

# 環境放射能研究—特に超ウラン元素を追い求めて

金沢大学・環日本海域環境研究センター・低レベル放射能実験施設 教授 山本 政儀

## 1. はじめに

私は、金沢大学の理学部・化学科の学生として、阪上正信先生の放射化学講座で放射化学を専攻した後、原子力発電所周辺の環境放射能の調査・研究(福井県衛生研究所)、北陸大学薬学部の放射薬品学教室で放射性医薬品と環境放射能を研究し、1986年チェルノブイリ事故直後の7月に金沢大学理学部附属・低レベル放射能実験施設に異動した。気が付けば、あっという間に40年余りが経過した。この間、幸いにも一貫して放射性核種・放射線と共に歩むことができ、アルファ(α)線を放出する天然放射性元素U、Th、Ra、Rn、Poに加えて、特にプルトニウムなどのα線を放出する人工放射性元素、超ウラン元素諸核種の分析・測定法の開発、環境中での挙動、広島・長崎、イギリスのセラフィールド核燃料再処理工場からの放射性廃液で高濃度に汚染されているアイリッシュ海の汚染、さらに中央アジアのカザフスタンにある旧ソ連セミパラチンスク核実験場及びその周辺の環境放射能汚染や住民への放射線影響研究、天然および人工の放射性核種をトレーサーとする地球・環境化学研究に取り組んできた。最近は、福島第一原子力発電所事故に絡む超ウラン元素にも取り組んでいる。超ウラン元素は、馴染みが薄いと思われるが、92番元素のウランよりも原子番号の大きい元素の総称(図1)で、現在環境に存在する超ウラン元素の殆どは核時代の幕開けとなる大気圏内核実験からの地球規模フォールアウト(global fallout)や核施設からの漏洩・放出に由来する。これらの元素は、それ自身化学的毒性が強く、生物学的に危険なα線を放出し、かつ物理的半減期の長い核種(表1)が多くキャリアー・フリー状態でⅢ～Ⅵ価の原子価状態をとりうるなどの理由から、それらのレベル、分布、存在状態、環境挙動、人体への影響研究が重要となり、これまでに膨大な量の調査・研究が実施されてきた。また、地球化学の諸現象を解明するためのトレーサーとし

ても有用視されてきた。原子エネルギーの利用が続く限り、このような研究の継続と若い研究者の育成・確保が必須と思われる。ここでは、私が“面白いと思った環境の超ウラン元素”に関する自身の幾つかの研究を取り上げそれらの概略を紹介してみたい。

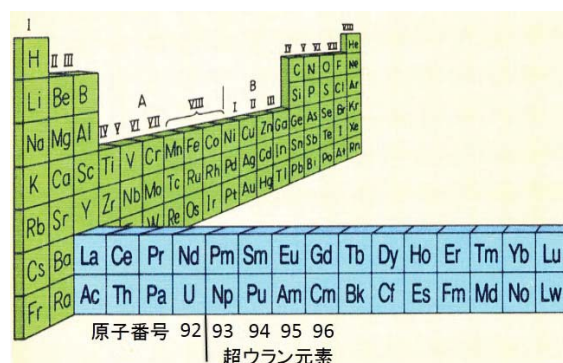


図1 周期律での超ウラン元素の位置

(Americium and Curium Chemistry and Technology, Edited by N. M. Edelstein, J. D. Navratil & W. W. Schulz ; Published by D. Reidel Publishing Company, 1985. の表紙カバーから引用)

表1 環境放射能分野で重要な超ウラン元素諸核種

Isotope	Half-life	Mode of decay	E <sub>α</sub> (MeV)
<sup>237</sup> Np	2.144×10 <sup>6</sup> y	α	4.790, 4.774
<sup>239</sup> Np	2.355 d	β <sup>-</sup>	
<sup>238</sup> Pu	87.74 y	α	5.499, 5.456
<sup>239</sup> Pu	2.411×10 <sup>4</sup> y	α	5.157, 5.144
<sup>240</sup> Pu	6563 y	α	5.188, 5.124
<sup>241</sup> Pu	14.35 y	β <sup>-</sup>	
<sup>241</sup> Am	432.2 y	α	5.486, 5.443
<sup>242</sup> Am	16.0 h	β <sup>-</sup> , EC	
<sup>242m</sup> Am	141 y	IT	
<sup>242</sup> Cm	162.94 d	α	6.113, 6.069
<sup>243</sup> Cm	29.1 y	α	5.785, 5.742
<sup>244</sup> Cm	18.10 y	α	5.805, 5.762

Data from KARLSRUHER Nuclidekarte, 8th Edition 2012.

## 2. 広島原爆の“黒い雨”に絡む放射能問題<sup>1), 2)</sup>

大学でアクチニウム系列の  $^{227}\text{Ac}$  ( $T_{1/2}=21.7\text{ y}$ ,  $\beta^-$  (98.5%) &  $\alpha$  (1.2%)) の分析・定量法の研究を行い、卒業 (1973/3) 後、環境中の土壌や海底土試料の Pu や  $^{241}\text{Am}$  のレベル、分布、移行挙動の研究をしてきた。1980 年頃、広島・長崎の原爆 fallout 試料に出会い化学分離、 $\alpha$  線スペクトロメトリーで測定する機会を得た。広島試料について、1976 年当時に採取した土壌の Pu 濃度および同位体比 ( $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Pu}$ ) などを測定したが、同位体比については global fallout 値と大差なかった。一方、長崎では、西山地区で高濃度の  $^{239,240}\text{Pu}$  (10cm 深さ 3 試料で 2,500-5,000 Bq/kg) を検出、さらに  $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$  放射能比が 0.055 前後と低いことを確認した。当時助教授であった小村和久先生と共に、Lx/ $\alpha$  線測定を併用した新規な方法で長崎原爆の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比が 0.042 前後であることを見出し、95% 程度の  $^{239}\text{Pu}$  を含む Pu が原爆材料として使用されていることが分かった。今にして思えば小村先生との懐かしい思い出である。それから、20 年余り広島・長崎における放射能とは縁がなかったが、10 年ほど前から、原爆の際に降った黒い雨に含まれている放射性物質からの被曝 (以前からも問題視されていたのだが) が社会的関心を呼ぶようになり、黒い雨の降下時間推移、降下範囲、この雨等による放射性物質の降下量とそれに伴う被曝線量がどの程度であったのかの検討が緊急の研究課題になってきた。原爆投下から 68 年経過した今日においてでさえ、広島原爆フォールアウト (close-in fallout) の実体、さらに、黒い雨による被曝線量評価は未解決のままであった。爆発直後に放出された中性子やガンマ線以外に、原爆投下 20~30 分後に広島市の北および北西方向に“黒い雨 (black rain)”が降り、これにより原爆で生成した核分裂放射性核種が降下したことが知られている。中性子やガンマ線からの線量は、現在 DS02 (Dose System 2002) と呼ばれる被曝線量評価システムで評価されているが、上記の DS02 システムでは、この黒い雨に伴うフォールアウトからの被曝線量は寄与が少ないと考えられ考慮されていない。

