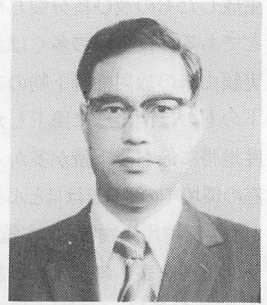


■ 展望・解説 ■

海洋での超ウラン元素の分布と挙動

Distribution and Behavior of Transuranium Elements in the Ocean



中西 孝*
Takashi Nakanishi

1. はじめに (人類と超ウラン元素)

ウラン(U)の原子番号は92である。93およびそれ以上の原子番号の元素はすべて超ウラン元素(Transuranium Element, 以下 TRU と略する)と呼ばれ、理屈の上ではまだ人類に知られていない極めて原子番号の高い元素まで含まれることになるが、現在のところ一応110番元素までが報告されている。

人類が TRU を実在のものとして初めて認識したのは93番元素ネプツニウム-239 ($^{239}_{93}\text{Np}$) を合成的に発見した1940年のことである¹⁾。その後、天然の超ウラン核種プルトニウム-239 ($^{239}_{94}\text{Pu}$)²⁾, $^{237}_{93}\text{Np}$ ³⁾, $^{244}_{94}\text{Pu}$ ⁴⁾ などの存在を確認したことが報告されているが、現在の地球上に存在する TRU のすべては人工のものと考えて差支えない。それは、人類にとって最初は学術的研究の対象であった TRU がその発見の後間もなく核兵器への使用の対象にもされたり、さらに原子力平和利用に付随して取り扱われる物質となり、それに伴って一般環境に人工の TRU がもたらされるようになったからである。TRU には長寿命で α 線(生物学的効果が大きい)を放出する同位体も多いので、環境汚染物

質の一面も持つようになった。環境に放出された TRU は壊変し尽すまでの長い年月に亘って環境中を循環する。TRU の環境中での履歴はまだ50年足らずと浅いので、環境中を循環する間の物理的、化学的、生物的過程に関する人類の知見はまだ乏しく、環境への放出には厳に注意を要するし、環境保全の上で、また生物系への影響評価の対象として問題とされてきているのである。

2. 環境中の超ウラン元素

一般環境に TRU が出現したのは、その発見後間もない1945年のことである。その年の夏、2つの ^{239}Pu 原爆の炸裂というかたちで現れた(1番目はアメリカのニューメキシコ州に、2番目は長崎市に。因に広島原爆は ^{235}U 原爆)。その後、1962年を年間爆発規模のピーク(約110メガトン/年⁵⁾)とする大気圏内核実験が行われた(総出力325メガトン以上。なお、長崎原爆は21キロトン)。とくに熱核実験(水爆実験)では出力が大きく、TRU や核分裂生成物を含む原子雲が成層圏にまで上昇したため、全球的に環境が TRU で汚染されてしまった。核実験に由来する TRU は、 ^{238}U 、 ^{239}Pu の多重中性子捕獲とその生成物の壊変によって

表1 現在の環境中に存在し、影響評価の対象とされている超ウラン核種

核種	主な壊変様式 ⁷⁾	半減期(年) ⁷⁾	一般環境中の全存在量 (1988年1月における推算値*)			参考文献
			(Bq)**)	(Ci**)	(kg)	
$^{237}_{93}\text{Np}$	α	2.14×10^6	6.3×10^{13}	1.7×10^3	2.4×10^3	8)
$^{238}_{94}\text{Pu}$	α	8.771×10^1	8.9×10^{14}	2.4×10^4 ***	1.4×10^0	9)
$^{239}_{94}\text{Pu}$	α	2.4131×10^4	7.7×10^{15}	2.1×10^5	3.4×10^3	9)
$^{240}_{94}\text{Pu}$	α	6.570×10^3	5.7×10^{15}	1.5×10^5	6.8×10^2	9)
$^{241}_{94}\text{Pu}$	β^-	1.4355×10^1	5.2×10^{16}	1.4×10^6	1.4×10^1	11)12)13)
$^{241}_{95}\text{Am}$	α	4.320×10^2	4.1×10^{15}	1.1×10^5	3.2×10^1	12)13)
$^{244}_{96}\text{Cm}$	α	1.8099×10^1	2.6×10^{11}	7×10^0	8.6×10^{-5}	14)15)

* 過去の推定値に減衰・生長の補正を施して示した。参考文献 9)の絶対値と、その他の参考文献の放射能比に基づいている。
** ベックル、放射性物質の量を表わす単位。1 Bq(SI 単位では s^{-1}) は毎秒1壊変の放射能を示す放射性物質の量を示す。
1 Ci(キュリー) = 3.7×10^{10} Bq。
*** 核実験によるもの8 kCiとSNAP-9A事故によるもの16 kCi(4 kCiは北半球に、12 kCiは南半球に降下)の合計。1964年4月、 ^{238}Pu を熱源とするSNAP(Systems for Nuclear Auxiliary Power)-9Aを搭載した人工衛星の軌道投入に失敗し、インド洋上空約50 kmで大気圏に再突入するという事故が発生した¹⁰⁾。

