

## 海洋におけるプルトニウム同位体の挙動について

山田 正俊<sup>1)</sup>

(令和3年1月25日受付, 令和3年2月8日受理)

## Behavior of Plutonium isotopes in the ocean

Masatoshi YAMADA<sup>1)</sup>

## 要 旨

海洋におけるプルトニウムの動態を解析するために、日本周辺海域の海底堆積物と中央赤道太平洋、ベーリング海、日本海大和海盆における海水中の<sup>239+240</sup>Pu濃度と<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比を分析した。日本周辺海域の海底堆積物にビキニ核実験起源プルトニウムの存在を確認し、相模湾海底堆積物では堆積しているプルトニウムの44%がビキニ核実験起源であった。マーシャル諸島ビキニ環礁にあった太平洋核実験場から北赤道海流・黒潮・対馬海流などの海流を通して日本周辺海域に移行し、堆積したと考えられる。また、中央赤道太平洋とベーリング海では海水柱中の<sup>239+240</sup>Puの存在量が時間とともに減少していたのに対して、日本海では存在量の増加が見られた。さらに、中央赤道太平洋、ベーリング海、日本海のいずれの海域においても、海水中の<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比は大気圏核実験によるグローバルフォールアウト起源の同位体比に比べて有意に大きい値であった。これらの結果は、ビキニ核実験起源のプルトニウムが北赤道海流、黒潮、対馬海流、北太平洋海流、アリューシャン海流などの表層海流によってそれぞれの海域へ移行し、粒子による吸着・除去と粒子の沈降及び溶解・脱着が起こったことによると結論づけた。<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比は、大気圏核実験による地球規模放射性降下物とマーシャル諸島ビキニ環礁で行われた核実験による放射性降下物の識別に有効な手段であった。

キーワード：海洋、プルトニウム、大気圏核実験、ビキニ核実験、<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比、動態解析

## 1. はじめに

プルトニウムは、原子番号94の超ウラン元素で、すべての同位体は放射性元素である。太陽系の惑星の冥王星 (pluto) に因んで plutonium (Pu) と命名された。発見者のグレン・セオドア・シーボーク (Glenn Theodore Seaborg, 1912-1999) は、エドウィン・マティソン・マクミラン (Edwin Mattison McMillan, 1907-1991) とともに、超ウラン元素の発見の功績により1951年ノーベル化学

<sup>1)</sup>公益財団法人海洋生物環境研究所中央研究所 〒299-5105 千葉県夷隅郡御宿町岩和田300番地. <sup>1)</sup>Central Laboratory, Marine Ecology Research Institute, 300 Iwawada, Onjuku, Isumi, Chiba 299-5105, Japan.

賞を受賞している。

1945年7月16日、人類最初の核実験がアメリカ合衆国ニューメキシコ州で行われた。この核実験をもって「核の時代」の幕開けとされている。この核実験はトリニティ実験というコードネームで呼ばれ、プルトニウム原子爆弾の爆発実験であり、同型の爆弾が数週間後の8月9日に長崎市に投下された。以来、1980年までに旧ソビエト連邦、アメリカ合衆国、イギリス、フランス、中華人民共和国により500回以上の大気圏核実験が行われた (UNSCEAR, 2000)。

## 2. 大気圏核実験によるフォールアウト

地球環境中に存在する大気圏核実験起源の主要なプルトニウム同位体は、 $^{238}\text{Pu}$  (半減期: 87.7年; アルファ放射体),  $^{239}\text{Pu}$  (半減期: 2.411万年; アルファ放射体),  $^{240}\text{Pu}$  (半減期: 6564年; アルファ放射体),  $^{241}\text{Pu}$  (半減期: 14.35年; ベータ放射体) である。太平洋におけるプルトニウム同位体の主要な起源は、1950年代から1960年代初めに行われた大気圏核実験による大量の地球規模放射性降下物 (グローバルフォールアウト) と、1946年から1958年にかけてアメリカ合衆国太平洋核実験場 (Pacific Proving Grounds: PPG) のあったマーシャル諸島ビキニ及びエネウェタック環礁で行われた核実験 (通称ビキニ核実験) による放射性降下物 (局地フォールアウト) のふたつに大別される。これらのフォールアウトによって、全海洋に存在するプルトニウム ( $^{239+240}\text{Pu}$ ) の総量は約12 PBq (Pはペタ ( $10^{15}$ ) を表す)、そのうち太平洋には8.6 PBqのプルトニウム ( $^{239+240}\text{Pu}$ ) が存在すると見積もられている (Hamilton, 2004)。全海洋に占める太平洋の存在割合が極めて大きい、太平洋はビキニ核実験起源のフォールアウトがあるということが他の大洋にない特徴である。

## 3. プルトニウムの地球環境中への放出

大気圏核実験によるフォールアウト以外に地球環境中にプルトニウムが放出された主要な例を以下に示す。なお、これらはいずれも大気圏核実験に比べてプルトニウムの降下量は少ない。

### 3.1 長崎への原爆投下によるフォールアウト

1945年8月9日、長崎市にプルトニウム型原子爆弾が投下された。爆心から3kmほど離れた西山地区に黒い雨が降ったとされている。西山地区に降下したプルトニウム ( $^{239+240}\text{Pu}$ ) は、約0.038 kg ( $8.6 \times 10^{-5}$  PBq) と見積もられている (Kudo *et al.*, 1991)。この地区から採取した土壌試料中に、グローバルフォールアウトに比べて有意に高い  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度 (最大値: 73 mBq/g) と低い  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比 (0.03-0.04) が報告されている (Yoshida *et al.*, 2007)。

### 3.2 人工衛星打ち上げ失敗による拡散

1964年4月21日、 $^{238}\text{Pu}$  の崩壊熱を利用した燃料電池を搭載したアメリカ合衆国の人工衛星 (SNAP9-A) が軌道への打ち上げに失敗、マダガスカルの上空で大気圏に再突入し、完全に燃え尽きた。これにより、0.6 PBqの  $^{238}\text{Pu}$  が大気圏内に拡散し、地表面及び海面上に広範囲に沈着した (Hardy *et al.*, 1973)。

