課程の枠内ですべて述べることはおそらく不可能であろう。このため、A. K. ピカエフによって書かれた三冊からなるすぐれた本である「現代放射線化学」(1985-1987年、ナウカ)の刊行は、その当時の状況から考えてしごくもったもなことであった。

^{*2} 「電子」という名称は、1897年に英国の物理学者 J. J. トムソンによって、陰極線を構成する負の電荷を帯びた物質粒子に対して与えられた。電子の電荷 (1.6×10^{-19} C, 4.8×10^{-10} esu) は電荷の最小単位である。その質量 (9.1×10^{-31} kg) も同様である。電子はスピン $1/2$ と磁気モーメント 1.001 ボア磁子 (0.927×10^{-23} J/T = 0.927×10^{-20} erg/G) を有する。電子の磁気モーメントは双極子あるいは永久磁石の磁気モーメントと類似している。電子の大きな磁気モーメントはスピンの存在と相当する電荷の回転によって説明される。

このように、放射線化学は放射線物理に似た核エネルギー論の関連分野である。研究の応用的な傾向を指しているならば、これらの分野の目的は共通しており、その違いが常にはっきりしているわけではない。国産の次世代核エネルギーを得るためには、おそらく、新しい構造材料や従来に比べて広い温度および圧力範囲を利用するモデル装置の開発が必要であろう。水、使用済核燃料の有機溶液、金属、合金、グラファイト、セラミックスなど原子力に応用される材料における放射線効果の特殊性の理解、そして、これらの生産や加工のための新しい技術の開発は、実用面から重要である。

将来の核エネルギーの需要に対応するためには、若い人材の育成・教育も必要である。しかしながら、放射線化学の諸問題に対する現代的な教科書や学習教材が、ロシア語で書かれたものだけでなく英語で書かれたものを含めてもないことがわかる。ロシア語で書かれたピカエフのモノグラフが刊行されてから、すでに20年以上経過している。

このような1260ページの多くの分冊からなるモノグラフは、もちろん、放射線化学の勉強を始めたばかりの学生のための教材として適当ではない。このような学生にとって必要なのは、その内容が一学期あるいは二学期分に相当するより少ない量の本である。このような本の主たる目的は、学生が放射線化学の基礎を会得するのを助けることにあり、核エネルギーからの要求を考慮した講義課程のための教材として書かれる本が含めるべき内容もおおのずと決められる。

電子が原子の性質や原子同士の結合を決定することが知られている。このことから、物質を電離放射線が通過すると、化学結合の破壊や新しい結合の形成、新しい化合物の合成などの効果が必然的に生じる。照射の程度がさらに大きくなると、媒質の温度上昇、自己拡散の活性化、結晶化、相状態の変化、非平衡状態への変化など物理的な効果が生じる。後者の場合、個々の放射線作用で与えられるエネルギーが非常に小さいため、全体としては非常に大きな線量が必要である。生物における電離放射線の生体分子への作用は、重要な生物学的な効果を生じさせる。

今まで述べたことから明らかなように、照射された物質中で起こる現象の研究を一つの学問分野の枠内だけで行うことは不可能である。研究は、放射線化学自身に加えて放射線物理や放射線生物学を含む学際的なものとならざるを得ない。しかし、現在まで、「ありふれた」電離粒子（電子、陽子、 α 粒子、分裂片）によって引き起こされる物理化学的な変化の研究は、化学者により行われ、「エキゾチック」な粒子（陽電子とミュオン）により誘

起される効果は、伝統的に物理学者の専門領域とみなされてきた。この結果、本質において似かよった現象が異なった考えや違う用語で記述されることになってしまっている。また、実験データの解釈における不一致や独断（もちろん故意によるものではないが）の原因ともなっている。さらに、しばしば、実験データが関連する現象の一義の解釈に十分ではないということが判明する。このため、別のそして唯一の正しい研究の手法が望まれる。これは、現象のより広い範囲の議論を可能にする、放射線化学と物理、陽電子とミュオンの物理・化学、発光メスバウア分光法を抱き合わせた方法で、これらを複合的に調べることにより、理論モデルの構築における不統一性を小さくすることができる。我々は、この講義録において、このようなアプローチをとることにした。

1 予備知識

放射線化学の基礎について述べるに当たって、当然のことながらその基本概念の説明から始めることにする。

いうまでもないことであるが、電離放射線により、イオン化だけでなく、媒質分子の励起も生じる。これら二つの最も重要なエネルギー付与過程を、我々は電子の活性化という共通の言葉で表すことにする。

電気的に中性の分子は、普通、偶数個の電子をもっている。このため、その合成スピンと磁気モーメントはゼロである。とはいっても、例外がある。最もよく知られた常磁性分子の例は、 O_2 と NO である。反磁性分子はイオン化により電子を失い、陽イオン（正に帯電したイオン、より正確には、陽イオンラジカル）に変化する^{*3}。

ラジカルは、一つ以上の不対電子をもつ分子あるいは原子であり、化学的に活性である。遊離ラジカル（フリーラジカル）は、適当な相手を見つけ、結合しようとする。通常、奇数個の電子をもち、磁気モーメントがゼロでないため、ラジカルは常磁性である。最も単純なラジカルは H , Li , Na などの原子である。

陽イオンは正に帯電したイオンである。分子がイオン化すると、陽イオンラジカルが生成する。これは、不対電子をもつ化学種で、正の電荷を併せもつ。どの電子がたたき出されるかによって、たとえば、水分子の場合、2つの異なった陽イオンラジカルが生成する。OH 結合に関与している電子がたたき出された場合、酸素原子の孤立電子対から電子がたたき出された場合、それぞれ、

図 1 のようになる。



図 1 水分子の陽イオンラジカル。左：OH 結合に関与している電子がたたき出された場合、右：酸素原子の孤立電子対から電子がたたき出された場合

陰イオンは負に帯電したイオンである。陰イオンラジカルは、偶数個の電子をもつ分子あるいはイオンに電子が結合することによって生じる。たとえば、正の電子親和力をもつアセトン分子に電子が結合すると次のような陰イオンラジカルが生じる。



電子は電子親和力が負である分子とは結合しない。このような分子の例は、窒素、水、二酸化炭素そして多くの炭化水素である。電子親和力という概念は、陰イオンに対しては、中性分子（原子）に対する第一イオン化ポテンシャルと同じ意味をもつ。