1976 年と 1978 年に、厚生省が中心となり、広島市の爆心地 30 km 圏内 16 方位で、きめ細かな土壌試料の採取を行い、残留放射能の調査を行った。物理的半減期の長い核

分裂生成核種  $^{137}\text{Cs}$  ( $T_{1/2}=30.17\text{ y}$ ) を中心に測定が行われたが、1950 年から 1960 年代はじめに行われた米ソの大気圏内核実験からの大量の地球規模フォールアウト (global fallout) のために、広島原爆由来のフォールアウト  $^{137}\text{Cs}$  の痕跡を見出すことが極めて困難であった。そこで、global fallout の影響を受けず、当時の close-in fallout の降下を保存している試料に目が向けられた。幸い、市民の協力が得られ、原爆直後 (1~4 年) に建築されて最近解体する建物が幾つか見つかり、その床下の土壌が最適ではないかということになり  $^{137}\text{Cs}$  測定を広島大・星グループらと共に試みた。

爆心地から主に北および北西方向の 20 地点 (図 2) の家屋床下から採取した土壌 (1 家屋から 3~5 サイト: 約 30cm 深さの土壌コア) について、試料 100 g 程度を用いて  $^{137}\text{Cs}$  および  $^{239,240}\text{Pu}$  濃度 (4 地点について  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比) を測定した。広島原爆は  $^{235}\text{U}$  爆弾であることを考慮すると、Pu 生成は無視できるので、もし何がしかの Pu が検出されるならば、床下土壌は global fallout で汚染されている可能性が高い。Pu は、このように global fallout 汚染有無の indicator として用いられた。非破壊測定での  $^{137}\text{Cs}$  検出は困難であったので、化学分離 (試料 100 g 程度を使用) を (財) 九州環境管理協会にお願いし、測定を尾小屋地下測定室の極低バックグラウンド Ge 検出器で行った。全ての地点で  $^{137}\text{Cs}$  を数~数 100 Bq/m<sup>2</sup> (大部分は 10~50 Bq/m<sup>2</sup>)、 $^{239,240}\text{Pu}$  を 0.1~24 Bq/m<sup>2</sup> (大部分は 1 Bq/m<sup>2</sup>以下) の範囲で検出した (図 3)。また 4 地点の試料について測定した  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は 0.13~0.19(global

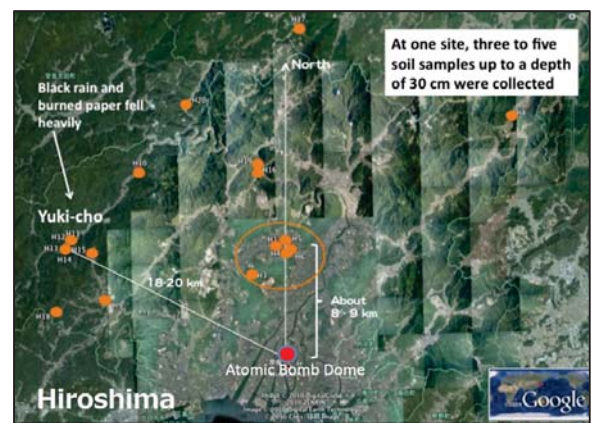


図 2 1945-1949 年当時に建築され最近解体された建物の床下土壌採取地点 (広島)

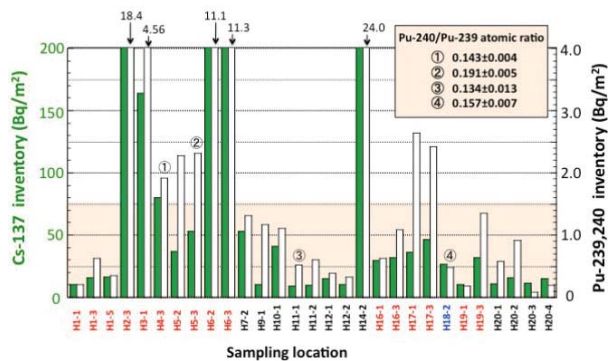


図3 床下土壌の<sup>137</sup>Csと<sup>239,240</sup>Pu蓄積量および<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu原子数比