### 3.3 核兵器搭載爆撃機の空中衝突事故による放出

1966年1月17日、地中海上空で、核兵器を搭載したB-52爆撃機と空中給油機が給油中に接触し、炎上する事故が起きた。核爆発 (核分裂) は起きなかったが、スペインの村落 (Palomares) に落

下した核兵器から核燃料の放出があり、プルトニウムによる土壤汚染が生じた。アメリカ合衆国は、汚染した土壤の大部分を取り除き本国へ輸送した。

### 3.4 核兵器搭載航空機の墜落事故による放出

1968年1月21日、核兵器を搭載したB-52爆撃機が飛行中にグリーンランド上空で火災が発生し、アメリカ・チュレー（Thule）空軍基地近郊の氷上に墜落した。爆撃機の残骸や汚染した氷の一部は回収され、アメリカ合衆国へ輸送された。核爆発（核分裂）は起きなかったが、搭載していた4個の核兵器からプルトニウム同位体（ $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ）が環境中に放出された。墜落事故により放出された量（約6kg）の約半分の3.5kg（ $9.5 \times 10^{-3}\text{PBq}$ ）の $^{239+240}\text{Pu}$ が、海底堆積物中に未だに存在していると見積もられている（Dahlgaard *et al.*, 2004）。

### 3.5 使用済核燃料再処理施設からの放出

1952年からイギリス・セラフィールド（旧ウインズケール）再処理施設において使用済核燃料の再処理が開始され、液体廃棄物中に含まれていたプルトニウム同位体、 $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{129}\text{I}$ などの放射性核種がアイリッシュ海に流出した。プルトニウムの年間放出量は1970年代に最大となり、液体廃液処理技術の向上により1980年代中頃から放出量は急激に減少した。セラフィールド再処理施設から海洋環境に放出された $^{239+240}\text{Pu}$ の総量は約0.6PBqと見積もられており、その90%が西部アイリッシュ海の海底堆積物中に存在し、一部はノース海峡を經由して北大西洋と北極海へ移行した（Lindahl *et al.*, 2011a）。

### 3.6 チェルノブイリ原子力発電所事故による放出

1986年4月26日、旧ソビエト連邦（現ウクライナ）のチェルノブイリ原子力発電所において、原子炉が暴走、炉心が融解し水素爆発が起き、プルトニウムが環境中に放出された。さらに、 $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{90}\text{Sr}$ ,  $^{131}\text{I}$ などの核分裂生成物がヨーロッパの広い範囲に拡散し、土壤汚染を引き起こした。この事故により放出された $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ は、それぞれ、0.015PBq, 0.013PBq, 0.018PBq,  $\sim 2.6\text{PBq}$ と見積もられている（UNSCEAR, 2008）。

2012年10月26日、筆者がチェルノブイリ原子力発電所を訪れた時の風景を図1に示す。爆発事故を起こした4号炉はコンクリート製の石棺で覆われているが、老朽化が目立っていた。また、石棺の前に立つモニュメント付近での空間放射線量率は $3.76\mu\text{Sv/hr}$ であった。2016年11月、この老朽化した石棺は「新安全閉じ込め設備（New Safe Confinement）」と呼ばれる移動式金属製ドームのシュルターですっぽり覆われた。この新シュルターは、100年間は持ちこたえるように造られているという。

### 3.7 東京電力(株)福島第一原子力発電所事故による放出

2011年3月11日、マグニチュード9.0の東北地方太平洋沖地震に起因して東京電力(株)福島第一原子力発電所事故が発生した。波高13mに及ぶ津波が到来し、電源喪失が起こり、水素爆発・原子炉压力容器のベント・高濃度汚



図1 2012年10月時点における石棺で覆われたチェルノブイリ原子力発電所4号炉。

染水の海への直接漏洩等により、大量の放射性核種が環境中に放出された。この事故により放出された  $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$  は、それぞれ、 $(2.9-6.9) \times 10^{-6}$  PBq,  $(1.0-2.4) \times 10^{-6}$  PBq,  $(1.1-2.6) \times 10^{-4}$  PBq と見積もられており (Zheng *et al.*, 2013), チェルノブイリ原子力発電所事故による放出に比べて4桁程度少ない。なお、陸域において事故由来のプルトニウムの沈着が報告されているが (Zheng *et al.*, 2013), 宮城・福島・茨城県沖における表層海底堆積物中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は事故前と同水準であった (Yamada *et al.*, 2021)。

#### 4. 海洋におけるプルトニウム研究

大気圏核実験が行われてから60年以上経過しているが、プルトニウムは海水中では未だ定常状態に到達しておらず、海水中でのプルトニウム濃度の鉛直分布や海水柱中での存在量は時間とともに変化している。そこで、プルトニウム濃度及びプルトニウム同位体比 ( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ) の時系列変化を把握することにより、プルトニウムの海洋での移行・循環過程や海水中に存在する粒子状物質による吸着・除去 (スキヤベンジング) 過程を解明することが期待できる。

$^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$  などのアルファ放射体のプルトニウム同位体の測定は、従来、プレーナシリコン検出器または表面障壁型シリコン検出器を接続した波高分析器を用い、アルファ線スペクトロメトリーにより行っていた。 $^{239}\text{Pu}$  のアルファ線は  $^{240}\text{Pu}$  のアルファ線とエネルギーが近いので、アルファ線スペクトロメトリーでは弁別できず、 $^{239+240}\text{Pu}$  として表される。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は、原子炉や核兵器の種類、核燃料の種類や燃焼時間などによって大きく異なることが知られている。例えば、グローバルフォールアウト起源の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は  $0.180 \pm 0.014$  (Krey *et al.*, 1976; Kelley *et al.*, 1999), ビキニ核実験起源は  $0.30-0.36$  (Diamond *et al.*, 1960; Yamamoto *et al.*, 1996; Lindahl *et al.*, 2011b), 長崎に投下された原子爆弾は  $0.03-0.04$  (Yoshida *et al.*, 2007) である。そのため、環境試料中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比を調べることで、その起源を特徴づけることができ、環境中でのプルトニウムの動態解明にも有効である。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の測定には、表面電離型質量分析法 (Thermal Ionization Mass Spectrometry: TIMS) や加速器質量分析法 (Accelerator Mass Spectrometry: AMS) が用いられるが、これらは分析装置が高額であり、分析操作にかなりの経験が必要である。誘導結合プラズマ質量分析法 (Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry: ICP-MS) は、検出感度が飛躍的に向上し、小型で使いやすくなり、海洋試料中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の測定に広く用いられるようになってきた (Zheng and Yamada, 2006a)。

