

海洋におけるプルトニウムの分布と挙動

中西 孝*

1. はじめに

現在の地球上に存在する94番元素プルトニウム(Pu)のほとんどすべては人工的につくられたものであり、その同位体はすべて放射性である。環境へのPuの放出は1945年から1980年にかけて行われた大気圏内核爆発(図1)に伴って起こり、約15 PBq(PBq = 10^{15} ベクレル)の長半減期で α 放射性の $^{239,240}\text{Pu}$ (半減期: 24,110年, 6,563年)によって全地球的環境が汚染された。約15 PBqの $^{239,240}\text{Pu}$ を質量に換算すると約4トンである。なお、 α 放射性

同位体の定量は α 線スペクトロメトリーによって行われるのが普通であるが、この測定法では α 線エネルギーが近接している ^{239}Pu と ^{240}Pu を弁別できないので、両者を合わせて $^{239,240}\text{Pu}$ と示す。

1981年以降において大気圏内核実験による環境へのPuの新たな放出は無くなっているが、原子力利用に伴うPuの生産と取り扱いは続いていてPuの蓄積量が増加の一途をたどっているため、将来的には原子力施設から環境にPuが放出された場合のことを考えておく必要がある。

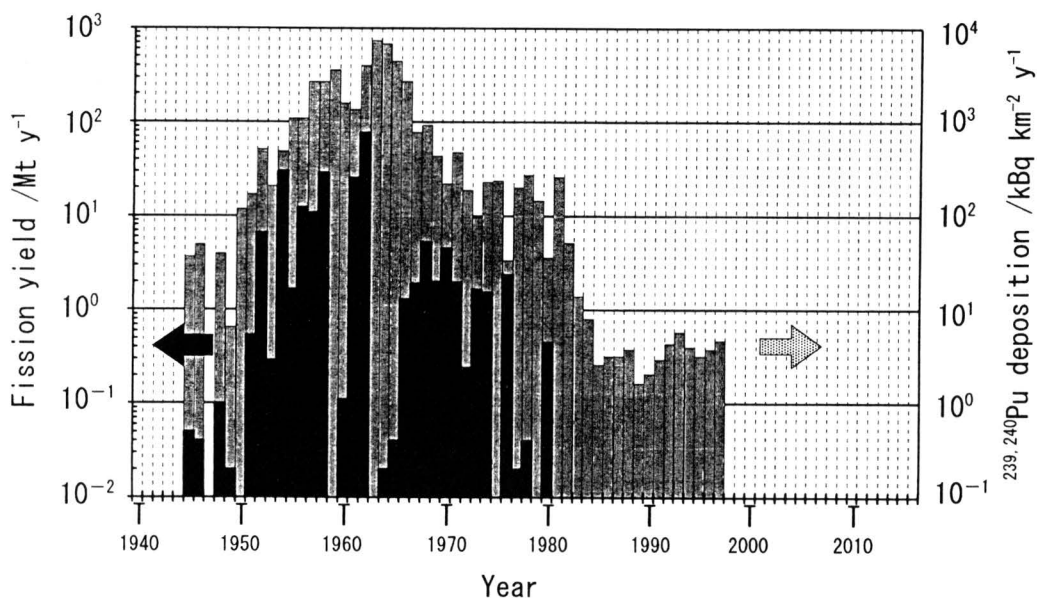


図1 東京と筑波で測定された $^{239,240}\text{Pu}$ 年間降下率の経年変化(灰色棒グラフ、右縦軸)[1] 黒塗り棒グラフ(左軸)は核分裂収率の経年変化[2]

* 金沢大学理学部化学科 教授 〒920-1192 金沢市角間町

中西先生は、平成13年度第16回海洋化学学術賞(石橋賞)を受賞されました。御受賞の記念講演(平成13年4月28日)を基にして、本稿をご調整いただきました。

大気圏内核爆発に際して放出されたPu (核分裂しなかった ^{239}Pu と爆発時に $^{238}\text{U} \cdot ^{239}\text{Pu}$ から生成した $^{239,240}\text{Pu}$)の最大の受容圏は海洋であるが、原子力施設からのものも含めて一旦環境に放出されてしまったPuは、最終的には海底堆積物中に移行して生物圏から隔離されると期待されている。しかし、Puが環境に存在するようになってからまだ60年間足らずであり、Puが海底に到達するまでの長年月にわたる生物地球化学的プロセスの詳細に関する我々の知識はまだ乏しい。そのため、海洋圏における人工元素Puの生物地球化学的挙動を理解するための研究が多数行われてきている。

我々は、Puによる海洋汚染の実態を把握することから研究をスタートさせ、海洋がPu汚染から浄化されていく自然のプロセス、すなわち海水中からPuが堆積物へ除去されていく生物地球化学的過程についての知見を深めるために、1976年から太平洋を中心とする海域において海水(表層および深度別)と海底堆積物を採取してフォールアウトPuを分析し、地球化学的挙動の理解を深めることを目指して研究を行ってきた。

