

総説

海水中の人工放射性核種

本 多 照 幸

Anthropogenic Radionuclides in Sea Water

Teruyuki HONDA

日本海水学会誌 第 53 卷第 5 号 (通巻 303 号)

平成 11 年 10 月

Bulletin of the Society of Sea Water Science, Japan

Vol. 53, No. 5 (303), October 1999

海水中の人工放射性核種

本 多 照 幸*

Anthropogenic Radionuclides in Sea Water

Teruyuki HONDA*

1. はじめに

今から少なくとも 38 億年前には、海は存在していた。地球の 45 億年ほどの歴史の中であって、海は地球と深く重い関わりを持ってきた。

現在の海は、表面積約 $3.62 \times 10^8 \text{ km}^2$ 、体積約 $1.35 \times 10^9 \text{ km}^3$ 、平均水深約 3729 m であり、地球表面の 70% 以上を占めている¹⁾。

海を含めて地球上に存在する放射性核種は、天然放射性核種と人工放射性核種の 2 つに大別できる。天然放射性核種には、長寿命一次放射性核種 (^{40}K , ^{87}Rb , ^{232}Th , ^{235}U , ^{238}U など) と二次放射性核種 (^{231}Pa , ^{226}Ra , ^{222}Rn , ^{210}Pb , ^{210}Po などウラン系列やアクチニウム系列などの核種群) さらに宇宙線生成核種 (^3H , ^{14}C など) が含まれる。一方、人工放射性核種は、1945-80 年の大気圏内核実験や核燃料再処理工場、それにチェルノブイリや人工衛星の大気圏内再突入の事故などに起源をおき、核分裂生成核種の ^{137}Cs や ^{90}Sr 、超ウラン核種の Pu 同位体や ^{241}Am 、さらに核融合 (水爆) 核種の ^3H などが含まれる。

放射性核種の海洋における調査・研究活動は、1950 年代から行われてきたが、1970 年代の GE-OSECS (Geochemical Ocean Section Program) は、世界の海洋の動態を 3 次元的に初めて明らかにした画期的なものだった。その成果は、気候変化を予測するための海洋モデルの開発を目的とした WOCE (World Ocean Circulation Experiment, 1984-95) や地球規模の海洋フラックス研究を目的とした JGOFS (Joint Global Ocean Flux Study, 1990-) などに引き継がれ、今日大きな発展を見せつつある。

また、1993 年には、ロシア大統領府が白書²⁾を公

表し、バレンツ海の北方海域の他、日本海やオホーツク海、それにカムチャッカ沖を含む極東海域で 1966-1992 年の間に、液体 456.4 TBq, 固体 252.1 TBq, 合計 708.5 TBq の放射性廃棄物を投棄したことを明らかにした。これを受けて、日本・韓国・ロシアそれに国際原子力機関 (International Atomic Energy Agency, IAEA) の共同調査が組織され、第一次 (1994) と第二次 (1995) の 2 回に亘って投棄海域 (日本、韓国が過去に投棄した海域を含む) が詳細に調べられ、報告書³⁻⁵⁾も公表されている。

IAEA 海洋環境研究所 (IAEA Marine Environment Laboratory, IAEA-MEL) は、MARAD 計画 (Research on Worldwide Marine Radioactivity)⁶⁾ を 1995 年にスタートさせ (筆者もその Experts' meeting に参加した)、その一環として、1997 年には Pacific Ocean Expedition⁷⁾ を実施し、現在データを取りまとめ中である。

筆者は、1995-96 年の間、IAEA-MEL にて放射性核種の分析や日本縁海を含む西部北太平洋における人工放射性核種のデータ・ベースを作成してきた⁸⁻¹¹⁾。本稿では、その後まとめられたデータ・ベース¹²⁾も含め、これまで明らかにされてきた海水中の人工放射性核種、就中特に重要な ^{137}Cs , ^{90}Sr , Pu 同位体 ($^{239+240}\text{Pu}$), ^{241}Am , ^3H を取り上げ、それらの分布と挙動について概説する。

なお、本稿で使用する単位は、引用文献に記載されている単位をそのまま用いるので、不統一が生じることをお断りしておく。

2. データ・ベースの概要

筆者らが作成したデータ・ベースで採用したデータ

* 武蔵工業大学原子力研究所 (〒215-0013 川崎市麻生区王禅寺 971)
Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

は、次の4つのデータ・ソースを出所としている。

- 1) 財) 日本分析センターで測定され、科学技術庁・放射線医学総合研究所で編纂、公表されているデータ¹³⁾,
- 2) 海上保安庁によって測定、公表されているデータ¹⁴⁾,
- 3) 水産庁によって測定、公表されているデータ¹⁵⁾,
- 4) 他の機関によって測定されたり、文献調査から得られたデータ。

財) 日本分析センターでは、科学技術庁の委託を受け、1977年から環境放射線データ管理事業を行っており、その一環としてデータ・ベースシステムを構築してきた¹⁶⁾。そのデータ・ベースには、1957年以降にわが国で実施された環境放射能モニタリング結果のほとんど全てが登録されており、1995年4月現在データ件数は139万件にのぼる。

筆者らは、上記1)–3)のデータを含む日本分析センターのデータ・ベースを基に、4)のデータも独自に加えて我々の目的にあった信頼できるデータを抽出し、英語に翻訳して新たなデータ・ベースを作成した。このデータ・ベースは、IAEA-MELのGLOMARD (Global Marine Radioactivity Database) にインプットされており、ドキュメントも近日中に公表される予定である。なお、文献調査からは、Nagaya *et al.* (1981¹⁷⁾, 1984¹⁸⁾, 1987¹⁹⁾, Miyake *et al.* (1988²⁰⁾, Nakanishi *et al.* (1990²¹⁾, 1995²²⁾, Hirose *et al.* (1992²³⁾, Aoyama *et al.* (1995²⁴⁾) の8編の論文に記載されているデータを採用した。

Table 1 に、IAEA-MEL のデータ・ベースにインプットされている (1997年1月現在)、日本縁海を含む西部北太平洋に関するデータ数を要約する。

3. 表層水中の人工放射性核種

3.1 セシウム-137 (¹³⁷Cs)

¹³⁷Cs (β^- , γ : 半減期 30.2 年) は、全地球上に広く分布する人工放射性核種のうち、最も重要な海洋放射能の汚染源であると同時に、海水の混合や拡散過程の解明にとってもトレーサーとして重要な役割を担っている。

IAEA では、海洋放射能に由来する放射線学的影響評価を行うに当たり、国連食糧農業委員会 (FAO) 漁業域ごとに ¹³⁷Cs の表層水中放射能濃度を 1990 年 1 月 1 日を基準に見積もった²⁵⁾。その結果を **Fig. 1** に示す。算定には GEOSECS データ²⁶⁾ や気象庁・気

Table 1 Number of data which have been input into the IAEA-MEL database for the western North Pacific Ocean and its marginal seas around Japan (as of January, 1997)⁸⁻¹¹⁾

Sample name	NIRS ⁽¹⁾	MSA ⁽²⁾	FA ⁽³⁾	Papers ⁽⁴⁾	Total
Seawater	1785	3677	20	1393	6875
Sediment	1408	1727	2973	140	6248
Biota	1966	—	1862	—	3828
Total	5159	5404	4855	1533	16951

(1) National Institute of Radiological Sciences¹³⁾

(2) Maritime Safety Agency, Ministry of Transport¹⁴⁾

(3) Fisheries Agency, Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries¹⁵⁾

(4) Eight papers published by Y. Nagaya *et al.* (1981¹⁷⁾, 1984¹⁸⁾, 1987¹⁹⁾, Y. Miyake *et al.* (1988²⁰⁾, T. Nakanishi *et al.* (1990²¹⁾, 1995²²⁾, K. Hirose *et al.* (1992²³⁾) and M. Aoyama *et al.* (1995²⁴⁾)