照射によって生じる化学効果は、物質の単位質量あたりに吸収されたエネルギーの大きさに決まる。このようなエネルギーを吸収線量 D と呼ぶ。これは本質的に照射によって物質に貯えられるポテンシャルエネルギー密度である。SI 単位系では、吸収線量の測定にはグレイ (Gy) が使われる^{*4}。1 Gy は照射された物質 1 kg に 1 J の電離放射線のエネルギーが与えられたことを意味する。より古い単位である 1 rad もまだ使われている^{*5}。1 rad = 100 erg/g = 0.01 Gy。線量を eV/g (あるいは eV/cm³) で表すこともある。1 Gy = 6.24 × 10¹⁵ eV/g = 6.24 × 10¹⁵ × ρ eV/cm³。ここで、ρ (g/cm³) は物質の密度である。

実験データは、通常、観測された何らかの定量的な特性の吸収線量依存性として示される。これは、放射線分解で生じた生成物の濃度、媒質の粘度、電気伝導率などである。このような依存性は、線量曲線、蓄積曲線ある

^{*3} 陽イオンと陰イオンという用語は、ファラデーによる。電気分解において、電解質に浸された陰極 (cathode) と陽極 (anode) にそれぞれ向かって移動する化学種をそれぞれ陽イオン (cation)、陰イオン (anion) と名づけた。「イオン」は、ギリシア語で「移動するもの」を意味する。

^{*4} ルイス・ハロルド・グレイ (Louis Harold Gray)。英国の物理学者、放射線生物学者。

^{*5} 吸収線量を意味する英語 “radiation absorbed dose” のそれぞれの単語の最初のアルファベットから名づけられた。

いは分解曲線と呼ばれる(得られた依存性が直線であっても「曲線」である)。

観測された効果の定量的な特徴づけのために, 生成物 i の放射線化学収率 G_i という概念が導入された。これは研究対象物によって照射エネルギー dE が吸収された際に生じた, あるいは, 分解または変化した粒子(分子, イオン, ラジカルなど)の数 dn_i である。 dE として放射線化学では, 100 eV が用いられている^{*6}。

それぞれの系に対する放射線化学収率は, 成分の濃度, 温度, 物質移動など多くの因子に依存する。これらの因子は, 照射の途中で変化する。このため, 一般的には, 収率は線量の関数で, $G_i = f(D)$ となる。初期収率 G_i^0 とある時間における観測収率 $G_i(D)$ は区別される。初期収率は線量ゼロに外挿された収率であり, 観測収率は吸収線量 D ($D \neq 0$) における収率である。収率は任意の線量曲線あるいは線量依存性を記述する解析的な表式の微分によって決定される。

$$G_i = \frac{dn_i}{dE} = \frac{1}{\rho} \cdot \frac{d(n_i/V)}{d(E/\rho V)} = \frac{1}{\rho} \cdot \frac{dc_i}{dD} \quad (2)$$

ここで ρ は照射された対象物質の密度で, c_i は放射線分解生成物 i の濃度である。解析的な表式を用いる方法がより好ましい。

物質に対する電離放射線の作用で生じる放射線分解の一次生成物および中間生成物(電子, イオン, 励起状態)の初期収率は, 原則として, 10 粒子/100 eV をこえない。

一次生成物および中間生成物は基本的にラジカルであり, 反応性が高い。これらは自分自身と相互作用して分解したり, 出発物質やあるいはそこに含まれている添加物と反応したりする。基本的に次の三つのシナリオが考えられる。

1. 中間生成物は基本的に自分自身と相互作用したり, 分解したり, 出発物質を再生する。このとき, 観測される出発物質の分解収率, たとえば, $G(\text{-H}_2\text{O})$ は, 一次生成物の初期収率と比べて小さい。このような物質や材料, 系は放射線耐性であるといわれる。
2. 中間生成物はそれ自身と相互作用するか, あるいは, 分解して出発物質とは異なる安定な放射線分解生成物を与える。この場合, 照射された物質の分解収率は中間生成物の初期収率と同じくらいに

なる。中間生成物が物質に含まれる添加物と反応する場合も同様である。

3. 中間生成物は連鎖反応を開始させることができ, 出発物質を変化させる。この条件では, 最終生成物の収率は初期生成物の収率を大きく上回る。

種々の物質で観測された放射線化学的な変化の収率は, 100 eV あたり 10^{-6} から 10^8 粒子まで非常に大きな範囲で変化する。

放射線分解は定常的な放射線照射, あるいは, 間欠的なまたは孤立したパルス照射で行うことができる。パルス照射では, 系に一度に多くの線量が照射される。

定常的な照射の際の放射線化学収率 G_i は, 照射中の系の化学過程の速度を決定する。実際, 定義によれば, 化学反応速度は dc_i/dt に等しい。ここで, c_i は i 番目の試薬の濃度(粒子/cm³), $G_i = dn_i/dE$, n_i はエネルギー E (100 eV) の吸収で形成される(分解する)粒子の量である。 ρ を媒質の密度(g/cm³), D を放射線の吸収線量(eV/g), \dot{D} を線量率(eV/(g·s))とする^{*7}。そうすると

$$\frac{dc_i}{dt} = G_i \cdot \dot{D} \cdot \frac{\rho}{100} \quad \text{あるいは} \quad \frac{dc_i}{dt} = G_i \cdot \dot{D} \cdot \frac{\rho}{100} \cdot \frac{1}{N_A} \quad (3)$$

となる。あとの式で, 濃度 c_i はしばしば行われているように, dm³ あたりのモル数(mol/dm³ \equiv M), ρ は dm³ あたりの kg, 吸収線量は kg あたりの eV で示されている。 $N_A = 6 \times 10^{23}$ はアボガドロ数である。

ここで述べなかった放射線化学の基礎概念は, あとで実際に必要になったときに述べることにする。

2 電離放射線: 分類と線源

電離放射線には二種類ある。一つは粒子放射線である。これは質量をもった高速で運動する素粒子および原子で, 荷電粒子(電子, 陽子, 加速イオン)と中性電荷の粒子(高速中性子)がある。もう一つは電磁放射線で, 紫外線, レントゲン線, γ 線など 10 eV 以上のエネルギーをもつ光子である。