本稿では、著者らによって得られた海底堆積物及び海水中のプルトニウム濃度とプルトニウム同位体比の分布に関する研究成果を中心に、海洋におけるプルトニウム同位体の挙動について紹介する。

#### 5. 海底堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

プルトニウムが地球上に最初に放出された1945年の原子爆弾爆発実験 (トリニティ実験) から76年が経過しているが、海底堆積物を調べることの利点のひとつは、その中に記録されている過去の情報が得られることである。そこで、東シナ海、沖繩トラフ、日本海、オホーツク海、相模湾、西部北太平洋等の日本周辺海域において30本の海底堆積物柱状試料を採取し (図2),  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度と  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の測定を行い、動態を解析した結果について紹介する。海底堆積物柱状試料は、表層を乱さずに採取できるマルチプルコアラーを用いた (図3)。

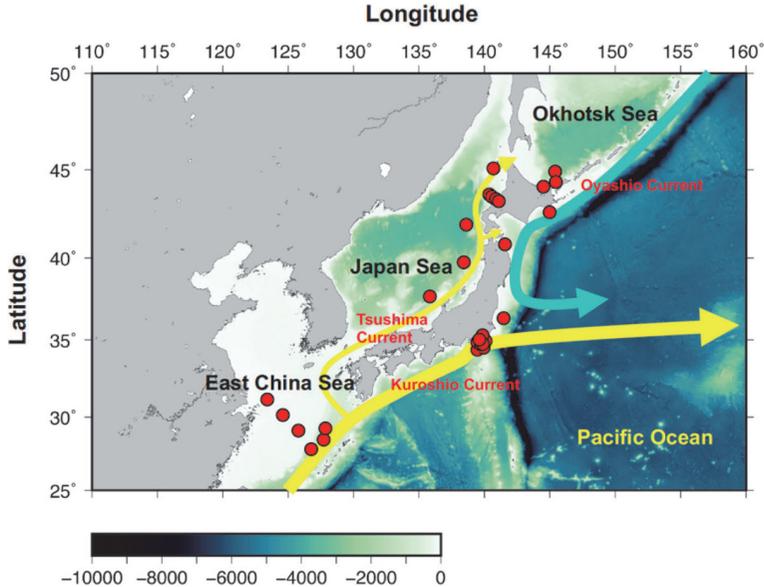


図 2 日本周辺海域における海底堆積物柱状試料採取地点（赤丸）．矢印は模式化した海洋表層の海流を示す．

### 5.1 相模湾における海底堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の鉛直分布

相模湾海底堆積物中の  $^{239+240}\text{Pu}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  濃度と  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の鉛直分布の一例を図 4 に示す． $^{239+240}\text{Pu}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、表層から深さとともに増加し、12-14 cm 層で極大となり、その後減少するという鉛直分布を示した．12-14 cm 層は 1963 年に相当し、日本における大気圏核実験によるグローバルフォールアウトが極大となった年と一致する． $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は、表層から 12-14 cm 層までほぼ一定の値 (0.233-0.241) を示し、1950 年代に堆積した層 (16-22 cm) ではそれらに比べて大きい値 (0.272-0.277) であった．

1946 年から 1958 年にかけて米国太平洋核実験場のビキニ及びエネウエタック環礁で行われた核実験（通称ビキニ核実験）による放射性降下物中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比 (0.30-0.36) は、グローバルフォールアウト比 ( $0.180 \pm 0.014$ ) に比べて大きいことが報告されている (Diamond *et al.*, 1960 ; Kelley *et al.*, 1999 ; Yamamoto *et al.*, 1996 ; Lindahl *et al.*, 2011b)．相模湾海底堆積物中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は 0.233-0.277 の範囲であり、グローバルフォールアウト比の  $0.180 \pm 0.014$  に比べ有意に大きい値を示した．特に 1950 年代に堆積したところに大きい同位体比が得られ (図 4)．グローバルフォールアウト起源に加えてビキニ核実験起源のプルトニウムが堆積していることが確認された．以上の結果から、ビキニ核実験の汚染の跡が海底堆積物に記録されていることを特定し、ビキニ環礁付近から北赤道海流・黒潮によってプルトニウムが移行し、比較的速やかに堆積していることが明らかになった (Zheng and Yamada, 2004)．なお、相模湾の海水



図 3 マルチプルコアラーによる海底堆積物柱状試料の採取．

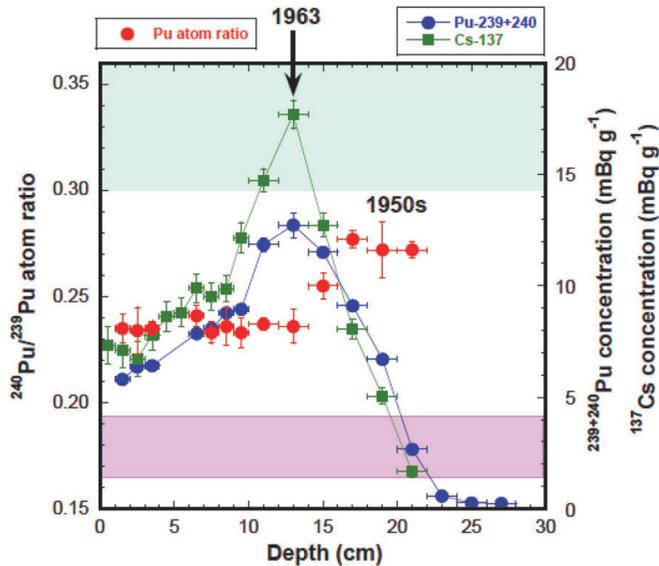


図4 相模湾における海底堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$  (青丸) 及び $^{137}\text{Cs}$  (緑四角) 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位比 (赤丸) の鉛直分布 (水深: 1329 m). 紫色及び緑色の同位体比の網掛けは、それぞれ、グローバルフォールアウト比 ( $0.180 \pm 0.014$ ) 及びビキニ核実験起源比 ( $0.30\text{--}0.36$ ) を示す。

中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比も  $0.224\text{--}0.240$  であり、海底堆積物の結果と整合的であった (Yamada *et al.*, 2007).