象研究所のデータ²⁰⁾などが使われた。なお、データの不確かさは $\pm 25\%$ としている。

Fig. 1 より、表層水中の ¹³⁷Cs の濃度は一般に南半球より北半球の方が大であることが分かる。これは、大気圏内核実験の多くが北半球で行われたことに起因するが (全地球規模の放射性降下物-グローバル・フォールアウト-で全体の 3/4)、北東大西洋 (主にアイリッシュ海、バルティック海) や地中海で各々 21 Bq/m³, 13 Bq/m³ と、他の海域に比べて 1 桁高い値を示しているのは、これらの海域における核燃料再処理工場 (英・セラフィールド (1952 年以降)、仏・ラハグ (1966 年以降) 等) からの放出やチェルノブイリ事故の影響と考えられている。それらの影響のない、北大西洋での ¹³⁷Cs 濃度の平均は、2.5 Bq/m³ (1992)²⁷⁾ と実測されている。

筆者らは、前述のように IAEA において、西部北太平洋および日本縁海における海洋試料中の放射性核種濃度についてデータ・ベースを作成した。これに基づいて、日本沿岸部表層水中の ¹³⁷Cs 濃度の経年変化を **Fig. 2** に示す^{8,9,11)}。**Fig. 2** より、1964 年以降、現在に至るまで減少が続いていることが分かるが、特に 1975 年以降は急激に減少している。これは、大気圏内核実験の大部分が、1970 年代の前半までに行われたことを反映している。ただし、1986 年にはその前後と比べて高い値を示しており、チェルノブイリ事

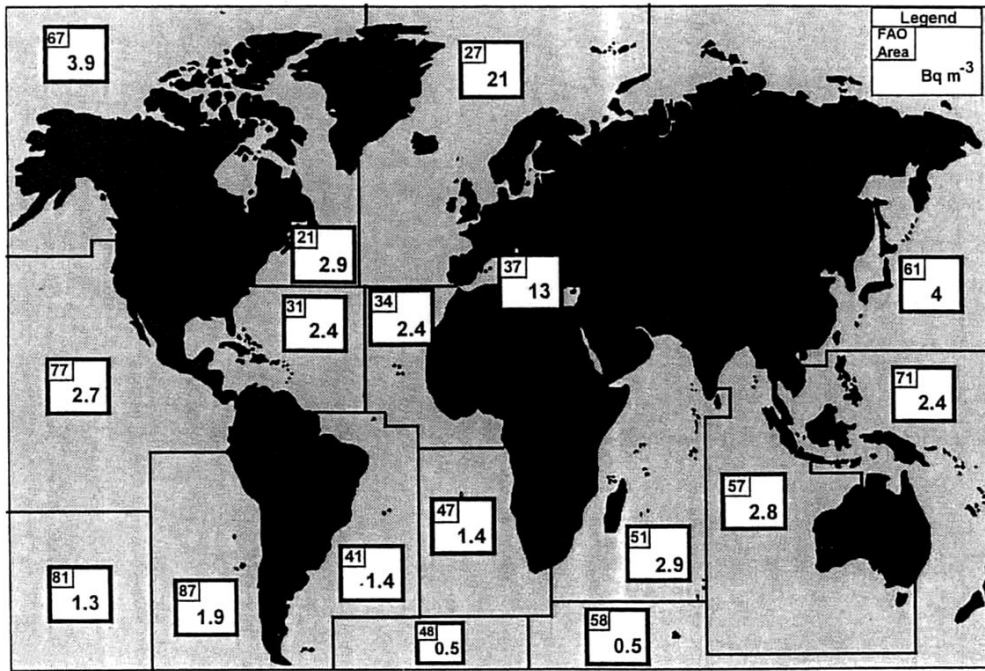


Fig. 1 Concentrations of ^{137}Cs in surface seawater for FAO fishing areas (1990, Povinec, 1994²⁵).

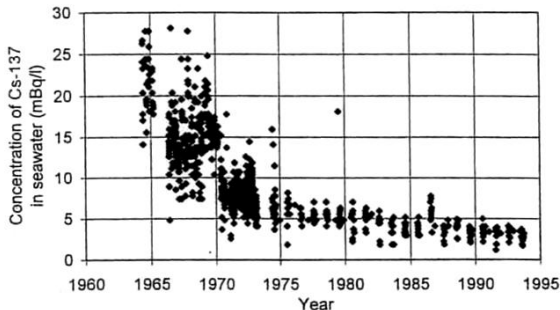


Fig. 2 Secular change of the concentration of ^{137}Cs in seawater in coastal areas of Japan (Honda *et al.*^{8,9,11}).

故の影響が明瞭に現れている。なお、大気圏内核実験により 20°N – 50°N の間に降下した ^{137}Cs のフォールアウトは 2.8 – 5.2 kBq/m^2 (UNSCEAR, 1993)²⁸、日本周辺におけるチェルノブイリ事故による同降下量は 0.18 kBq/m^2 (UNSCEAR, 1988)²⁹ と見積もられている。しかし、1987年にはその影響がほとんど見られず、表層付近での混合、拡散が急速に進んだことを表している。近年では、 2 – 4 mBq/l の範囲にある。

日本緑海を含む西部北太平洋における表層水中 ^{137}Cs 濃度の分布^{8,9,11}) を、4年ごとに Fig. 3(a) (1982–85), Fig. 3(b) (1986–89), Fig. 3(c) (1990–

93) に示す。Fig. 3(a), 3(b), 3(c)より、どの期間においても 2.5 – 5.0 mBq/l (全データの 57 – 88%) に中心があり、年々減少傾向にあることが分かる。この値は前述の、IAEAがFAO漁業域(北太平洋)で算定した 4 Bq/m^3 とよく一致している。しかし、 7.5 mBq/l 以上の高濃度を示す割合は、1982–85年で 3% 、1986–89年で 6% 、1990–93年で 1% と、1986–89年で最も高い割合を示しており、チェルノブイリ事故の影響を表しているものと思われる。1990年以降はその影響も消えつつあるが、日本海ではわずかに残っている可能性がある。

一方、ウラジオストック沖を中心とした日本海において、1994年に実施された第1次日本・韓国・ロシア・IAEA共同調査から、 ^{137}Cs は 2.8 – 3.6 mBq/kg の濃度だったことが報告されている³⁾。この値は、Fig. 3(c) (1990–93) の沿岸部を除いた日本海のみ濃度範囲、 2.5 – 5.0 mBq/l (全データ数の 87%) と同レベルにあることが確認できる。

また、オホーツク海、太平洋近海を含む第2次日本・韓国・ロシア・IAEA極東海域共同調査(1995)からは、 ^{137}Cs の表層水中濃度は 1.7 – 3.2 mBq/kg の値が報告され⁵⁾、第1次共同調査(日本海)の値よりやや低いものの、ほぼ同レベルと見ることが出来る。

3.2 ストロンチウム-90 (^{90}Sr)

^{90}Sr (β^- : 半減期 29.0 年) は, ^{137}Cs と似て海水中で溶存性が高く, 同じような挙動を示す. 事実, 北東大西洋表層水中における ^{90}Sr と ^{137}Cs の半減期は共に約 20 年と観測された²⁷⁾.

また, 同海域における ^{90}Sr の平均濃度は測定の結果, 1.6 Bq/m^3 (1992) と報告されている²⁷⁾. しかしながら, イギリス海峡における表層水中 ^{90}Sr の濃度は, 1990 年 11 月の時点で最高 30.7 Bq/m^3 を示した³⁰⁾. これは仏・ラ・ハーグ再処理工場から放出されたものの影響と考えられている.

日本沿岸部表層水中における ^{90}Sr の経年変化^{8,9,11)} は, ^{137}Cs と同様, 1964 年から 1974 年までは急激に減少し, その後現在に至るまでは緩やかな減少となっている. 近年においては, $1\text{--}3 \text{ mBq/l}$ の範囲にある.