* 金沢大学理学部化学科助教

〒920 金沢市丸の内1-1

生成したものと及び核分裂しないで飛び散った ^{239}Pu などである。核実験の多くは北半球で行われたので、核実験由来の放射性降下物の3/4以上は北半球に、1/4以下のものは南半球に降下した。また、北半球では中緯度地帯に最も降下量が多かった⁶⁾。このようにして現在の環境中のTRUはほとんどが核実験によりもたらされた。環境汚染物質として監視しなければならない超ウラン核種を表1に示す。 α 放射能では ^{239}Pu 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am が多い。一方、原子力発電等の使用済燃料中には上記の核種のほかに相当量の ^{237}Np 、 ^{238}Pu 、 ^{241}Pu 、 ^{242}Pu 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm が長期照射により生成するので¹⁶⁾、使用済核燃料再処理に伴う環境への放出が将来において今日以上に問題となる可能性が潜在する。

TRUの生物学的挙動、毒性などに関する最近までの研究結果によれば、TRUの多くは人体に吸入または摂取されると骨親和性を示し、排泄されにくいものがあるようである¹⁷⁾。TRUのこのような生理学的性質や化学的性質に関する今までの知見および現在の環境中の存在量、半減期などから考えて環境汚染物質として問題になるとと思われる4つのTRUの同位体を表1に挙げたが、若干の補足説明を以下にしておく。

2.1 ネプツニウム (^{93}Np)

この元素の同位体では ^{237}Np のみが問題となる。その環境中の放射能レベルの低さ(^{239}Pu に比べて)故に今日まで放射線影響の観点からはあまり注目されず、環境Npの研究は少い。しかし、Np(環境中ではIV価とV価の酸化状態をとりうる)のV価は溶存性の高い化学種となり環境中および生体中で動き易いので、環境中での挙動が重要視されつつある。

2.2 プルトニウム (^{94}Pu)

TRUの中では最も生産量が多く、また大気圏内核実験、事故、核燃料再処理施設からの日常的放出による環境への負荷量においても最も多い元素である。したがって、環境TRUの研究の大部分はPuについてのものである。環境中では、表1に示すこの元素の4つの同位体がとくに問題となる。Puは環境中でIII、IV、V、VI価の4種の酸化状態をとりうるが、各酸化状態間の酸化還元電位が相互に接近しているため、4種の酸化状態が平衡状態で共存し、Puの化学は複雑である。なお、海洋環境で検出された超ウラン核種の最初のもは $^{239,240}\text{Pu}$ であった¹⁸⁾。なお、 ^{239}Pu 、 ^{240}Pu の定量は通常 α 線スペクトロメトリーによって行われるが¹⁹⁾、その場合、 ^{239}Pu と ^{240}Pu の α 線エネルギー

が接近していて弁別が困難なので、両者の和 $^{239,240}\text{Pu}$ として定量され、データが提示される。

2.3 アメリカシウム (^{95}Am)

この元素の同位体では ^{241}Am が最も問題となる。環境中の放射能レベルでみれば、Pu同位体に次いで高い。 ^{241}Am は ^{241}Pu の β^- 壊変によって生成するので、たとえ ^{241}Am を環境に放出しなくても、 ^{241}Pu の環境中現在量から考えて、今後当分の間は環境中で ^{241}Am は増加し続ける。 ^{241}Am はさらに ^{237}Np へと壊変する。Amは環境中でIII価の酸化状態のみをとるので、Puほど複雑なことはない。

2.4 キュリウム (^{96}Cm)

環境汚染物質として確認されているTRUの中では、この元素の放射能が最も少い。大気圏内核実験による放出量が少なかったからであるが、動力炉の使用済燃料中では ^{244}Cm を無視することはできない。 ^{244}Cm の約18年の半減期はさほど長くはないが、環境系に一旦入れば、人間の数世代に相当する期間循環することになる。Amと同様III価の酸化状態のみを環境中でとる。

3. 海洋の超ウラン元素

海洋の表面積は地球の全表面積の約71%を占める。したがって海洋は全地球的に大気中に拡がったTRUの降下物の最大の受容圏となった。さらに、ソ連、中国以外の大気圏内核実験は概ね海洋域で行われたので、核実験場周辺の海域には局部的に高密度で人工放射性核種がもたらされた(これはclose-in falloutと称される)。また、一旦陸上に降下したものが風や河川水により海洋に運搬されているし、核燃料再処理施設の多くが海岸や海に通ずる河川のそばに立地していることなども考慮すると、一般環境にもたらされたTRUの70%以上は海洋に入ったと考えられ、将来的にも海洋への負荷は大きいと考えられる。