放射線が発見された当時のレントゲン線の線源は手づくりのもの(レントゲン管)であったし, α 線, β 線, γ 線の線源は天然のウラン塩であった。放射性壊変の結果として形成される原子は, 通常, それ自身放射性であり, 壊変を続けてより単純な原子へと変化していく。最終的に安定な非放射性原子が形成されて, 壊変は止まる。放射能の本質はこのようなものであり(ラザフォード, ソディ, 1903 年), 外部からエネルギーが与えられなくて

^{*6} 近年, 100 eV の代わりに 1 J が用いられている。この場合の収率は, 照射対象物が 1 J の放射線エネルギーを吸収した際の生成物あるいは分解生成物のモル数で示される。2 つの収率を結びつける次の関係がある。 G (粒子数/100 eV) = $9.68 \times G$ ($\mu\text{mol/J}$)。

^{*7} 線量率 (dose rate)。単位時間あたりの吸収線量の増加量。

も、放射性物質は長期間エネルギーを放出しつづける。原子核壊変の結果、出発元素とは物理的性質だけでなく、化学的性質も異なる元素が形成される。したがって、放射性壊変は元素の化学変化も伴う。

その後、地球上の電離放射線源である放射性原子の他に、地球外電離放射線である宇宙線が見出された。電離放射線源を自然放射線源と人工放射線源に区別することは現在でも行われている。

人工放射線源は原子炉と種々の荷電粒子加速器である。宇宙線以外の自然放射線の線源は、多くの放射性原子核である。これらの約 30 個はエネルギーが 5–8 MeV の α 粒子を放出する。ほぼ同数の放射性同位元素がエネルギー 0.1–2 MeV の β 粒子（電子と陽電子）を放出する。ウラン、トリウムおよびその放射性壊変核は系列（放射系列）を形成するが、どれも自然に存在する基本的な放射線源である。これ以外のどこにでもある放射性核は ^{40}K で、最大エネルギー 1 MeV の β 粒子を放出する。 ^{40}K は、土、岩石、水、（人を含む）生物中のカリウム原子 10^5 個あたり 1 個の割合で含まれている。ウラン、トリウム、カリウムの放射線は、石炭や石油といった自然エネルギー源の形成に特別な役割を演じている。地球誕生のときから存在していてさらに今後何十億年と存在し続けるであろう多くの元素に加えて、自然界にはこれ以外のより少ない量で存在する放射性原子もある。

2.1 自然電離放射線源

2.1.1 α 放射性核

原子核の α 壊変では、当該核から自発的に正電荷を帯びた α 粒子（ヘリウム ^4_2He の原子核）が飛び出す。このとき、核の電荷は $2e$ 減少し、核子の数は 4 減少する。放出される α 粒子はきわめて大きな、そして、一定の運動エネルギー（原子核の種類に依存して、5–8 MeV）をもっている。自然界に存在する原子核から放出される α 粒子のエネルギーは普通 8 MeV をこえない。

キュリー夫妻は 1 g のラジウムから放出される α 粒子の吸収による熱を測定し、100 cal/h という値を得た。これは、4 日間で 1 g のラジウムを含む 1 杯のコーヒーを沸騰させることができる熱量である。この元素にこのように多くのエネルギーが含まれているということは、当時の社会の広い範囲にわたって、大きな興味を引き起こした。

α 壊変の最も単純な理論（G. ガモフ、1928 年）においては、 α 粒子は物質の原子核の内部に存在していると仮定される。原子核は α 粒子にとってポテンシャルの谷となる。核内の α 粒子のエネルギーはポテンシャル障壁

を「古典的」に乗り越えるには不十分であり、 α 粒子は原子核内にとどめられることになる。しかし、トンネル効果のおかげで α 粒子は原子核から飛び出すことができるのである。つまり、指数関数的に小さいが、ゼロではない確率で、 α 粒子は有限な大きさのポテンシャル障壁を透過する。 α 粒子の放出時刻は予測できず、放射性壊変現象は確率的である。理論によって、単位時間における壊変の確率、あるいは、その逆数である放射性原子核の平均寿命だけを知ることができる。

2.1.2 β 放射性核

β 壊変には三つの種類がある。原子核からの高速 (0.1–2 MeV) の β^- 粒子、 β^+ 粒子（陽電子）の放出と電子捕獲である。電子捕獲とは、原子核が電子殻（通常は、原子核に最も近い K 殻）から電子を捕獲してしまう過程である。上記すべての場合において、原子核の電荷は 1 だけ変化するが、核子の数は変化しない（ただし、原子量はごくわずかに小さくなる）。

原子核から完全に一定のエネルギーで放出される α 粒子と異なり、放射性同位元素から放出される β 粒子は種々のエネルギーをもつ。 β 粒子の中で最も速いものは、光速に近い速度で運動する。種々のエネルギー値は β 粒子にまったく決まった形で分配される。 E と $E + dE$ の間のエネルギーをもつ β 粒子の数のエネルギー E に対する依存性をグラフで示すと、どんな放射性物質の β 線に対しても得られる曲線の形は同じになる。エネルギーが増加するにつれ、 β 粒子の数は、最初増加し、最大値をとり、その後しだいに減少してゼロになる（図 2）。 β 粒子の数がゼロになるエネルギー E_{\max} は、放出される β 粒子の最大エネルギーである。最大エネルギーは、それぞれの β 放出同位元素に対して、 α 放出同位元素に対する α 粒子のエネルギーとまったく同様に特徴的な量である。自然界の β 放出体については、 E_{\max} の大きさはたいいてい 0.3–3 MeV の範囲にある。重要な水素の同位体である ^3H （トリチウム）だけがずっと低いエネルギーの β 線を放出する。トリチウムの β 線の最大エネルギーは 18 keV で、平均エネルギーは 5.7 keV である。

β 壊変において、原子核は一定のエネルギー E_{\max} を失う。 β 粒子のエネルギーが一定にならない理由は、各 β 壊変において原子核が二つの粒子を放出するためである（W. パウリ、1931 年）。これらの粒子は、正または負電荷をもつ電子あるいは陽電子と中性電荷の粒子である反ニュートリノあるいはニュートリノである。平均では、（反）ニュートリノは E_{\max} の $2/3$ のエネルギーを、 β 粒子は $1/3$ のエネルギーをもち去る。

