

## 第19章 放射性核種と環境の物質循環研究

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2017-10-05 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: Yamamoto, Masayoshi メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2297/2490">http://hdl.handle.net/2297/2490</a>

# 第 19 章

## 放射性核種と環境の物質循環研究

金沢大学大学院自然科学研究科物質科学専攻

山本 政儀

email: pluto@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp

### 1. はじめに

人間を取り巻く生活環境，すなわち地殻の表面，水圏，その上の大気中には，約 46 億年前に地球が創成されたときからカリウム-40 ( $^{40}\text{K}$ )，トリウム-232 ( $^{232}\text{Th}$ )，あるいはウラン-238 ( $^{238}\text{U}$ )などの天然放射性核種が希薄な濃度で広く分布・存在している。また，宇宙線により絶えず生成されている放射性核種(宇宙線生成核種)も存在している。

放射性核種と放射線についての知識は，1985 年レントゲン(K. W. Roentgen)による X 線の発見，翌年のベックレル(A. H. Becquerel)によるウラン鉱からの放射能の発見，1898 年キュリー(M. Curie)夫人(夫のピエール・キュリー(P. Curie)と共に)のポロニウム( $^{210}\text{Po}$ )，ラジウム( $^{226}\text{Ra}$ )という放射性元素の発見，1902 年ラザフォード(E. Rutherford)(ソディ (F. Soddy) と共に)による放射性元素の壊変則の発見などが発端となり急速に深まった。また，放射能の発見により，アルファ( $\alpha$ )線散乱の実験から原子の中心に正電荷の原子核があることが 1911 年判明し，さらに 1932 年のチャドウィク(J. Chadwick)の中性子発見により，現在の陽子・中性子-電子模型が確立した。1939 年にハーン(O. Hahn)とストラスマン(F. Strassmann)は，中性子照射した  $^{235}\text{U}$  は核分裂を起こして 2 ヶの原子核に分裂することを発見し，その後分裂の際に同時に 2-3 ヶの中性子を放出し，多量のエネルギー (1 ヶの  $^{235}\text{U}$  原子核の核分裂で約 200 MeV) が発生することなどが明らかになった。1942 年にフェルミ(E. Fermi)が核分裂連鎖反応装置(原子炉)を建設した。地球上に天然原子炉が存在することを 1956 年に黒田和夫(P. K. Kuroda)が予言し，18 年後の 1974 年にフランスの科学者達がアフリカのガボン共和国にあるオクロウラン鉱床に天然原子炉の跡を発見した。また，一方では，核分裂の軍事利用についての研究もはじめられ，米ソ両大国による大気圏での核実験に伴って大量の人工放射性核種が環境に付加され，汚染レベルの把握や分布，挙動，さらに人体への放射線影響評価などの研究の重要性が認識され，多くの研究機関で研究が進められるこ

ととなった。さらに，エネルギー源の平和利用として発電用原子炉も稼働し，これら原子力平和利用に付随した人工放射性核種の環境モニタリングも精力的に実施されることとなった。

ここでは，放射能・放射線の基礎知識を簡単に述べ，環境中に存在する放射性核種とそれらが環境科学や地球化学の研究分野にいかにも有効に利用・応用されているかを概説する。

表 1. 核種，同位体，同中性子体，同重体，核異性体

名称	特徴	実例
核種	Z と A を指定した原子核 $^A_Z\text{X}$	$^{11}\text{B}$ , $^{232}\text{Th}$ , $^{235}\text{U}$
同位体	Z が同じ	$^{40}\text{K}$ , $^{40}\text{Ca}$ , $^{40}\text{Ar}$ ; $^{23}\text{Na}$ , $^{23}\text{Mg}$
同中性子体	N が同じ, $N = A - Z$ , $Z \neq$	$^{13}\text{C}$ , $^{13}\text{N}$ , $^{13}\text{O}$
同重体	A が同じ	$^{40}\text{K}$ , $^{40}\text{Ca}$
核異性体	Z と A が同じ	$^{99\text{m}}\text{Tc}$ (4.4 h); $^{18\text{m}}\text{F}$ (113 min) * * * 内の数字は半減期

### 2. 放射能・放射線とは

#### 2.1 原子核の構造・核種

原子核は，陽子と中性子からできている。すなわち原子核の正電荷は Z 個の陽子で，それと N 個の中性子が核力(中間子が役割)により結合し，原子の質量(原子量)の主体をなす。核内粒子(核子)の総数  $Z+N=A$  は質量数と呼ばれている。陽子数 Z は，原子核を取り巻く電子数とその状況を決め，原子の化学的性質を支配するので，化学元素の原子番号と同じ数となる。諸原子種を，このように原子核の陽子数(原子番号)(Z)と中性子数(N)ひいては質量数(A)に着目して区別し，それぞれを核種 X(nuclide)と呼び，たとえば  $^{238}_{92}\text{U}$  さらに簡単に  $^{238}\text{U}$  あるいは U-238 として示される。

核種はいろいろな視点から分類される。まず Z が同じものは同位体(isotope)と呼ばれ，その化学的性質は同じである。N が同じものは同中性子体(isotone)，A が同じものは同重体(isobar)と呼ばれ，核子数が同

じである。なお、ZとAが同じでもエネルギー状態の異なる場合、基底状態と区別するためにmと言う記号をつけて核異性体(nuclear isomer)と呼んでいる。これらの名称を纏めて表1に示す。

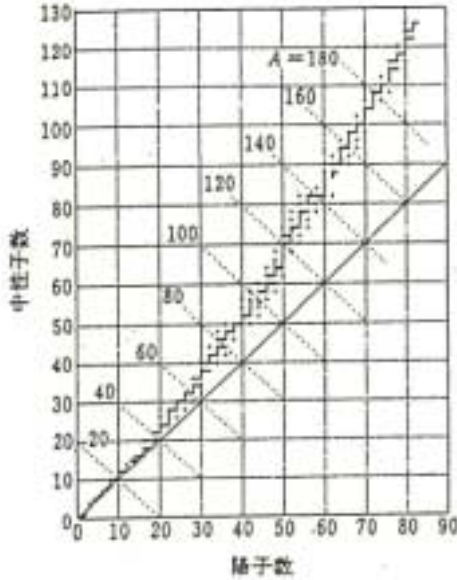


図1. 安定核種の陽子数と中性子数との関係

Z	N	A	安定核種数	同位体数
偶数	偶数	偶数	165	1-7
奇数	奇数	偶数	4	1
偶数	奇数	奇数	55	1-3
奇数	偶数	奇数	50	1, 2

表2. 原子番号、質量数と核種の安定性

## 2.2 原子核の安定性

安定核種の原子番号Z、質量数Aと中性子数N(N=A-Z)の間には規則的な関係がある。Zが小さい間はZとNがほぼ等しいが、Zの増加とともにN/Z比が大きくなる。その様子を図1に示すが、ZとNが共に偶数の場合に安定核種がつくれやすい。安定核種を持つ元素の数は81、安定核種数は279に達する。表2にZ、Nの偶数、奇数のいずれであるかと安定核種の数、同位体の数を示してあるが、Z、N共に偶数の核種が圧倒的に多く、どちらかが奇数のものがそれに続く。両者共に奇数の安定核種は $^2\text{H}$ ,  $^6\text{Li}$ ,  $^{10}\text{B}$ ,  $^{14}\text{N}$ の4つに過ぎない。ZおよびNについて独立に、双方を通じて2, 8, 20, 28, 50, 82, 128のものは特に安定度の高い核をつくり、安定同位体の数が5~10種もある。この不思議な数を魔法数(magic number)と称している。原子番号83(ビスマスは $^{209}\text{Bi}$ のみの単核種元素で最も重い安定核種であると言われてきたが、最近、半減期の長い放射性核種であることが判明)を越える元素は全て放射性である。全ての元素で人工放射性核種を製造することができ、現在2,500以上の核種を確認している。天然に見つかっている放射性同位体、約80種をはるかに越えている。

## 2.3 放射能

エネルギーが高い状態にある原子核は、エネルギーを放出してより安定な状態に移ろうとする。すなわち、ある種の原子核は自発的に壊変して、別の原子核に壊変する。この壊変するという現象(放射性壊変)が放射能であり、このときのエネルギー放出が放射線となって観測される。

壊変様式	記号	放出放射線	壊変過程	例
$\alpha$ 壊変	$\alpha$	$^4\text{He}$ 原子核	$^A_Z\text{X} \rightarrow ^{A-4}_{Z-2}\text{Y} + ^4_2\text{He}$	$^{226}_{88}\text{Ra} \rightarrow ^{222}_{86}\text{Rn} + ^4_2\text{He}$
$\beta$ 壊変	$\beta^-$	$e^-$	$^A_Z\text{X} \rightarrow ^A_{Z+1}\text{Y} + e^- + \bar{\nu}$	$^{14}_6\text{C} \rightarrow ^{14}_7\text{N} + e^- + \bar{\nu}$
	$\beta^+$	$e^+$	$^A_Z\text{X} \rightarrow ^A_{Z-1}\text{Y} + e^+ + \nu$	$^{22}_{11}\text{Na} \rightarrow ^{22}_{10}\text{Ne} + e^+ + \nu$
電子捕獲	EC	娘核種の特異X線	$^A_Z\text{X} + e^- \rightarrow ^A_{Z-1}\text{Y} + \nu$	$^{40}_{19}\text{K} \rightarrow ^{40}_{18}\text{Ar} + \nu$
$\gamma$ 線放出	$\gamma$	光子	$^A_Z\text{X} \rightarrow ^A_Z\text{X} + \gamma$	$\beta$ 壊変に伴って放出
内部転換	IC	電子、特性X線	原子核の励起エネルギーが電子殻に移動	
自発核分裂	SF	核分裂片、中性子光子	原子核が2個の核種に分裂	$^{252}_{98}\text{Cf} \rightarrow A=100$ 付近の2個の原子核

EC : electron capture, IC : internal conversion, SF : spontaneous fission

表3. おもな放射壊変様式

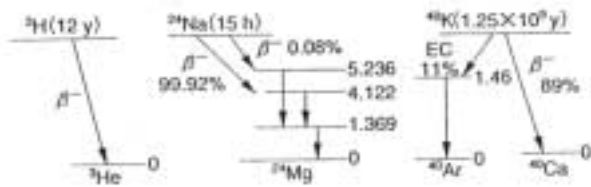


図2. おもな放射壊変様式

$^3\text{H}$  の場合は、 $\beta^-$  壊変のみして  $^3\text{He}$  になる。 $^{24}\text{Na}$  の場合は、そのほとんどが 4.12MeV のエネルギーレベルに落ち、そこから 2 段のエネルギー差に相当する 2.75MeV と 1.37MeV の  $\gamma$  線を放出して  $^{24}\text{Mg}$  になる。 $^{40}\text{K}$  の場合は、89% が  $\beta^-$  壊変して  $^{40}\text{Ca}$  に、残りの 11% が EC 壊変し 1.46 MeV に相当する  $\gamma$  線を放出して  $^{40}\text{Ar}$  になる。