fallout 値 0.18) であった。今回検出された<sup>239, 240</sup>Pu および<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 同位体比は、床下土壌が長年の間に 1950 年代から 1960 年代はじめの global fallout で多かれ少なかれ汚染されている可能性を強く示唆するが、家屋が建築された 1945～1949 年代にも長崎を初めとする Pu 爆弾の原爆が幾つか実施されている。青山、広瀬(気象研究所)の<sup>137</sup>Cs 降下量を基にして 1945～1949 年頃の<sup>239, 240</sup>Pu 降下量を試算すると 0.1 Bq/m<sup>2</sup>程度になる。地理的、気象的条件等を考慮して 0.5Bq/m<sup>2</sup> を上限として、これ以下の<sup>239, 240</sup>Pu を検出した地点での<sup>137</sup>Cs が全て広島原爆由来すと仮定すると、当時 100 Bq/m<sup>2</sup>程度の降下が見積もられた。また検出された<sup>239,240</sup>Pu が 1950 年代から 1960 年代はじめの global fallout に由来するとして、<sup>137</sup>Cs 降下量を見積もり、検出された<sup>137</sup>Cs 蓄積量を補正すると最大で当時 50 Bq/m<sup>2</sup>の降下が予想された。今回試料を採取した地域に限定して、広島原爆の close-in fallout <sup>137</sup>Cs 降下量は 50～100 Bq/m<sup>2</sup>程度と推定された。採取地点の床下土壌の建築前や建築時の整地状況、更に原爆直後の台風(1945 年 9 月の枕崎台風)・大洪水などによる土壌浸食なども踏まえてさらに詳細な検討が、また、当時降下量が多いと言われている己斐、高須地域での調査・研究も必要であると考えている。今後、長崎原爆についても、close-in fallout 降下量とそれに伴う被曝線量評価を継続したい。また、この研究中に広島原爆は<sup>235</sup>U 爆弾であるので<sup>236</sup>U ( $T_{1/2}=2.34 \times 10^7$  y,  $\alpha$ ) が<sup>235</sup>U ( $n, \gamma$ ) 核反応で出来ているのではないかと思い、この核種の測定をウィーン大学のタンデム加速器質量分析計(AMS)で試みた。<sup>236</sup>U は極微量検出されたが、<sup>236</sup>U/<sup>239, 240</sup>Pu あるいは<sup>236</sup>U/<sup>137</sup>Cs 比などは global fallout の範囲内で

あり、当時の close-in fallout の降下状況把握には利用できなかった(広島大・坂口らとの共同で行われ、現在この核種の海洋水塊循環のトレーサーとしての有用性が検討されている)。結果はともかくとして、久しぶりに忘れかけていた多量の試料からの Pu 化学分離と低レベル放射能測定、さらに AMS による<sup>236</sup>U 測定の醍醐味を味わわせてくれた。

### 3. ビキニ原爆被災事故-降下物中の超ウラン元素諸核種<sup>3)</sup>

1945 年 7 月 16 日、米国・ニューメキシコ州のアラモゴルドで世界最初の原子爆弾の実験が行われ、1 ヶ月も経たないうちに広島と長崎の原爆悲劇が起こった。その後、米ソの核競争の中で、米国は第一回の水爆実験(1952/10/31)、10.4 Mt の通称“マイク”の実験を南太平洋のエニウエトク島で行った。旧ソ連も 1953/8/12、セミパラチンスク核実験場(現：カザフスタン共和国)で最初の水爆実験を実施した。このような状況を受けて米国はその翌年の 1954 年に前回は上回る大規模な第二回の水爆実験(CASTELE)を開始した。このシリーズの最初の爆発が 3/1(米国日時、2/28)、ビキニ島で実施された 15 Mt の水爆、通称“ブラボー”と呼ばれる実験であった。当時この海域には 900 隻以上の日本からのマグロ延縄漁船が操業しており、ビキニ環礁の東方約 160 km 水域にいた第五福竜丸が、危険区域の約 30 km 外側にいたにもかかわらず乗組員 23 名が被災した不幸な事件が発生した。これが、いわゆる「ビキニ原爆被災事件」である。この事件は、金沢大学と無縁ではなく、理学部化学科の木羽敏泰教授らが金沢の近江町市場に出荷された原爆マグロの放射能測定に尽力された。当時の放射能測定で特筆すべき点は、日本の科学者達が降下灰中に<sup>238</sup>U ( $n, 2n$ ) 核反応で生成する<sup>237</sup>U ( $T_{1/2}=6.75$  d,  $\beta^-$ ) を検出(全放射能強度の 20%を占める)し、原爆の正体(3F 爆弾：Fission-Fusion-Fission)を解明する糸口となった。<sup>237</sup>U は半減期が短いので、その壊変生成物<sup>237</sup>Np ( $T_{1/2}=2.14 \times 10^6$  y,  $\alpha$ ) の検出を試みたが、微弱過ぎて定量は不可能であったと述べられている。

第五福竜丸の展示館の開館(1976/6/10)と時を同じくして、金沢大学に理学部附属の低レベル放射能実験施設が開

設された。被災後 25 年を経た 1979 年 4 月頃に、阪上正信教授と小村和久助教授らが展示館を訪れ、展示館内の試料の *in-situ* Ge 測定を行い  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$ 、 $^{125}\text{Sb}$ 、 $^{155}\text{Eu}$ 、 $^{241}\text{Am}$  を検出した。その後、研究用にとほんの少し頂いたと思われるシュロ（ボンテンチク：延縄の浮きの目印に使用されており、高濃度に汚染）試料が当実験施設に保存されていた。環境試料中の  $^{237}\text{Np}$  分析・測定法も国内で一早く開発し、土壌中での蓄積量、降下量、更に  $^{237}\text{Np}/^{239, 240}\text{Pu}$  放射能比など検討していた。当時検出された  $^{237}\text{U}$  がどの程度の放射能強度であったのか、他の放射性核種との放射能比はどの程度であったのかに興味を持ち、この試料（乾燥で 0.4g 程度）の  $^{237}\text{Np}$  を含む他の超ウラン元素諸核種の測定に挑戦した（1995 年頃）。 $^{137}\text{Cs}$  や  $^{60}\text{Co}$  が図 4 に示すように明瞭に検出され“死の灰”で汚染されていることを確かめた。 $\alpha$  線測定の結果を表 2 に示すが、ビキニ原爆由来の  $^{237}\text{Np}$  を初めて検出した。シュロの葉に付着した  $^{237}\text{Np}$  から推定した  $^{237}\text{U}$  放射能  $10^6$  Bq/g（乾燥物）を基に当時の“死の灰”の全放射能を見積もると、 $10^6/0.2$ （全放射能の中で  $^{237}\text{Np}$  放射能が占める割合：文献値）/0.01~0.001（シュロ乾燥物中の死の灰の割合：仮定） $= 5 \times 10^9 \sim 5 \times 10^{10}$  Bq/g（死の灰）の範囲の非常に高い放射能強度になる。さらに、最も興味深かったのは、表 3 に示すように、東大の木村健二郎先生らが評価した  $^{237}\text{U}/^{239, 240}\text{Pu}$  放射能比（1954/3/26 現在）が今回の測定から評価した値と測定誤差内でよく一致していることである。当時の科学者達は、恐らく上記で推定した高い放射能試料で比較的高い放射線被曝を受けながら、GM 計数管で徹夜しながら分析・測定を進めてい