日本緑海を含む西部北太平洋における表層水中 ^{90}Sr の濃度は, 筆者らのデータ・ベースによれば, $2.0\text{--}4.0 \text{ mBq/l}$ (1982 年以降の全データ数の約 70%) の範囲内にあり年々減少を続けている. 1982-89 年の間に, 東海沖で 6.0 mBq/l の ^{90}Sr を検出したが, 近年では 4 mBq/l を超える濃度はほとんど見出されていない. また, ^{137}Cs ではチェルノブイリ事故の影響で, 一時的に高い値を示したが, ^{90}Sr ではその影響は見られなかった. これは事故による ^{90}Sr 降下量が少なく, 無視し得るレベルであったためである (UNSCEAR, 1988).

第 1 次日本・韓国・ロシア・IAEA 共同調査 (1994) では, 日本海における表層水中 ^{90}Sr の濃度は $1.6\text{--}2.0 \text{ mBq/kg}$ の範囲にあり, データ・ベースの $0.6\text{--}4.1 \text{ mBq/l}$ (1990-93) と同レベルにあることが確認できる.

なお, 第 2 次共同調査 (1995) からは, オホーツク海, 太平洋近海等の極東海域表層水において $1.1\text{--}2.0 \text{ mBq/kg}$ の ^{90}Sr が報告され, 日本海や沿岸部と同様の結果を得た.

3.3 プルトニウム-239+240 ($^{239+240}\text{Pu}$)

プルトニウムは, 地球環境中に存在する超ウラン元素 (Transuranic elements, TRU) の中で最も負荷量の多い元素である. その起源は, 1950-60 年代を中心とした大気圏内核実験, チェルノブイリ事故などの事故, 核燃料再処理工場からの放出などであるが, 中でも核実験 (総出力 325 Mt 以上) による寄与が大部分を占めている. プルトニウム同位体のうちでは, ^{239}Pu (α : 半減期 24100 年) と ^{240}Pu (α : 同 6520 年) が比較的半減期が長く, 従って影響が大きく, 両者の

和 ($^{239+240}\text{Pu}$) で約 $1.5 \times 10^{16} \text{ Bq}$ ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} \approx 0.7$) が一般環境中に存在しているものと見積もられている^{31,32)}. なお, $^{239+240}\text{Pu}$ は, ^{239}Pu と ^{240}Pu の α 線スペクトル上のエネルギーが極めて近く不可分なため, 両者の和として表示されている.

後述するように, プルトニウムは粒子状物質への吸着性が強く, 興味ある深度分布を示すが, 海水中への溶存態としては Pu(VI) が, 粒子状物質への吸着態としては Pu(IV) が各々支配的であるとされている³³⁾.

1960 年代における北太平洋と北大西洋の表層水中 $^{239+240}\text{Pu}$ の放射能濃度³⁴⁾ を比べると, 北太平洋東部海域で $20\text{--}30 (10^{-4} \text{ pCi/l, 1964})$ とやや高い値を示したが, その他の海域ではほぼ $3\text{--}18 (10^{-4} \text{ pCi/l, 1963-69})$ の範囲内にあり, 大きな差異はなかった. ただ南大西洋では $3\text{--}5 (10^{-4} \text{ pCi/l, 1968})$ と, 北半球に比べて低い値であり, 他の人工放射性核種と同様の傾向を示した (なお, $10^{-4} \text{ pCi} = 3.7 \mu\text{Bq}$).

1968-73 年における南・北太平洋表層水中 $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度²⁰⁾ を Fig. 4 に示す. Fig. 4 より, 北太平洋では $2.2\text{--}9.4 (10^{-4} \text{ pCi/l})$, 南太平洋では $1.3\text{--}3.4 (10^{-4} \text{ pCi/l})$ の値を示し, 1960 年代までのデータと比べ減少傾向にあったことを指示している.

1976-82 年になると, Fig. 5 に示すように日本近海を除く北太平洋で $1.4\text{--}17 \mu\text{Bq/l}$, インド洋から南大洋にかけて $2.6\text{--}7.4 \mu\text{Bq/l}$ と, 1970 年前後からさらに減少傾向を示している³⁵⁾. また, 日本近海では, $8.7\text{--}34 \mu\text{Bq/l}$ と他の海域に比べて高い値となっており, 注目に値する.

日本近海における表層水中 $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度を, 1982-93 年の間を 3 等分して筆者らのデータ・ベースより抽出してみると, データ数が少なくばらつきがあるもののどの期間もほぼ $2.5\text{--}10.0 \mu\text{Bq/l}$ (全データ数の 71-100%) の範囲にあり^{8,9,11)}, 1980 年前後よりさらに減少する傾向を示した. その様子を, 1990-93 年について Fig. 6 に記載する¹¹⁾. Fig. 6 は日本海のデータが中心だが, $12.5 \mu\text{Bq/l}$ 以上の高い値は, 全データ中 3 データのみとなっている.

第 1 次日本・韓国・ロシア・IAEA 共同調査 (1994) では, $8\text{--}25 \mu\text{Bq/kg}$ と報告され, Fig. 6 の日本海側のみの値 $3.2\text{--}15 \mu\text{Bq/l}$ と比べてやや高いもののほぼ同レベルであった. また, 他のデータ (1993)³⁶⁾ でも日本海で $7.4 \pm 0.3, 9.5 \pm 1.1 \mu\text{Bq/l}$ の値が, 第 2 次共同調査 (1995) で (オホーツク海や太平洋近海が中心だが) $1.9\text{--}16 \mu\text{Bq/kg}$ の値が報告され, 何れも近年において同レベルの範囲にあることが

確認できる。

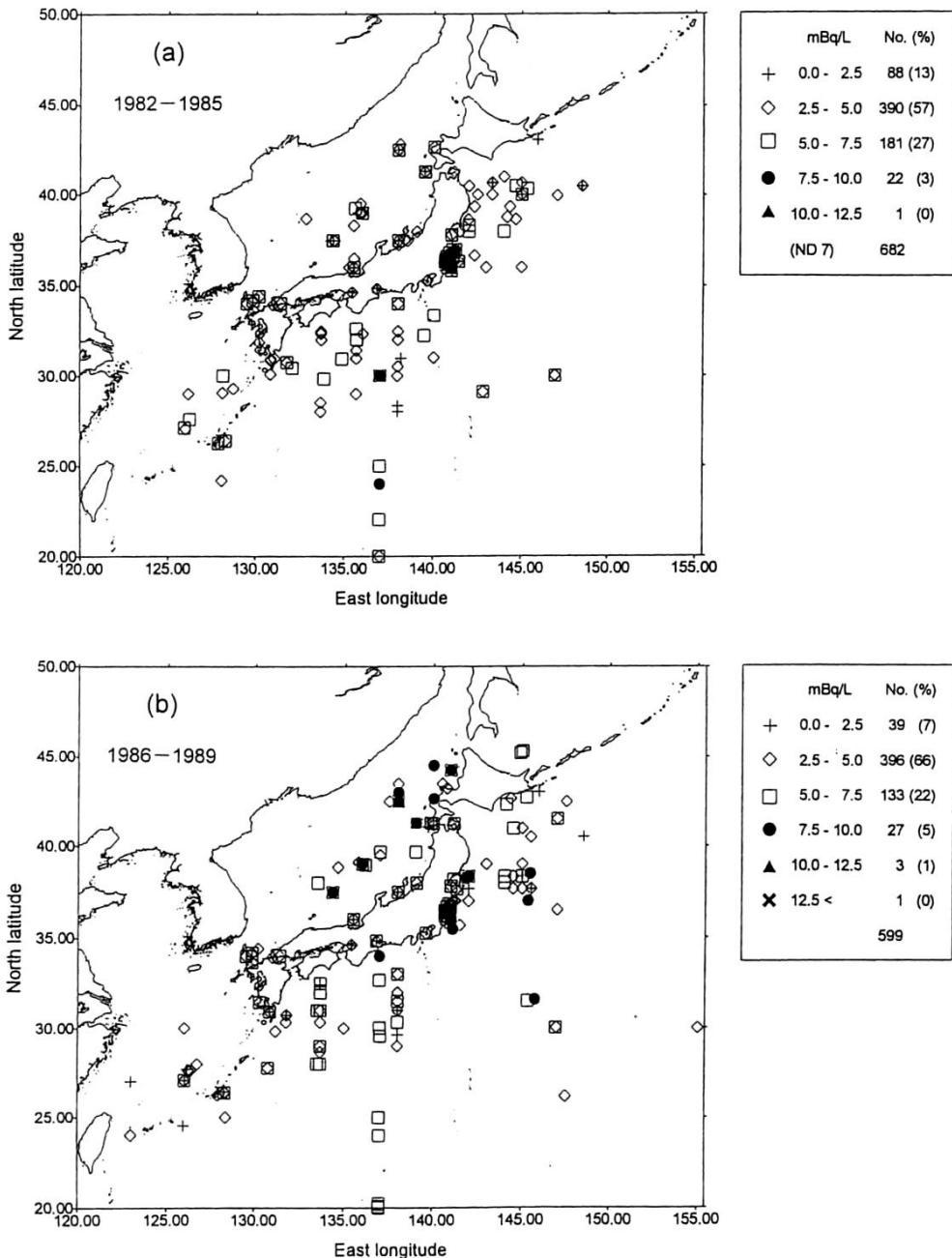
3.4 アメリシウム—241 (²⁴¹Am)