放射能の性質をもった核種(物質)を放射性核種(放射性物質)と呼ぶ。放射性壊変では、放射性核種 A が壊変して核種 B に変化する時、A を親核種、B を娘核種と呼んでいる。放射能は原子核の内部に変化が起こっている現象であるので放射性核種が壊変する割合は、加熱しても冷却しても、また圧力をかけてもそれらの影響を受けない。放射性核種の壊変には種々の形式がある。表 3 に主な壊変形式を示す。原子核から  $\alpha$  線 ( $^4\text{He}$  核) が放出される現象を  $\alpha$  壊変 と言い、原子番号が 2、質量数が 4 少ない核種になる。原子核からベータ ( $\beta$ ) 線(陰電子または陽電子)が放出される現象を  $\beta$  壊変 と言い、 $e^-$  (陰電子)を放出すれば原子番号が 1 増加し、質量数はそのまま、一方、 $e^+$ (陽電子)を放出すれば原子番号は 1 減少し、質量数はそのままの核種となる。電子捕獲(EC)の場合も、原子番号は 1 減少し、質量数はそのままの核種となる。 $\beta$  壊変の際にはニュートリノが出る。一般に、 $\beta$  壊変に伴ってガンマー ( $\gamma$ ) 線が放出されることが多い (図 2)。

放射線と放射能の関係を電灯にたとえると、「電灯」が放射性物質に、電灯から出る「光線」が放射線に、電灯の「光線を出す性質」と「その強さ(ワット数)」が放射能ということになる。放射性物質のことを一般に、「放射能」ということがあるが、これは正確ではない。しかし、放射能と放射性物質という言葉は区別されずに使われていることが多い。

放射線の代表的なものは、上記したように  $\alpha$  線、 $\beta$  線、 $\gamma$  線である。 $\alpha$  線のような重い荷電粒子は、主として媒体中の電子と相互作用をして大部分のエネルギーを失い、薄い紙 1 枚で止められ、空気中で数 cm で止まってしまう。人体の場合には、外部から  $\alpha$  線を受けると皮膚表面で止まってしまうため、影響は少ない。しかし体内に  $\alpha$  線を放出する放射性核種を摂取した場合には、その影響は大きい。 $\beta$  線は-(または+)の電荷を帯びた電子の粒子線であり、 $\alpha$  線よりは物質を透過しやすい。2-3mm のアルミニウム板などで止められる。電荷を持っているので磁石により飛行の方向を曲げることができる。 $\beta$  線も  $\alpha$  線と同じように電離作用でエネルギーを失う。 $\gamma$

線は X 線と同じ仲間、物質を突き抜ける性質を持っている電磁波である。厚いコンクリートや鉛などで止めることができる。人体では、皮膚を通して体内の組織や器官にまで深く到達する。一部は通り抜けるが、外からの被曝が  $\alpha$  線、 $\beta$  線に比べて遥かに重要となる。その他に、電荷を持たず、質量が水素の原子核のそれとほぼ等しい中性子がある。中性子は、原子核をはじき飛ばしたり、周りの物質と核反応を起こしたりする。中性子はエネルギーによって異なるが、人体組織や器官に影響を与える。中性子の半減期は約 10 分程度であり、壊変して陽子になる。

## 2.4 放射壊変の法則

放射性核種の原子数は以下に示す法則に従って減少する。いま、原子数  $N$  個のある放射性核種があるとき、時間  $\Delta t$  の間の壊変数の期待値は  $-\Delta N = N \lambda \Delta t$  となる。 $\lambda$  は放射性核種 1 つ 1 つに固有な壊変常数であり、 $\Delta t$  を十分小さくとして微分式で書くと

$$dN/dt = -\lambda N$$

で示すことができる。この式を解くと

$$N = N_0 \exp(-\lambda t)$$

となる。時間  $t=0$  での  $N$  の値を  $N_0$  としてある。この式は、最初に  $N_0$  個あったものが時間の経過とともに指数関数的に  $N$  個に減少していくことを意味する。上式の両辺に  $\lambda$  をかけたもの、すなわち、

$$\lambda N = \lambda N_0 \exp(-\lambda t) \\ A = A_0 \exp(-\lambda t)$$

が今放出されている放射線の個数を表し、放射能 ( $A = \lambda N$ ) と呼ばれる。同じ原子数があれば、半減期が短いほど ( $\lambda$  が大きいほど) 放射能強度は強い。

$N$  (または  $A$ ) がちょうど  $1/2 \cdot N_0$  (または  $A_0$ ) になる  $t$  を半減期といい  $T_{1/2}$  と書く。したがって

$$T_{1/2} = 0.693/\lambda$$

となる。 $\log N$  (または  $A$ ) と  $t$  との間には直線関係がある。たとえば、人工の放射性核種であるヨウ素-131 ( $^{131}\text{I}$ ) の場合、その半減期が 8 日なので、8 日で  $1/2$ 、16 日で  $1/4$ 、24 日で  $1/8$ 、そして 56 日で  $1/128$  になり、56 日経過すれば放射能は元の 1% 以下となる。

放射能の強さの単位としてベクレル(Bq)が使用され、1Bq は 1 秒間に 1 個の原子核が壊変することに対応し、放射能の強さによってキロベクレル(kBq)、メガベクレル(MBq)の補助単位も使われる。以前に使用されていたキュリー(Curie, Ci)は、 $^{226}\text{Ra}$  の 1g の壊変率に起源を持ち、1Ci は  $3.7 \times 10^{10}$  Bq に相当する。

## 2.5 放射線の単位

A Bq の放射性核種から放射線がどの方向にも同じ強さで放出されているとき、その核種から距離 Rcm だけ離れた点を通る放射線の強さ(フラックス)I は次のように表せる。

$$I = A / (4 \pi R^2) \quad (\text{個/cm}^2/\text{sec})$$

この式は、放射線の強さが R<sup>2</sup> に逆比例して減少していることを示している。

γ線やX線が空気をどの程度イオン化するかの単位がクーロン/kg で、以前の単位レントゲン(R)と以下の関係にある。

$$1R = 2.58 \times 10^{-4} \text{ クーロン/kg (空気)}$$

放射線がある物質に与えたエネルギーを表す単位としてラド (rad) またはグレイ(Gy)を用いる。

$$1 \text{ rad} = 100 \text{ エルグ/g}$$

$$1 \text{ Gy} = 1 \text{ ジュール/kg} = 100 \text{ rad}$$

人体に対して、放射線の種類ごとに危険度の重み(Q)を考慮した吸収線量を線量当量とよびレム(rem)または新しい単位でシーベルト(Sv)を用いる。

$$1 \text{ rem} = Q \times 1 \text{ rad}$$

$$1 \text{ Sv} = Q \times 1 \text{ Gy} = 100 \text{ rem}$$

Q は、線質計数と呼ばれ放射線の種類により人体への影響を区別するもので、γ線、β線が 1、α線が 20、中性子線が 5~20 の値を用いている。そのため、天然の放射性核種である <sup>40</sup>K (1.31MeV のβ線と 1.46MeV のγ線) で 1 ミリシーベルト(mSv)被曝した場合でも、人工の放射性核種である <sup>137</sup>Cs (0.51MeV のβ線と 0.66MeV のγ線) で 1mSv 被曝した場合でも、人体の影響は同じである。さらに、いろいろな放射線を体の一部に受けた場合の影響を、全身に受けた場合の影響と同一尺度で表すために、実効線量当量(Sv)が用いられる。

## 2.6 放射能測定

放射線は目で見ることができないが、最近のエレクトロニクスの発達によって精密にしかも極微量まで測定することができる。測定には、放射線が物質にあたってイオン化したり光を出したりすることを利用する。そして放射線の種類、エネルギー、数量など目的に応じてそれに適した測定法を使用する。<sup>3</sup>H などのβ線を放出する核種は、液体シンチレーションカウンター、α線を放出する U, Th, Pu ような核種に対しては、通常、化学分離・精製後、α線スペクトロメーターで、またγ線を放出する核種は非破壊状態でγ線スペクトロメーターで測定する。

放射能 (A)と原子数(N)との間には、 $A = \lambda N$  の関係がある。原子数が多く存在していても、半減期が長い(λが小さい)核種の場合には、結果として放出される放射線は少ない。一般に、1 万年以上の半減期を有する核種は、放射能よりも原子数を測定した方が有利である。この関係を図 3 に示す。原子数を測定する方法には、誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)、電離型質量分析法(TINS)、さらに高感度の加速器質量分析法(AMS)がある。

## 3. 放射能・放射線は至る所に存在 (環境放射能)

### 3.1 天然 (自然) の放射性核種と放射線

放射性核種がどうして自然界に存在するのであるか? 必然的に元素の創成、天体の誕生にまで遡る。

太陽などの天体は、水素を主体として宇宙に漂う物質が収縮し、重力エネルギーが熱に代わり高温になり、そこで水素やヘリウムの核融合反応が起こり次々に重い元素を生成する。さらに、星の最後の超新星爆発などによってより重い元素を作り出す。このような物質が集まって太陽系の中に地球が約 46 億年前に誕生した。地球が誕生した時は、地球は放射性物質の塊であったと言えよう。それが数十億年の長い間に放射性物質は減衰し、現在地球上に存在する殆どの元素は放射能を失って安定な元素になっている。しかし、半減期の長い核種は生き続け、今でも数多くの放射性核種が地球に存在している。地球の地殻中に含まれている放射性核種の総放射能強度は約  $4 \times 10^{25}$  Bq (約  $10^{15}$  Ci) と推定されており、地球表層に比較的均一に分布し、地熱として地球の熱の維持に役立っている。我々の身の回りには、これらの放射性物質の壊変に伴う放射線と宇宙線との核反応で絶えず生成されている放射性核種からの放射線、そして地球に降り注ぐ宇宙線そのものが存在している。

天然放射性核種(natural radionuclide)はそれが何時どのようにして生成したかによって 4 グループに分類される。

#### (1) 一次放射性核種(primary radionuclide)

宇宙での元素創成と共に生成し、その半減期が地球の年齢程度以上十分長いもので、現在もなお存在している核種で、系列をなすもの <sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U, <sup>232</sup>Th とそうでないもの <sup>40</sup>K などがある。