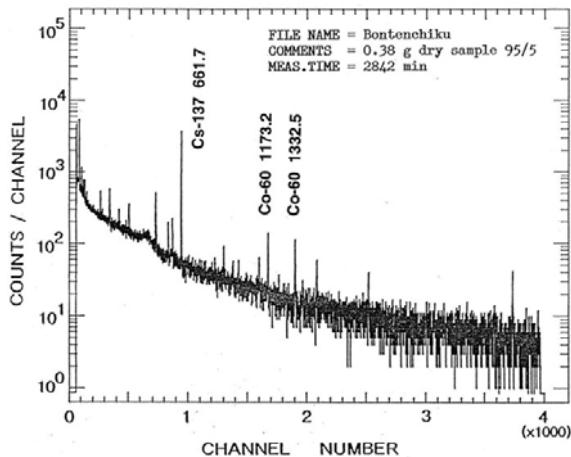


図 4 シュロ (Bontenchiku) 試料のガンマー線スペクトル

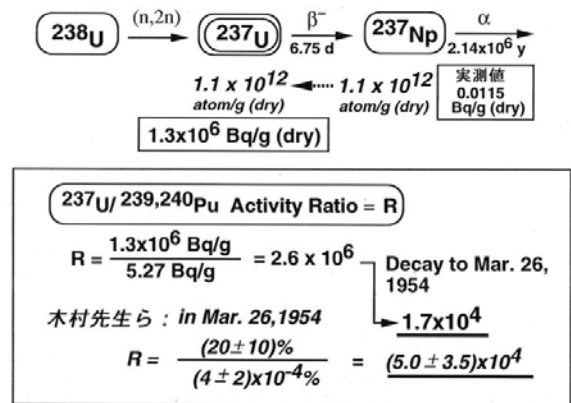
たと推察できる。Pu は、化学分離操作を何回も繰り返し原子核乾板上にできる Pu からの  $\alpha$  線の飛跡を顕微鏡で入念に観察して求められている。改めて当時の科学者達の測定能力、特に“分析能力”の高さに感銘させられる。現在、分析法や測定法の進歩は目覚ましく、放射能測定が比較的簡単にできるようになった。先人のビキニ偉業を噛みしめ、分析技術を高めながら、この分野の夢を追いかけていきたいものである。

表 2 シュロ試料で測定されたアクチノイド諸核種、 $^{60}\text{Co}$  及び  $^{137}\text{Cs}$  濃度（シュロ試料はマグロ延縄漁の目印に使用されていた物）

Radionuclide	Activity (Bq/g dry)	Activity relative to $^{239,240}\text{Pu}$	Atom relative to $^{239}\text{Pu}$
$^{239,240}\text{Pu}$	5.27 ± 0.11	1.0	1.0
$^{239}\text{Pu}$	2.41 ± 0.23 <sup>a</sup>		0.32 ± 0.03
$^{240}\text{Pu}$	2.86 ± 0.28 <sup>a</sup>		(7.91 ± 0.92) × 10 <sup>-6</sup>
$^{238}\text{Pu}$	0.0053 ± 0.0003	0.0010 ± 0.0001	(3.78 ± 0.23) × 10 <sup>-3</sup>
$^{241}\text{Pu}$	15.4 ± 0.3	2.92 ± 0.08	0.023 ± 0.002
$^{241}\text{Am}$	3.13 ± 0.08	0.59 ± 0.02	0.42 ± 0.04
$^{237}\text{Np}$	0.0115 ± 0.0008	0.0022 ± 0.0002	(4.18 ± 0.43) × 10 <sup>-3</sup>
$^{238}\text{U}$	0.055 ± 0.002	0.010 ± 0.0004	
$^{235}\text{U}$	0.0026 ± 0.0004		
$^{234}\text{U}$	0.061 ± 0.002	0.012 ± 0.0005	
$^{60}\text{Co}$	0.091 ± 0.011	0.017 ± 0.002	
$^{137}\text{Cs}$	1.86 ± 0.05	0.35 ± 0.01	

All data are as of the date of measurements (May 1995). The error indicates one standard deviation of counting statistics.  
<sup>a</sup> Measured previously based on the measurement of Lx/alpha-ray activity ratio (Komura et al. 1984).

表 3 爆発当時（1954/3/1）のシュロ試料中の  $^{237}\text{U}$  放射能



#### 4. 英国・アイリッシュ海（Sellafield 核燃料再処理工場沖合）沿岸堆積物—海底堆積物における放射性核種の分布と挙動<sup>4)</sup>

1990 年頃から、イギリスのウエールズ大学・海洋学部 の D.J.Assinder 博士と共同で、セラフィールド核燃料再処理工場からの放射性廃液で比較的高濃度に汚染されてい

るアイリッシュ海をフィールドに再処理工場周辺の沿岸海域の堆積物（コア試料）を用いて、超ウラン元素諸核種の汚染状況、分布、蓄積量を測定し、それら元素の堆積物への移行挙動を研究してきた。

沿岸帯は、物質の分散はもとより化学的には溶存物質の不溶性、沈殿、再溶出、生物的には物質代謝が集中的に展開される海域であり、物質の収支と循環が最も活発に演じられる場所である。生物学的に危険な $\alpha$ 線放射体でしかも長寿命が多い超ウラン元素諸核種の沿岸帯での挙動研究は、汚染が始まって以来60年程度しか経過しておらず過度的現象を見ているに過ぎない。長期展望に立った継続的な研究が必要であるが、一般の沿岸環境ではレベルが低く測定が困難な状況にある。イギリスのアイリッシュ海はこのような超ウラン元素の存在状態、移行挙動を研究するフィールドとして最適である。国内の原子力利用施設の殆どが沿岸地域に立地していることを考えると、上記諸過程を系統的、総合的に質・量の両面からその実態を把握しておくことは、国内の環境放射能研究面からのみならず地球化学研究面からも重要である。