本稿では我々のそのような研究の概要について、未公表のデータ等も一部含めて紹介させていただく。

2. 表層海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度

Puによる海洋汚染の実態把握を目的とする研究の最初に行ったのが表層海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の測定であるが、これは我々の研究の中でもっとも長く続いている[3]-[7]。

大気圏内核爆発で大気中に直接放出された $^{239,240}\text{Pu}$ の降下が顕著であった1984年以前と顕著でなくなった1986年以降に分けて、太平洋・インド洋とそれらの隣接海で我々が測定した表層海水中の

$^{239,240}\text{Pu}$ 濃度値を緯度別に整理して図2に示す。1980年代前半までは、とくに北半球の中緯度帯への顕著な降下を反映して表層海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度が目立って高い海域があったが、1980年代後半以降は総体的に濃度が低下するとともに海域差も小さくなってきている。

特定の海域での表層海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の経年的変化を追跡できた例として 30°N , 147°E (房総半島の南東沖約800 kmの通称B点)周辺海域におけるデータを図3に示す。1978年から1984年にかけて、地表への $^{239,240}\text{Pu}$ 降下率(図1:東京および筑波において気象研究所で取得されたデータ)のほぼ指数関数的な急速な減少のしかた(図3中の-- \times -- \times -- \times --)に比較して緩やかであるが、表層(海面~海面下約100 mまでの混合層)海水中のフォールアウト $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度はほぼ指数関数的に減少しており、みかけの半減時間は約3年であった。表層(混合層)を一つのボックスとする単純なモデルを用い、東京・筑波への $^{239,240}\text{Pu}$ 降下率の変化をB点に適用して表層海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度とその変化を計算によって再現することを試みた結果、表層でのフォールアウト $^{239,240}\text{Pu}$ のみかけの平均滞留時間は8~10年と推定された。1978年以前においても、海面に降下した $^{239,240}\text{Pu}$ の大部分は、平均8~10年間表層海水中に滞留して亜表層へと移行していたものと考えられる。一方、1984年以降は、地表への $^{239,240}\text{Pu}$ 降下率が横ばい状態で推移したこと(図1)に対応して、表層海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の変化も横ばい状態になった(図3)。大気から海面へのほぼ一定の $^{239,240}\text{Pu}$ 流入フラックス(B点への降下率は東京・筑波への降下率にほぼ等しかったと仮定)と表層から亜表層への $^{239,240}\text{Pu}$ 移行フラックスが釣り合った準定常状態と見なして、表層海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 存在量と流入フラックス(=

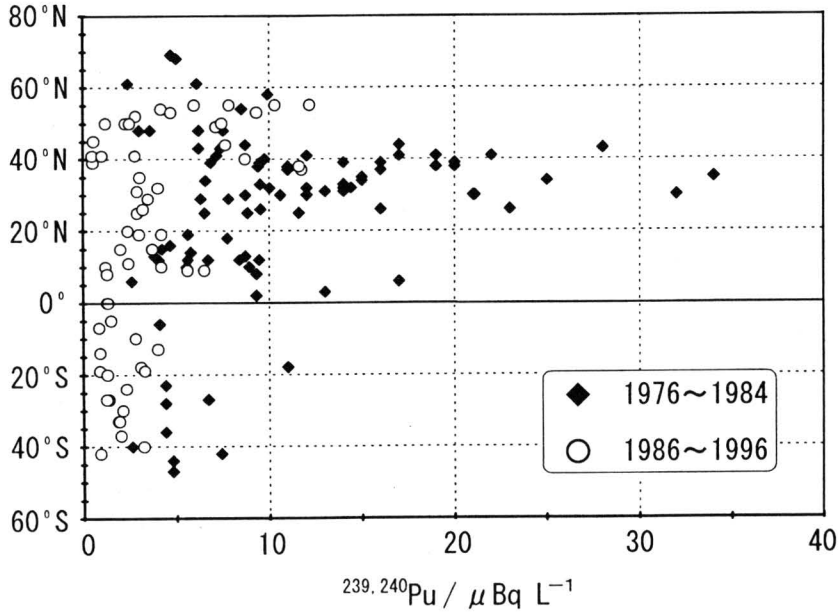


図2 太平洋・インド洋および隣接海の表層海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の緯度分布[3], [5], [6]