²⁴¹Am (α: 半減期 433 年) は, ²⁴¹Pu (β⁻: 同 14.4 年) の崩壊に伴って生成する。従って, ²⁴¹Am/²⁴¹Pu 比は, ²⁴¹Pu が存在し始めてから約 100 年後に最大値に達することになる。仮にプルトニウムが, 1961-62 年の米ソの核実験により大部分放出されたとするならば, 2060 年代に最大値に達することになり, 存在量全体としては今も増加し続けていることになる。しかも, 半減期が 433 年と長いこともあり, 重

要な TRU の一つと言わなければならない。

²⁴¹Am は, グローバル・フォールアウト中での ²⁴¹Am/²³⁹⁺²⁴⁰Pu 比が現時点で 0.3 程度と見積もられており^{37,38)}, プルトニウム同位体よりさらに少量のため, 分析データが出始めたのは 1970 年代になってからである。

1977-78 年において, 北太平洋から南大洋にかけて得られた表層水中 ²⁴¹Am の濃度²⁰⁾は, 北太平洋で 0.1-1.1 (10⁻⁴ pCi/l) と他の海域の 0.2-0.5 (10⁻⁴ pCi/l) より高い値を示すものがあり, 海域差がある



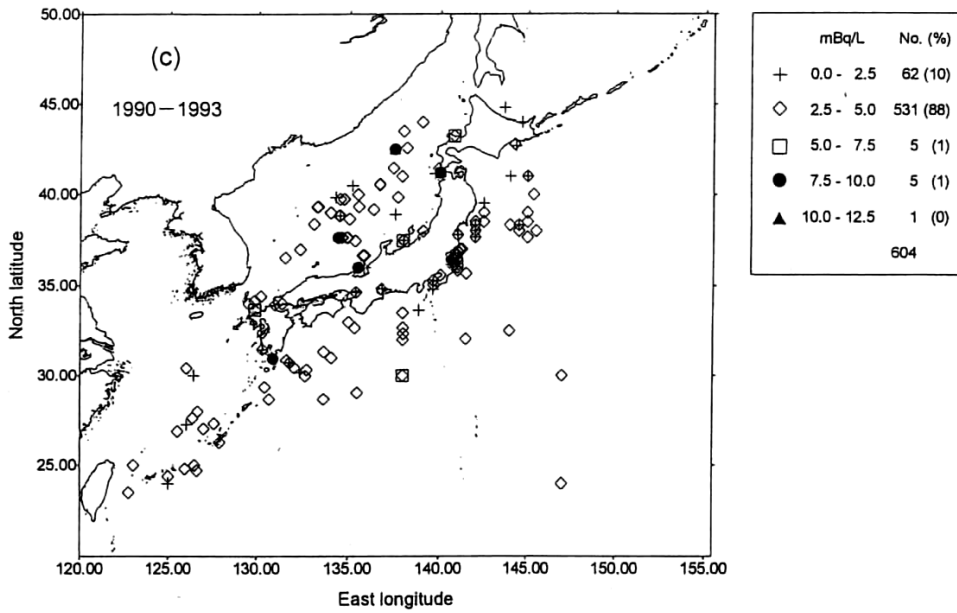


Fig. 3 Distribution of the ^{137}Cs concentrations in surface seawater collected around Japan (Honda *et al.*^{8,9,11}).
 (a): 1982–1985; (b): 1986–1989; (c): 1990–1993

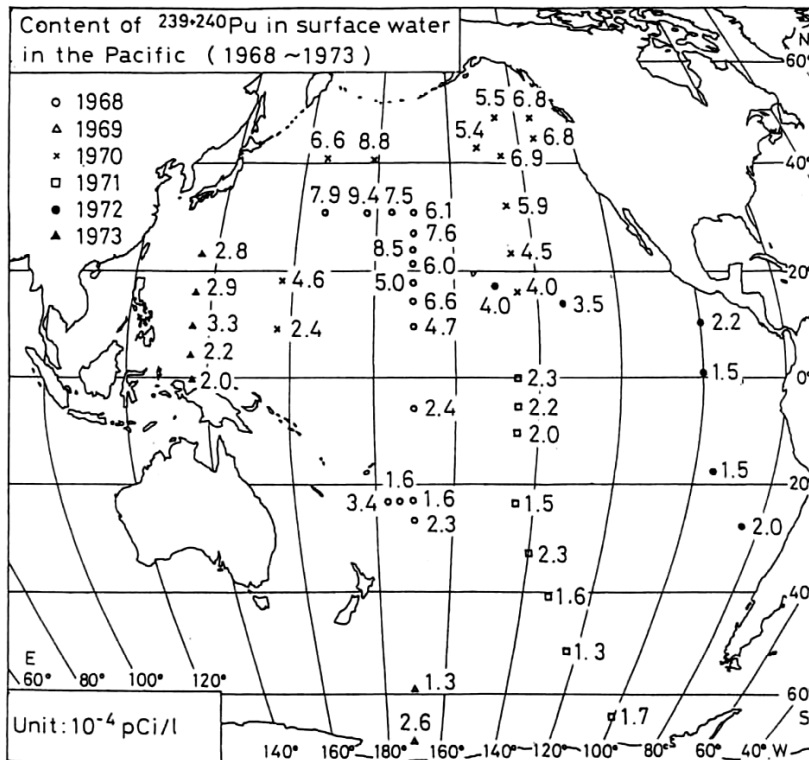


Fig. 4 Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ in the Pacific surface seawater (1968–1973, Miyake *et al.*, 1988²⁰).