セラフィールド核施設（図5）は、イギリス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、そこには核燃料の加工施設、原子炉、再処理工場、核燃料および廃棄物の保管場が並ぶ。再処理工場は第二次世界大戦後の1952年に軍事用のPu製造目的で始まり、1964年には第二処理工場が稼動した。その規模と実績で並ぶのはフランスのラ・アーグ工場のみである。1952年以来、年間放出管理目標値以下で、低レベル放射性廃液を沿岸から約2 km先に放出し続けてきた。1970年代に最大の放出が有り、1980年代から種々の低減化対策がとられて激減した。1990年までに放出された $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ の総放出量は、それぞれ、 $3 \times 10^4$ （大気圏内核実験： $1.3 \times 10^6$ ）、 $7 \times 10^2$ （ $1.3 \times 10^4$ ）、 $9 \times 10^2$ （ $3 \times 10^3$ ）TBqである。Pu、Am、Cmの大部分は粒子（大部分が $\text{Fe}(\text{OH})_3$ であるflocで構成）として、一方、Npはどちらかと言えば溶存状態（恐らくV価）が多い割合で放出された。 $\alpha$ 粒子のhot-particleが存在しているが、環境に放出されると数ヶ月で可溶性になると報告されている。アイリッシュ海の海底土汚染の分布は一定ではなく、堆積物の粒度組成とも関連して時間の経過と共にその分布を大きく変化させている。工場から約

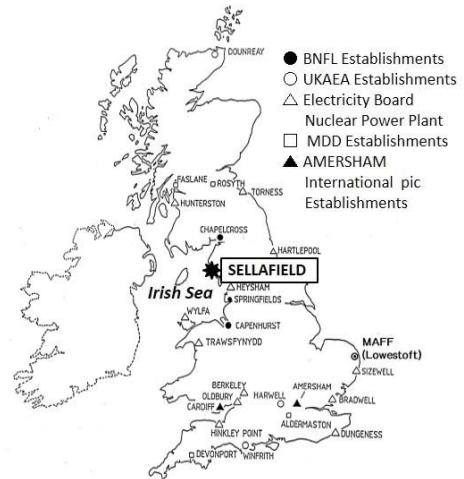


図5 放射性廃液の放出に関するイギリスの核施設

10 km南東に位置するEsk川河口で採取した堆積物コアについて測定した深度分布の一例を図6に示す。 $^{137}\text{Cs}$ に加えてNp、Pu、Am、Cm同位体全てを検出することができた。国内での沿岸表層堆積物の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は数Bq/kg程度なので、それと比べるとこの海域は数千倍高い濃度で汚染されている。1970～1980年当初は、沿岸域の地点間で大きな濃度差（放水口に近い地点で高く（数千Bq/kg）、遠方（約100 km以北または以南）では一桁低い）が見られたが、低減化対策がとられた1980年代後半からは地点間の濃度差が小さく一様になりつつある。アイリッシュ海に

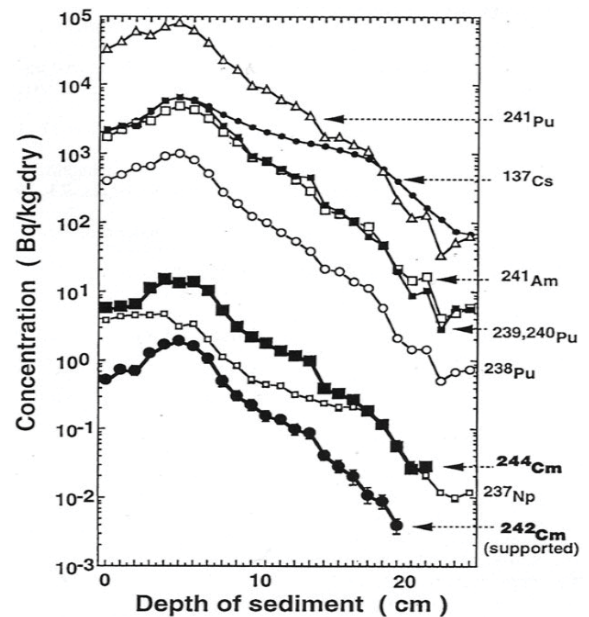


図6 Esk川河口で採取した堆積物中での超ウラン元素諸核種の深度分布

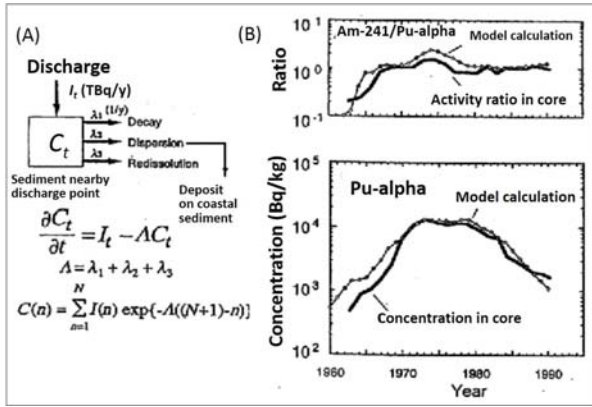


図7 (A) 放水口近傍から沿岸堆積物への放射性核種移行モデルと、(B)Esk湾で得た堆積物コア中のPu-alphaおよび<sup>241</sup>Am/Pu-alpha比とモデル計算との比較