#### (2) 二次放射性核種(secondary radionuclide)

一次天然放射性核種の壊変によって二次的に生成している放射性核種で、ラジウム-226(<sup>226</sup>Ra)、ラドン-222(<sup>222</sup>Rn) などがこれに属する。半減期の短い核種が比較的多い。

#### (3) 誘導放射性核種(induced radionuclide)

天然の原子核反応により生成したもので、宇宙線由来の宇宙線生成核種、トリチウム-3(<sup>3</sup>H)、

炭素-14(<sup>14</sup>C), ベリリウム-7(<sup>7</sup>Be)などを主とし、他にウランやトリウム鉱石等における自発核分裂や中性子に起因する生成核種がこれに属する。

(4) 消滅放射性核種(extinct radionuclide)

元素の創成のときには存在していたもので、その寿命が十分長くないため現在では壊変してしまったと考えられているプルトニウム-244(<sup>244</sup>Pu: T<sub>1/2</sub> = 8.26x10<sup>7</sup>年)などがこれに属する。

3.2 主な天然放射性核種の分布

総ての岩石や土壌は、ウラン(<sup>238</sup>U)やトリウム(<sup>232</sup>Th) およびそれらの壊変した放射性核種を含んでいる。天然に見られる普通のウランは質量数 238, 235, 234 の3つの同位体から成っている。ウラン系列の親である<sup>238</sup>Uの存在比は99.28%で、通常<sup>238</sup>Uと同じ系列の<sup>234</sup>Uは放射平衡状態(<sup>238</sup>Uが1Bqあれば<sup>234</sup>Uも1Bqある状態)にある。存在比0.72%の<sup>235</sup>Uは、アクチニウム系列の親であり、核分裂を起こす点からも重要な核種である。酸性火成岩は約3ppmのウランを含み、これは超塩基性火成岩よりも100倍も多いが、フロリダのリン鉱石には120ppm程度の高濃度のものもある。海水は、平均3.3ppbのウランを含み、海水からのウランの回収も試みられている。一方、トリウムは、火成岩で8~33ppmで、石灰岩では1ppm程度と低い。トリウムは難溶性であり、水中ではコロイド粒子になり除去されやすい。大地には<sup>40</sup>Kも多く含まれており、平均的地殻1kgあた

りの放射能は約63Bq、海水1Lあたりのそれは約11Bqである。ちなみに、体重70kgの人は約140gのカリウムを持ち、大部分が筋肉中に存在している。体内の<sup>40</sup>Kの総放射能強度は4.4x10<sup>3</sup>Bqとなる。

国内の岩石についてU, Th, K含量が測定されており、地殻の平均濃度は、それぞれ2.7ppm, 9.6ppm, 2.06%である。花崗岩の多い西南地方で濃度が高く、玄武岩の多い東北地方で低い傾向にある。火山灰で覆われている関東地方は低い。国内の土壌中のU, Th, K含量は、表4の様になっている。<sup>238</sup>U, <sup>232</sup>Th, <sup>40</sup>Kの平均濃度は、それぞれ16, 23, 440Bq/kgである[1]。

ウラン系列に属するラジウム-226(<sup>226</sup>Ra)も、土壌や岩石中に広く分布していて、その放射能強度は15~50Bq/kgの範囲にある。<sup>226</sup>Raの壊変生成物であるラドン-222(<sup>222</sup>Rn)は、主に地表面より大気中に放出されている。表層地殻からの放出率は、平均で約0.7個/cm<sup>2</sup>/secである。土壌からの放出率は、大気圧が下がると上昇し、土壌水分が増加すると減少する。屋外の放射能強度は4~20Bq/m<sup>3</sup>で、早朝が最も高く、午後低くなる。屋内の放射能は、建物、換気などによって異なるが、一般に屋外より高く、石やコンクリート造りで密閉の良い建物ほど濃度は高い。日本列島には、ラジウム温泉とかラドン(トロン)温泉と呼ばれる放射能温泉(鉱泉)が数多くある。岩石中に含まれているRaを溶かしだして地表にわき出たもの、あるいは気体状のラドンを多く含みながら湧出したものがある。山梨県の増富鉱泉、秋田県の玉川温泉、鳥取県の三朝温泉などが放射能温泉(鉱泉)として有名である。



図3. 半減期の違いによる原子数と放射能(壊変率)の関係

### 3.3 放射性フォールアウト（人工の放射性核種）

米国はニューメキシコ州アラモゴードで1945年6月にTNT火薬19キロトン(kT)に相当する最初の原子爆弾の爆発実験に成功し、原子核エネルギーの軍事利用の道が開かれた。同年8月不幸にも原子爆弾による最初の攻撃を広島、長崎両市が受け多くの人命が瞬時に失われた。その後、米・ソ両大国において核分裂あるいは核融合反応を用いた大気圏内核実験が数多く実施され、多種類の核分裂生成核種や原爆材料であるプルトニウムをはじめとする超ウラン元素の諸核種が大気圏に多量散布され地表に降下蓄積した。これを放射性降下物(放射性フォールアウト)と呼んでいる。ストロンチウム-90( $^{90}\text{Sr}$ )、セシウム-137( $^{137}\text{Cs}$ )などが主要な放射性フォールアウトである。核爆発実験の多くが北半球で行われたので、たとえば、 $^{90}\text{Sr}$ 蓄積量は北半球が南半球より3倍多く、また北半球でも中緯度地域が多く、蓄積量は $3 \times 10^3 \text{ Bq/m}^2$ と報告されている。1954年3月には、マグロ延縄漁船・第五福竜丸がマーシャル諸島のビキニ環礁で米国が行った核実験(高性能火薬15メガトン(Mt)の爆発量に相当、核分裂-核融合-核分裂(3F)爆弾)に遭遇し、被災した事件が発生した。この事件や人工放射性核種が陸や海に降下していることから、日本各地の大学や研究所で雨水や大気浮遊塵さらに農作物、畜産物、海産物等の放射能測定がはじめられた。それまで殆ど未開拓の研究分野であり、多くの分野の専門家がこの環境放射能問題に取り組み、我が国の環境放射能と放射線防御研究が飛躍的に進展した。現在、大気圏核実験からの放射性フォールアウトは、気象研究所が長年測定してきた $^{137}\text{Cs}$ および $^{239,240}\text{Pu}$ 降下量の推移(図4)から分かるようにその殆どが地上に降下した。

### 3.4 原子力施設等からの人工の放射性核種

最初の原子炉は、核分裂の発見から4年もたたない1942年12月2日に、シカゴでフェルミらによって実現された。その後、原子炉工学は急速に進展し、研究用原子炉、プルトニウム製造用原子炉が、そして、1951年12月に米国で世界初めての原子力発電に成功した。我が国では、1957年8月に第1号原子炉JRR-Iが臨界、1963年10月に動力試験炉発電試験に成功(原研JPDR)、1965年5月に原電東海1号炉が臨界、翌年7月に発電所運転(電気出力125,000kW)に至った。1997年末の時点で運転中の全世界の原子力発電設備は429基、総容量は $3.6 \times 10^8 \text{ kW}$ で発電電力量の17%をまかなっている。日本の場合、1997年で53基、総発電量の35%になっている。稼働している発電炉の炉型別発電容量は、軽水炉が約83%を占めている。

原子力発電施設は大きなサイクル、すなわち核燃料サイクルと呼ばれ、ウラン鉱山、精錬所、ウラン

濃縮工場、燃料製造・加工工場、原子力発電所、使用済核燃料再処理工場等を含む。これらの施設からの環境へ放出される放射性物質の量および核種組成は施設ごとに、また放出低減化装置により異なっている。なかでも、原子力発電所、特に再処理工場からの放出が重要視されている。

表4. 日本の土壤中に含まれる $^{238}\text{U}$ 、 $^{232}\text{Th}$ および $^{40}\text{K}$ の放射能濃度(乾燥試料)

番号	地域	$^{238}\text{U}$ (Bq/kg)	$^{232}\text{Th}$ (Bq/kg)	$^{40}\text{K}$ (Bq/kg)
1	東北海道	10.4	15.9	370
2	西北海道	6.7	22.6	311
3	東東北	20.4	13.0	229
4	西東北	15.2	16.3	244
5	福島	13.0	17.0	348
6	北陸	35.5	20.7	703
7	東関東	13.7	12.2	255
8	北関東	3.2	21.8	370
9	西関東	13.3	20.4	370
10	東海	5.9	14.1	244
11	中部	20.4	29.2	555
12	岐阜	22.9	34.8	629
13	東山陽	20.0	31.5	629
14	東山陰	14.4	25.5	666
15	紀伊	12.2	22.6	407
16	西山陰	24.1	21.5	592
17	西山陽	15.9	37.0	703
18	北四国	19.6	27.4	814
19	南四国	12.2	30.3	555
20	北九州	16.7	22.9	481
21	東九州	21.1	27.4	326
22	西九州	25.9	18.5	292
平均		15.9	22.6	444

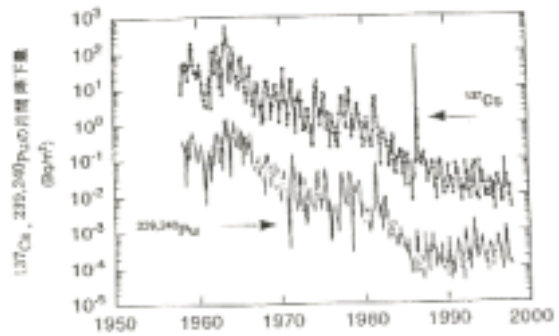


図4. 筑波でのフォールアウト核種、 $^{137}\text{Cs}$ および $^{239,240}\text{Pu}$ 降下量の推移

過去にイギリスの Windscale 施設の原子炉の炉心の一部破壊(1957年)、米国の Oak Ridge 研究所での化学爆発事故(Pu汚染、1959年)、米国コロラド州 Rocky Flats での Pu 処理工場での火災事故(1969年)などが生じ、局所の高濃度汚染を引き起こした。稼