## 5.2 日本周辺海域における海底堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の鉛直分布

相模湾以外にも日本周辺海域においてビキニ核実験起源のプルトニウムが堆積しているのだろうかという疑問に対処するために、沖縄トラフ、東シナ海、日本海、西部北太平洋、オホーツク海等で海底堆積物柱状試料を採取し、 $^{239+240}\text{Pu}$  濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比を分析した。鉛直分布の結果の例を図5に示す (Wang and Yamada, 2005; Zheng and Yamada, 2005, 2006b)。

### ・沖縄トラフ (水深: 999 m)

$^{239+240}\text{Pu}$  濃度は  $0.04\text{--}1.71\text{ mBq/g}$  の範囲であり、1-2 cm 層に極大が見られ、その後深さとともに減少した。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は  $0.232\text{--}0.320$  であり、グローバルフォールアウト比 ( $0.180 \pm 0.014$ ) に比べて大きく、グローバルフォールアウト起源とともにビキニ核実験起源のプルトニウムも堆積していた。特に、6-7 cm 層は同位体比が  $0.320$  であり、ビキニ核実験起源そのものの比であった (図5-(a))。太平洋核実験場 (マーシャル諸島ビキニ及びエネウェタック環礁) 付近へ降下 (局地フォールアウト) したビキニ核実験起源プルトニウムが、北赤道海流及び黒潮によって運ばれ、海水中に存在する粒子状物質により、海水中から吸着・除去 (スキャベンジング) され、沈降・堆積したと考えられる。

### ・東シナ海長江沖 (水深: 50 m)

$^{239+240}\text{Pu}$  濃度は  $0.13\text{--}0.35\text{ mBq/g}$  の範囲であり、10-12 cm 層に極大が見られた。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は  $0.236\text{--}0.260$  であり、グローバルフォールアウト比に比べて大きく、グローバルフォールアウト起源とともにビキニ核実験起源のプルトニウムも堆積していた (図5-(b))。北赤道海流及び黒潮によってビキニ核実験起源プルトニウムが東シナ海大陸棚上へ移行し、堆積したと考えられる。

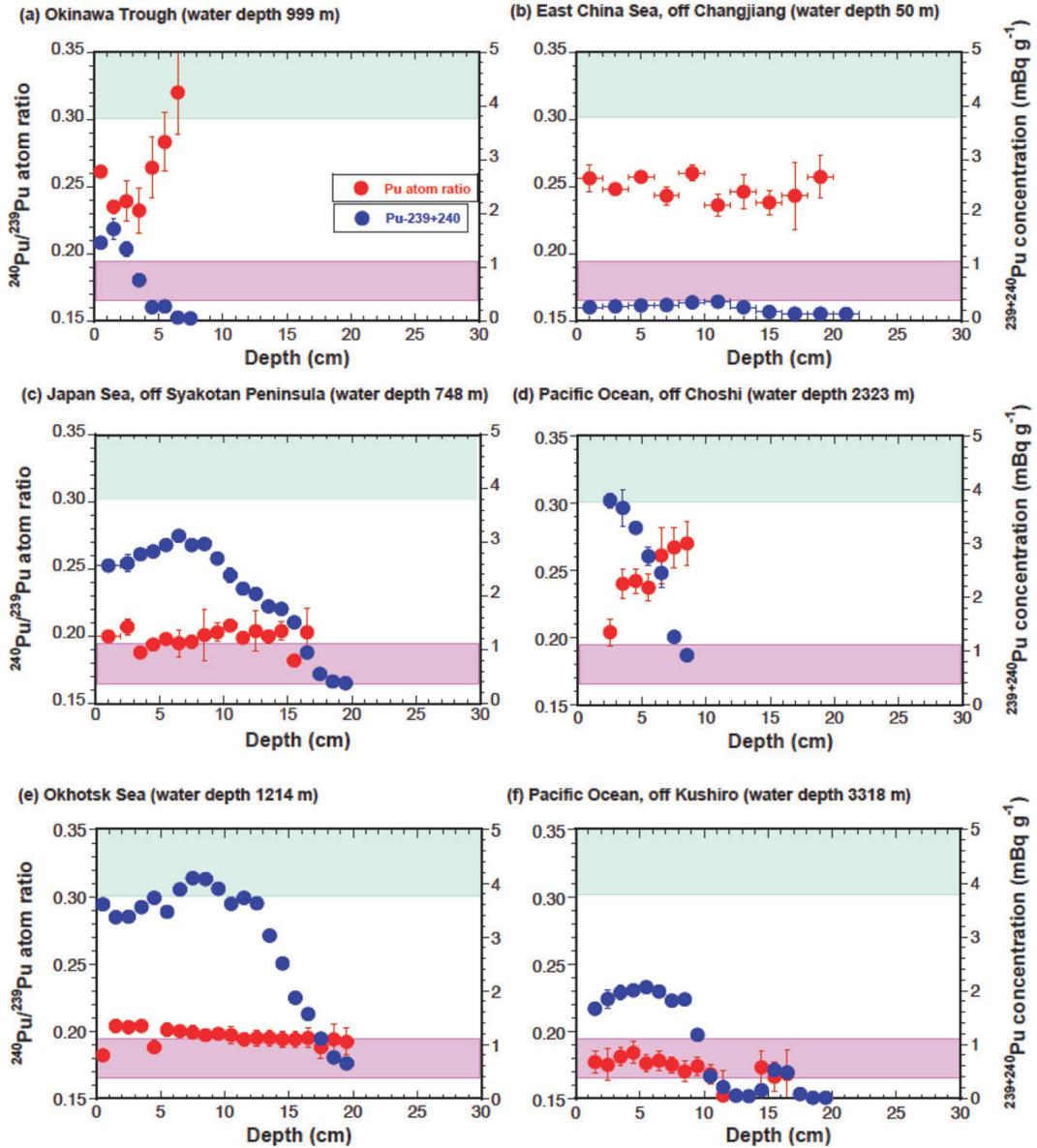


図 5 日本周辺海域における海底堆積物中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度 (青丸) と  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比 (赤丸) の鉛直分布. 紫色及び緑色の同位体比の網掛けは、それぞれ、グローバルフォールアウト比 ( $0.180 \pm 0.014$ ) 及びビキニ核実験起源比 ( $0.30-0.36$ ) を示す.