放出された放射性核種の沿岸帯への移行には、溶存態として海流によって拡散する場合と、放水口近傍の高濃度汚染堆積物が粒子として拡散する場合の二つの移行メカニズムが考えられており、相互に絡み合いながら放出された放射性核種の沿岸帯への移行の時空間的分布を決定しているようである。Mackenzieらの粒子による輸送機構を表す単純なモデル(再処理工場からの供給と放出口周辺の堆積物への蓄積(壊変、粒子の分散、再溶解に依存))を用いて、今回測定した堆積物コアのモデル計算を行った結果の一例を図7に示すが、測定値をよく再現していることが確かめられた。放出量が1980年代に入って2桁以上に激減し、その現象に伴って人体への内部被曝線量も当初2桁以上減少することが期待されたが、実際には1桁程度しか減少していない。ひとたびこのような沿岸および潮間帯が長寿命放射性核種で汚染されるとその影響は長期に渡ることをアイリッシュ海は警告している。今回の福島第一原発事故による沿岸への超ウラン元素の放出は、不明な点もあるが、今のところ無視できるようなレベルであり、放射性Csを中心に動態調査・研究が行われている。

### 5. 旧ソ連核実験場セミパラチンスク周辺の環境放射能汚染と周辺住民の放射線被曝問題<sup>5)</sup>

放射線の人体影響研究は、広島・長崎の原爆被災者コホート数十万人の高線量率・高線量をベースにして発ガンへの影響、寿命調査などが行われ、その影響が国際放射線防護委員会(ICRP)で認定されてきた。しかしながら、通常

の被曝は、長期の低線量率・低線量が多く、原爆による瞬時の被曝からのリスクをそのまま低線量率・低線量被曝に適用することは疑問視されている。そのため、この難問題を現実的に解決するためには、大きな集団の長期の低線量率・低線量被曝の調査・研究が必須である。

旧ソ連の核実験場セミパラチンスクでは、1949~1989年の間に、地上で26回、大気圏内で87回、地下で346回の核実験が周辺住民にその危険を知らせることなく実施されてきた(図8)。それにより、数十万の住民が、低線量率で低線量から高線量まで被曝したとされている。世界では、米国のネバダを初めとして多くの地点で地上、大気圏内の核実験が行われたが、周辺住民が多数居住していて、しかも幅広い低線量率で長期被曝した集団は無く、このセミパラチンスクが最も適した集団であると考えられている。1994年に京都大学の「カザフスタンの経済再生と環境問題」の研究グループの分担者として始めてセミパラチンスクに行き、その後、広島大学原医研の星グループ、セミパラチンスク市にあるカザフスタン放射線医学環境研究所の研究者(B. I. Gusev, K. N. Apsalikovら)らと上記問題解決を目指して研究に着手してきた。セミパラチンスク周辺住民被曝の特徴は、長崎、広島での爆発時のγ、中性子線による直接被曝ではなく、大気中に拡散した放射性雲からの放射性降下物によるもので、200~300kmの範囲で降下し影響を及ぼした。それにより、外部被曝30~250cSv(1949~1992年間の総被曝線量)に加えて多量の内部被曝40~300cSvを受けたとされている。しかし、

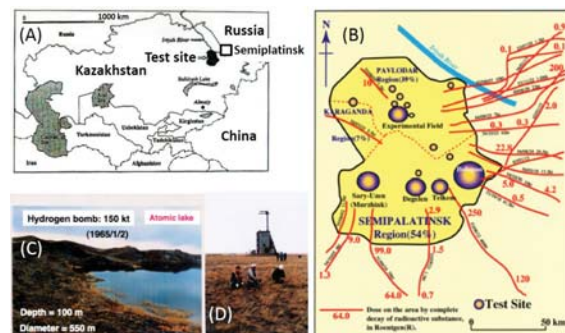


図8 (A) 旧ソ連セミパラチンスク核実験場の位置、(B) 周辺住民に被曝をもたらした主な地上・大気核実験、(C) 地下核実験で出来た原子の湖(atomic lake)と(D) 最初の核実験(1949/8/26)の跡

これらの外部・内部被曝線量は、旧ソ連およびカザフスタンの科学者らによって主として数学的モデルで推定されてきたものでその検証も含めてモデルの妥当性が問われてきた。我々は、核実験当時に住民が住んでいた集落内外で詳細な放射能土壌汚染（現在、検出できる核種は  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$ 、Pu 同位体）を明らかにし、 $^{137}\text{Cs}$  初期沈着量から空間線量を試算することを試みてきた。その他に、建物のレンガを用いた TLD 測定や歯を用いた ESR 測定による線量評価も実施（広島大・星グループ）してきた。

1994 年以來今日までに 30 数回訪れ、核実験場周辺に点在する集落を含む数多くの地域を移動しながら主に土壌試料（+飲料水）を採取し、日本に持ち帰り（50～100 kg/1 回調査）、主として  $^{137}\text{Cs}$  や Pu 同位体などを測定してきた。核実験場から南東方向のカラウル集落（砦のある村という意味）には、ユーラシア大陸の中心点、カザフスタンの詩人・文学・哲学者のアバイ・クナンバエフ生誕地などのモニュメントがあり、何回行っても飽きることの無い地平線が見渡せる広大な瓦礫と草原の大地である。

最初は、汚染の実態を把握するために広範囲の地域を調査した。当初、周辺大地が  $^{137}\text{Cs}$  で高濃度に汚染されていると思っていたが近傍の集落では数千～数万  $\text{Bq}/\text{m}^2$  と意外に低く、一方、原爆材料の Pu で比較的高濃度（数千  $\text{Bq}/\text{m}^2$ ）に汚染されていた。後日、近傍の土壌中 Pu の大部分が爆発時（ほんの一部が核分裂、残りの大部分は Pu のまま ( $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比 0.05 前後（図 9））に瞬時蒸発→凝集物（土壌など）に取り込まれた状態で存在していること、さらに近傍の土壌においては hot-particle が多く存在していることも明らかになった（図 10）。最も大きな被害を被ったドロン集落（核実験場から北西 110km：1948 年 8 月の最初の核実験による）を中心にきめ細かな調査（放射性雲の通過した位置、幅、降下量）を行い、 $^{137}\text{Cs}$  降下量の分布をベースにして、当時の  $^{137}\text{Cs}$  降下量（10,000～20,000  $\text{Bq}/\text{m}^2$ ）から他の核分裂生成核種（フラクシオネーションを考慮）も考慮した簡単なモデル計算で、外部被曝線量が 500 mGy 程度であることを見積もった（京大・今中先生と共同）。この値は、レンガ（TLD）や歯（ESR）から推定された値とも一致し、残留している  $^{137}\text{Cs}$  蓄積量からも評価可能であることが示唆された。このような手法を、ドロン集落以外の集落、南東方向に位置するサルジャー