β 壊変で飛び出す電子（陽電子）は核の内部に存在して

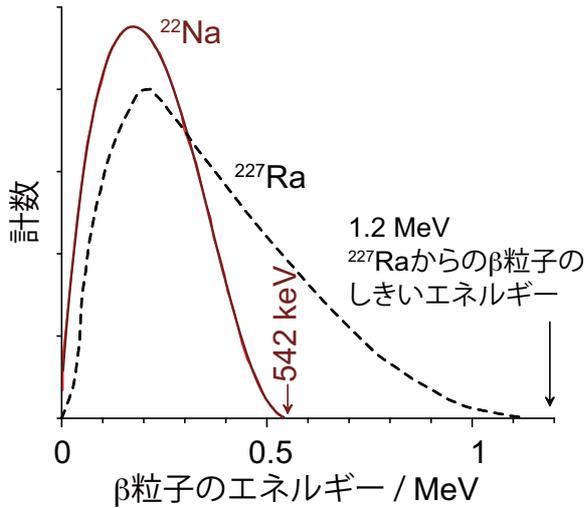


図2 ^{22}Na (β^+ 壊変) と ^{227}Ra (β^- 壊変) の壊変にともなう β 粒子のスペクトル

いるわけではなく、陽子あるいは中性子が変化することにより生成される。 $n \rightarrow p + e^- + \bar{\nu}_e$, $p \rightarrow n + e^+ + \nu_e$ 。この考えでは、 β 粒子は核内粒子ではなく、核子に含まれている粒子ということになり、 α 壊変にくらべてはるかに深く物質の構造に立ち入っていることになる。 β 壊変の理論はエンリコ・フェルミによって1934年に構築された。

2.1.3 γ 放射能

α 壊変や β 壊変と異なり、いわゆる γ 壊変は電荷および質量数の変化を伴わない。原子核からの γ 量子（高エネルギーの光子）の放出は、原子核の長寿命励起状態から基底状態への自発的な遷移によって生じる。事実、 γ 線が放出されても、原子核の原子番号も核子の数も変化しない。

γ 量子の放出の他に内部転換と呼ばれる別の過程も存在する。内部転換過程では、核によって解放されたエネルギーは、 γ 線ではなく、原子の電子の一つに与えられ、原子のイオン化が起こる。電子捕獲と呼ばれるこれとは逆の過程では、原子核は自発的に自分自身の軌道電子（通常は K 殻電子）の一つを吸収する。これらの過程のそれぞれにおいて、原子の内殻に生じた空孔を電子が満たす際に、X 線の放出が起こる。

2.1.4 自発核分裂

$Z \geq 90$ の原子核 (Th, Pa, U および超ウラン元素) は、二つのほぼ同じ質量 ($m_1 : m_2 \approx 2 : 3$) の原子核片に自

身で分裂する。これを、自発核分裂 (K. A. ペトロジャック, G. N. フレロフ, 1940 年) という。分裂片は非常に多量のエネルギーをもち去る。たとえば、 ^{235}U の核分裂では、分裂片が獲得する全運動エネルギーは 160 MeV にもなる。このような大きなエネルギーが生じる原因は、最初の原子核の質量が分裂片に比べて大きいことにある。

2.1.5 放射性壊変後の原子

α 粒子の放出後に残される原子は、電子の電荷の二倍に等しい負の電荷をもつと考えられる。しかし、原子核壊変後の原子が、正に帯電していることが明らかとなった。これは α 粒子の放出後に残される陰イオンが、発射後の大砲のように、反跳を受けるためである。 α 壊変後の陰イオンの速度は十分大きく、光速の 0.001 倍程度にもなる。このように大きな速度のため、陰イオンは反跳後に衝突する相手の分子を強くイオン化する。しかし、それと同時に、陰イオン自身もこのような衝突で自身の電子を失う。このとき、付加している二つの電子だけでなく、さらに一つか二つの電子を失う。分子との衝突がありえない高真空では、原子核壊変後の原子の電荷の変化は起こらない。

2.1.6 放射性壊変の法則

一つの放射性核は壊変によって別の放射性核になり、生成核がさらに壊変していくため、多くの壊変生成物が形成される。これらの生成物の全体は放射系列を構成する。壊変前の元素を親（母）核種、壊変後の核種を娘核種と呼ぶ。自然に存在する放射性元素が形成する三つの放射系列には、トリウム系列、ウラン-ラジウム系列、アクチニウム系列がある。これ以外に四番目の系列としてネプツニウムの α 壊変によって生じる放射系列がある。ネプツニウムは原子炉や核爆弾の爆発で生じる元素である。これら各系列の最後は鉛の安定同位元素（トリウム系列、ウラン-ラジウム系列、アクチニウム系列）あるいはビスマスの安定同位元素（ネプツニウム系列）である。

放射性壊変は、温度や圧力などの外部パラメータがどんなに広い範囲にわたって変化しても、影響されることはない。放射性壊変の法則、すなわち、ある瞬間に壊変していない放射性核の数 $N(t)$ の時間依存性は、この核がどれだけ「生きのびてきたか」に関係なく、壊変確率が一定であるとすれば、簡単に求められる。微小な時間間隔 dt の間に壊変していない核の数 $N(t)$ は dN だけ減少する。このとき、 dN は $N(t)$ と dt に比例する。

$$dN = -\lambda \cdot N(t) \cdot dt \quad (4)$$

比例定数 λ は時間に依存しない核の壊変確率である。(4) のマイナス記号は壊変していない核の数が時間とともに減少することを意味している。この式から、速度 $dN/dt = -\lambda N$ となるので、 $N(t)$ は時間とともに指数関数的に減少する。

$$N(t) = N_0 e^{-\lambda t} = N_0 e^{-t/\tau} \quad (5)$$

ここで N_0 は $t=0$ における放射性核の最初の数で、 $\tau=1/\lambda$ は放射性核の平均寿命である。放射性壊変の法則は、 \exp のかわりに 2 を用いて次の形で表されることもある。

$$N(t) = N_0 \cdot 2^{-t/T_{1/2}} \quad (6)$$

この場合、 $T_{1/2}$ は半減期と呼ばれる。時間 $T_{1/2}$ において、原子核の量が最初の半分になることは明らかである。(5) と (6) の右辺を比べることにより、次の関係が得られる。

$$T_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \tau \cdot \ln 2 \approx 0.693\tau \quad (7)$$