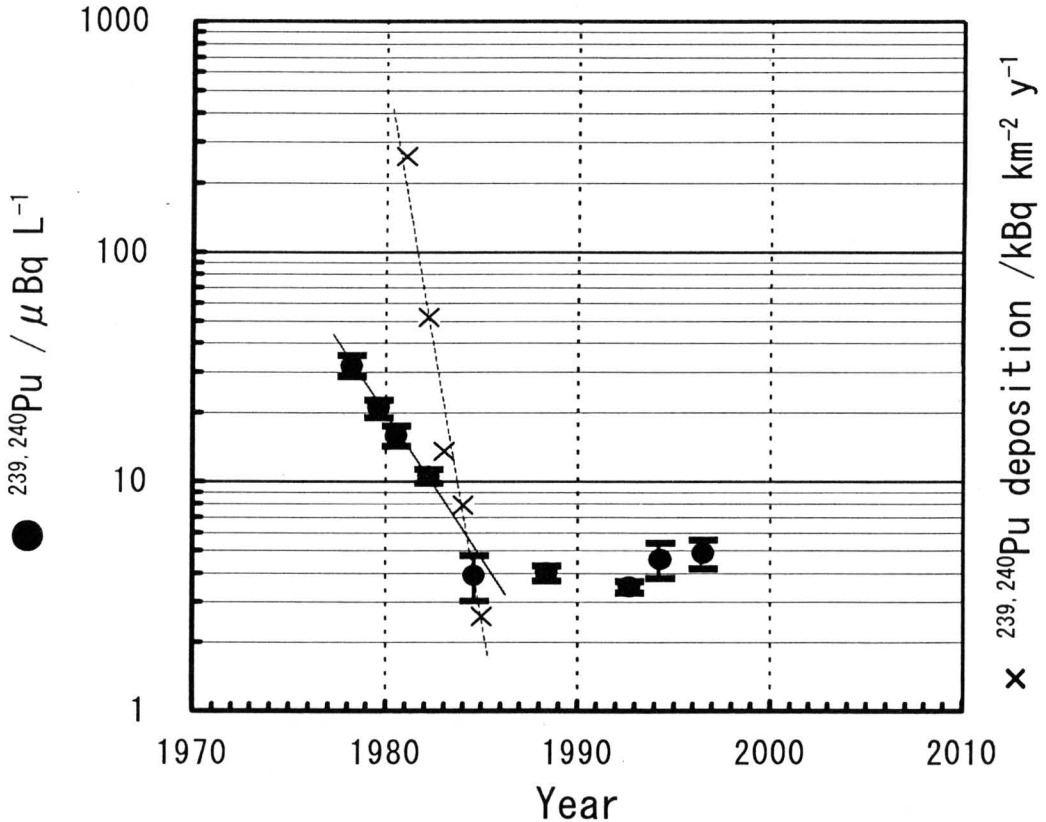


図3 30°N, 147°E (B点)周辺海域における表層海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の経年的変化(●) [3], [5], [6] ×印は東京と筑波で測定された $^{239,240}\text{Pu}$ 年間降下率の経年的変化[1]

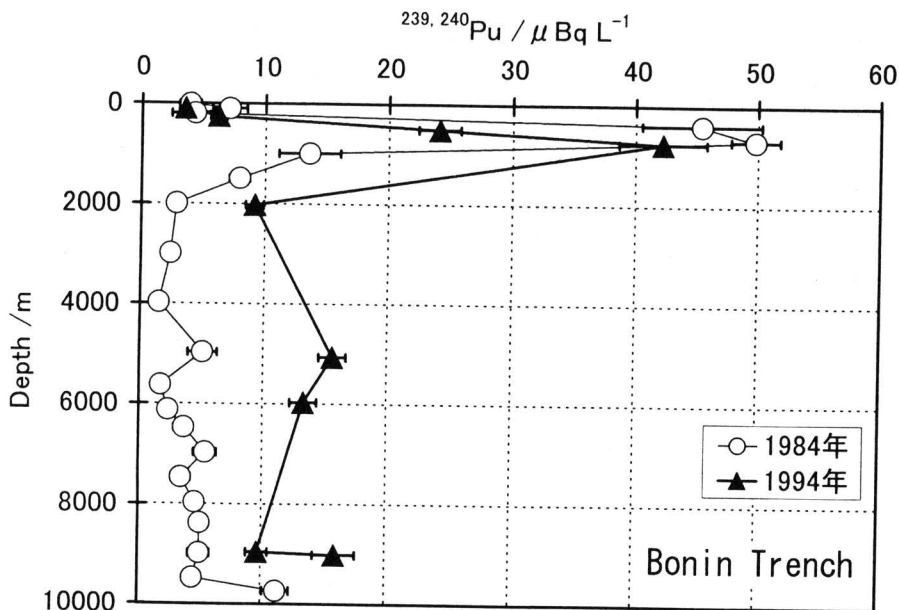


図4 伊豆・小笠原海溝における $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布

流出フラックス) から表層海水中での $^{239,240}\text{Pu}$ のみかけの平均滞留時間を見積もった結果、約100年となった。1984年頃以前と以降で表層海水中での $^{239,240}\text{Pu}$ のみかけの平均滞留時間が異なるという結果であるが(8~10年と約100年)、後述するように、1984年以降において海面に降下している $^{239,240}\text{Pu}$ は一旦地表に降下したのち再浮遊したものが多くと推定されるが、このことが長い平均滞留時間の主な原因と考えられる。

3. 海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の深度分布

表層海水中でフォールアウト $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の減少と海域間の均一化が進む間に亜表層以深の海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度分布はどのようになっていたかというデータ [3]-[7], [8], [9] の一例を図4に示す。伊豆・小笠原海溝の海底直上20 m までの深度分布のデータであり、また、1984年と1994年の比較ができるデータである。我々の