働中の原子力発電所の事故としては、今から 24 年前の 1979 年 3 月 28 日にアメリカのペンシルベニア州スリーマイル島(TMI)原子力発電所 2 号炉で、周辺に放射性物質が放出され、住民の一部が非難するなど、これまでに経験したことのない事故（冷却材喪失事故）が発生した。気体廃棄物として希ガス約  $10^6\text{Ci}$  ( $3.7 \times 10^{16}\text{Bq}$ , 主として  $^{133}\text{Xe}$ ) と  $^{131}\text{I}$  約  $10\text{Ci}$  ( $3.7 \times 10^{11}\text{Bq}$ ) が環境に放出された。さらに、史上最大と言える事故が、1986 年 4 月 26 日に、旧ソ連チェルノブイリ原子力発電所 4 号炉で発生し、地球規模的な汚染を引き起こした[2]。原子炉内に蓄積していた約  $75\text{EBq}$  ( $7.5 \times 10^{19}\text{Bq}$ ) の放射性物質のうち、事故によりクリプトンやキセノンなどの希ガス類、ヨウ素、セシウムなどの揮発性物質とストロンチウム、プルトニウムなど、合計して約  $12\text{EBq}$  ( $1.2 \times 10^{19}\text{Bq}$ ) が原子炉から環境中に放出された。放射性物質は、ヨーロッパを中心に世界各国で様々なレベルで検出された。原子炉から放出された期間は、降雨や風向など気象条件が大きく変化したため、その降水量は地域的に偏りが見られた。揮発性でない  $^{90}\text{Sr}$  や  $\text{Pu}$  などは、放出量が少なくその殆どが原子炉近傍に降下した。 $^{131}\text{I}$  は放出された量の約 66% がまた  $^{137}\text{Cs}$  は約 44% がロシア連邦、ウクライナ、ベラルーシ共和国などの旧ソ連邦内に降った（図 5）。事故で影響を受けた地域では、汚染された空気が最初に到達した時点でピークを示した。 $^{131}\text{I}$  について、ピーク値はミンクスの北東 120 km 地点で  $400\text{Bq}/\text{m}^3$ 、チェルノブイリ南東 140km 地点で  $300\text{Bq}/\text{m}^3$ 、ヘルシンキで  $210\text{Bq}/\text{m}^3$ 、また、日本の福井で  $2.5\text{Bq}/\text{m}^3$  であった。 $^{137}\text{Cs}$  による土壌汚染は、広範囲におよび特に降雨

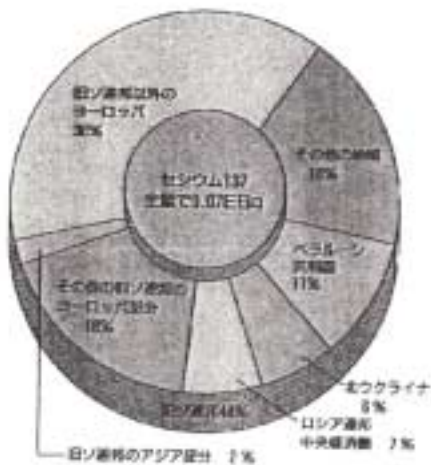


図 5. チェルノブイリ原子力発電所事故で放出された Cs-137 の地理的分布

の影響を受けた所では高く、1990 年のベラルーシ共和国とロシア連邦の表土では、 $15 \sim 3,400\text{kBq}/\text{m}^2$  であった(図 6)。 $^{90}\text{Sr}$  は、 $5.4 \sim 38.6\text{kBq}/\text{m}^2$ 、 $^{239,240}\text{Pu}$  は  $0.04 \sim 0.74\text{kBq}/\text{m}^2$  であった。日本での核実験由来のフォールアウト  $^{137}\text{Cs}$  蓄積量  $3 \sim 8\text{kBq}/\text{m}^2$  と比較すると如何に高濃度に汚染されたかが分かる。土壌以外に、牛乳、河川水、農作物も汚染されたが、現在殆どが検出限界以下になっている。事故後、我が国でも輸入食品の放射性物質を監視することとし、食品 1kg 当りの  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{134}\text{Cs}$  を合計した値が  $370\text{Bq}/\text{kg}$  以上のものの輸入を禁じた。我々の食べる食品の 1/3 は輸入食品で、ヨーロッパからのものは約 5% であるが、お茶、ハーブなどでこの基準に触れたものがわずかであった。

原子力発電所の事故以外にも、大量の放射性物質の放出があった。その代表が、イギリスのセラフィールド再処理工場であり、1952 年以来年間放出管理目標値以下ではあるが、低レベル放射性廃液をアイリッシュ海に放出し続けてきた。1970 年代に最大の放出があり 1980 年代から種々の低減化対策がとられて放出量が激減したが 1990 年までに放出された  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239,240}\text{Pu}$  および  $^{241}\text{Am}$  の総量は、それぞれ、 $3 \times 10^4$ 、 $6.8 \times 10^2$ 、 $8.9 \times 10^2\text{TBq}$  で、世界で最も放射能汚染の高い海であると言われている。その他に、1964 年 4 月のインド洋上空での  $^{238}\text{Pu}$  電池搭載の SNAP9-A 人工衛星事故、1966 年のスペイン Palomares での  $\text{Pu}$  爆弾の落下事故、1968 年 1 月の  $\text{Pu}$  爆弾を搭載した米国の B-52 のグリーンランド Thule での氷上激突事故、さらに、原子炉搭載の一連のソ連のコスモ衛星落下事故があった。

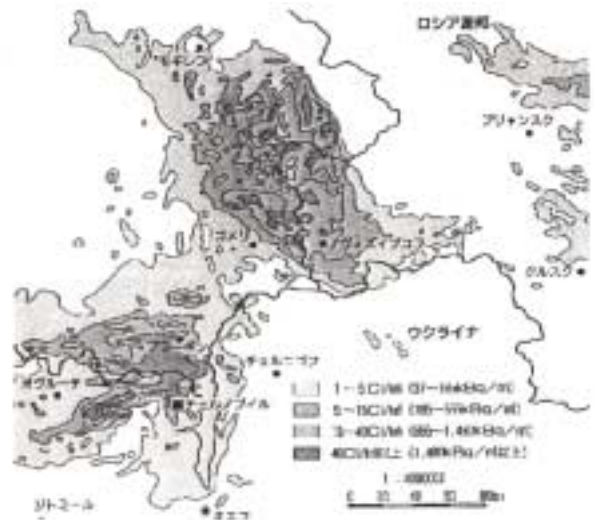


図 6. チェルノブイリ原子力発電所事故で放出された Cs-137 の降下量分布

図 6. チェルノブイリ原子力発電所事故で放出された Cs-137 の降下量分布



#### 4. どのような自然科学研究に利用されているのか -物質動態・循環研究(地球化学)-

放射性元素は、重さが量れないくらいわずかな量であっても容易に検出できる特異な性質をもっている。このような性質を持つため、放射能は単なる学問的興味の対象としてでなく、種々の分野の基本的知識の進歩のために大いに利用されるようになった。1913年という早い時期から、ヘベシー(G. Hevesy)は放射性同位体が元素のトレーサー(追跡子)として使用することに気付き、放射性鉛を用いて鉛塩の溶解度測定という初めてのトレーサー実験を行った。その翌年には、トレーサー技術を生物学に導入し、豆の鉛吸収、兎の体内ビスマス分布を研究した。その後、人工放射性核種が1934年ジョリオ・キュリー夫妻(F. Joliot & I. Curie)によって発見され、同位体製造のためのサイクロトロンが考案され1930年代中頃から放射性同位体のトレーサーとしての応用が盛んになった。自然界に存在する放射性核種も、一定の物理的半減期で減少することに加え、供給源や供給量が良く把握されているために、存在量を測定するだけで自然界で起こっている種々の過程の時間や速度の変化を提供してくれる側面を持ち合わせている。それ故、自然科学への応用も進められてきた。ここでは、主として自然科学研究への応用を気圏、陸圏、水圏に分けてトピックスを中心に概説する。

##### 4.1 気圏環境

大気中には、種々の天然および人工の放射性核種が存在している。大気中放射能は大気そのものの循環や大気中の微粒子(大気エアロゾル)の挙動解明の研究で注目されている。これまでに以下に示すような放射性核種が利用されてきた。

1. 宇宙線生成放射性核種( $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ ,  $^{22}\text{Na}$  など)
2. ラドンおよびその娘核種( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Bi}$ ,  $^{210}\text{Po}$  など)
3. 大気圏核実験や事故などによる原子力施設由来の放射性核種( $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  など)
4. 土壌起源の放射性核種(UおよびTh同位体,  $^{40}\text{K}$  など)

##### 4.1.1 大気中のエアロゾルの滞留時間

大気中には、海塩粒子、土壌粒子(黄砂)、火山塵、森林火災や人為活動で放出された煤煙などの一次粒子と、気体状として大気中に放出されたものが粒子状物質に変化した二次粒子のエアロゾルが種々さまざまな量、粒径で混在して存在している。気体状の放射性物質を別にすれば、大気中の放射性物質の殆どは、エアロゾルに付着したり取り込まれたりしてエアロゾルと運命を共にする。

大気圏核実験によって成層圏に放出された放射性物質の滞留時間が1960-1970年代に多数研究された。三宅らは $^{90}\text{Sr}$ 降下量または対流圏大気中の $^{90}\text{Sr}$ 濃度

変化から成層圏から対流圏および対流圏から地上への滞留時間、さらに南・北両半球間の交換時間を、それぞれ1.3-1.4年、約1ヶ月、2-5年と推定した[3]。 $^{222}\text{Rn}$ の娘核種、 $^{210}\text{Pb}$ - $^{210}\text{Bi}$ - $^{210}\text{Po}$ の放射非平衡を利用して主として対流圏内エアロゾルの平均滞留時間を推定することができる。地上から散逸した希ガスのラドンが上空で娘核種に壊変し、生成した娘核種がエアロゾルに取り込まれる。 $^{210}\text{Pb}$ は、半減期が22.3年と長く、滞留している時間に対応して娘の $^{210}\text{Bi}$ ( $T_{1/2}=5$ 日)、そして $^{210}\text{Po}$ ( $T_{1/2}=138.8$ 日)が成長してくる。この $^{210}\text{Bi}/^{210}\text{Pb}$ 比や $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比を測定することで滞留時間が評価できる。普通、前者からは7日程度の値が、一方、後者からは約30日の値が得られている。後者の方が長めの滞留時間を与え、大気 $^{222}\text{Rn}$ 以外の $^{210}\text{Po}$ 源(土壌や火山起源の $^{210}\text{Po}$ )が寄与しているためと考えられている。

これら以外に、宇宙線生成核種の $^7\text{Be}/^{32}\text{P}$ ,  $^7\text{Be}/^{22}\text{Na}$ 比からも滞留時間が評価されている。大気エアロゾルの滞留時間は、雨量、雨の回数、さらに大気エアロゾルのフラックス( $^{222}\text{Rn}$ は上向き、宇宙線生成核種は下向き)も関係しており、使用する核種により異なる。

##### 4.1.2 大気汚染物質(ガス成分)の挙動解明-- $^{222}\text{Rn}$

酸性雨などをもたらす大気汚染物質の移流・拡散の研究は地球環境問題の観点から重要かつ緊急の研究課題である。大気中に存在する天然放射性核種のラドン-222( $^{222}\text{Rn}$ )は半減期が3.8日で、化学的に不活性で、発生源が陸地にあるので同じ陸地に発生源を持つ大気汚染物質ガスの良いトレーサーになる。名古屋大学のグループは、中国、韓国、国内の数値点でラドンの広域・連続測定を行い、気象解析と時間変動解析を駆使して大陸から気流に乗って大気汚染物質がどのように移流・拡散してくるかを解析している。ラドン濃度は、顕著な季節変動を示している[4]。