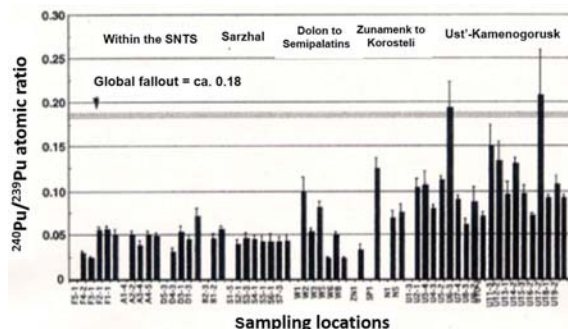


図 9 核実験場内外で採取した土壌中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  原子数比（核実験場内（Within the SNTS）やその近傍（Sarzhai Dolon）は、0.05（核分裂を免れた原爆 Pu 材料）、遠方（Zunamenk to Korosteli, Ust'-Kamenogorsk）は、それより高く 0.1 前後）

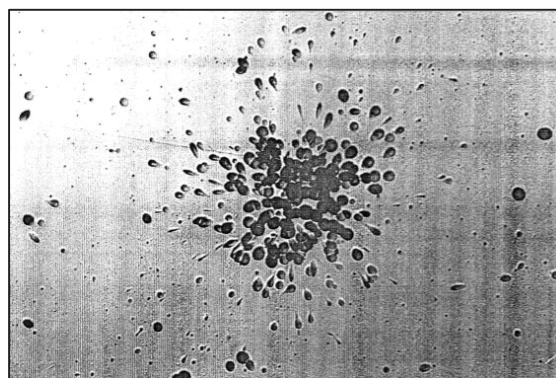


図 10 セミパラチンスク核実験場周辺で採取した土壌で検出された Hot-particle（強放射性粒子：CR-39 を用いた  $\alpha$  トラック）

（110 km）、カラウル（200 km）、南西方向に位置するカイナル集落（140 km）に適用し、主として外部被曝を評価してきた。しかし、最終ゴールは中々見えず、過去の内部評価も加えた線量評価の難しさを痛感している。今回、福島原発事故を受けて、最も重要なことは、何よりも優先して事故当初からの個人の被曝線量（外部+内部被曝）をできるだけ多くの住民に対して継続調査し、併せて健康調査を行うことである。人に対する低線量被曝のリスクの最終判断は、このような地味な調査研究を通じての疫学データに頼るしか無いだろう。

## 6. 福島第一原発事故—事故由来の超ウラン元素諸核種の検出を目指して<sup>6)</sup>

2011 年 3 月 11 日、東北地方太平洋沖で M 9.0 の巨大地震とそれに続く大津波が発生し、2 万人を超える住民が死

亡または行方不明になった（東日本大震災）。亡くなられた方々のご冥福を祈ると同時に、さらに東京電力福島第一原子力発電所の事故で避難を余儀なくされた方々、また被害を被った方々に心からお見舞い申し上げます。事故から3年経過したが、原発事故の被害は本当に底知れない広がりを見せている。住民の被曝を出来るだけ軽減する工夫と根拠のない「安心」ではなくて根拠のある「安心」、さらに汚染地域の除染が緊急の課題となっている。

これまでの膨大な調査・研究等によって、事故概要、環境に放出された放射性核種、特に放射性 I ( $^{131}\text{I}$ ) や放射性 Cs ( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) の放出量や汚染の広がり、汚染状況などが明らかになってきた。しかし、放射線影響の観点から重視されている  $^{90}\text{Sr}$  やプルトニウムをはじめとする超ウラン元素諸核種については、これら核種が測定困難な  $\beta$  あるいは  $\alpha$  線放射体のために当初情報が非常に少なかった。通常のウラン燃料を用いている原子炉においても Pu が生成しているのだが、特に事故を起こした原子炉の中で3号炉は燃料の一部に MOX 燃料 (Pu を含む燃料) を使用していたために、住民は毒性の高い Pu の環境放出を真っ先に懸念した。事故当初、東京電力の方から原発敷地内で採取した何地点かの土壌について、global fallout の約 0.03 値より 100 程度高い2前後の  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  放射能比が検出され、 $^{239, 240}\text{Pu}$  レベルは非常に低いが極微量の事故由来 Pu が放出されていることが報告された。2011年4月にいわき市から福島に通じる 20 km 圏外の道路脇で採取した土壌 (広島大・星グループ) や飯館村 (京大・今中グループ)、さらに5月に原発に近い大熊町で採取した土壌 (東北大・小池グループ) などについて、Pu 濃度とその同位体比の測定を行った。その結果、殆どの土壌で  $^{239, 240}\text{Pu}$  が検出されるが、レベルは低く、さらに上記した  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  比は 0.03 前後で、原発由来 Pu の存在を明確に検証できなかった。飯館村で汚染が酷い長泥地区で採取した土壌で唯一、0.7~1.5 範囲の  $^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  比を検出した。放医研の Zhen らは、幾つかの土壌や落ち葉試料で 100 (global fallout 値は現在 1.2 程度) を超える  $^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$  比を報告しており、周辺環境に極微量の原発由来 Pu が飛散していることが明らかになってきた。一般環境中には、過去の大気圏内核実験により、Pu 同位体 ( $^{238}\text{Pu}$ ,  $^{239}\text{Pu}$ ,  $^{240}\text{Pu}$ ,  $^{241}\text{Pu}$ ) が広く分布存在している。 $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$  存在度が最も多く、