測定によって、海面から約10,000 m の深海底までの $^{239,240}\text{Pu}$ の深度分布がはじめて明らかになったが、亜表層に濃度極大があり海底直上でも濃度が上昇するという図4のような深度分布パターンについては、太平洋のほぼ全域に共通するものであることが1970年代中盤にGEOSECSの研究で明らかにされている。図4は、そのような深度分布パターンが1970年代から1984年、さらに1994年まで続いていることを示している。なお、約5,000 m の層における $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の上昇は、太平洋深海平原の海底直上の $^{239,240}\text{Pu}$ 高濃度水が海溝域の海水柱に拡がっているためと考えられる。

1984年の深度分布と1994年の深度分布の比較や濃度極大層の $^{239,240}\text{Pu}$ の限外ろ過実験の結果から、濃度極大層に存在する $^{239,240}\text{Pu}$ (ほぼ100%が見かけ上溶存種) が表層から沈降してくる粒子(主に生物起源)に吸着して沈降し、中層および深層

を沈降する過程で沈降粒子吸着態と見かけ上溶存種の状態に可逆的に変化しながら $^{239,240}\text{Pu}$ は海底方向に徐々に移行していると考えられる。

しかし、Puの輸送担体となっている沈降粒子の正体と沈降速度、沈降粒子吸着態と見かけ上溶存状態の間の可逆的変化の実態の詳細などは不明確なままであり、また、なぜ1970年代に既に垂表層に $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度極大層が形成されるに至ったのか、なぜ海底直上で $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度が

高くなるのかについても追究しなければならない。

なお、図2～図4に示した濃度レベルの $^{239,240}\text{Pu}$ を定量するためには、250 L以上の海水試料が必要である。250 L程度の海水試料を用いて $10 \mu\text{Bq L}^{-1}$ レベルの濃度の $^{239,240}\text{Pu}$ を定量するためには、高収率の化学分離と少なくとも10日間の α 線スペクトロメトリーが必要である。表面海水の採取は比較的容易であるが、良質の深度別海水を大量に採取するためには

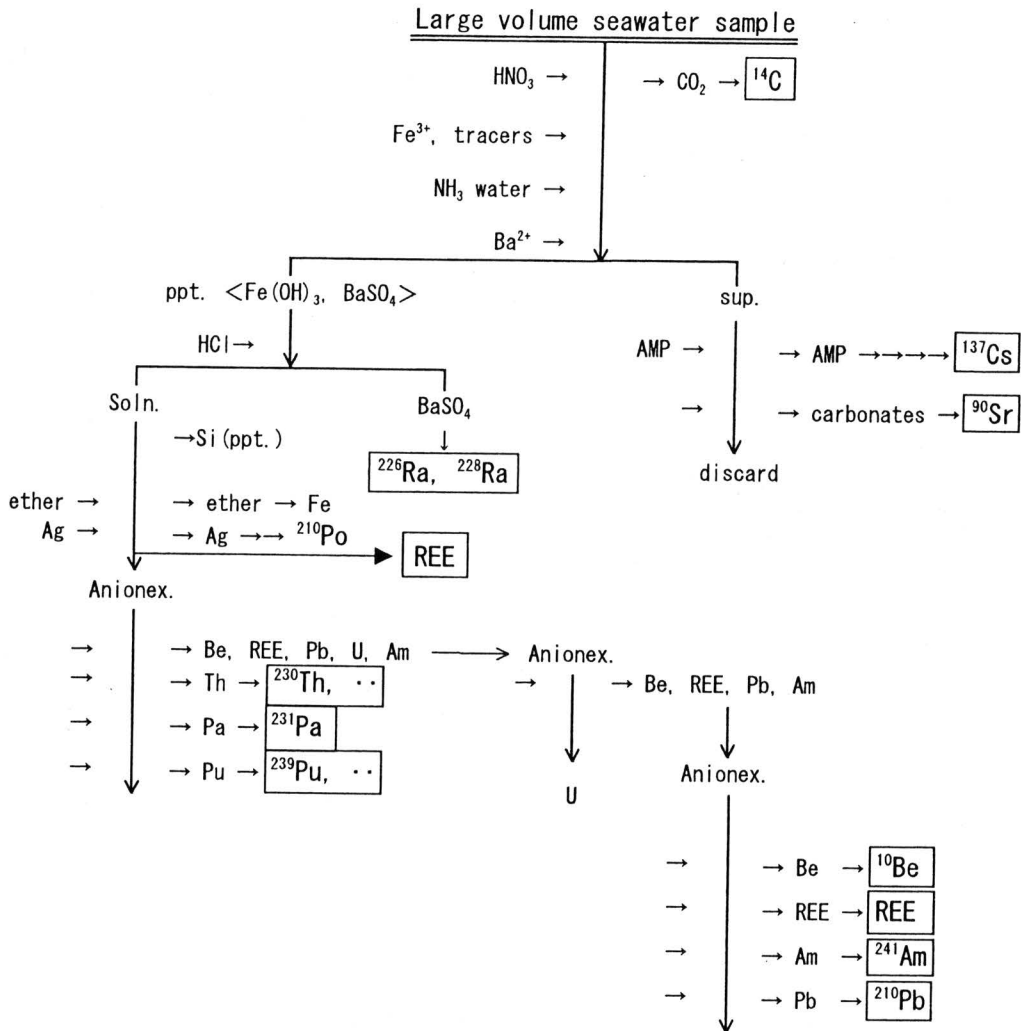


図5 深度別大量海水からの多元素(核種)の逐次分離[6], [9]