さて、最近の人類の活発な活動は様々なインパクトを海洋に与え、海洋を変えてきている。既にいくつかの沿岸域ではそれが人類に対するマイナスの効果としてはね返ってきている。最近の50年間足らずの間に人類が海洋にもたらしたTRUも含めた人工放射性核種の場合はどうなのであろうか。当然のことながら海洋(地球全体と言うべきだろう)は現代の我々だけのものではない。将来においても人類にとって海洋は豊富な生物資源、鉱物資源、エネルギー資源を供給してくれる場であらうし、重要性は減りはしないであらう。海

洋を真に長期に亘り有効利用するために、また海洋を破局的な方向に導かないようにするためにも、海洋にインパクトを与えた世代の人類は共同責任でその影響を評価しておくべきであろう。影響があるとすればどの程度の期間、どの程度にあるのかを明確にし、人類にマイナスの効果を与えないような対策を施し、あるいは方策を考えねばならない。影響がないのなら、ないことを明確に実証しなければならない。

一方、たとえ人類が海洋に何らインパクトを与えなかったとしても、海洋は極めて興味深い学術研究の対象である。海洋で起っている種々の物質の種々の過程をすべて矛盾なく説明したいという願いがあふ。海洋に存在する天然の物質は、地球上に海洋ができて以来の約30億年間の歴史の結果として現われている一つの定常状態(短期的な季節変動や数年~数10年周期の変動も含めて)にあるものを我々は観察していることが多いが、その中に何か目じるしになるものを海洋を乱さないように加えてそれを追跡すれば海洋についての知見、とくに物質循環については豊富になり、海洋の進化の研究は飛躍的に進展するにちがいない。このような観点からすれば、人類が海洋に加えてしまった人工放射性核種は有用な研究用トレーサの役割を果たすことになる。

海洋における、TRUも含めた人工放射性核種の研究においては概ね上記の2つが意図されている。

さて、海洋のTRUの研究が始ったのは既に述べたように1960年代前半であったが¹⁸⁾、環境問題として、また海水の循環像解明のトレーサとしてTRUが強く意識されるようになったのは1970年代に入ってからのことである。しかし、海洋において研究されてきたTRUとは言えばPuとAmだけであると言ってよい

というのが現状で、Amのデータはまだ限られたものしかない。地球上の海水の全体積は約 $1.4 \times 10^{21} \text{ l}$ ²⁰⁾であるから、表1で最も放射能の多い^{239, 240}Puの $1.34 \times 10^{16} \text{ Bq}$ 全部が地球上の海水に均一に分布したとしても、その平均濃度は約 10^{-5} Bq/l (= $10 \mu\text{Bq/l}$)程度である。すなわち、200 lの海水から収率70%で^{239, 240}Puを化学分離して30%の計数効率で放射能を測定したとして(実際に行われているスケールはこの程度)、1日に約36カウントの計数が得られる程度である。これだと1つの測定に1週間は必要である。とすれば、その定量の困難さを察することができようし、Amのデータがなせ少いのか、ましてNpやCmのデータは皆無に等しい現状は容易に理解できよう。それではなぜこのような測定すら困難なレベルのTRUを問題にしなければならないかと言えば、我々の測定の感度と人体影響の問題は別の次元のことであるし、海洋を理解する上でかけがえのないトレーサだからである。

3.1 海洋での^{239, 240}Pu, ²⁴¹Amの分布と挙動

前おきが長くなってしまったかも知れないが、ここで本論に入ることにする。

外洋海水中の^{239, 240}Puの挙動を解明するための調査研究は当初、表層海水中のその濃度の水平分布に関するものが多かった。広い地域に亘っての測定結果をまとめたものの例として、1968~73年の太平洋についてのもの²¹⁾、1976~82年の西部北太平洋とその近隣海域についてのもの(図-1)²²⁾、1968~83年のとりまとめ²³⁾などが挙げられる。その他にも多数の報告が各海域についてなされている。紙面の都合で、海域別、年次別に整理したものをここに示すことはできないが大すじは次のとおりである。1960~70年代前半においては、北半球の中緯度帯で^{239, 240}Puの表層海水濃度