##### 4.1.3 大陸からの日本および太平洋上への物質輸送

我が国は、極東アジアの中緯度に位置するために、偏西風が卓越し、風上側のアジア大陸から日本海を経由して多量の自然・人為起源物質が日本列島さらに北太平洋に輸送される。人為起源物質については、定量的な議論を行うための研究が精力的に進められている。最近、自然起源物質、特に重量比で大気エアロゾルの約半分以上を占める黄砂も含めての鉱物性エアロゾルについての研究も、その放射強制力による気候変動や海洋表層のプランクトン等への一次生産への影響評価の面から重要視されている。

太平洋上の表層大気エアロゾル中の $^{210}\text{Pb}$ 濃度とアルミニウム(Al)濃度が良い相関を示すことと、この地域(マーシャル諸島)の $^{210}\text{Pb}$ フラックス( $0.15 \pm 0.02 \text{dpm/cm}^2/\text{y}$ )をベースにして、アジアからのダスト(大部分は黄砂)フラックスを $38 \pm 20 \mu\text{g/cm}^2/\text{y}$

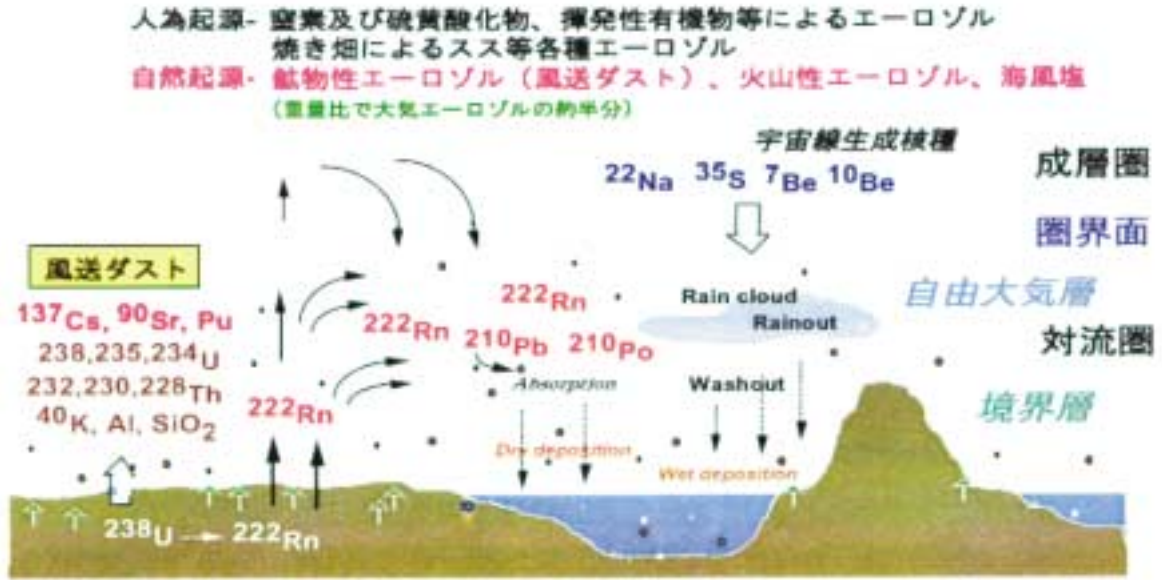


図7. 大気研究分野で利用されている放射性核種

と推定している[5].

国内においても、大陸からの物質の長距離輸送解明のトレーサーとして大気や降下物中の  $^7\text{Be}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{90}\text{Sr}$  ( $^{137}\text{Cs}$ ) さらに土壌起源の U および Th 同位体,  $^{40}\text{K}$  などの長期・広域観測が実施されている (図7). 気象研究所の五十嵐らは、筑波および日本列島南西部の長崎および与那国で降下物を採取し,  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  比 (大陸の土壌中の  $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$  比は降水の多い国内のそれと比べて小さい) から日本に到達する風送塵の起源や量を大気循環との関係で解析している[6]. 太平洋側の日本原子力研究所や日本海側の金沢大学低レベル放射能実験施設では、ここ10数年の上記核種の降下量のデータを一蓄している. 広域測定の一例を図8に示すが、日本海側での降下量が異常に多く、冬期に年間降下量の約70%が集中して降下している.

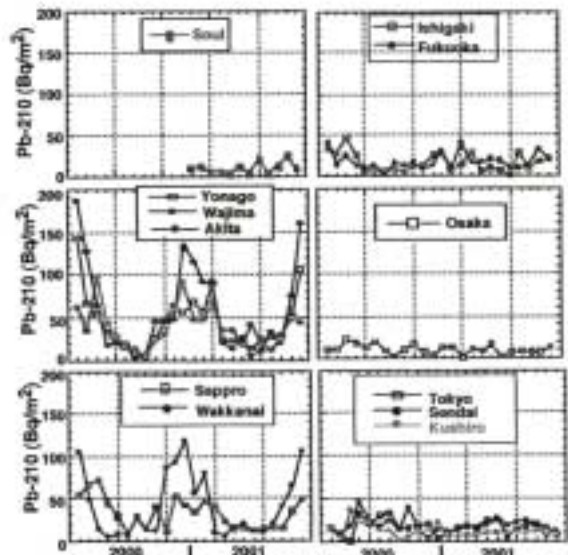


図8. ソウルおよび日本国内の幾つかの地点での Pb-210 および Be-7 の月間降下量の比較

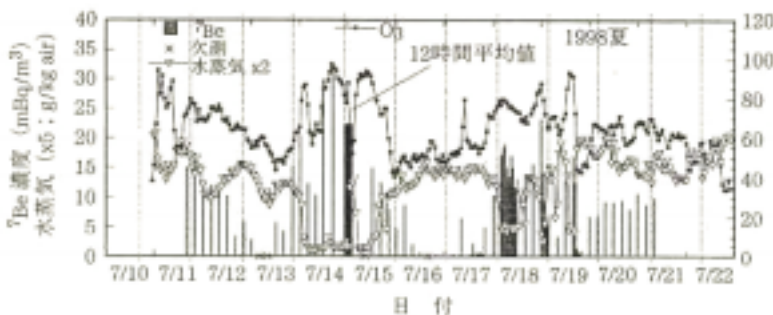


図9. 1998年の夏の富士山観測で得られた Be-7 およびオゾン濃度、水蒸気量の時間変化

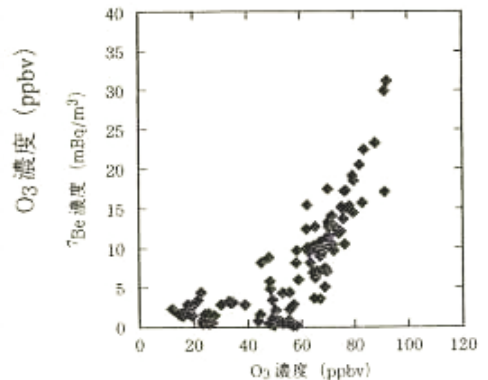


図10. 1994, 97, 98年の富士山観測で得られた Be-7 とオゾン濃度の関係

この現象は、一過性のものでなく恒常的なものである。この降下量の多い原因は、高緯度の<sup>7</sup>Be濃度の高い極気団の流れ、大陸の表層付近で高濃度になっている大気中<sup>210</sup>Pbの季節風による日本海への吹きだし、日本海での大量の熱と水蒸気の補給を受けた空気の激しい上昇気流・対流雲の発生、それに伴う降雪(rainout, washout)の一連のプロセスで説明できるのではないかと考えられている。

#### 4.1.4 大気中に放出される放射性ガス<sup>85</sup>Kr

環境に放出されている放射性ガスの中で、重要かつ興味のある核種としてクリプトン-85(<sup>85</sup>Kr)ある。主に核燃料再処理により大気中へ放出されるβ線放出核種で約11年の半減期を有する。KrはRnと同様に希ガスで化学的に不活性であり、海水にはほとんど吸収されない。したがって、放出量が壊変量を上回れば大気中に蓄積して行く。北半球中緯度での1998年における濃度レベルは約1.3Bq/m<sup>3</sup>で毎年約30mBq/m<sup>3</sup>の割合で増加している。地球全体で、約4000PBq(4000×10<sup>15</sup>Bq)の量が大气にあると推定されている。<sup>85</sup>Krは、大気の移流拡散に伴い地球全体に広がるため、対流圏の大規模循環のトレーサーとして注目されている[6]。

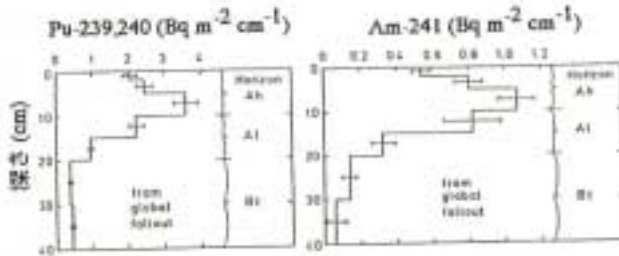


図11. ドイツでの牧草地土壌中の<sup>239,240</sup>Puと<sup>241</sup>Am蓄積量の深度分布

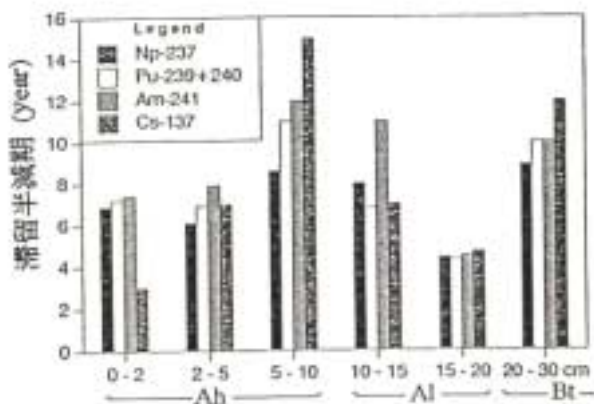


図12. ドイツでの各土壌層における超ウラン元素およびCs-137の滞留半減時間の比較

#### 4.1.5 上層大気のトレーサーとしての<sup>7</sup>Be-オゾンの関係

上層(上部対流圏・下部成層圏)から自由対流圏へ輸送されるオゾン(O<sub>3</sub>)の量を評価するために、<sup>7</sup>Beをトレーサーとする研究が行われている。自由対流圏内のO<sub>3</sub>の起源は、上層からの輸送成分と自由対流圏内での光化学反応でできる成分からなる。図9, 10に富士山山頂で得られた結果を示すが、<sup>7</sup>BeとO<sub>3</sub>濃度とは、O<sub>3</sub>濃度が一定のレベルを超えると直線関係となっており、上層から気塊が輸送される時、<sup>7</sup>BeとO<sub>3</sub>がともに輸送されることが分かる[7]。