最新技術を駆使した採水器と長時間の採水作業を要する。しかも、大量の深度別海水を必要とする分析項目は少なくない。そのため、図5に1例として示したような逐次分離法の開発が不可欠であり、我々は常に工夫・改善を重ねていく必要に迫られている。

4. 土壌粒子塵のトレーサとしての フォールアウト $^{239,240}\text{Pu}$

既に述べたことの繰り返しになるが、1985年頃以降、地表(および外洋海面)への $^{239,240}\text{Pu}$ 降下率と西部北太平洋表層海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度がともにほぼ横ばい状態になった(図1, 図3)。大気から表層

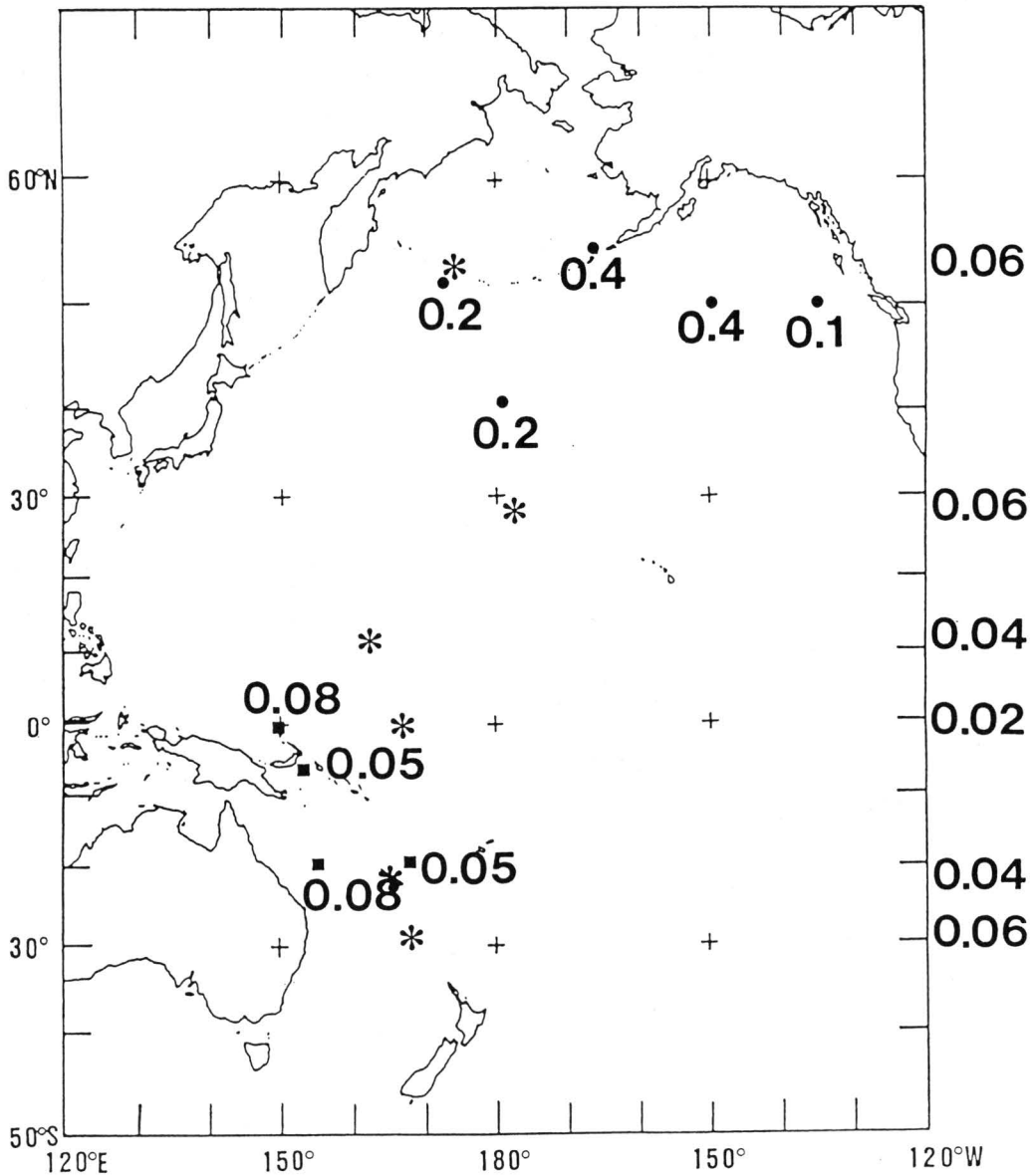


図6 Puをトレーサとして評価された土壌粒子塵の海面への降下フラックス($\text{mg cm}^{-2} \text{y}^{-1}$) [6] 右欄外の値($\text{mg cm}^{-2} \text{y}^{-1}$)は図中の*印地点において評価された鉍物性エアロゾルのフラックス [10]