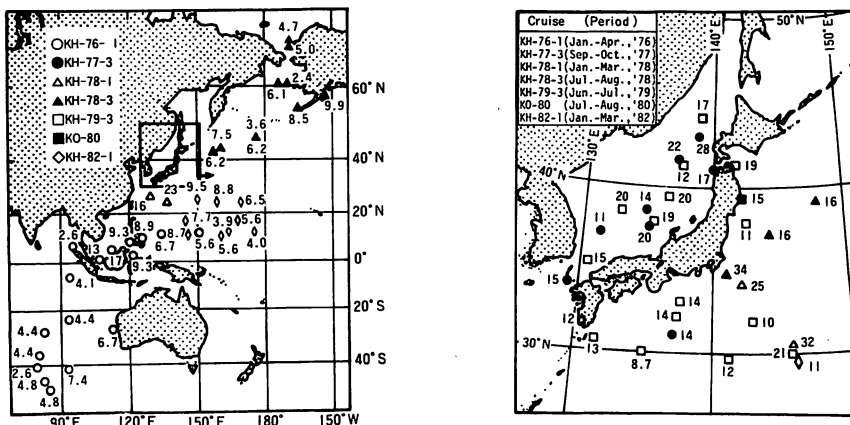


図-1 表層海水中の^{239, 240}Pu濃度(単位: $\mu\text{Bq/l}$)²²⁾

度は高かったが、その後水平方向の均一化が徐々に進むとともに濃度も低下し、最近では海域差が小さくなってきている。表層海水中の^{239, 240}Pu濃度の経年的低下を示す筆者らのデータを図-2に示す。図-2に示すB点（放射性廃棄物海洋底処分の候補地の1つ；伊豆・小笠原海溝の東、30°N、147°E）周辺ではほぼ指数関数的減少がみられる（指数関数的でなければならない必然性はとくにない）。

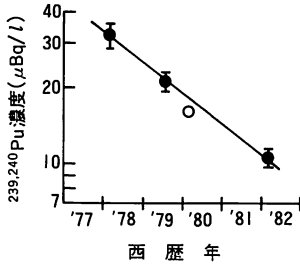


図-2 B点周辺における表層海水中の^{239, 240}Pu濃度の経年的変化。○印は杉村ら(気象研)による測定値(私信)。

外洋の表層で^{239, 240}Pu濃度の均一化と減少が進む間に表層の下ではどのような変化が進行していたのだろうか。当然湧いてくる疑問である。しかし、この問いに答えるための研究が本格化するには、数100lという大量の深層海水の採水技術の開発を待たねばならなかった。そして、1970年代にアメリカ主導で行われた大洋縦断地球化学計画(Geochemical Ocean Sections Program, 略して GEOSECS)の1973~74年の研究航海により、太平洋における^{239, 240}Puの分布の三次元的全体像の概要が他の放射性核種のそれとともにようやく把握できるようになってきたのである。その^{239, 240}Puのデータを図-3に示す²⁴⁾、GEOSECSのような大規模な観測ではないが、日本周辺海域における筆者らの深度分布観測の結果を図-4に示す²⁵⁾。ここで特筆されることは、太平洋の海面下300~800mの

ところに、北緯25度線を中心軸とするような^{239, 240}Pu濃度の高い海水の柱が東西に延びていることである。このような分布を示すに至るまでの期間のこの種のデータがまったくと言ってよいほどないこともあり、なぜこのような分布をするようになったのかの説明はまだ充分になされていない。本格的に深度分布の測定ができるようになった時には、図-3、-4の分布になっていたのである。海水の中を沈降していく粒子に^{239, 240}Puが収着して表層から深度300~800mまで輸送され、そこで可溶化するような過程に海水の流動が複合してはたらいた結果と推測されるが、他の観測事実と矛盾しない機序・過程を今後明らかにしていかなければならない。そのためにはまず、このような深度分布の三次元的パターンの経年的変化を追跡する必要がある。充分な追跡ではないが、^{239, 240}Pu濃度の極大層の深度が経年的に増しつつあるらしいことを示すデータを図-5に示す^{21) 22) 24)}。

実験室内での研究から導かれたPuの化学的性質から考えて、Puは海水中では粒子状物質に収着しやすいと予測される。したがって、海洋にPuを放出してもそれは沈降粒子に収着して比較的速やかに海水中から海底へ除去されると考えられていた。海水中においてPuは確かに粒子状物質に収着しやすく²⁶⁾、海水中の全Puの約5%が粒子収着態であることが確められている²⁷⁾。そして、粒子収着態Puの濃度は図-4、-5に示した全Pu濃度の深度分布と同様の分布を示している²⁷⁾。なお、粒子に収着し易いのに粒子収着態のものが少ない理由は、海水中の粒子状物質濃度が低いからである。海水中での物質除去において沈降粒子が重要な役割を担っていることは、^{239, 240}Pu、²⁴¹Amが¹³⁷Cs、⁵⁵Feなどの人工放射性核種とともにセジメント・トラップ(沈降粒子捕集器)に集められた沈降粒子中に検出されたことで確められている²⁸⁾。そして、海水柱(海面から海底に至る一定断面積の垂直な柱を考