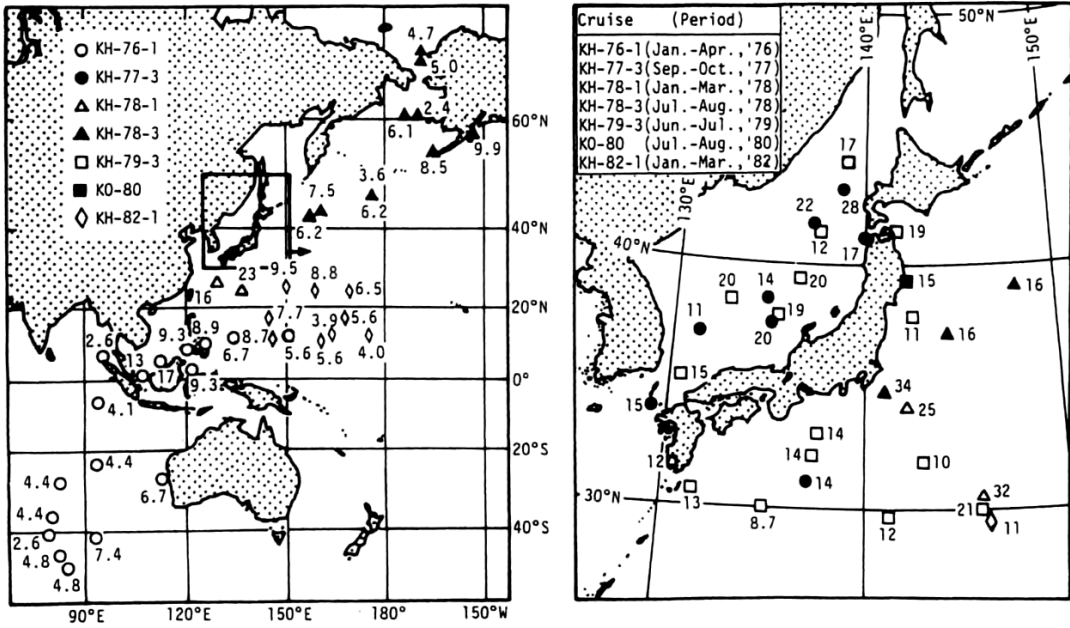


Fig. 5 Concentrations ($\mu\text{Bq/l}^{-1}$) of $^{239+240}\text{Pu}$ in surface seawater in Pacific and Southern Oceans, and marginal seas around Japan (1976-1982, Nakanishi *et al.*, 1984³⁵).

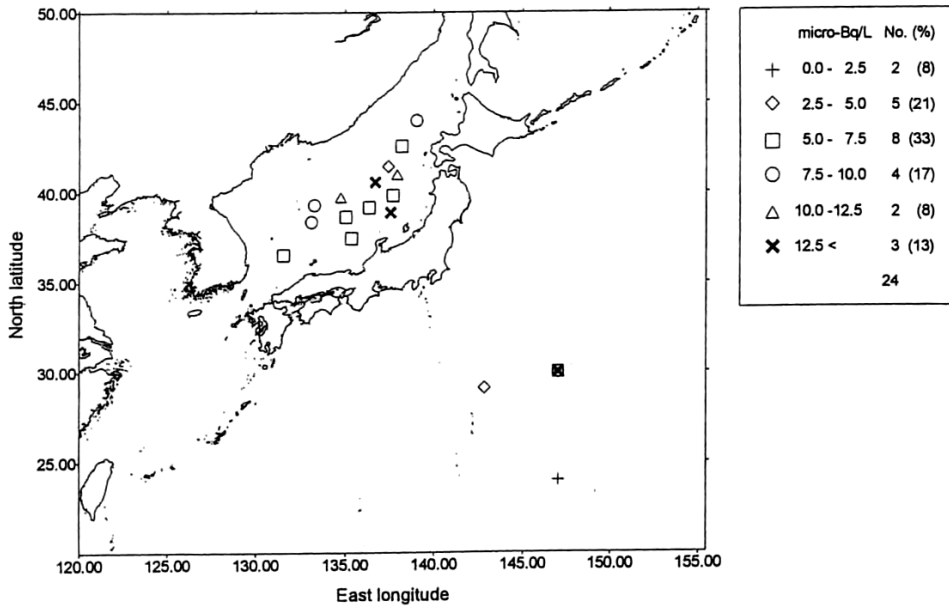


Fig. 6 Distribution of the $^{239+240}\text{Pu}$ concentrations in surface seawater collected around Japan (1990-1993, Honda *et al.*¹¹).

ことを示した。また、1983年の近畿沖からは、 $1.8 \mu\text{Bq/l}^{21}$ 、1984-89年の東海沖からは $2.8(0.52-6.3) \mu\text{Bq/l}^{39}$ の値が得られ、東海沖でやや高い値を示すものの、ほぼ同レベルで推移していることが分かる。

さらに、1988年と92年のデータ^{22,40}をFig. 7に示す。Fig. 7より、北太平洋から南大洋にかけて分布する ^{241}Am の濃度は、 $0.16-3.2 \mu\text{Bq/l}$ 程度であり、 $^{239+240}\text{Pu}$ と同様、海域差があることを指示して

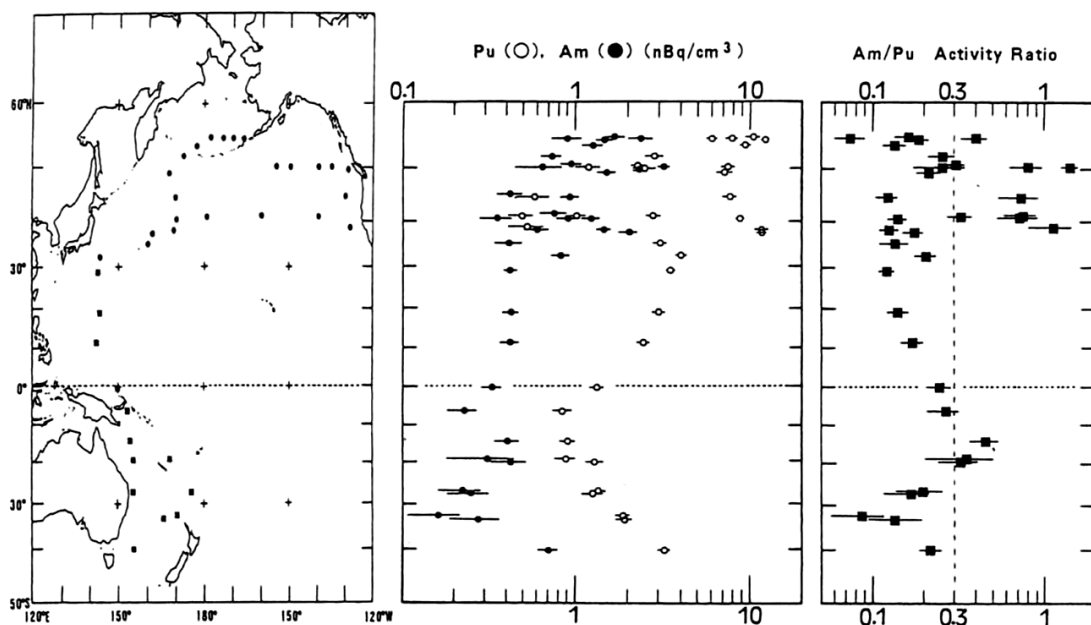


Fig. 7 Distribution of the $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am concentrations, and $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio in Pacific Ocean and its adjacent seas (1988 & 1992, Nakanishi *et al.*, 1995⁴⁰).

いる。また、1970年代から90年代にかけて、表層水中 ^{241}Am の濃度に明瞭な変動は見られず、ほぼ同レベルにあると言えよう。

ここで、Fig. 7 より $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 比について見てみよう。前述のように、グローバル・フォールアウトによる $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 比は約0.3であるが、それより小さい値の海域の方が多く、しかも値がばらついている。0.3より大きい値は、北太平洋中緯度海域のやや北方などで観測されている。 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 比がグローバル・フォールアウトの約0.3より小さいと言うことは、表層水中からの ^{241}Am 除去が、 $^{239+240}\text{Pu}$ より進んでいることを示唆している。

3.5 トリチウム (^3H)

^3H (β^- : 半減期 12.3 年) は、今日観測される人工放射性核種の中では半減期が短く、海水中では水 (HTO) の形で存在する。

世界の海洋に供給された ^3H の起源は、主に 1952–75 年の水爆実験であるが、北半球では特に 1963–64 年にピークに達した。1972 年の時点で海洋に負荷されたトリチウムの総量は約 1.9 GCi (約 7.0×10^{19} Bq)、そのうち 75% が北半球の海洋に分布したとされている⁴¹⁾。 ^3H は宇宙線によっても天然に生成するが、現時点で 80% 以上が核実験に由来する人工性のものである。(なお、核実験により $0.9 \text{ kg } ^3\text{H}/\text{Mt}$ の

割合で ^3H が放出されたと見積もられている⁴¹⁾.)