2.1.7 地球におけるウランの分布

放射性壊変の法則から、超新星の爆発で噴出された物質中の ^{235}U と ^{238}U の同位体比 $^{235}N_0/^{238}N_0$ を見積もることができる。最近の理論によれば、超新星は宇宙のウラン工場である。約 50 億年前に、太陽の近くで爆発した超新星の一つから放出された物質が、そのとき形成されつつあった太陽系と地球に取り込まれたと考えられている。

現在の ^{238}U に対する ^{235}U の天然同位体存在比は、0.00725 である。 ^{235}U の寿命が短いため、昔はこの比はずっと大きかったはずである(これらの同位体の寿命の測定値は、 $\tau_{238} = 6.5 \times 10^9$ 年、 $\tau_{235} = 10^9$ 年である)。

現在の地殻のウラン含有量は、1 トンあたり 3–4 グラムである。図 3 にウランの同位体の濃度の地質学的時間による変化が示されている。地球の形成時のウランの同位体組成比が基本的に現在と異なっていたことがわかる。50 億年前には、 ^{235}U の量は ^{238}U と同程度であった。

地殻 1 トンあたりのウランの重量平均含有量はおよそ 3–4 グラムであり、トリウムは平均含有量は約 10 グラムである。自身の壊変生成物と平衡になっている 1 グラムの天然ウランは、1 秒間に 0.95 erg のエネルギーを排出する。トリウム 1 グラムの 1 秒間の排出エネルギーは 0.27 erg である。したがって、地殻 1 トンあたりの 1 秒間の放出エネルギーは $6 \text{ erg/(t}\cdot\text{s)} = 1.4 \times 10^{-7} \text{ cal/(t}\cdot\text{s)}$ と

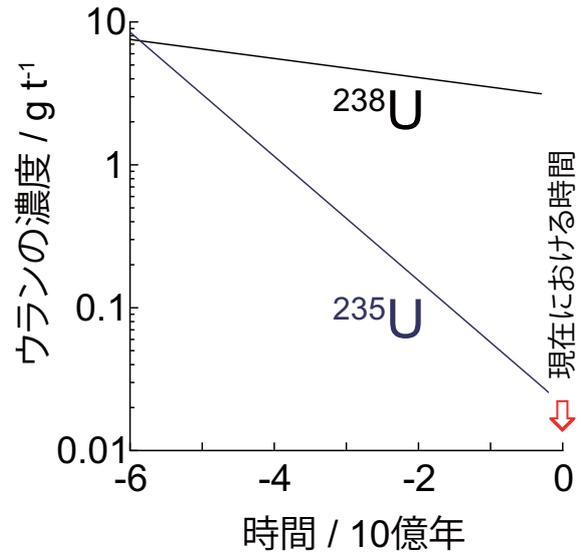


図 3 地殻におけるウランの同位体の質量濃度 (g/t) の時間依存性。地殻内ウランの平均含有量は 3 グラム/トンに等しいとした。

なる^{*8}。

地球を構成する物質の単位質量あたりの放射線源の密度は、地球全体で変化せず、地殻に対して求められた値と同じであると仮定しよう。そうすると、地球の単位体積あたりのエネルギー放出速度は、 $A = 7.7 \times 10^{-13} \text{ cal/(cm}^3\cdot\text{s)}$ に等しくなる。ここで、地球全体の平均物質密度として 5.5 g/cm^3 を用いた。これから、地球全体から排出される熱量は、

$$Q = \frac{4}{3}\pi R^3 \cdot A \approx 8 \times 10^{14} \text{ cal/s} \quad (8)$$

となる。ここで $R = 6400 \text{ km}$ は地球の半径である。

定常状態では、地球内の発熱と地表からの熱の放出が等しくなければならないので、

$$Q = 4\pi R^2 \cdot \kappa \left(\frac{dT}{dr} \right)_{r=R} \quad (9)$$

となる。ここで、 $\kappa \approx 0.004 \text{ cal/(deg}\cdot\text{cm}\cdot\text{s)}$ は、水成岩の熱伝導係数の平均値である。これから、地球の全体積でウランとトリウムの分布が均一であると仮定すれば、ウランとトリウムの放射壊変系列によって生じる地球における熱勾配の大きさを見積もることができる。

*8 ここで用いた数値は K. U. アレンの便覧 “Astrofizicheskie Veli-chini” (天文物理量), Moskva, IL, 1960 から引用した。

$$\left(\frac{dT}{dr}\right)_{r=R} = \frac{AR}{3\kappa} \approx 0.04 \text{ deg/cm} \quad (10)$$

この値は観測値 $3 \times 10^{-4} \text{ deg/cm}$ に比べて 100 倍大きく、地球中心部において温度が非常に高いことになる。もちろん、ここで得られた見積もりは、地球における熱の定常状態が達成されている場合に対応しているため、地表で可能な最も高い温度勾配の大きさを与えていることになる。定常状態が達成されるまでに必要な時間は、 $\sim R^2/(6D_T) \approx 3 \times 10^{11}$ 年であり、地球の年齢を大きくこえている（ここで、 $D_T = 0.006 \text{ cm}^2/\text{s}$ は花崗岩と玄武岩の熱伝導係数である）。しかしながら、非定常状態の可能性を考慮した数値計算によっても、不一致は解消されない。

食い違いのもっともな理由の一つは、地殻におけるウランの優先的な濃縮である。地球の体積全体にわたって放射性元素の分布が一様であるという仮説を否定して、放射性同位元素が地球の厚さ h の表面層にのみ集中していると仮定しよう。この場合、定常状態において、 $h \ll R$ であれば、

$$4\pi R^2 \cdot \kappa \left(\frac{dT}{dr}\right)_{r=R} = A \int_{r=R-h}^R 4\pi r^2 dr \approx 4\pi R^2 \cdot hA \quad (11)$$