・日本海積丹半島沖 (水深: 809 m)

$^{239+240}\text{Pu}$  濃度は  $0.38-3.12 \text{ mBq/g}$  の範囲であり、6-7 cm 層に極大が見られ、その後深さとともに減少した。  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は  $0.182-0.208$  であり、グローバルフォールアウト比と同じかわずかに大きい値であった。グローバルフォールアウト起源が大部分を占めており、わずかにビキニ核実験起源のプルトニウムが堆積していた (図 5-(c))。北赤道海流、黒潮及び対馬海流によってビキニ核実験起源プルトニウムが日本海へ移行し、堆積したと考えられる。

・西部北太平洋銚子沖 (水深: 2323 m)

$^{239+240}\text{Pu}$  濃度は 0.92-3.80 mBq/g の範囲であり, 1-2 cm 層に極大が見られ, その後深さとともに減少した.  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は 0.204-0.270 であり, グローバルフォールアウト比に比べて大きく, グローバルフォールアウト起源とともにビキニ核実験起源のプルトニウムも堆積していた (図 5-(d)). 相模湾と同様に, 北赤道海流及び黒潮によってビキニ核実験起源プルトニウムが運ばれ, 堆積したと考えられる.

・オホーツク海 (水深: 1214 m)

$^{239+240}\text{Pu}$  濃度は 0.65-4.10 mBq/g の範囲であり, 7-8 cm 層に極大が見られ, その後深さとともに減少した.  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は 0.182-0.204 であり, グローバルフォールアウト比と同じかわずかに大きい値であった. 日本海積丹半島沖と同様に, グローバルフォールアウト起源が大部分を占めており, わずかにビキニ核実験起源のプルトニウムが堆積していた (図 5-(e)). 北赤道海流, 黒潮及び対馬海流によってビキニ核実験起源プルトニウムが日本海を経由してオホーツク海へ移行し, 堆積したと考えられる.

・西部北太平洋釧路沖 (水深: 3318 m)

$^{239+240}\text{Pu}$  濃度は 0.01-2.07 mBq/g の範囲であり, 1-9 cm 層にブロードの極大が見られ, その後深さとともに減少した.  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は 0.152-0.184 であり, グローバルフォールアウト比と同じであった. 釧路沖海底堆積物はグローバルフォールアウトが主要な起源であった (図 5-(f)).

### 5.3 日本周辺海域海底堆積物におけるビキニ核実験起源の割合と挙動

得られた海底堆積物中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比が, グローバルフォールアウト起源とビキニ核実験起源のふたつのエンドメンバーの混合によるとして, それぞれの起源がどれだけ堆積しているかを求めた. その結果, 相模湾, 沖縄トラフ, 東シナ海, 銚子沖ではビキニ核実験起源のプルトニウムが 44-53% を占めていた. また, 日本海積丹半島沖とオホーツク海は, ~10% と割合は少ないもののビキニ核実験起源のプルトニウムが堆積していた. なお, 現在でもビキニ環礁のラグーンから, 1 年間に ~0.2 TBq ( $10^{12}$  Bq) の  $^{239+240}\text{Pu}$  が太平洋に放出されており, ラグーン堆積物が太平洋におけるプルトニウムの起源となり続けていることが知られている (Lindahl *et al.*, 2010).

本研究で行った観測点は, 水深が異なることによる海水柱中の  $^{239+240}\text{Pu}$  の存在量の違いや海洋表層での生物生産量と大気・河川を通して陸域から運ばれる粒子量が異なることによるスキヤベンジング過程及び堆積速度に違いがあるため, 海底堆積物柱中の  $^{239+240}\text{Pu}$  の存在量も海域により大きく異なる. 相模湾を例にして, 海底堆積物柱中の  $^{239+240}\text{Pu}$  の存在量について考察する. 相模湾における  $^{239+240}\text{Pu}$  の存在量は  $434 \text{ Bq/m}^2$  と見積もられ, このうち 44% がビキニ核実験起源であることから, ビキニ核実験起源が  $191 \text{ Bq/m}^2$ , 残りの  $243 \text{ Bq/m}^2$  がグローバルフォールアウト起源となる. 相模湾の緯度帯 (30-40°N) におけるグローバルフォールアウトによる大気からの積算降水量は  $42.2 \text{ Bq/m}^2$  と見積もられており (UNSCEAR, 2000), 相模湾の海底堆積物にはグローバルフォールアウトによる積算降水量に比べて 5.8 倍のプルトニウムが蓄積している. これは, 相模湾では海水中に存在する様々な粒子状物質による吸着・除去が活発に行われているためと考えられる.

以上の結果から, 日本周辺海域海底堆積物におけるプルトニウムの汚染源推定に  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比が有効であること, 海洋におけるビキニ核実験起源プルトニウムの移行に北赤道海流・黒潮・対馬海流などの海流が重要であることが明らかになった.