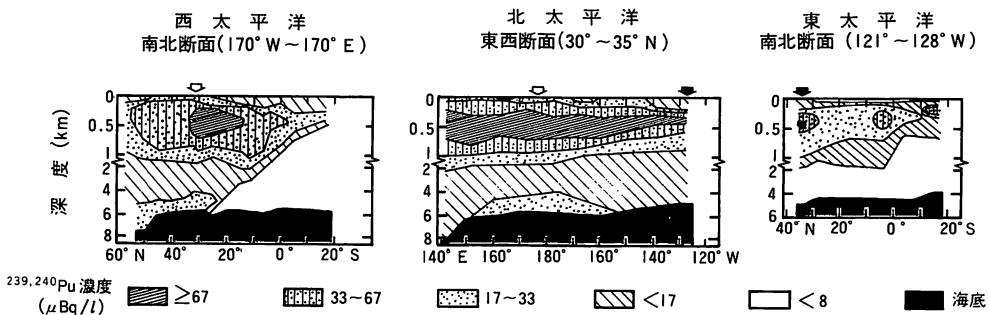
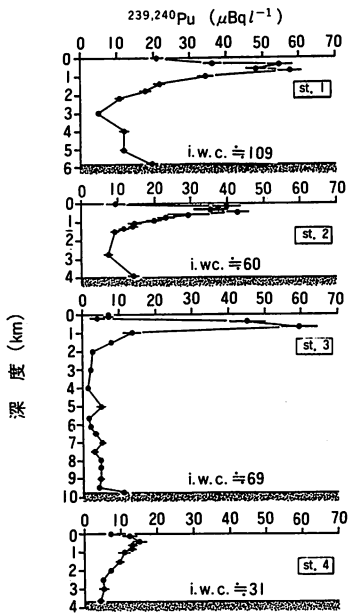


図-3 1973年~74年の太平洋における^{239, 240}Pu濃度の深度分布²⁴⁾。○印同士、➡印同士で断面が直交する。



st. 1 30° 00' N, 145° 45' E (太平洋); 1979年 7月
 st. 2 33° 29' N, 137° 42' E (太平洋); 1983年 10月
 st. 3 29° 05' N, 142° 51' E (太平洋); 1984年 8月
 st. 4 42° 49' N, 138° 06' E (日本海); 1984年 9月
 i.w.c.: 海水柱の中の蓄積量(単位: MBq/km²)

図-4 日本周辺海域における^{239,240}Pu濃度の深度分布²⁵⁾

える)中の全Pu量(例えばBq/km²単位)と沈降粒子による輸送率(Bq/km²/年)から、水深5000~6000mの海域では海水中的全Puが海底に除去され尽すのに、単純に考えても450年を要すると推算されている²⁸⁾。また、海水中の²⁴¹Am/^{239,240}Pu放射能比(約0.3)の約2倍の大きな値が沈降粒子で測定されており(これは海底堆積物の値ともほぼ一致)、Amの方がPuよりも優先的に沈降粒子により除去されていることが示されている²⁸⁾。一方、¹³⁷Csに比べれば^{239,240}Puの方が除去され易いことも示されている²⁸⁾²⁹⁾。⁹⁰Srや¹³⁷Cs

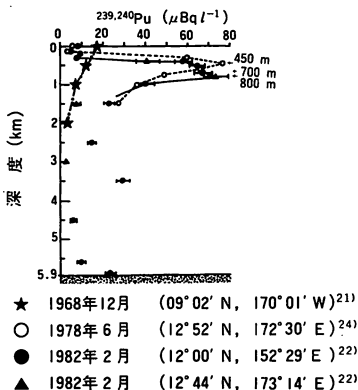


図-5 太平洋における^{239,240}Pu深度分布の経年的変化

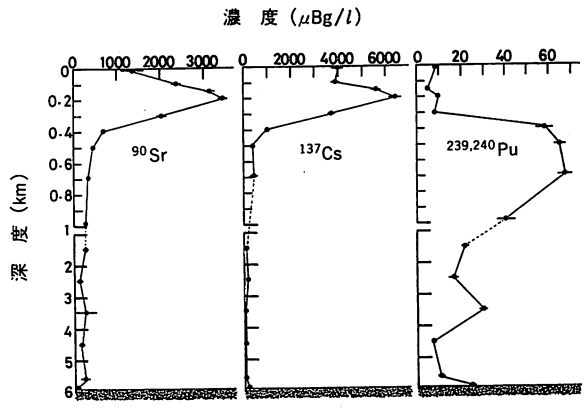


図-6 ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs²⁹⁾, ^{239,240}Pu²⁵⁾の深度分布のちがいを
 (1982年 2月; 12°00'N, 152°29'E)

に比べて^{239,240}Puの沈降が進んでいることを示す典型的なデータを図-6に示す²⁵⁾²⁹⁾。

図-3, -4, -5の^{239,240}Pu濃度の深度分布のデータを上記の諸事実と合わせてながめれば、その分布になった過程のおぼろげなイメージが浮び上ってくるだろう。なお、図-4のst. 4に示した日本海では、冬季の活ばつな海水の上下混合のために太平洋とは異なる深度分布となっている。筆者らはまた、アラスカ湾、ベーリング海でも日本海の深度分布に類似する^{239,240}Pu濃度の深度分布を確認しているが、この場合は生物起源の沈降粒子のフラックスが高いためにPuの下方への輸送が進み、500~1000m層のPu濃度ピークが鈍化したものと解釈している。