表1 海水柱と海底堆積物柱について測定された^{239,240}Pu蓄積量とそれから推定されたPuの平均沈降速度(試料は1984年と1988年に採取)

Location	Water depth (m)	Pu inventory (mBq/cm ²)		% of Pu inventory in sediment	Settling Velocity (m/y)	
		Water column	Sediment column		Model-1	Model-2
40. 99° N 145. 46° E	5218	8. 1	1. 3	14	250	200
37. 12° N 161. 87° E	4720	7. 0	1. 8	21	200	160
48. 84° N 167. 67° E	5580	10	0. 98	8. 9	220	180
53. 16° N 177. 32° E	3930	4. 8	1. 0	18	160	130
50. 00° N 150. 01° W	4860	6. 0	1. 1	16	200	160

海水への一定の^{239,240}Pu流入率と表層海水から亜表層海水への一定の^{239,240}Pu流出率が釣り合った状態が続いていると我々は理解したが、さらに、現在も大気から海面へ降下し続けている^{239,240}Puは、一旦地表に降下してから土壌粒子塵に吸着し、土壌粒子に吸着した状態で再浮遊して輸送されているものではないかと考えた。大気経由で輸送される土壌粒子塵中の元素が外洋域での一次生産の支配要素の一つであると考えられるようになっていたので、^{239,240}Puをトレーサとして外洋域の海面に輸送されている土壌粒子塵のフラックスを評価してみることを考えた。

この評価法に必要なデータは、表層海水中の^{239,240}Pu濃度(X, Bq m⁻³)、表層海水での^{239,240}Puの平均滞留時間(τ, y)、表層(混合層)の層厚(Z, m)、そして大気中での飛程が長い細粒土壌粒子塵中の^{239,240}Pu濃度(Y, Bq g⁻¹)である。これらのデータの中でもっとも実測値が少ないのは細粒土壌粒子塵の^{239,240}Pu濃度の

データである。

我々は数年間を費やして大気浮遊塵の粒径別採取と元素分析(とくにFeに注目)や^{239,240}Pu分析を行い、表層海水中の^{239,240}Pu濃度のデータの取得も続けた。そのようにして得た実測データを用いるとともに、その他のデータを文献にも求めて次の関係式を用いて各海域への土壌粒子塵フラックス(F, g m⁻² y⁻¹)を評価した。なお、大気浮遊塵中の土壌粒子成分を割り出すためにはFe濃度の定量値を用いた。

$$F = X Z / Y \tau$$

このようなアプローチによる評価結果を図6に示す。我々の試行段階の結果は、他の研究者の評価結果(太平洋の孤島で測定された大気中浮遊塵濃度と降水量、降水による浮遊塵除去率からの評価[10])に比べて2~4倍高いが、外洋海面への土壌粒子塵フラックスの評価に^{239,240}Puを用いる方法はかなり有望であるという見通しを得るに至った。

5. 海水と深海堆積物中の $^{239,240}\text{Pu}$ 蓄積量に基づくPu沈降速度の評価

海面への $^{239,240}\text{Pu}$ の降下史がよく分かっているため、ある時点において海水中から深海底(水深既知)に除去された $^{239,240}\text{Pu}$ 量が海面に降下した内のどれくらいの割合になっているかのデータを取得すれば、既に深海底に到達してしまった $^{239,240}\text{Pu}$ の海水中での平均沈降速度の推定が可能と考えられる。

フォールアウト $^{239,240}\text{Pu}$ の蓄積量のデータを海水柱と海底堆積物柱の両方について揃えることができたケースを表1に示す。1984～1988年までに9～21%のフォールアウト $^{239,240}\text{Pu}$ が海底に到達していたことが分かった[5], [6], [11], [12]。

表1のデータを用い、海面に粒子状で降下してから比較的速やかに見かけ上溶存態になって海面下約700mに濃度極大層を一旦形成した $^{239,240}\text{Pu}$ がその後一次的に一定フラックスの沈降粒子に吸着して一定速度で海底に移行したと仮定するモデル(モデル-1)と海面に降下した粒子状 $^{239,240}\text{Pu}$ が逐次連続的に一定速度で沈降したと仮定するモデル(モデル-2)により平均沈降速度を見積もった結果、モデルによる違いが少なく、 $130\sim 250\text{ my}^{-1}$ という $^{239,240}\text{Pu}$ 沈降速度が太平洋の海水柱において推定された。