## 6. 海水中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

プルトニウムは、1945年地球環境中へ最初に放出されたが、海水中では  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度や海水柱中の存在量は未だに時間とともに変化している。そこで、様々海域において、 $^{239+240}\text{Pu}$  濃度の時間変化及び  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の測定によりビキニ核実験起源プルトニウムの有無を把握し、海洋における移行・循環過程や粒子によるスキヤベンジング過程の解明を行った。本稿では、中央赤道太平洋、ベーリング海及び日本海の大和海盆における  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度の時間変化と  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の結果について紹介する。模式化した海洋表層の海流とともに、海水試料の採取地点を図6に示す。なお、中央赤道太平洋及びベーリング海における時間変化比較のための  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度は、1973年のGEOSECS (Geochemical Ocean Sections Study) 航海で得られた値を用いた (Bowen *et al.*, 1980)。また、すべての  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は、アルファ線スペクトロメトリーにより  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度が測定済みのアーカイブ試料を用いて分析した。

### 6.1 中央赤道太平洋における海水中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

中央赤道太平洋における結果を図7-(a)に示す。中央赤道太平洋の水深1000m以浅において、1973年のGEOSECS航海で得られた  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度 (GX-246; 緑四角) に比べて、17年後 (AQ-7; 青丸) には有意の減少が観測された。この減少率は、 $0.89\text{Bq}/\text{m}^2/\text{yr}$  と見積もられた。また、海水柱中の存在量は  $28.2 \pm 1.2\text{Bq}/\text{m}^2$  であり、赤道の緯度帯におけるグローバルフォールアウトによる大気からの積算降下量は  $11.6\text{Bq}/\text{m}^2$  と見積もられており (UNSCEAR, 2000)、グローバルフォールアウトによる積算降下量に比べて2.4倍のプルトニウムが中央赤道太平洋の海水柱中に存在していることになる。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比 (0.215-0.267) は、海面から海底直上まで、グローバルフォールアウト比 ( $0.180 \pm 0.014$ ) に比べて、有意に大きい値を示した。これにより、ビキニ核実験起源

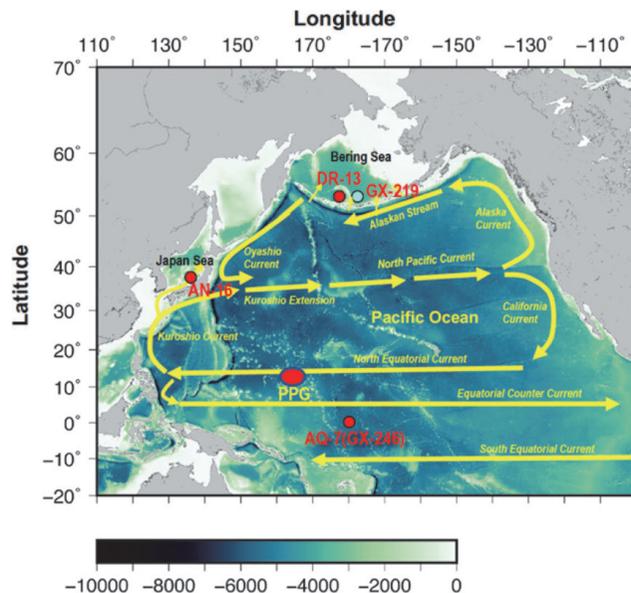


図6 中央赤道太平洋、ベーリング海及び日本海における海水試料採取地点。PPGはマーシャル諸島にあった米国太平洋核実験場 (Pacific Proving Grounds) を、黄色の矢印は模式化した海洋表層の海流を示す。

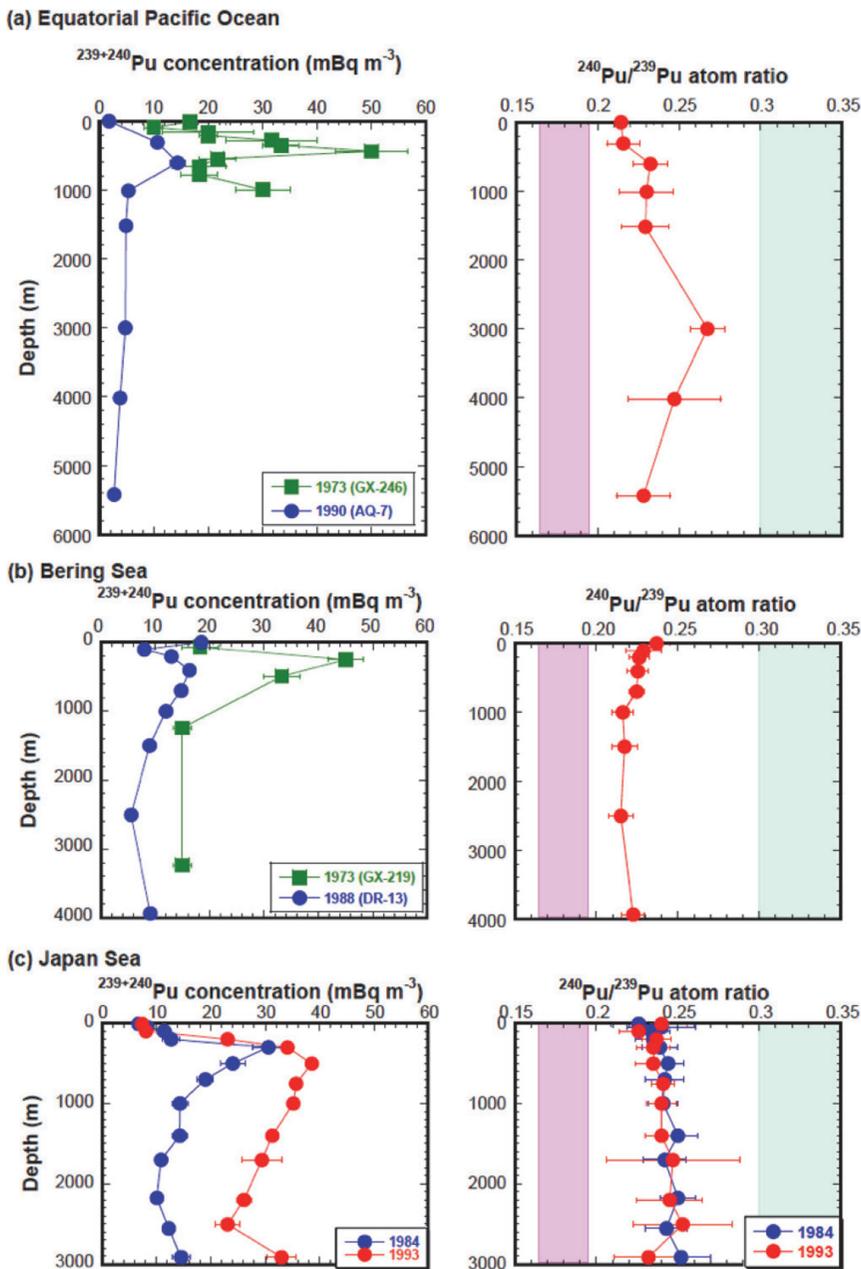


図 7 中央赤道太平洋, ベーリング海及び日本海における海水中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度の時間変化と  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の鉛直分布. 紫色及び緑色の同位体比の網掛けは, それぞれ, グローバルフォールアウト比 ( $0.180 \pm 0.014$ ) 及びビキニ核実験起源比 ( $0.30\text{--}0.36$ ) を示す.