次に、海底付近での^{239,240}Pu濃度の上昇(図-3~6)に注目してみたい。図-4のst. 3は伊豆・小笠原海溝での深度分布であるが、約1万mの深海もPuで汚染されていることを示すとともに、海底直上のPu濃度上昇は水深に関係なく太平洋でみられる現象であるらしいことを示している。これは、沈降粒子によって海底まで輸送された^{239,240}Puが海底堆積物から再溶出している可能性を示唆する。この可能性は、海底堆積物も含めた海水柱の中での^{239,240}Pu沈降率(Bq/km²/年)と推定沈降期間(年)の積よりも明らかに少ない量(Bq/km²)の^{239,240}Puしか海底堆積物中に蓄積していないことでも支持される²⁸⁾。もし、この可能性が本当であれば、海水中から海底堆積物中へのPuの除去のイメージは単純ではなくなる。海面に入ったPuの一部は粒子状物質に吸着し、粒子状物質(浮遊性および沈降性)の沈降性のものによって少しずつ海底に運ばれ(もちろん途中で粒子の分解などによる可溶化と粒子状物質への再吸着が何回も繰り返される場合もある)

海底堆積物中に除去・固定されるであろうと言うのが単純なイメージである。しかし、海底堆積物中からの再溶出があれば、なかなか除去され尽さないことになる。海面下500m付近の^{239, 240}Pu濃度の極大形成においても、粒子状物質と海水の間で、海底堆積物と底層海水間で推定されるような再溶出類似の過程が考えられる。深海底にPuが固定されてしまわない限り、食物連鎖にPuが摂り込まれる可能性は残る。

一方、海底堆積物へのPuの除去は水深によって大きく左右される。実測データによれば、浅海域では海水柱（海水と海底堆積物から成るものを考える）の中のPuの90%以上は堆積物層に存在する³⁰⁾³¹⁾。外洋の深海では10%程度が堆積物層に存在し、90%程度は海水層に存在する²⁹⁾³²⁾。浅海域では堆積物の堆積速度が速く、Puの再溶出速度以上の沈積速度となっているのであろう。

なお、深海底と言えば暗黒の静かな世界というイメージが過去には強かった。しかし、深海についての研究が進むことによりそのイメージは変わりつつある。深海底であっても、そこに棲む様々な生物による有機物の分解³¹⁾や海底堆積物のかく乱が明らかになりつつあり³²⁾、堆積物中のPuの移動、再溶出への影響は無視し得なくなっている。

²⁴¹Amについての研究は少いのでほとんど言及しなかったが、海水中の深度分布パターンは^{239, 240}Puとほぼ同じものが報告されている³³⁾。海底への堆積挙動については、Puと連わない場合¹²⁾、Puよりも優先的に沈積する場合²⁸⁾が報告されている。粒子状物質への収着挙動、海底への堆積挙動などにおけるPuとAmの違いに焦点を合わせた研究を軸にした海洋Amの研究の進展が望まれる。

海洋でのTRUの今後の研究において、既に述べたことの他に、物質収支（降下量～蓄積量）およびその経年的変化を重視することの必要性が気付かれはじめていく。

3.2 超ウラン元素の分布と挙動を支配する因子

海洋に入ったTRUは、みかけの物理的形態から分類すれば、溶存態、浮遊粒子収着態、沈降粒子収着態がある。溶存態、浮遊粒子収着態のもの挙動および挙動の結果としての分布を支配するのは海水の流動と溶存態のもの拡散である。海水の流動（とくに中層～深層）についての研究は今後の課題であり、物理的計測と溶存物質をトレーサーとする化学的計測が開始されつつある。一方、沈降粒子収着態のものは海水流

動の影響を受けながらも海底に向かって沈降する。溶存態、浮遊粒子収着態、沈降粒子収着態の相互の間にはある種の可逆的平衡関係があるであろう。いろいろと姿を変えながら海洋での運命をたどるのである。

物理的形態を問わず生物系に摂り込まれた場合、食物連鎖系を形成する生物の動きがTRUのみかけ上の挙動として観測される場合があろう。

どのような物理的形態をとるかは、それぞれの元素固有の化学的特質と、元素が置かれる化学的環境によるところが大きい。種々の化学成分の種類と濃度、pH酸化還元条件が化学的環境の主要素で、それによってTRUの酸化状態、化学形が決り、粒子状物質・海底堆積物との反応性（収着、脱離）が決る。複数の酸化状態をとりうるNpとPuの挙動が複雑なゆえんである。

海洋TRUについてのこのような化学的研究は、実際の海洋におけるTRU濃度の低さ（観測の面からの判断）からかなり制約を受けたものになっているが、以下に研究のいくつかを紹介する。