GEOSCECS データによると、北西部北太平洋の表層における ^3H 濃度の平均は $3.2 \pm 0.7 \text{ TU}$ (1973) であった^{42,43)}。一方、オホーツク海とベーリング海を含む同海域で 1990 年に得られたデータでは、 $2.1 \pm 0.5 \text{ TU}$ を示した⁴³⁾ (TU とは、通常の水素に対するトリチウムの原子比の 10^{18} 倍、 $([^3\text{H}]/[^1\text{H}]) \times 10^{18}$, $\text{ITU} \doteq 0.12 \text{ Bq/l}$)。このことは、1973 年から 90 年の間に、徐々にではあるが減少傾向にあったことを示している。

また、日本海における調査からは、平均 3.6 TU (1988) が報告され⁴⁴⁾、上述の北西部北太平洋よりやや高い値となっている。

4. 深度分布並びにインベントリー

4.1 ^{137}Cs 並びに ^{90}Sr

第 1 次日本・韓国・ロシア・IAEA 共同調査 (1994) により、日本海で得られた海水中 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr および $^{239+240}\text{Pu}$ の深度分布を Fig. 8 に示す。

Fig. 8 より、 ^{137}Cs と ^{90}Sr の深度分布は、 $^{239+240}\text{Pu}$ と異なり、互いによく似ていることが分かる。これは、他のデータでも同様で、両核種の海水中での化学的性質の類似性を反映しているものと思われる。即ち、両核種ともほとんどが Cs^+ 、 Sr^{2+} という溶存性の

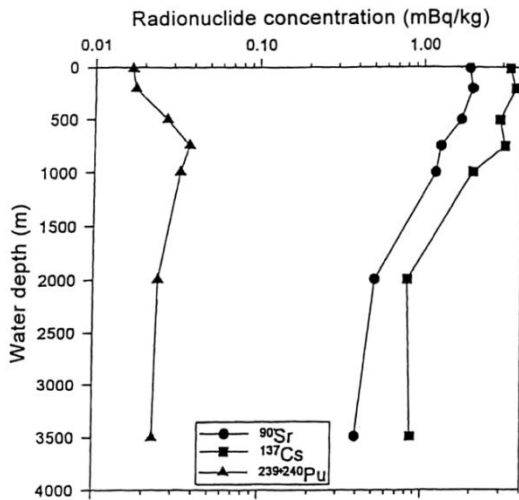


Fig. 8 Concentrations of ^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ in seawater of the Japan Sea (1994, based on the median values)³⁾.

高いイオン性の化学形で存在していると考えられている。その特徴は、表層から数百メートルまではほぼ濃度の等しい均一層が形成され、その後急激な（またはそれに近い）濃度の減少が生じ、海底面近傍で傾斜が緩やかになる（またはやや上昇する）というものである^{17,18,45)}。

しかしながら、 ^{90}Sr が海水中の粒子状物質でほとんど見出されず、海底堆積物中でもわずしか存在していないのに対し、 ^{137}Cs は海底堆積物中ではもちろん、粒子状物質中でも検出されることがあり（全 ^{137}Cs の0.1–1.0%）²⁴⁾、両核種間で粒子状物質との反応性（吸着やイオン交換を含めて）にわずかな差異が存在することを物語っている。また、海底面近傍で ^{137}Cs の方が濃度の上昇が起りやすいということも観測されており、海底に沈積した ^{137}Cs が低層海水中へ再溶出する過程が考えられている^{17,18,45)}。

ここでインベントリーについて述べる。インベントリーとは、単位面積当たりの積算放射能のことである。最近まとめられた、日本緑海を含む西部北太平洋における放射性核種の深度分布とインベントリー¹²⁾によれば、この海域の海水柱（海面から海底面までの単位断面積当たりの海水の柱）インベントリーが、1977年以降わずかながら明瞭に減少傾向を示したのは、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 $^{239+240}\text{Pu}$ のうち ^{90}Sr のみであった。また、1985–94年の10年間の同海域での海水柱インベントリーは ^{137}Cs に対して3.4(0.91–7.2) kBq/m²、

^{90}Sr に対して1.9(1.2–2.8) kBq/m²であった。これらの値は、グローバル・フォールアウトの同海域での1990年における値、1.4–2.6 kBq/m² (^{137}Cs)、0.90–1.6 kBq/m² (^{90}Sr)と比べて明らかに大きい。ただし、これらグローバル・フォールアウトの値は1981年以降追加がないものと仮定している。（以下同じ。UNSCEAR, 1982）。第1次日本・韓国・ロシア・IAEA共同調査（1994、日本海）からは、 ^{137}Cs に対して5.8 kBq/m²、 ^{90}Sr に対して3.0 kBq/m²が得られておりデータ・ベースよりさらに高い値となっている。何れの海水柱インベントリーについても、緯度効果（例えば、北半球の中緯度海域で値が大きいということ）は認められなかった。

また、同海域における1985–94年の10年間における両核種の海水柱インベントリーの比 ($^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$) は、1.9(1.2–4.5)¹²⁾であり、1990年におけるグローバル・フォールアウトの1.6と比べて高いが、第1次共同調査（1994）の値と一致した。

一方、北極海とグリーンランド海を含む北海では、状況はかなり異なる。同海域では、英・セラフィールド再処理工場から放出された全廃液中の $^{137}\text{Cs}/^{90}\text{Sr}$ 放射能比が6.7であったため、2–3まで上昇したと報告されている⁴⁶⁾。

4.2 $^{239+240}\text{Pu}$ 並びに ^{241}Am

北部北太平洋の2つの海水柱における $^{239+240}\text{Pu}$ 並びに ^{241}Am の深度分布、および $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比（1988）²²⁾をFig. 9に示す。

Fig. 9より、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{241}Am の深度分布は、濃

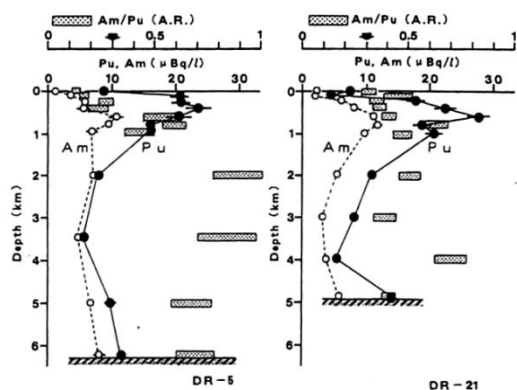


Fig. 9 The vertical profiles of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{241}Am concentrations, and of $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ activity ratio in two water columns of the northern North Pacific (1988, Nakanishi *et al.*, 1995²²⁾).