のプルトニウムが中央赤道太平洋の深海にまで存在していることが明らかになった. なお, 南太平洋 (東経 170 度: 南緯 5 度) においても同様の結果が得られている. 中央赤道太平洋の全海水柱中に存在するプルトニウムのうち, 40% ( $11.1 \text{ Bq/m}^2$ ) がビキニ核実験起源, 残りの 60% がグローバルフォールアウト起源と見積もられた (Yamada and Zheng, 2012).

## 6.2 ベーリング海における海水中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

ベーリング海では、中央赤道太平洋と同様に、1973年のGEOSECS航海で得られた $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度(GX-219; 緑四角)に比べて、15年後(DR-13; 青丸)には有意の減少が観測された(図7-(b))。その減少率は $2.6 \pm 0.2 \text{ Bq/m}^2/\text{yr}$ と見積もられ、中央赤道太平洋に比べて3倍程度大きい値であった。これは、ベーリング海が世界で最も生物生産量が大きい海域のひとつであり、活発な粒子によるスキベンディングにより、プルトニウムが海水柱中から除去されたことに起因すると考えられる。海水柱中の存在量は $37.1 \pm 0.9 \text{ Bq/m}^2$ であり、グローバルフォールアウトによる大気からの積算降下量( $52.0 \text{ Bq/m}^2$ )に比べて70%程度であった。ベーリング海における $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は、海面から海底直上まで、グローバルフォールアウト比( $0.180 \pm 0.014$ )に比べて、有意に大きい値を示した。これは、ピキニ核実験起源のプルトニウムが存在していることを示しており、ピキニ核実験起源のプルトニウムがベーリング海の深海にまで及んでいることが我々の研究により初めて明らかになった(Yamada and Zheng, 2020)。ピキニ核実験起源のプルトニウムが北赤道海流、黒潮、黒潮続流、北太平洋海流、アラスカ海流、アリューシャン海流によってベーリング海へ移行し(図6)、粒子による吸着・除去と粒子の沈降及び溶解・脱着が起こったことによると結論づけた。

## 6.3 日本海の大和海盆における海水中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

日本海は最大水深3700mを超える太平洋の縁辺海であるが、隣接する海洋とは4つの浅く(最大130m)狭い海峡でのみつながっており、底の深いお椀のような形をした半閉鎖的の海域である(図2)。また、外洋で見られる様々な地球規模での現象が存在していることから、地球環境変化を先取りする「ミニ海洋」とも呼ばれている。

中央赤道太平洋及びベーリング海では、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と海水柱中の存在量の減少が見られた(図7-(a); (b))。これとは逆に、日本海では時間とともに $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度が増加しており(図7-(c))、その増加率は $5.1 \pm 0.2 \text{ Bq/m}^2/\text{yr}$ であることを発見した(Yamada and Zheng, 2010)。海水柱中の存在量は、9年間で $42.8 \text{ Bq/m}^2$ から $86.6 \text{ Bq/m}^2$ へと約2倍になった。日本海大和海盆の緯度帯( $30\text{--}40^\circ\text{N}$ )におけるグローバルフォールアウトによる大気からの積算降下量は $42.2 \text{ Bq/m}^2$ と見積もられており(UNSCEAR, 2000)、海水柱中の存在量の $86.6 \text{ Bq/m}^2$ は積算降下量に比べて2倍のプルトニウムが存在していることになる。また、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比は、海面から海底直上までほぼ一定の値( $0.239 \pm 0.004$ )を示し、時間変化も見られなかった。この同位体比はグローバルフォールアウト比( $0.180 \pm 0.014$ )に比べて有意に大きい値であり、ピキニ核実験起源のプルトニウムが存在していることを意味しており、海水柱中のプルトニウムの40%がピキニ核実験起源であると見積もられた。ピキニ核実験起源のプルトニウムが北赤道海流、黒潮を経由して、対馬海峡を通して日本海に流入し蓄積したものと考えられる。対馬海峡を通して日本海へ流入した $^{239+240}\text{Pu}$ は $2.6 \times 10^4 \text{ Bq/m}^2/\text{yr}$ と見積もられ、この流入量のうち、ほんのわずかな量である0.02%が日本海に留まれば、この増加率( $5.1 \pm 0.2 \text{ Bq/m}^2/\text{yr}$ )を説明することができる(Yamada and Zheng, 2010)。

## 謝 辞

本稿は千葉県鴨川市にある城西国際大学観光学部において開催された日本温泉科学会第73回大会での特別講演の内容をまとめたものである。特別講演の機会を与えていただいた内野栄治大会委員長及び本誌への執筆の機会をいただいた長島秀行編集委員長に感謝申し上げます。本稿で使用した地図は池上隆仁博士に作図していただいた。