海水中のPuの酸化状態については、まずアイリッシュ海で研究が始った²⁶⁾³⁴⁾。アイリッシュ海にはイギリスのShellfield(以前のWindscale)からのTRUの放出があり、海水中の濃度レベルが他の海域よりも高いので研究しやすかったのである。その結果によれば、全Puの約74%は低酸化状態(Ⅲ, Ⅳ価)でその90%以上は粒子吸着態、全Puの約26%の高酸化状態(Ⅴ, Ⅵ価)Puの75%以上は溶存態である。また、低酸化状態のPuの粒子状物質への分配比(粒子状物質中のPu濃度(Bq/g)/海水中のPu濃度(Bq/ml))は 2.5×10^6 と高く、高酸化状態のPuのそれ(5×10^3)と大きな差のあることが示されている。その後、太平洋でも研究され、低酸化状態のPuと高酸化状態のものがほぼ半分ずつ存在することが報告されている³⁵⁾。しかし、海底直上では高酸化状態のPuが90%程度もあり、海底直上でのPu濃度の上昇は、堆積物中からの堆積物への収着性の低い高酸化状態Puの溶出によるものとしている³⁵⁾。500~1000mのPu濃度極大層の原因は、酸化状態ではないものとされている³⁵⁾。

アイリッシュ海の海底堆積物と海水の間でのTRUの分配比の測定も行われており、Np(Ⅴ)は高酸化状態のPuと同程度の低い値を示し、Am(Ⅲ)は低酸化状態のPuと同じ高い値を示し堆積物に収着し易いことが示されている³⁶⁾。また海底堆積物からの海水によるPu、Amの溶出実験が試みられており、分配平衡に

従った溶出挙動を示すことから、収着～溶出は可逆的であることも示されている³⁶⁾。

海中での TRU の溶存性に関係する重要な因子としては、可溶性錯体を形成する配位子（無機および有機）との錯形成があるが、研究の困難さからあまり研究は進んでいない。

4. 今後の研究の展開について

海洋での TRU の研究は、大気圏内核実験に由来する汚染レベルの把握からスタートし、TRU の分布の測定、その分布はどのような挙動によるものか、挙動を支配する要因は何かを明らかにする方向で進められてきた。そこにおいて、個々の研究グループのそれぞれの問題意識に沿った研究により、海洋での TRU に関する理解が深められてきた。一方、大型の組織的な計画により研究が画期的に進展したことも見逃がせない。とくに1970年代の GEOSECS の成功は特筆に値する。GEOSECS 以後は各国でいくつかの中型の計画研究が行われてきている。我が国の場合、1981～83年に、文部省特定研究「海洋の動的構造」が行われ、1984年にその数々の成果をとりまとめて終了した。そして1987年からは新たに文部省重点領域研究「深層海水循環過程の解明」が3年計画で始った。さらに、GEOSECS 以後の各国の海洋研究は、1990年代には海洋大循環実験計画(World Ocean Circulation Experiment, 略して WOCE)、全地球海洋フラックス研究(Joint Global Ocean Flux Study, 略して JGOFS)という国際的な大型研究へと引き継がれようとしている。WOCE は海洋の物理的流動に焦点を合わせており、JGOFS は海洋の物質循環の物理的、化学的、生物的過程の解明を意図したものである。WOCE と JGOFS は全く別のものでなく、効果的な研究を目指した計画のつめが続けられている。

TRU の海洋での分布は現在まだ過渡的な状態であり、非常にゆっくりとではあるが確実に変化しつつある。それは将来どうなるのか、海洋における物質循環の一部の問題としてではなく、TRU は総合的な視野の中で国際的に研究が続けられるはずである。

5. むすび

現存のデータによれば、一部の特殊区域を除いて、海洋も含めた地球環境および食品などの TRU による汚染レベルは、人間の健康に影響が及ぶものよりも低いと考えられている。しかし、TRU は環境に出現し