度差はあるものの同じような形状を表しており、両核種の海水中における化学的挙動が基本的に類似していることを示唆している。特徴的なのは、 ^{137}Cs や ^{90}Sr と異なり、両核種とも粒子状物質への吸着性が高く、表層より数百メートル下方のところで濃度の極大値（極大層）を示すことである（Fig. 8 参照）。 $^{239+240}\text{Pu}$ の北太平洋における極大層の深さは、GEOSECS (1974) を中心としたデータで、 $450\text{ m}^{26)}$ が報告されて以来、種々観測されてきているが、今までのところ日本海を含めて $300\text{--}1460\text{ m}$ の値が報告されており、1985–94 年の間ではおよそ 700 m のところに中央値がある。そして、この間の表層水中濃度が $1.2\text{--}23\ \mu\text{Bq/l}$ だったのに対して、極大層における濃度は $24\text{--}120\ \mu\text{Bq/l}$ と 1 桁ほど高い値を示した。また、極大層の深さは、年々やや増しつつあるように見えるが（1978–81 年の $620\pm 260\text{ m}$ から 1994 年の $730\pm 160\text{ m}$ へ¹²⁾）、確言するには、さらに今後のデータを待たなければならない。このように、 $^{239+240}\text{Pu}$ が極大層を有する現象は他の海域でも共通して報告されており、その深さは例えば、バレンツ海で $250\text{--}1300\text{ m}^{47)}$ と計測されている。

$^{239+240}\text{Pu}$ の沈降のメカニズムは、(^{241}Am も同様だが)、次のようである。まず表層水中で、主に生物起源の粒子状物質に吸着してスキャベンジされ、極大層まで沈降する。そこで粒子状物質の分解などにより海水中へ溶解し、深層水中では濃度が減少する。しかし、海底面よりやや上部での低層水中では、海底堆積物や粒子状物質から溶出し、中・深層水より高い値を示すことがある。海水中での化学形は、溶存態の場合には、 Pu(V) 、中でも $\text{PuO}_2\text{CO}_3\text{OH}^-$ が支配的であり、一方、粒子状物質への吸着態としては $\text{Pu(IV)}\text{—Pu}^{4+}$ の不可逆加水分解およびポリマー性 Pu(OH)_4 コロイドの形成一が支配的であるとされている³³⁾。

しかしながら、海水中 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{241}Am の挙動には差異も存在する。Fig. 9 の $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比は、グローバル・フォールアウトにおける約 0.3 と比べて、深層水で明らかに高くなっている。このことは、 ^{241}Am の方が $^{239+240}\text{Pu}$ より海水中でスキャベンジされやすいことの証左と思われる。因みに $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{241}Am の表層水中における粒子吸着態の存在率は、各々 32% と 21% であり、それ以深では各々 1.9–3% と 10% であったことが報告されており⁴⁸⁾、上述の類似性と相違性を裏付けている。

また、 $^{239+240}\text{Pu}$ は、現在でも海水中に大部分存在しており、例えば日本海における 1993 年のデータで

は、供給量に対して約 90% が海水中に存在している³⁶⁾。そしてこの核種の上部混合層における平均滞留時間は、中央部北太平洋で 2–13 年⁴⁸⁾、西部北太平洋で 4 年²³⁾、地中海で 12.3 年⁴⁹⁾ と報告されている。

データ・ベース¹²⁾によると、1985–94 年の西部北太平洋における $^{239+240}\text{Pu}$ の海水中インベントリーは、 $87(23\text{--}140)\text{ Bq/m}^2$ であり、 $20^\circ\text{N}\text{--}50^\circ\text{N}$ におけるグローバル・フォールアウトの $32\text{--}59\text{ Bq/m}^2$ (1990) と比べて 1.5–2.7 倍高い。この傾向は、GEOSECS データ (1974) の 2.2 倍や第 1 次日本・韓国・ロシア・IAEA 共同調査 (1994) の 1.7–3.1 倍 (100 Bq/m^2) でも、同様に示されている。また、グローバル・フォールアウトより高いという点では ^{137}Cs や ^{90}Sr も同様であり、これら人工核種についてはグローバル・フォールアウトの値が下方見積もりされているのではないかと考えられているが、ピキニ核実験などによる局所的 (close-in) フォールアウトの輸送による影響も指摘されている^{18,19,26,36)}。

データ・ベースによると、海水柱インベントリーにおける $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 並びに $^{239+240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ 放射能比は、西部北太平洋域 (1985–94) では各々 0.025 (0.011–0.036), 0.045 (0.017–0.073) であった。一方、グローバル・フォールアウトからは 1990 年時点で各々 0.022, 0.035 と見積もられており、データ・ベースの方がやや高い値を示している。しかし、第 1 次共同調査 (1994) では 0.017 ($^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$), 0.033 ($^{239+240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$) とグローバル・フォールアウトよりやや小さい値が得られている。これについては、この海域におけるフォールアウトからの供給の時点で既に変動があったか、または、他の海域からのこれら核種の流入の際に変動が生じた可能性が考えられる。

4.3 ^3H

GEOSECS プロジェクトは、種々な核種の分布と挙動について 3 次元的に貴重な情報をもたらしたが、 ^3H もその例外ではない。そのデータからは、次のことが明らかにされた。北太平洋ではアラスカ海流とカリフォルニア海流の表層に、高濃度 (1974 年時点で 10 TU 以上) の ^3H が存在する。 ^3H 同様、溶存性の高い ^{137}Cs との分布の違いから、 ^3H は、海水表層でガス交換によって供給される可能性を示唆した。そして、海水中では、ほぼ海水の等密度線に沿って分布していた。しかしながら、北太平洋のインベントリーは、グローバル・フォールアウトよりやや小さい値を示した²⁶⁾。

北西部北太平洋 (親潮海域, 1990) で得られた ^3H

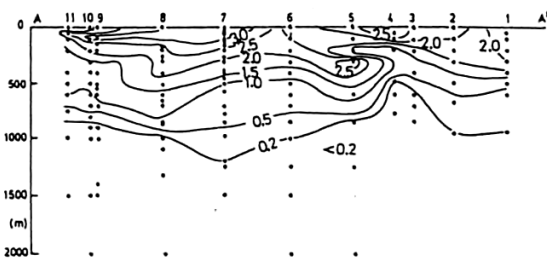


Fig. 10 Distribution of Tritium (TU in 1990) in the northern North Pacific (Watanabe *et al.*, 1991⁴³). A-A': (36°56'N, 143°26'E)–(54°30'N, 177°29'E).

の深度分布⁴³)を Fig. 10 に示す。Fig. 10 より、表層で約 2 TU、500 m で約 1 TU と減少し、1000 m 以深ではほとんど検出されていないことが分かる。海水柱インベントリーは、1530–1890 TU/m² であり、1990 年時点でグローバル・フォールアウトの 63% (平均) と算定された。GEOSECS データ (1974) では同海域周辺において、グローバル・フォールアウトの 87% (平均) と算定されており、この間に ³H の一部が同海域から失われたことを意味している。これについては、表・中層水中の ³H が、³H をほとんど含まない深層水と混合しながら水平方向に輸送されたのではないかと説明されている⁴³)。

一方、日本海では、太平洋より鉛直混合が急速に進行すると言われており、³H は、中・低層水の形成や循環・移動などの研究にトレーサーとして使われている。その結果、日本海低層水の平均循環時間は 100 年、日本海水の平均滞留時間は 1000 年と算出されている⁴⁴)。なお、低層水の平均循環時間については、¹⁴C より 300 年⁵⁰)、²²⁶Ra と ¹⁴C より 300–500 年が、平均滞留時間については、600–1300 年⁵¹) が報告されている。

5. おわりに

海は広く大きい。それ故、海水を全て交換することは不可能である。38 億年以上の長い海の歴史にあって、人工放射性核種が負荷されたのは、たかだかここ半世紀余りの出来ごとである。この間、人工放射性核種の海水中における分布と挙動について、多くのことが明らかにされてきた。本来なら他の核種や海洋試料—海底堆積物や生物など—にも触れるべきであったが誌面の都合上割愛させていただいた。

しかしながら、今後の課題も多い。例えば、各核種

の粒子状物質との反応過程や間隙水を含む海底堆積物との相互作用、生物への濃縮過程や放射線学的影響のメカニズム、トレーサーとして海洋循環の動態把握、さらに気候変動のメカニズムの解明などが枚挙できる。