海水柱と海底堆積物のそれぞれについての $^{239,240}\text{Pu}$ 蓄積量のデータに不確かさは少ないが解析モデルがまだ初歩的なもの

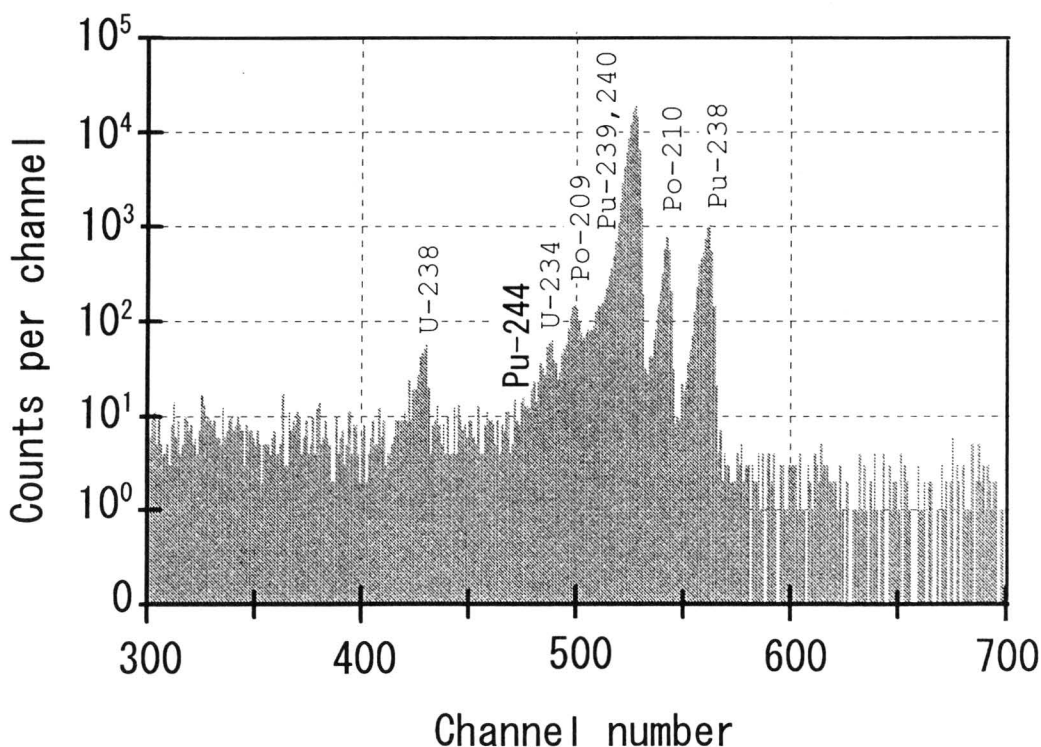


図7 約1kgの深海堆積物から分離されたPuフラクションの α 線スペクトル(約1年間測定)[14]