が得られる。これから、

$$\left(\frac{dT}{dr}\right)_{r=R} \approx \frac{Ah}{\kappa} \quad (12)$$

となる。温度勾配の値が 0.0003 deg/cm に等しいと仮定すると、ウランが濃縮している地殻層の厚さは、おおよそ、 $h \approx 10 \text{ km}$ となる。

地質学的時間 t (10 億年単位) の間に、岩石中に濃度 U (g/t) 含まれているウランの壊変で生じる α, β, γ 放射による吸収線量 (MGy) は、次のようになる ($\tau_{238} = 6.5 \times 10$ 億年)。ここで、 $D_\alpha, D_\beta, D_\gamma$ は α, β, γ 放射によるそれぞれの吸収線量、 D_{total} はこれら全体の吸収線量である。

$$D_\alpha = 17.38 \cdot U \cdot (e^{t/6.5} - 1) \approx 2.8 \cdot Ut$$

$$D_\beta = 2.28 \cdot U \cdot (e^{t/6.5} - 1) \approx 0.368 \cdot Ut$$

$$D_\gamma = 1.48 \cdot U \cdot (e^{t/6.5} - 1) \approx 0.239 \cdot Ut$$

$$D_{\text{total}} = 21.14 \cdot U \cdot (e^{t/6.5} - 1) \approx 3.4 \cdot Ut$$

全体の吸収線量は数 MGy に達し、最も大きな寄与は α 放射によることがわかる。 α, β, γ 放射の相対的な寄与はそれぞれ 82.2, 10.8, 7% である。

物質に分布している ^{232}Th とその壊変生成物も同様に寄与する。ウランとトリウムは α 放出壊変生成物による

全吸収線量は

$$D_a(\text{MGy}) = (2.8 \cdot U + 0.8 \cdot \text{Th}) \cdot t$$

となる。ここで、前と同様に、 U と Th はウランとトリウムの濃度 (g/t) を示している。また、 t は 10 億年単位の時間である。

2.1.8 オク口の天然原子炉

原子炉の開発は、20 世紀前半の人類による最も偉大な成果とみなされている（しごく妥当な見解である）。しかし、自然は人間よりずっと先んじていたのである。

1972 年にフランスの研究者が、オク口（ガボン）の鉱山に含まれている天然ウランの同位体組成が周知の組成と大きく異なることを見出した。通常は 0.72% ある ^{235}U が 0.64% しかないという場合もあった。当初、これは遠い昔に地球にやってきた宇宙人が使用した原子炉の痕跡とされ、この発見に関するすべての情報が機密扱いとされた。しかし、その後、この原子炉は、はるか昔に自然に形成されたものであることが判明した。すでに述べたように、 ^{235}U の半減期は 0.71×10^9 年であり、 ^{238}U の半減期 4.5×10^9 年より短い。このため、初期の地球では、 ^{235}U の含有量は現在の約 30 倍であった。 ^{235}U の分裂で生成する元素の同位体の精密分析により、約 2×10^9 年前のオク口では、 $\approx 0.6 \times 10^6$ 年間天然の原子炉（軽水炉）が稼動していたことが明らかにされた⁴⁹。この原子炉は、ウランを含む物質の四つの「ブロック」からなり、それぞれのブロックの体積は 300 m^3 であった。合計出力は 0.1 MW で、中心の温度は $400\text{--}600 \text{ }^\circ\text{C}$ であった。

今のところ、オク口以外に過去に天然原子炉が存在したという証拠は得られていない。しかし、先カンブリア時代には「オク口現象」はただ一つではなかったという考えがある。地球の進化における天然原子炉の役割は、連鎖核分裂で排出されるエネルギーという点からも、また、分裂片から放出される電離放射線の影響という点からも大きなものであった可能性がある。

2.1.9 宇宙線

1912 年に、地球における電離放射線源である放射性原子の他に、地球外自然電離放射線、すなわち、宇宙線がオーストリアの物理学者ヴィクトル・ヘスによって発見された。

ヘスは気球に乗り、現在から見るときわめて簡単な測

⁴⁹ これは当時の天然ウラン中の ^{235}U の含有率が 3% をこえていたことから、可能であった。

定器であるが検電器をもって、上空高くあがり、高度上昇とともに強度が増加する、つまり、宇宙空間から地球にやってくる、放射線束を発見した。その後、宇宙線が宇宙空間から上層大気圏にやってくる荷電粒子および中性粒子であることが明らかにされた。

宇宙線は主に陽子 (90%) と α 粒子 (7%) からなっているが、これ以外の粒子も含まれている。その大部分は、より重い原子核 (1.2%)、電子 (1.5%)、陽電子 (0.3%) そして反陽子である。宇宙線に含まれる光子はさほど多くないことがわかっている。宇宙線には、間違いなく、ニュートリノが存在する。宇宙線の化学組成の特殊性は、宇宙全体の平均より 10^5 倍も多くのリチウム、ベリリウム、ホウ素が含まれている点にある。このほか、宇宙線には、宇宙全体に比べてずっと多くの重い元素が含まれている。その中には、 $Z > 30$ のものもある。

一次宇宙線の強度は大体 2 粒子/($\text{cm}^2 \cdot \text{s}$) である。地球および大部分の銀河における宇宙粒子の数は、およそ 1 立方センチメートル当たり 1 水素原子である星間ガスの粒子の濃度と比べてごくわずかである。それにもかかわらず、宇宙線のエネルギー密度は、 $\sim 1 \text{ eV}/\text{cm}^3$ で、銀河ディスクおよび銀河を満たす媒質ガスの運動エネルギー密度と等しい。宇宙線によって地球にもたらされるエネルギーは、太陽から受け取るエネルギーの 3×10^8 分の 1 であり、星の可視光線から受けるエネルギーに大体等しい。地球および惑星間空間の磁場の影響をのぞけば、一次宇宙線は等方的で定期的であると考えられる。

宇宙線の一次成分のエネルギースペクトルは、 10^8 eV から非常に高いエネルギー 10^{20} eV まで及んでいる。宇宙粒子の平均エネルギーは、 10^{10} eV 程度である。核子については、 10^9 eV 以上の運動エネルギーの領域では、宇宙線束 $F(E)$ はエネルギーの増加とともにべき乗則 $F(E)dE \propto E^{-2.7}dE$ で減少する。宇宙線粒子のかなりの部分は、現在の加速器でも得られないエネルギーを有しているように思われる。