#### 4.2 陸域環境

陸域環境は、海洋と同様、放射性核種のリザーバーである。大地、すなわち土壌は外界から入ってきた放射性核種を蓄積し長期間保持するため、農作物、陸上動物、そして地下水への潜在的な汚染源となる。これまで、放射性フォールアウトを用いて、汚染レベルや分布、さらにそれらの移行挙動の研究が数多くなされてきた。

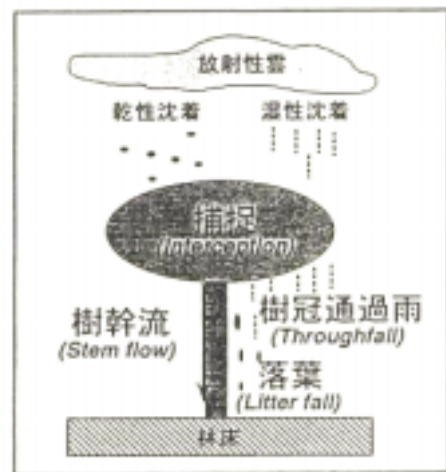


図13. 大気から林床への物質の主な流れ

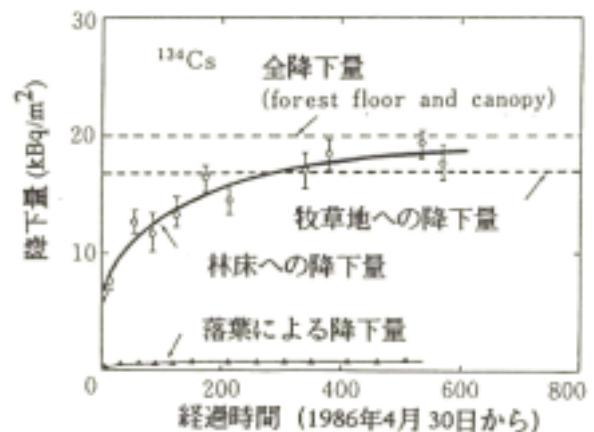


図14. 1986年4月30日のチェルノブイリフォールアウト到達後のトウヒ森林、牧草地でのCs-137降下量の経時変化

#### 4.2.1 土壌中での放射性核種の移行挙動

土壌中での放射性核種の移動挙動は、放出された元素および土壌の生物・物理・化学的特性に大きく依存する。最終的には、土壌環境中の pH と酸化還元電位のもとで起こるそれぞれの元素の加水分解、錯形成、吸着・付着、沈澱、コロイド形成などの反応に従うだろう。その関心は、どの程度の移行速度で地中に浸透していくのか、また植物の根からの吸収がどのようになっていくのか、さらにその存在状態はどのようになっているのかに集中している。人為的攪乱のない土壌コア試料を用いてフォールアウト核種、 $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$  などの深度分布が数多く測定された。ドイツでの測定例を図 11 示すが、表層下数 cm の所に濃度ピークがあり深くなるにつれて指数関数的に濃度が減少している[8]。大気圏核実験停止の 1962 年から現在までに約 40 年経過しているが、核種間の移行挙動に大きな差はなく、各層での滞留時間は 5-10 年と見積もられている(図 12)。核種移行挙動は、地理的、気象的、さらに組成や核種の存在状態で異なるので定量性あるフィールド研究が望まれている。移行挙動との関連で、土壌中の菌糸類、バクテリアの重要性も指摘されている。バクテリアなどの微生物は、吸着、取り込み、沈澱作用、還元作用を通して放射性核種を固定する方向で作用する一方、溶解、錯形成などによって放射性核種を溶解させる作用をもっている。また、特に環境 Pu は、放出された当初はそのほとんどがサイズ、化学形を異にする粒子(hot-particle)として存在しており、時間の経過とともに変化していくことが指摘されている。存在状態の研究については、化学的な逐次抽出法の他に走査型電子顕微鏡、レーザー、放射光などを利用した光学的手法の研究が実施されている。コソボでの戦争で使用された劣化ウラン弾の存在状態が、汚染された土壌試料を用いて研究され、X線誘導分光法でウラン粒子の 2/3 が  $\text{UO}_2$ 、残りの 1/3 が  $\text{U}_3\text{O}_8$  であったと報告されている[9]。

#### 4.2.2 森林生態系への応用

我が国では、国土の 7 割近くを森林が占めている。地球環境問題の中で、被害が最も著しいのは酸性雨の影響で湖水の酸性化や森林枯死が特に北欧ヨーロッパやカナダなどで深刻化している。森林に付加された汚染物質が森林内で空間的、時間的、量的および質的にどのように変化・拡散・蓄積するのかを、またその結果、森林がどのような影響を受けるのかをより定量的に把握する研究が重要となっている。

ドイツでは、チェルノブイリ原発事故由来の放射性核種をトレーサーとして大気-森林-林床土壌の研究を精力的に行った(図 13, 14)。国立山林局の管理区域にあるヘーグルヴァルトでスプリンクラーによる酸性雨散布の実験区域を設置して、コントロール区域との放射性核種の移行挙動を比較した。2

年あまりの期間では、顕著な差が現れていないが、さらに長期研究が継続されている。また、森林では樹冠のエアロゾルの捕捉(遮断)の結果として、平地よりも数〜十数倍大きい乾性沈着速度を持つことが分かった[8]。当実験施設横の松林をフィールドにして、大気エアロゾル、降下物、林床土壌中の  $^{210}\text{Pb}$  をトレーサーとして、森林への汚染物質負荷量を評価した研究でも、平地での乾性沈着速度(約 0.1cm/sec)と比べて 10 倍程度大きい乾性沈着速度(約 1cm/sec)が評価された。森林は、このように汚染物質を集めやすく、大気を浄化する役割を果たしている。その結果、たとえばフォールアウト  $^{137}\text{Cs}$  などを平地と比べて 2-3 割多く蓄積している。

#### 4.2.3 水文学への応用

水文学では地下水の挙動の不明確さが大きな障害となっていたが、水に含まれる同位体を指標に水循環を解析する同位体水文学の確立でこの分野が著しく進展した。数千〜数万年代の水循環を立証する  $^{14}\text{C}$  に始まり、数〜数十年の水循環を立証する  $^3\text{H}$  に移り、1 降水の動きを追う  $^{18}\text{O}$  や  $^2\text{H}$  に着目、さらに、地殻との化学反応が無視できるラドン( $^{222}\text{Rn}$ )に目が向けられた。ラドンは、半減期 3.8 日なので、数〜数十日の詳細な流れを追うトレーサーとして多用されている。

ラドンについては、1) 地層構造の解析(地下水中の  $^{222}\text{Rn}$  濃度が地層の  $^{226}\text{Ra}$  量を反映できるならば、地下水の  $^{222}\text{Rn}$  濃度分布から地層の区分や地層形成の解析可能、2) 地下水流動・流速解析、3) 地盤沈下機構の解析、4) 地滑り地帯への応用と予知、5) 河川水と地下水の交流現象の解析、6) 天然ガスの漏出解析、7) 地震予知などの研究に応用されている。地震と水中ラドンについては、タシケントの 1300-2400m の深井戸よりくみあげた地下水のラドン含有量が、1961-1965 年の間に約 20 Bq/L (5 エマン) から 60 Bq/L (15 エマン) に増加してのち、1964 年 4 月 26 日にタシケント地震 (M=5.5) が起こったと報じられている(図 15) [10]。その後、ソ連ではタシケント方式が各地で実施され多くの成果を挙げた。

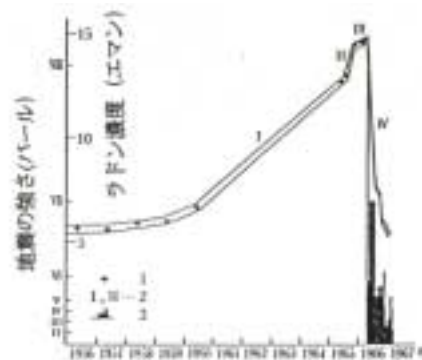


図 15. タシケント地震 (1964 年 4 月 26 日) 前後の地下水のラドン濃度の変化

また中国でも電離箱あるいはシンチレーション・カウンターによる連続観測が実施されている。国内でも東南海地震等に備えて自動連続測定が行われている。現在のところ、ラドンが地震予知に利用できるかどうか不明な点が多いが、地震の前後に地下水中のラドン量がどのように変化し、それが地震とどのようなかかわり合いを持つかが研究されている。ラドン以外に、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  比などの可溶性の同位体効果のある元素比の研究も行われている。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  比の非平衡を用いて地下水の起源、年代等が推定されている。

水文地形学の分野においても、放射性核種、特に $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239,240}\text{Pu}$  および $^7\text{Be}$ が、表層土壌移動（侵食）評価のトレーサーとして用いられている。

#### 4.3 水圏環境

湖沼や海洋には陸域同様、種々の放射性核種がレベルを異にして広く分布存在している。水中に存在する放射性核種は、保存性（可溶性）と非保存性（懸濁粒子に吸着・付着）核種（元素）に分類でき、主として物質循環のトレーサーとして利用されている。また、幾つかの核種は、堆積物の堆積年代決定にも用いられている。

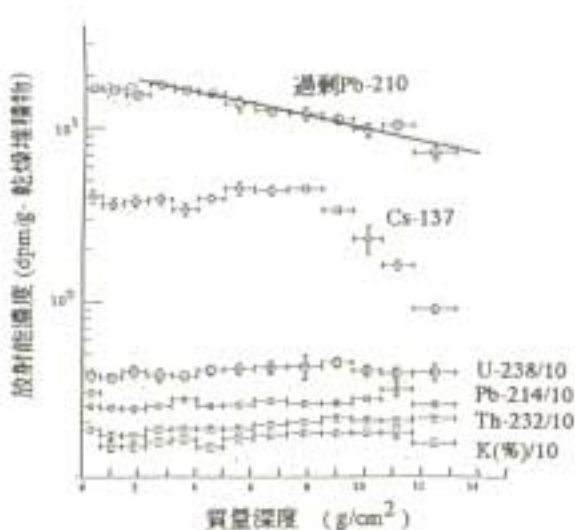


図 16. 福井県・三方湖の湖底堆積物の堆積速度 (U,Th,Pb-214 は 1/10 にして表示)