## 引用文献

- Bowen, V.T., Noshkin, V.E., Livingston, H.D. and Volchok, H.L. (1980) : Fallout radionuclides in the Pacific Ocean ; vertical and horizontal distributions, largely from GEOSECS Stations. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **49**, 411-434.
- Dahlgard, H., Eriksson, M., Nielsen, S.P. and Joensen, H.P. (2004) : Levels and trends of radioactive contaminants in the Greenland environment. *Sci. Total Environ.*, **331**, 53-67.
- Diamond, H., Fields, P.R., Stevens, C.S., Studier, M.H., Fried, S.M., Inghram, M.G., Hess, D.C., Pyle, G.L., Mech, J.F., Manning, W.M., Ghiorso, A., Thompson, S.G., Higgins, G.H., Seaborg, G.T., Browne, C.I., Smith, H.L. and Spence, R.W. (1960) : Heavy isotope abundances in 'Mike' thermonuclear device. *Phys. Rev.*, **119**, 2000-2004.
- Kelley, J.M., Bond, L.A. and Beasley, T.M. (1999) : Global distribution of Pu isotopes and  $^{237}\text{Np}$ . *Sci. Total Environ.*, **237/238**, 483-500.
- Krey, P.W., Hardy, E.P., Pachucki, C., Rourke, F., Coluzza, J. and Benson, W.K. (1976) : Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil. In : *Transuranium nuclides in the environment*. IAEA-SM-199/39, Vienna, IAEA, pp. 671-678.
- Kudo, A., Mahara, Y., Kauri, T. and Santry, D.C. (1991) : Fate of Plutonium Released from the Nagasaki A-Bomb, Japan. *Water Sci. Tech.*, **23**, 291-300.
- Hamilton, T.F. (2004) : Linking legacies of the Cold War to arrival of anthropogenic radionuclides in the oceans through the 20th century. In : *Livingston, H.D., (Ed), Radioactivity in the Environment*, vol. 6. *Marine Radioactivity*. Elsevier Ltd, Oxford, pp. 23-78.
- Hardy, E.P., Krey, P.W. and Volchok, H.L. (1973) : Global inventory and distribution of fallout plutonium. *Nature*, **241**, 444-445.
- Lindahl, P., Lee, S.-H., Worsfold, P. and Keith-Roach, M. (2010) : Plutonium isotopes as tracers for ocean processes : A review. *Mar. Environ. Res.*, **69**, 73-84.
- Lindahl, P., Worsfold, P., Keith-Roach, M., Anderson, M.B., Kershaw, P., Leonard, K., Choi, M.-S., Boust, D. and Lesueur, P. (2011a) : Temporal record of Pu isotopes in inter-tidal sediments from the northeastern Irish Sea. *Sci. Total Environ.*, **409**, 5020-5025.
- Lindahl, P., Asami, R., Iryu Y., Worsfold, P., Keith-Roach, M. and Choi, M.-S. (2011b) : Sources of plutonium to the tropical Northwest Pacific Ocean (1943-1999) identified using a natural coral archive. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **75**, 1346-1356.
- UNSCEAR (2000) : Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes. Vol. I, Sources. United Nations, New York. 654 pp.
- UNSCEAR (2008) : Sources and Effects of Ionizing Radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation UNSCEAR 2008 Report to the General Assembly, with scientific annexes. Vol. II, Effects. Annex D : Health effects due to radiation from the Chernobyl accident. United Nations, New York. 313 pp.
- Wang, Z.L. and Yamada, M. (2005) : Plutonium activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in sediment cores from the East China Sea and Okinawa Trough : Sources and inventories. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **233**, 441-453.
- Yamada, M., Zheng, J. and Wang, Z.L. (2007) :  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in seawater from Sagami Bay, western Northwest Pacific Ocean : sources and scavenging. *J. Environ. Radioact.*, **98**, 274-284.

- Yamada, M. and Zheng, J. (2010) : Temporal variation of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratio and  $^{239+240}\text{Pu}$  inventory in water columns of the Japan Sea. *Sci. Total Environ.*, **408**, 5951–5957. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2010.08.054.
- Yamada, M. and Zheng, J. (2012) :  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$  inventories and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in the equatorial Pacific Ocean water column. *Sci. Total Environ.*, **430**, 20–27. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2012.04.065.
- Yamada, M. and Zheng, J. (2020) :  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in water columns from the North Pacific Ocean and Bering Sea : Transport of Pacific Proving Grounds-derived Pu by ocean currents. *Sci. Total Environ.*, **718**, 137362. DOI: 10.1016/j.scitotenv.2020.137362.
- Yamada, M., Oikawa, S., Shirotani, Y., Kusakabe, M. and Shindo, K. (2021) : Transuranic nuclides Pu, Am and Cm isotopes, and  $^{90}\text{Sr}$  in seafloor sediments off the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant during the period from 2012 to 2019. *J. Environ. Radioact.*, **227**, 106459. DOI: 10.1016/j.jenrad.2020.106459.
- Yamamoto, M., Ishiguro, T., Tazaki, K., Komura, K. and Ueno, K. (1996) :  $^{237}\text{Np}$  in Hemp-palm leaves of *Bontenchiku* for fishing gear used by the Fifth Fukuryu-Maru : 40 years after “Bravo”. *Health Phys.*, **70**, 744–748.
- Yoshida, S., Muramatsu, Y., Yamazaki, S. and Ban-nai, T. (2007) : Distribution of nuclear bomb Pu in Nishiyama area, Nagasaki, estimated by accurate and precise determination of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  ratio in soils. *J. Environ. Radioact.*, **96**, 85–93.
- Zheng, J. and Yamada, M. (2004) : Sediment core record of global fallout and Bikini close-in fallout Pu in Sagami Bay, western Northwest Pacific margin. *Environ. Sci. Technol.*, **38**, 3498–3504.
- Zheng, J. and Yamada, M. (2005) : Vertical distributions of  $^{239+240}\text{Pu}$  activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in the sediment cores : implications for the sources of Pu in the Japan Sea. *Sci. Total Environ.*, **340**, 199–211.
- Zheng, J. and Yamada, M. (2006a) : Inductively coupled plasma-sector field mass spectrometry with a high-efficiency sample introduction system for the determination of Pu isotopes in settling particles at femtogram levels. *Talanta*, **69**, 1246–1253.
- Zheng, J. and Yamada, M. (2006b) : Determination of Pu isotopes in sediment cores in the Sea of Okhotsk and the NW Pacific by sector field ICP-MS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **267**, 73–83.
- Zheng, J., Tagami, K. and Uchida, S. (2013) : Release of plutonium isotopes into the environment from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: what is known and what needs to be known. *Environ. Sci. Technol.* **47**, 9584–9595.