主要な宇宙線源は、おそらく、超新星である。地球の周辺では、太陽で発生した宇宙線の影響も大きい。地球の大気を通過する際、(ニュートリノ以外の)一次宇宙線粒子は大気の原子との衝突によってエネルギーを失い、二次宇宙線に変化する。海面で測定される粒子は、一次宇宙線に比べてはるかに少ない(図 4)。これらは、硬成分を構成するミュオン ($\approx 70\%$)、軟成分である電子と光子 ($\approx 30\%$) そしてニュートリノである。ニュートリノの流束は、一次放射線の全流束の 0.1 倍である。ハドロン(陽子、中性子、パイオン)は 1% より少ない。大気を通過した宇宙線の海面におけるエネルギーは、30 分の 1 に低下する。大気は地球における生命の発展を守る

頼りになる盾として作用している。しかし、海面に到達する二次宇宙線は弱くなっているとはいっても、地表における自然放射線バックグラウンドの 4 分の 1 に相当する。自然放射線バックグラウンドの残りは、鉱石、土壌、水、大気に含まれる放射性同位元素による。

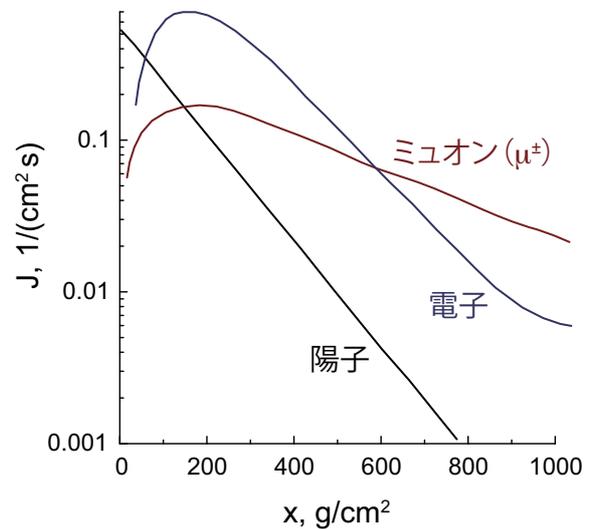
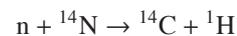


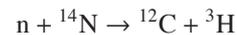
図 4 1 秒間に水平面 1 cm^2 にふりそそぐ宇宙線の種々の成分の粒子数。上層から地表までの高さによる変化。横軸の x は、底面の面積が 1 cm^2 で高さの異なる大気の円柱の重量を示している。海面では、 $x = 1 \text{ kg}/1 \text{ cm}^2 = 1000 \text{ g}/1 \text{ cm}^2$ であり、横軸の右端に対応する。

2.1.10 宇宙線によって形成される放射核

二次宇宙線の大気分子の核との衝突は原子の破片を生じるが、その一部は放射性である(図 5)。中性子成分の多くは ^{14}N 核によって吸収され、 ^{14}C を生成する。



ところが、エネルギーが 4 MeV 以上である 5% の中性子は、トリチウムを生成する。



大気中の ^{14}C 形成の全速度は約 $2.2 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であるが、分裂片として直接形成されるトリチウムは $0.2 \text{ cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ である。高層大気で生じるこれらの放射性生成物はすぐに酸化して、 $^{14}\text{CO}_2$ 、 ^3HOH を形成し、そして、大気中で生じる通常の化学過程に關与する。 ^{14}C と ^3H の半減期は、それぞれ 5730 年および 12.33 年である。これらの生成物が大気中にとどまっている時間は、およそ 25 年

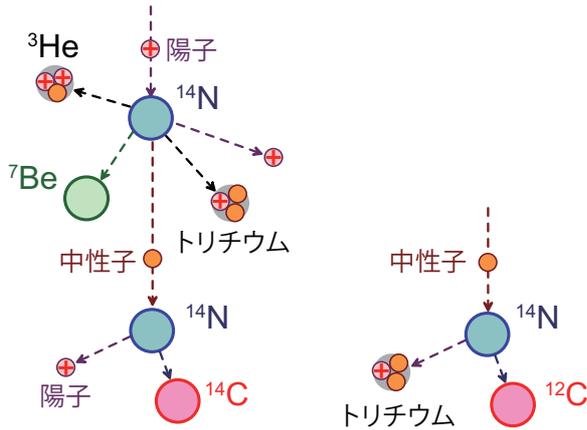


図5 大気中における ^{14}C とトリチウムの生成．高エネルギーの陽子が ^{14}N 核を破砕し，これに伴って放出された中性子が別の ^{14}N 核と相互作用して， ^{14}C あるいはトリチウムが形成される．

である．その後これらの生成物は，雨として海あるいは陸地に降り注ぎ，生物に取り込まれる． ^{14}C と ^3H の含有量から残留有機物を含むサンプルの年齢を決定することができる．トリチウムは，標識原子として，気象学の研究や農業生産物の年齢の決定に利用されている． ^{14}C は考古学の研究に広く用いられていて，年代決定のための放射性炭素法の基本の同位元素である．

^{14}C 法の正確さは，地球磁場や太陽風が変化することが原因となり，平均的な宇宙線束が変動し ^{14}C の生成速度が一定でなくなるため制限される．これらの因子は，放射性炭素法で求められた年齢と独立な方法で決定された年齢を比較すれば調べることができる．最も長い期間の連続した年代は，非常に古い木（たとえば，カリフォルニアの山の松）の年輪から得られ，紀元前 5500 年までさかのぼった比較が可能である．検量線が図 6 に示されている．放射性炭素で決定された年齢が，年輪年代学法で得られた年齢より，少しだけ若いことがわかる．

2.2 人工放射線源

2.2.1 原子炉

原子炉は最も強力な中性子源である．原子炉で得られる中性子束は， 10^{15} 中性子/($\text{cm}^2 \cdot \text{s}$) に達する．原子炉から得られる中性子のエネルギースペクトルは連続的で，100 分の数 eV から 10 MeV に及んでいる（核分裂中性子の平均エネルギーは大体 2 MeV である）．