#### 「湖沼環境への応用」

湖沼中の主な放射性核種には二つの起源がある。一つは、U-Th 系列核種で、地殻岩石の風化や土壌層を通して河川や地下水によって湖沼に運ばれてくる。河川水中の放射性核種濃度は、基岩の種類、性質や河川水の組成に応じて数オーダーの変動が見られる。また、地下水によっても放射性核種が持ち込まれる。さらに U-Th 系列核種を含む土壌粒子の形態を持つ核種が流入している。もう一つの起源は、大気中

存在する放射性核種（たとえば、宇宙線生成核種、核実験からのフォールアウト核種、さらに大気中のラドンの壊変でつくられる娘核種  $^{210}\text{Pb}$  や  $^{210}\text{Po}$ 、大地から浮遊した土壌粒子）が乾性および湿性沈着で地表に運ばれ、直接あるいは間接的に湖沼に流入する。

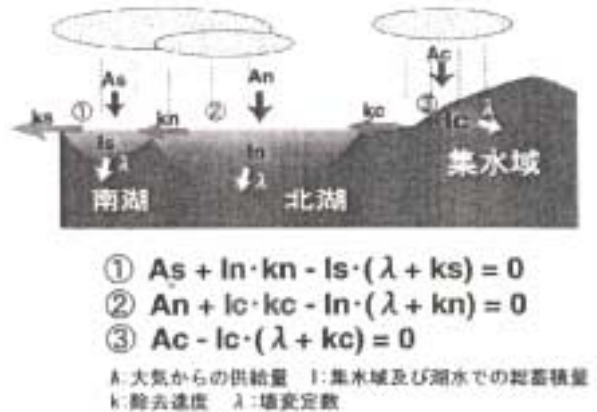


図 17. 琵琶湖での物質収支モデルの一例

#### 4.3.1 堆積物年代測定

100～200 年程度までの堆積物の堆積年代測定法に鉛-210 ( $^{210}\text{Pb}$ )法およびセシウム-137( $^{137}\text{Cs}$ )法がある。 $^{210}\text{Pb}$  法は、大気中に飛散した $^{222}\text{Rn}$  から生じた $^{210}\text{Pb}$  が湖面に降下し、堆積物とともに沈積し、その後は 22.3 年の半減期で減少していくことに基づいている。実際に測定される  $^{210}\text{Pb}$  は、堆積物の土壌粒子そのものに含まれている  $^{210}\text{Pb}$  も含むため、 $^{210}\text{Pb}$  および $^{226}\text{Ra}$ (娘核種 $^{214}\text{Pb}$ を測定)濃度から過剰 $^{210}\text{Pb}$ 濃度( $\text{excess-}^{210}\text{Pb} = ^{210}\text{Pb} - ^{214}\text{Pb}$ )を算出し、過剰 $^{210}\text{Pb}$ 濃度の対数の深度に対する傾きから平均堆積速度を求める。過剰 $^{210}\text{Pb}$ の単位面積、単位時間当りの堆積物への供給量(フラックス:  $F \text{ Bq/cm}^2/\text{y}$ )が一定で、質量堆積速度  $S(\text{g/cm}^2)$ も一定である定常状態を仮定すると、深さ  $Z(\text{g/cm}^2)$ における  $t$  年前に堆積した堆積物中の過剰 $^{210}\text{Pb}$ 濃度  $A(t)$ あるいは  $A(z)(\text{Bq/g})$ は、

$$A(t) = F/S \cdot \exp(-\lambda t)$$

$$A(z) = F/S \cdot \exp(-\lambda \cdot Z/S)$$

として表せる。したがって、質量堆積速度は  $A(z)$ を  $Z$ に対して片対数プロットした直線の傾き  $m$  から  $S = -\lambda/m$ によって算出される。実際の堆積物の深さは、厚密されているので、通常上記のような質量堆積量を用いる。堆積速度を  $\text{cm/y}$  で表したいときには、厚密を間隙率で補正する必要がある。

一方、 $^{137}\text{Cs}$ 法は、過去の大気圏核実験で大気中に放出された $^{137}\text{Cs}$ が1963年に最大になって堆積物に供給・蓄積されたことを利用して平均堆積速度を算

出する方法である。湖面に降下した  $^{137}\text{Cs}$  が速やかに堆積物に移行し、堆積後拡散等で移行しないことが仮定されている。測定の一例を図 16 に示すが、実際には生物的攪拌、突発現象、縁辺からの影響などで過剰  $^{210}\text{Pb}$  濃度が深さとともに直線的に減少しないケースが多い。さらに、 $^{137}\text{Cs}$  法との一致が得られないケースもある。両方法は、比較的簡単に堆積速度を算出するために多用されているが、使用に当っては両核種の蓄積量(インベントリー:  $\text{Bq}/\text{cm}^2$ )なども考慮して慎重に算出することが重要である。また、環境変動や気候変動の将来予測の観点から、湖沼堆積物が注目され、過去数百万年まで遡る気候変動の解析等が古代湖のバイカル湖の堆積物を用いて国際的に研究されている。長い堆積物の堆積年代は、磁気的方法に加えて、放射性核種を利用する方法、 $^{10}\text{Be}$  法(数百〜数千万年)、 $^{238}\text{U}$ ( $^{234}\text{U}$ )- $^{230}\text{Th}$  法(数万〜数十万年)、 $^{14}\text{C}$  法(数千〜数万年)を組み合わせで算出されている。

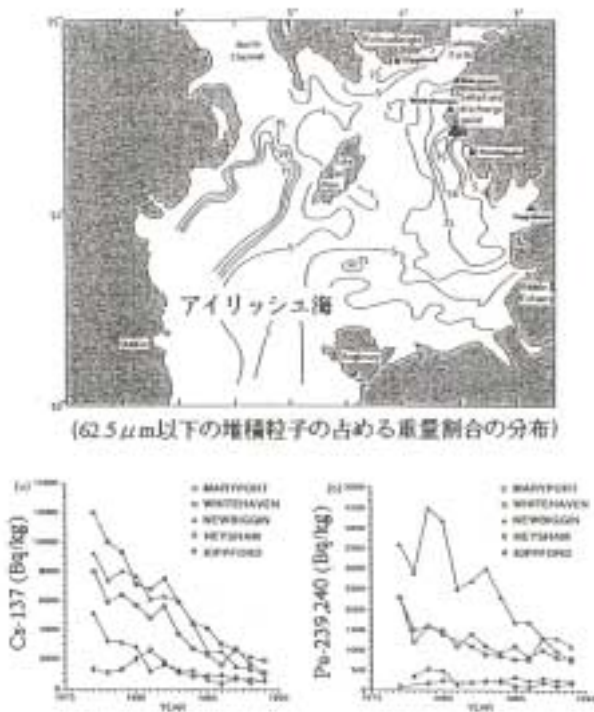


図 18. イギリス・セラフィールド再処理工場からの放射性廃液によるアイリッシュ海の汚染状況

#### 4.3.2 湖沼環境での物質循環研究

大気や河川を通じて湖内に運ばれる外来性物質、あるいは湖内で生産されたプランクトンなどの自生成物質は、物理・生物・化学的作用を受けて固相へと移行し、深層を経て湖底に堆積する。これまでに以下に示すような放射性核種が利用されてきた。

1. 宇宙線生成放射性核種( $^7\text{Be}$ ,  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{32}\text{P}$ ,  $^{35}\text{S}$ ,  $^{22}\text{Na}$  など)
2. ラドンおよびその娘核種 ( $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{210}\text{Po}$  など)
3. 大気圏核実験や事故などによる原子力施設由来の放射性核種 ( $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Am}$  など)
4. 土壌起源の放射性核種(U および Th 同位体など)

この中で、最も多用されてきた核種は  $^{210}\text{Pb}$  や  $^{210}\text{Po}$  で、湖水中で粒子との親和性が高く、難溶性物質(非保存性物質)が湖水から除去される過程や粒子の鉛直・水平方向の輸送および生物地球化学的プロセス解明のトレーサーとして用いられている。国内では、琵琶湖をフィールドに大気降下物、河川、湖沼および堆積物の  $^{210}\text{Pb}$  や  $^{210}\text{Po}$  を測定し、年間を通じてのこれら核種の湖底への除去過程を含む循環メカニズム解明試みた研究が行われている[11]。両核種共に年間を通じてプランクトンブルーム期に最も効率良く除去されているなど動的側面の知見が得られた。また、保存性物質の動態として、宇宙線生成核種  $^{22}\text{Na}$  を用いた研究も行われており、集水域も含む可溶性汚染物質動態のトレーサーとして有望視されている[12]。図 17 に物質収支のモデル例を示す。

#### 「海洋関係への応用」

沿岸も含めた海洋には、様々な種類の天然および人工の放射性核種が存在している。起源をもとに分類すると、

1.  $^{40}\text{K}$ ,  $^{87}\text{Rb}$ ,  $^{238}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  などの半減期の長い一次天然放射性核種
2.  $^{38}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{232}\text{Th}$  系列の二次天然放射性核種
3.  $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  などの宇宙線生成核種および核実験や原子力施設からの人工放射性核種

に分けることができる。海洋では、物質循環を研究する上で様々な過程に時間の尺度を与えて考えることが不可欠であり、放射性核種を利用した研究が重要となる。沿岸海域と外洋に分けてその主な応用を記す。

#### 4.3.3 沿岸海域

沿岸帯は、陸と海の単なる境界ではなく両域の接合部に当り、放出された物質の物理的分散はもとより、化学的には溶存物質の不溶化、沈澱、再溶出、生物的には太陽光が届きやすいために物質代謝が集中的に展開されている場である。このため、非常に複雑である。放射能の観点から沿岸帯を見ると、現在、国内の原子力発電所の殆どが沿岸地域に立地している。大気からの放出を別にすれば、総てが沿岸帯を通して行われる。原子力発電所周辺では、放射能・放射線の環境モニタリングが精力的に行われている。沿岸堆積物は、沿岸に放出された物質のリザーバーとして働き、人間活動の影響を直接受けやすい。人間にとって極めて身近な存在となっているが故に、原子力施設からの放射性廃液に含まれる人工

放射性核種の分布や挙動の研究が数多くなされている。その一端を、イギリスのアイリッシュ海を例に紹介してみたい。イギリスには、5つの大きな核燃料会社がある。セラフィールド核施設は中西部カンブリア地方に広がる巨大な原子力センターであり、種々の施設の中で核燃料再処理工場は1952年に稼働をはじめ工場の規模と実績は出並ぶのはフランスのラ・アグ工場のみである。これまでに、大量の核分裂生成核種さらにPuなどを含む超ウラン元素の諸核種がアイリッシュ海の沿岸に放出され続けられてきた。沿岸の幾つかの地点の $^{137}\text{Cs}$ および $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の時間的推移を図18に示す。放水口に近い地点では濃度が時間の経過とともに減少しているが、遠方はほぼ一定の値を示している。日本の若狭湾沿岸表層堆積物の $^{239,240}\text{Pu}$ レベル数Bq/kgと比べて如何に汚染されているかが分かる。沿岸汚染海域のモデル・ケースとして種々の研究が実施されているが、ひとたびこのような沿岸や潮間帯の堆積物が長寿命人工放射性核種で汚染されるとその影響が長期間継続することを警告している[13]。