てから50年足らずであり、TRU の寿命に匹敵するような超長期の影響の予測はまだできていない。また、TRU の海洋科学は新しい海洋像の解明にも役立つ。

人類のエネルギー源としての原子力発電に密接に関係する TRU について、海洋での分布と挙動を中心にその周辺のことながらも含めて概説した。

参考文献

- 1) McMillan, E. M., Abelson, P. H., *Phys. Rev.*, Vol. 57 (1940), 1185～1186.
- 2) Seaborg, G. T., Perlman, M. L., *J. Amer. Chem. Soc.*, Vol. 70(1948), 1571～1573.
- 3) Peppard, D. F. et al., *ibid.*, Vol. 74 (1952), 6081～6084.
- 4) Hoffman, D. C. et al., *Nature*, Vol. 234 (1971), 132～134.
- 5) Carter, M. W., Moghissi, A. A., *Health Phys.*, Vol. 33 (1977), 55～71.
- 6) Hardy, E. P. et al., *Nature*, Vol. 241 (1973), 444～445.
- 7) Lederer, C. M., Shirley, V. S. ed.; *Table of Isotopes*, 7th ed. (1978), John Wiley & Sons, Inc.
- 8) Efurud, D. W. et al., *Health Phys.*, Vol. 47(1984), 786～787.
- 9) Perkins, R. W., Thomas, C. W.; *Transuranic Elements in the Environment*, (Hanson, W. C. ed.), DOE/TIC 22800 (1980), U. S. Department of Energy, NTIS, Springfield, VA.
- 10) Harley, J. H., *J. Radiat. Res.*, Vol. 21(1980), 83～104.
- 11) Krey, P. W. et al.; *Transuranium Nuclides in the Environment*, IAEA, Vienna, STI/PUB/410 (1976), 671～678.
- 12) Koide, M. et al., *Earth Planet. Sci. Lett.*, Vol. 48 (1980), 250～256.
- 13) Yamamoto, M. et al., *J. Radiat. Res.*, Vol. 24(1983), 237～249.
- 14) Bowen, V. T., Livingston, H. D., *Nature*, Vol. 256(1975), 482.
- 15) Holm, E., Persson, B. R. R., *ibid.*, Vol. 273 (1978), 289～290.
- 16) Choppin, G. R., Rydberg, J.; *Nuclear Chemistry - Theory and Applications* (1980), Pergamon Press, pp. 456～460.
- 17) Katz, J. J. et al.; *The Chemistry of the Actinide Elements*, 2nd ed. (Katz, J. J. et al. ed.), Vol. 2 (1986), Chapman and Hall Ltd., pp. 1178～1187.
- 18) Pillai, K. C. et al., *Nature*, Vol. 203 (1964), 568～571.
- 19) 阪上正信他;放射能測定法シリーズ12「プルトニウム分析法」(1979), 科学技術庁.
- 20) 理科年表(東京天文台編), 丸善.
- 21) Miyake, Y., Sugimura, Y.; *Transuranium Nuclides in the Environment*, IAEA, Vienna, STI/PUB/410

- (1976), 91~105.
- 22) Nakanishi, T. et al., Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res., Vol. 223(1984), 239~242.
- 23) 長屋 裕, 阪上正信; 海洋の動態, 東京大学出版会(1985), 46~51.
- 24) Bowen, V. T. et al., Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 49(1980), 411~434.
- 25) 中西 孝; 放出放射性核種の物理・化学的形態と形態別影響評価に関する研究(昭和60年度 文部省科学研究費総合研究(A), 研究代表者 池田長生, 研究成果報告書)(1986), 32~38.
- 26) Nelson, D. M., Lovett, M. B., Nature, Vol. 276(1978), 599~601.
- 27) Krishnaswami, S. et al., Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 32(1976), 420~429.
- 28) Livingston, H. D., Anderson. R. F., Nature, Vol. 303(1983), 228~231.
- 29) Nagaya, Y., Nakamura, K., J. Oceanogr. Soc. Japan, Vol. 40(1984), 416~424.
- 30) Livingston, H. D., Bowen, V. T., Nature, Vol. 269(1977), 586~588.
- 31) Sholkovitz, E. R., Earth-Science Rev., Vol. 19(1983), 95~161.
- 32) Yang, H. et al., Geochem. J., Vol. 20(1986), 29~40.
- 33) Mann, D. R. et al., Nucl. Instrum. Methods in Phys. Res., Vol. 223(1984), 235~238.
- 34) Lovett, M. B., Nelson, D. M.; Techniques for Identifying Transuranic Speciation in Aquatic Environments, IAEA, Vienna(1981), 27~35.
- 35) Nelson, D. M. et al., Earth Planet. Sci. Lett., Vol. 68(1984), 422~430.
- 36) Harvey, B. R.; Techniques for Identifying Transuranic Speciation in Aquatic Environments, IAEA, Vienna(1981), 247~256.

共催行事

第26回原子力総合シンポジウム開催要領

- 〔共 催〕 日本原子力学会, エネルギー・資源研究会ほか
- 〔日 時〕 昭和63年2月22日(月), 23日(火)
- 〔会 場〕 国立教育会館(千代田区霞が関3-2-3, TEL 03-580-1251)
- 〔開催主旨〕 原子力関連学協会の共同主催により, 広範な原子力研究に関連した専門を異にする分野において, 研究者-技術者間および産業界-学界間の, 情報および知識の交流・普及を図る。
- 〔内 容〕 主調テーマは「1. 原子力技術の高度化; 2. 核融合研究の進展」である。そのほか共催学協会の提案を基にした, 特別講演2件・一般テーマ講演10件がある。
- 〔予稿集〕 (B5判オフセット印刷)を1月下旬に作製し, 実費頒布する。(予価1,500円, 〒250円)
- 〔参加費〕 一般1,500円, 学生1,000円(当日受付)
- 運営委員会事務局
 (〒105) 東京都港区新橋1-1-13(東新ビル6階)
 (社) 日本原子力学会気付(03-508-1261)