以上拙論を述べてきたが、不備不足な点をご容赦願ひ、本拙稿が少しでも、関係方々のお役に立てられれば幸甚の至りである。

最後になりましたが、本稿をまとめるきっかけを与えていただいた上智大学化学科の大井隆夫先生、本稿作成に際し多分のご教示、ご協力を賜りました金沢大学化学科の中西孝先生、財) 日本分析センター研修・開発部の森本隆夫課長、日本原子力研究所海洋調査研究室の外川織彦博士に心より謝意を表します。

文 献

- 1) M. J. Kennish (ed.), "Practical Handbook of Marine Science", 2nd ed., CRC Press, Inc., USA (1994)
- 2) White Book (1993), A. V. Yablokov, V. K. Karasev, V. M. Rumyantsev, M. Ye. Kokeyev, O. I. Petrov, V. N. Lystsov, A. F. Yemelyanenko and P. M. Rubtsov, "Facts and Problems Related to Radioactive Wastes Disposal in Seas Adjacent to the Territory of the Russian Federation", Office of the President of the Russian Federation, Moscow
- 3) Joint Japanese-Korean-Russian Expedition (1995), "Investigation of Environmental Radioactivity in Waste Dumping Areas of the Far Eastern Seas, Results from the First Japanese-Korean-Russian Joint Expedition 1994"
- 4) H. B. L. Pettersson, S. Ballestra, M. S. Baxter, J. Gastaud, L. Huynh-Ngoc, L. Lion Wee Kwong, P. Parsi and P. P. Povinec, "Radionuclide analysis of samples from the 1994 Japanese-Korean-Russian expedition to the Sea of Japan", IAEA-MEL Report, Monaco (1995)
- 5) Joint Japanese-Korean-Russian Expedition (1997), "Investigation of Environmental Radioactivity in Waste Dumping Areas in the Northwest Pacific Ocean, Results from the Second Stage Japanese-Korean-Russian Joint Expedition 1995"
- 6) P. P. Povinec (ed.), Experts' meeting on "Research on Worldwide Marine Radioactivity (MARAD)", IAEA-MEL Report, Monaco (1996)
- 7) IAEA '97 Pacific Ocean Expedition Cruise Report, IAEA-MEL Report, Monaco (1997)

- 8) T. Honda, *Fission Track News Lett.*, **9**, 39 (1996)
- 9) T. Honda, *Bull. Atom. Ener. Res. Lab. Musashi Inst. Tech.*, **22**, 79 (1996)
- 10) T. Honda and O. Togawa, *Bull. Atom. Ener. Res. Lab. Musashi Inst. Tech.*, **23**, 16 (1997)
- 11) T. Honda and O. Togawa, "Database for Radionuclide Concentrations in Marine Samples in the Western North Pacific Ocean and Its Marginal Seas around Japan", IAEA (to be published)
- 12) O. Togawa, "Vertical Profiles and Inventories of Radionuclides in Seawater Columns and Sediment Cores Collected in the Western North Pacific Ocean and Its Marginal Seas around Japan", IAEA (to be published)
- 13) Radioactivity Survey Data in Japan (1963-1996), National Institute of Radiological Sciences (ed.), Japan Chemical Analysis Center, Nos. 1-109
- 14) 放射能調査報告書 年報, 1984-1996, 海上保安庁水路部
- 15) 農林水産省関係放射能調査研究年報 (C水産関係) (1984-1995), 農林水産技術会議事務局
- 16) 橋本丈夫, 小佐古敏荘, 青地哲男, *RADIOISOTOPES*, **43**(9), 552 (1994)
- 17) Y. Nagaya and K. Nakamura, *J. Oceanogr. Soc. Japan*, **37**, 135 (1981)
- 18) Y. Nagaya and K. Nakamura, *J. Oceanogr. Soc. Japan*, **40**, 416 (1984)
- 19) Y. Nagaya and K. Nakamura, *J. Oceanogr. Soc. Japan*, **43**, 345 (1987)
- 20) Y. Miyake, K. Saruhashi, Y. Sugimura, T. Kanazawa and K. Hirose, *Pap. Met. Geophys.*, **39**(3), 95 (1988)
- 21) T. Nakanishi, M. Satoh, M. Takei, A. Ishikawa, M. Murata, M. Dairyo and S. Higuchi, *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, **138**(2), 321 (1990)
- 22) T. Nakanishi, Y. Shiba, M. Muramatsu and M. A. Haque, "Estimation of mineral aerosol fluxes to the Pacific by using environmental plutonium as a tracer". In: Sakai, H. and Nozaki, Y. (eds.), "Biogeochemical Processes and Ocean Flux in the Western Pacific", Terra Scientific Pub. Co., Tokyo (1995), pp. 15-30
- 23) K. Hirose, Y. Sugimura and M. Aoyama, *Appl. Radiat. Isot.*, **43**(1/2), 349 (1992)
- 24) M. Aoyama and K. Hirose, *J. Environ. Radioactivity*, **29**(1), 57 (1995)
- 25) P. P. Povinec, "Sources of Radioactivity in the Marine Environment and Their Relative Contributions to Overall Dose Assessment from Marine Radioactivity (MARDOS), Final Report of the CRP", IAEA-MEL Report, 1994
- 26) V. T. Bowen, V. E. Noshkin, H. D. Livingston and H. L. Volchok, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **49**, 411 (1980)
- 27) H. Dahlgaard, Q. Chen, J. Herrmann, H. Nies, R. D. Ibbett and P. J. Kershaw, *J. Marine Systems*, **6**, 571 (1995)
- 28) UNSCEAR (1993): United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation 1993 report, United Nation, New York
- 29) UNSCEAR (1988): United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation 1988 report, United Nation, New York
- 30) J. Herrmann, P. J. Kershaw, P. Bailly du Bois and P. Guegueniat, *J. Marine Systems*, **6**, 427 (1995)
- 31) J. H. Harley, *J. Radiat. Resear.*, **21**, 83 (1980)
- 32) UNSCEAR (1982): United Nations Scientific Committee on the effects of atomic radiation 1982 report, United Nation, New York
- 33) S. R. Aston, *Marine Chemistry*, **8**, 319 (1980)
- 34) Y. Miyake and Y. Sugimura, IAEA-SM-199/22, 91 (1976)
- 35) T. Nakanishi, M. Yajima, M. Senaga, M. Takei, A. Ishikawa, K. Sakamoto and M. Sakanoue, *Nucl. Instru. Meth. in Physics Res.*, **223**, 239 (1984)
- 36) M. Yamada, T. Aono and S. Hirano, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **210**(1), 129 (1996)
- 37) M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Chatani, S. Igarashi, K. Komura and K. Ueno, *Radiochimica Acta*, **51**, 85 (1990)
- 38) P. I. Mitchell, W. R. Schell, A. McGarry, T. P. Ryan, J. A. Sanchez-Cabeza and A. Vidal-Quadras, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **156**(2), 361 (1992)
- 39) A. Yamato, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **156**(2), 349 (1992)
- 40) 中西 孝, 月刊 海洋, 号外 No. 8, 96 (1995)
- 41) W. Weiss and W. Roether, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **49**, 435 (1980)
- 42) H. G. Östlund and R. Brescher, "GEOSECS Tritium", Tritium Lab. Data Rept., 12, Univ. Miami, 1982
- 43) Y. W. Watanabe, S. Watanabe and S. Tsunogai, *J. Oceanogr. Soc. Japan*, **47**, 80 (1991)
- 44) Y. W. Watanabe, S. Watanabe and S. Tsunogai, *Marine Chemistry*, **34**, 97 (1991)
- 45) Y. Nozaki, M. Yamada, T. Nakanishi, Y. Nagaya, K. Nakamura, K. Shitashima and H. Tsubota, *Oceanologica Acta*, **21**(3), 469 (1998)