#### 4.3.4 海洋への応用

地球温暖化問題とも関連して、地球全体のシステムと生命を育む環境を支配するプロセスを学際的かつ国際的に研究する必要性が高まっている。特に海洋における物質循環機構の解明が重要となっている[14,15]。図19に海洋でのトレーサとし利用されているU-Th系列核種の挙動を示す[16]。

$^{238}\text{U}$ 系列の $^{226}\text{Ra}$  ( $T_{1/2}=1600$ 年)は、堆積物表層に比較的多く存在する $^{230}\text{Th}$ の壊変で生じ、底層水に供給されるので深層水流動の良いトレーサになる。また $^{232}\text{Th}$ 系列の $^{228}\text{Ra}$ は半減期が5.8年と短いので供給源に近い表層水や底層水で濃度が高く、供給源から離れるにつれて濃度を減少させる。このことを利用して、温度躍層と底層水での鉛直渦動拡散係数を求める試みがなされている。同じように堆積物から溶出する放射性核種に $^{222}\text{Rn}$ があり、 $^{228}\text{Ra}$ よりも海底に近いところでの鉛直渦動拡散係数算出に用いられている。

Th同位体は、海洋表層での生物生産のトレーサとして利用されている。 $^{234}\text{Th}$  ( $T_{1/2}=24.1$ 日)は、 $^{238}\text{U}$ の $\alpha$ 壊変で生成し、粒子に捕えられて海水中から除去されやすい。他の半減期の異なるTh同位体、 $^{232}\text{Th}$  ( $T_{1/2}=1.4\times 10^{10}$ 年)、 $^{230}\text{Th}$  ( $T_{1/2}=7.52\times 10^4$ 年)とともに測定されている。海洋表層において、生物によって生産される総生産量を基礎生産、有光層から沈降粒子等によって除去される量をエクスポート生産と呼んでいる。このエクスポート生産は、現在セジメントトラップで得られる粒子束として与えられ、海洋の炭素循環を理解する上で重要であるが、全球をカバーして測定することはできない。そこで、 $^{234}\text{Th}$ の $^{238}\text{U}$ に対する不足量(この不足量が生物起源粒子に

よって除去された量に等しい)から間接的に評価する試みがなされている。粒子中の有機炭素/ $^{234}\text{Th}$ 比が与えられれば、海水中の $^{234}\text{Th}$ 分布のみの測定で全球の有機炭素粒子束を評価することが可能である。検討事項も多々あるが、炭素循環などの問題解明に貢献すると期待されている。

湖沼の場合と同様、 $^{210}\text{Pb}$ および $^{210}\text{Po}$ も海洋で数多く研究されている。海洋表層の $^{210}\text{Pb}$ の主な供給源は大気である。その他に一部であるが、海水中に溶存している $^{226}\text{Ra}$ からも生成する。一方、 $^{210}\text{Po}$ は大気からの供給は極めて少なく、その殆どは海水中の $^{210}\text{Pb}$ より生成する。いろいろな海域において海水中の $^{210}\text{Pb}$ と $^{210}\text{Po}$ 濃度の鉛直分布が、セジメントトラップと組み合わせて測定されている。また、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比が、直物プランクトンで3、沈降粒子で3-6、動物プランクトンで12程度と $^{210}\text{Po}$ が高くなっていることも分かり、 $^{210}\text{Po}$ が表層での生物活動や粒子の挙動のトレーサになることが期待されている。

その他に、 $^{230}\text{Th}$  ( $T_{1/2}=7.52\times 10^4$ 年)と $^{231}\text{Pa}$  ( $T_{1/2}=3.28\times 10^4$ 年)を用いた研究もある。 $^{230}\text{Th}$ と $^{231}\text{Pa}$ は、粒子に吸着されやすい性質を持っており、これらを利用して粒子のスキヤベンジングと水平的な輸送過程の研究が行われている。

人工放射性核種を用いた研究も多く行われている。1970年代を中心にGEOSECS計画のなかで多くの放射性核種のデータが取得された。 $^3\text{H}$ や $^{14}\text{C}$ 測定によって、深層海水の動きや滞留時間が明らかになってきた。Puも良く研究されてきた核種である。Puは、海水中では溶存性が低いので速やかに海水中から海底に除去されるであろうと考えられていた。ところが、垂表層以深の海水では溶存Puが全体の約95%もあり、海底にわずかししか沈積していないことが実測された。さらにPu濃度は、他の元素と異なって表層下500-800mに極大ピークを持つ鉛直分布を示すことで長い間謎とされてきた。最近では、表層で生物起源粒子への吸着、粒子の沈降に伴う下方への輸送(鉛直輸送)、数百m以深での粒子の分解に伴う再生により極大層が形成されると考えられている。1973年~1997年に測定された太平洋中緯度海域のPuの深度分布は、見かけの半減期約22年で極大層が450mから850mに移行している。今後同じ超ウラン元素でPuよりも粒子との反応性が高い $^{241}\text{Am}$ と組み合わせて、さらに海洋化学の発展に寄与する情報をもたらすと期待されている[17,18]。

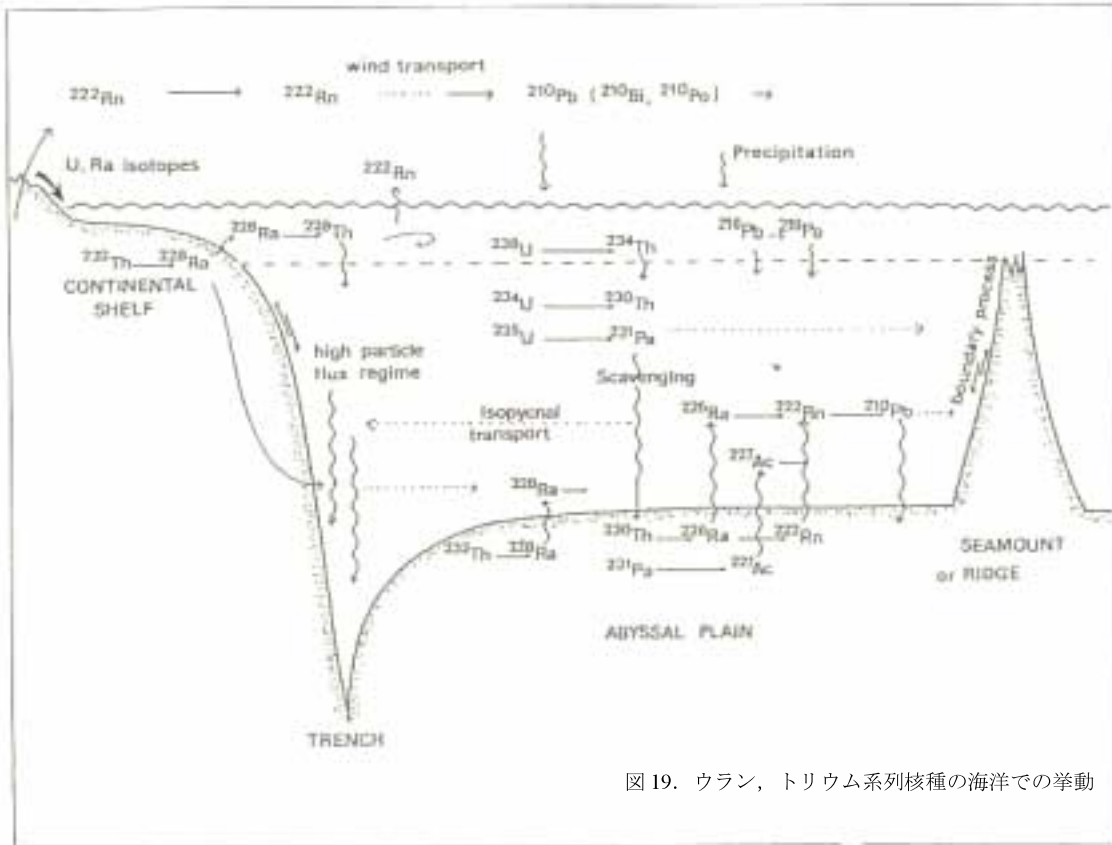


図 19. ウラン，トリウム系列核種の海洋での挙動

#### 参考文献

- [1] 環境放射能 (佐伯誠道 編), p.23 ソフトサイエンス社 (1984).
- [2] チェルノブイリ原子力発電所事故後の状況, 科学技術庁原子力局, 1992.
- [3] Geochemical Study of the Ocean and Atmosphere, Part I and II, (Y. Miyake Seventieth Anniversary collected Paper), Geochem. Lab. Inst., Tokyo (1978).
- [4] 飯田孝夫, 平成 10-11 年度科学研究費補助金 (基盤研究(B)(2)) 研究成果報告書, 2000.
- [5] K. T. Turekian, J. K. Cochran, Nature, 292 24-25 (1981).
- [6] Proceedings of the Third Workshop on Environmental Radioactivity (T. Mimura, Ed.), KEK Proceedings 2002-7, 2002.
- [7] 山の大气環境科学 (土器屋由紀子, 岩坂泰信 他 編著), 養賢堂発行, 2003.
- [8] 山本政儀, K. Bunzl. Radioisotopes, 42,180-188 (1993).
- [9] Special Issue: Depleted Uranium, J. Environ. Radioactivity, 64 (2003).
- [10] 脇田 宏, 地球科学と核現象, 地学総説, 29, 241-255 (1980).
- [11] 大塚良仁, 山本政儀, 他, 地球科学, 35,85 (2001).
- [12] 坂口 綾, 山本政儀, 他, Proceedings of the Third Workshop on Environmental Radioactivity (T. Mimura, Ed.), KEK Proceedings 2002-7, 2002.
- [13] 山本政儀, 日本海水学会誌, 57(3), 193 (2003).
- [14] 原田 晃, 月間海洋, 号外 No.8, 89 (1995).
- [15] 山田正俊, 月間地球, 号外 No.22, 80 (1998).
- [16] Y. Nozaki, Reviews in Aquatic Sciences, 475-105 (1991).
- [17] 中西 孝, 月間海洋, 号外 No.8, 96 (1995).
- [18] 山本政儀, ぶんせき, No.5, 248 (2003).