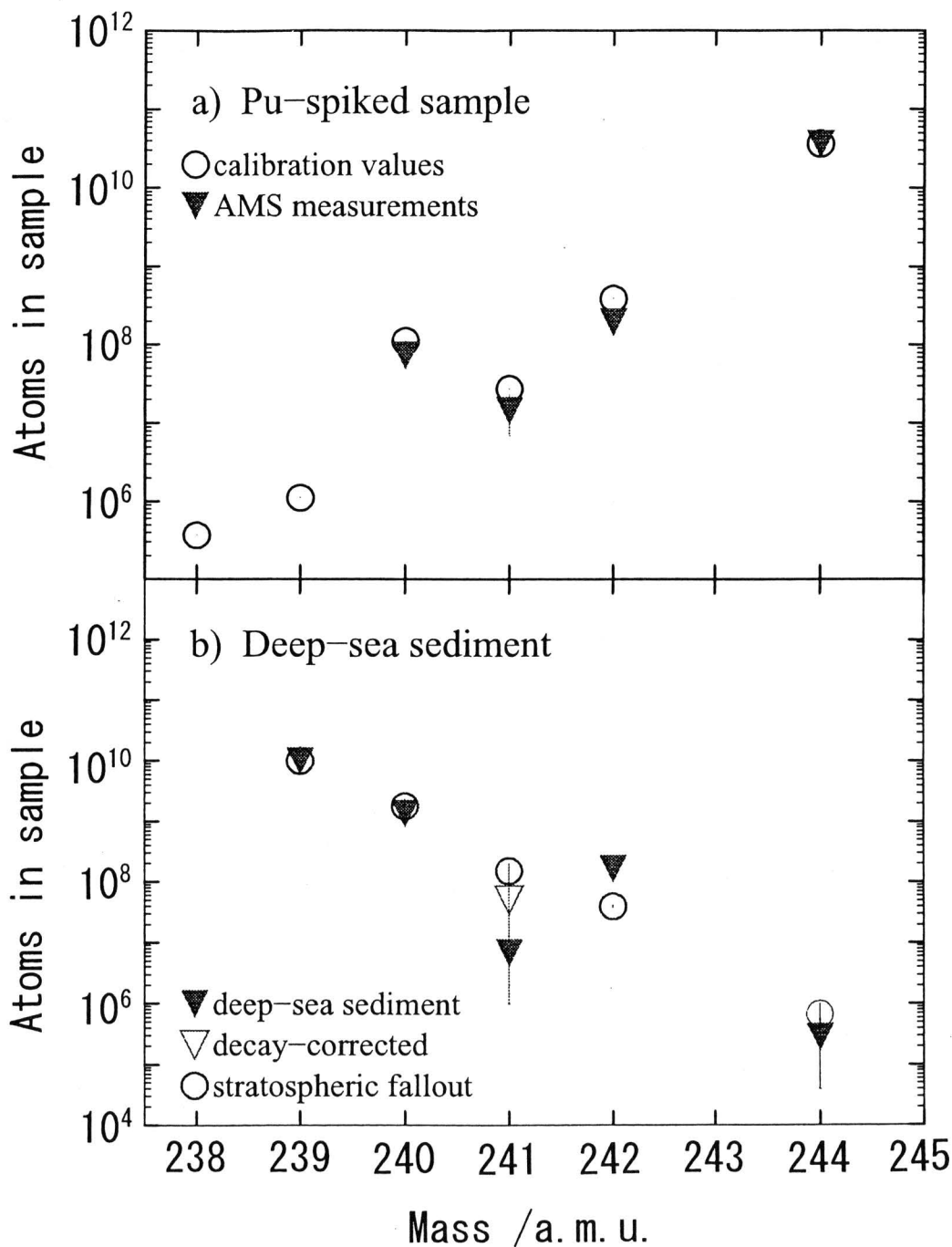


図8 a) Pu標準試料の加速器質量分析計によるPu同位体組成の測定結果; b) 約1 kgの深海堆積物から分離されたPuフラクションの加速器質量分析計によるPu同位体組成の測定結果[15]

で、海水柱と海底堆積物の $^{239,240}\text{Pu}$ 蓄積量の経年的変化の追跡や、より多くの測点についてのデータの取得を行って、海水柱中での $^{239,240}\text{Pu}$ 沈降速度に関する一層詳細な実態の解明を進める必要がある。

6. 太陽系外から来た ^{244}Pu の探索

約 4.6×10^9 年前に誕生した太陽系および地球に存在している重元素は、約 5×10^9 年前の超新星爆発時につくられたと推論されている。 ^{244}Pu (半減期 8×10^7 年)もそのような重元素の同位体であり、誕生時の地球には現在の測定技術で容易に検出できる程度の平均濃度で存在していた可能性がある。しかし、 ^{244}Pu の半減期 8×10^7 年は地球の年齢約 4.6×10^9 年の約 $1/58$ であるため、約 5×10^9 年前に合成された ^{244}Pu が現在まで残存しているとしても、現在の測定技術でも検出困難な平均濃度レベルに減少してしまっている。

しかし、先カンブリア時代に固化したカリフォルニア産のバストネサイト($\text{Ce,La}\text{CO}_3\text{F}$)から ^{244}Pu が検出されて世界中を驚かせた[13]。この ^{244}Pu について、その起源とバストネサイトへの濃縮過程が種々考察されているが、我々は我々の銀河系内で100年に1回程度の頻度で起こっている超新星爆発に際して合成され宇宙空間に拡がった ^{244}Pu がほぼ連続的に地球に降下しており、その一部が上記のバストネサイトに高度に濃縮したとするのがもっとも無理がない説明と考えた。そして、太陽系外起源の ^{244}Pu が今も地球に流入しておれば、深海堆積物中に ^{244}Pu が含まれていて、その濃度は測定可能な範囲にあると推算した。そして、深海堆積物中の核実験起源のPu同位体を分析していた我々は、深海堆積物中に ^{244}Pu を探索する実験を開始した。

ハワイ沖の深海底の表層堆積物(乾質量約1 kg)からPuを化学分離し約1年間 α

線スペクトロメトリーを続けた結果、核実験起源のPu同位体が圧倒的に多いが(図7)、我々の作業仮説とは矛盾しない ^{244}Pu 濃度の上限値が得られた。本研究をさらに国際共同研究に発展させて上記のPu試料を加速器質量分析計によって分析した結果、 ^{244}Pu が検出された(図8)。しかし、 ^{244}Pu の定量結果はほとんど核実験起源として説明可能であり、地球外からの流入の上限値として $2,000^{244}\text{Pu}$ 原子 $\text{m}^{-2}\text{y}^{-1}$ を得るにとどまっている。

今後、核実験起源のPuで汚染された層を除去した深海堆積物について ^{244}Pu の探索を続ける予定である。

7. おわりに

以上、筆者らが放射化学研究の一環として海洋にプルトニウムの動きを追いかけて、そこで知り得たことの概要を述べた。しかし、海洋におけるプルトニウムの動きについて少しは分かってきたものの、今後の研究課題が増える一方である。

さて、さしたる能力もないのに海洋Puの研究に魅せられてしまった私は、海洋化学の研究ですばらしい成果をたくさん挙げておられる多くの先生方の後ろ姿を、いつもはるか遠くから見続けてきました。そのような私がこのたび第16回海洋化学賞を授かることができたのは過分の栄誉であり、今後もっと研究を進めなさいという励ましと受け止めています。(財)海洋化学研究所および本賞の選考委員会関係者に深く感謝する次第です。

思い返せば、私が1963年に金沢大学に入学したときの学長は、(財)海洋化学研究所を創設された石橋雅義先生でした。そして私が大学を卒業して金沢大学大学院に進学した1967年に、石橋先生は金沢大学に日本海域研究所を創設して金沢大学を退官されました。この間、私は学生の間際であるにも拘らず何度か学長室にお邪