すべての原子炉において，核分裂過程の結果，多量の

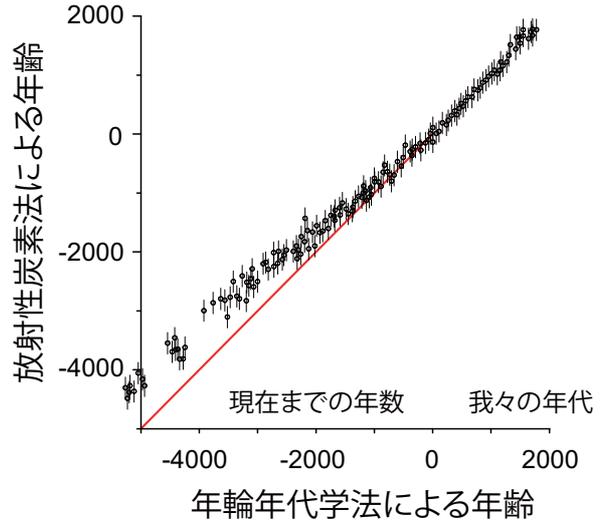


図6 松の年輪サンプルの ^{14}C 法による年代測定．放射性炭素法で決定された年齢がいくらか年輪年代法より若いことがわかる (M. ロンゲイル, *Astrofizika Visokikh Energii*, M. Mir, 1984)

β 放射性核が生成するが， β 壊変は常に反ニュートリノの生成を伴う．このため，原子炉は強力な反ニュートリノ源でもある．反ニュートリノが原子炉を用いて実験的に確かめられた（1953–1956 年）のはこのような理由による．

原子炉で生成される副生成物として，新たな放射性元素が得られてきた．安定な同位元素に原子炉からの中性子を照射すると，主として β 粒子と γ 線を放出する人工放射性物質をつくることができる．たとえば， ^{60}Co は原子炉の中でコバルトの棒に中性子を照射することによって得られる． ^{60}Co は放射線テクノロジーにとって強力なかけがえのない γ 線源である．

2.2.2 荷電粒子加速器

加速器は電界加速により荷電粒子を高エネルギーに加速する装置である．加速される粒子の種類によって，電子加速器，陽子加速器，イオン加速器がある．加速される粒子の軌道によって，直線型のものと円あるいはらせん型のものがある．

最初の直線型の加速器は 1931 年に米国の物理学者ヴァン・デ・グラフによってつくられた．通常，この加速器はエネルギー 0.5 から 5 MeV までの電子，陽子，ヘリウムイオンビーム（直流あるいはナノ秒時間幅のパルスビーム）を発生させる．大型の装置で高いエネルギー

を発生させている。しかし、加速される粒子に一度に大きなエネルギーを与える代わりに、少しずつ加速してエネルギーを大きくすることもできる。この考えはサイクロトロンとして具体化された(E. ローレンス, 1931年)。これは、現在のすべてのサイクロトロン共鳴加速器の原型となった。

レントゲン装置は、熱陰極から放出された電子の加速に高電圧を用いている。電子は真空管内を飛行し、そして陽極に衝突する。このとき、電子の運動エネルギーの一部が高エネルギー量子に変化する。レントゲンにより発明された装置は40 kVの電圧で使われた。最近のレントゲン管は、数kVから1 MVをこえる電圧で使われている。電圧が高ければ高いほど、レントゲン線のエネルギーは高くなり、その透過力も大きくなる。

サイクロトロン、ヴァン・デ・グラフ加速器、線型加速器など現在産業利用されている装置は、荷電粒子を100 MeVを大きくこえるエネルギーまで加速することができる。

原著者プロフィール

フセヴォロド・ミハイロヴィッチ・ビャーコフ：

Vsevolod Mikhailovich Byakov. 1954年モスクワ大学(Lomonosov Moscow State University)卒業。大学では、理論物理学者テルレツキー(著書「相対性理論のパラドックス」(東京図書)で日本でも知られている)の研究室で宇宙線の起源に関する研究を行った。大学卒業後、ESRの創始者であるザボイスキーの招きで、理論実験物理学研究所(Institute of Theoretical and Experimental Physics, ITEP)に入所(母方の祖父が勤務していた化学工場でザボイスキー家の人々と一緒にいたこと)。原子炉(均一型軽水炉)関連の物理化学過程や排ガス中の硫黄、窒素酸化物の放射線除去などの研究を実施。1973年には、水および分子性物質中において、放射線分解による水素生成とポジトロニウム形成が共通の機構で生じることを提唱した。地球における石炭や石油の生成における放射線の役割についての研究も行っている。現在、ITEP 相談役、ロシア化学技術大学(D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia)教授。主な研究分野は、放射線化学、宇宙物理学。

セルゲイ・フセヴォロドヴィッチ・ステパノフ：

Sergey Vsevolodovich Stepanov. 1983年、モスクワ金属

工業大学(Moscow Institute of Steel and Alloys)卒業、1987年、“Spin dynamics of the polarized short-lived beta-active nuclei. Beta-NMR spectroscopy”の研究でITEPからPh. D.取得。2005年、“Positrons in molecular media: theoretical grounds of positron annihilation spectroscopy”の研究で、博士学位取得。現在、ITEPの原子スケール研究センターの副センター長。モスクワ大学主任研究員と国立核研究大学(National Research Nuclear University “MEPhI”)の准教授を兼任。主な研究分野は、原子核プローブによるスピンドYNAMICS、ポジトロニウム化学。



図7 原著者近影。左：ビャーコフ氏，右：ステパノフ氏。

著者略歴

小林 慶規：1976年東京大学工学部卒業，1981年東京大学大学院工学系研究科単位取得退学，工学博士。通商産業省工業技術院化学技術研究所，1997年物質工学工業技術研究所研究室長，現在，産業技術総合研究所計測標準研究部門研究室長。専門：材料分析，放射線化学，陽電子科学。趣味：ランニング，将棋ほか。

岡 壽崇：1998年早稲田大学理工学部卒業，2003年早稲田大学大学院理工学研究科単位取得退学，博士(理学)。早稲田大学理工学総合研究センター，産業技術総合研究所，千葉大学大学院を経て，2009年より日本原子力研究開発機構先端基礎研究センター博士研究員。専門：高分子物性，放射線化学，放射線生物学。趣味：ウインタースポーツ，ラグビー観戦ほか。