降雨 (雪) の多い日本海側 (2,500 mm/y) での  $^{239, 240}\text{Pu}$  蓄積量は 80~150 Bq/m<sup>2</sup>、降雨の少ない太平洋側 (1,200 mm/y) では 30~50 Bq/m<sup>2</sup> である。原子炉でウラン燃料が燃やされると燃料ウラン (主に  $^{238}\text{U}$ ) と中性子との核反応、さらに生成した Pu と中性子との核反応により種々の Pu 同位体が生成され、 $^{239}\text{Pu}$  に対する存在度が燃焼度と共に増加する。それ故、原発由来 Pu の存在を検知あるいは識別する際には、濃度のみならず同位体比での検討が必須である。さらに、Pu よりも原子番号の大きい Am ( $^{241}\text{Am}$ ) や Cm ( $^{242}\text{Cm}$ ,  $^{243}\text{Cm}$ ,  $^{244}\text{Cm}$ ) も生成する。燃焼度の高い燃料においては、初期の頃、 $^{242}\text{Cm}$  ( $T_{1/2}=162\text{ d}$ ,  $\alpha$ ) が超ウラン元素諸核種の全  $\alpha$  線強度の中で最も大きな  $\alpha$  線寄与をする。原発由来の Pu が放出されていれば、Pu レベル以上の放射能強度で  $^{242}\text{Cm}$  が  $^{243}\text{Cm}$  や  $^{244}\text{Cm}$  と共に検出される可能性が高いと考え、これら核種の検出をさらに試みた。通常のコアサンプラーで採取した土壌では、採取面積が小さく検出困難であったので、道路脇に存在するダストを含む土壌まじりの試料に目を向けた。これら試料は、外見が黒く見えるので「黒い物質」と呼ばれ、 $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  で高濃度に汚染されている。原子炉から放出された放射性核種が、道路や広場のアスファルト上に降下し、それらが風雨によって広い面積から道路脇などに吹き寄せられ高濃度になったものと思われ、同位体比測定には最適であると考えた。2012年9~11月にかけて、原発近傍の市町村 (南相馬市、浪江町、双葉町、大熊町、それから原発南方の市町村) から立ち入りの許可を得て、黒い物質や落ち葉、さらに降下量評価のための土壌コア試料を 100~200 地点で採取した (図 11)。原発近傍では、アロカ製の線量計が振り切れる (地上 1m 高さ:  $>30\ \mu\text{Sv/h}$ ) 多くの地点が点在していた。土壌コア試料を除いて黒い物質や落ち葉試料は、非常に高い濃度 (数百万~数千万 Bq/kg) の放射性 Cs で汚染されていた。土壌コア試料については、 $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239, 240}\text{Pu}$  のみであるが、黒い物質や落ち葉では殆どの試料について、試料 40~70g から  $^{238}\text{Pu}$ 、 $^{239, 240}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{242}\text{Cm}$ 、 $^{243, 244}\text{Cm}$  を明瞭に検出でき (図 12)、原発由来  $^{239, 240}\text{Pu}$  蓄積量のみならず、これら核種間の信頼に耐え得る放射能比を評価することができた (なお、 $\alpha$  線スペクトロメーターでは、 $^{239}\text{Pu}$  と  $^{240}\text{Pu}$ 、および  $^{243}\text{Cm}$  と  $^{244}\text{Cm}$  との  $\alpha$  線エネルギーを区別することができないので、両者の合計とし



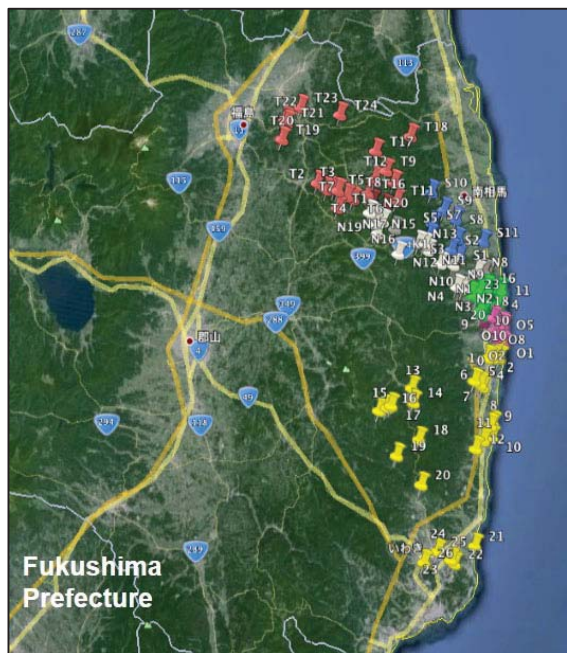


図 1 1 福島第一原発周辺での試料採取地点(黒い物質を中心に、落ち葉、土壌コア試料を採取)

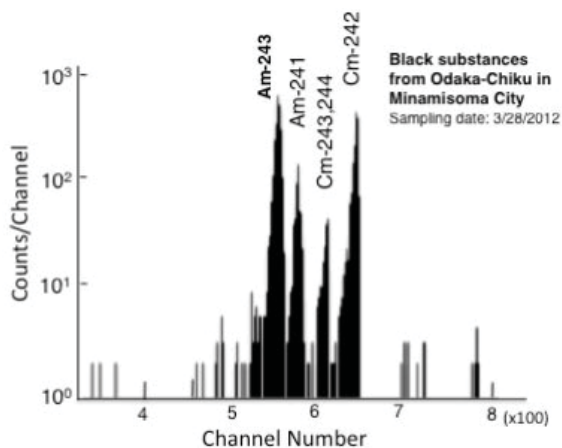


図 1 2 福島第一原発周辺での黒い物質についての Am、Cm に対する  $\alpha$  線スペクトルの一例

て、 $^{239, 240}\text{Pu}$ 、 $^{243, 244}\text{Cm}$  としてある)。私にとって、環境試料中の Cm 同位体測定は、先に示したイギリスのアイリッシュ海の堆積物分析以来、二度目の出会いとなった。

土壌コア試料から評価された原発由来  $^{239, 240}\text{Pu}$  蓄積量は、 $0\sim 2.8 \text{ Bq/m}^2$  で平均  $0.20\pm 0.37 \text{ Bq/m}^2$  で非常に少なく、 $^{239, 240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$  比は  $10^{-7}$  オーダであることが分かった。

表 4 に、原子力研究開発機構の西原らが評価した原子炉のコア・インベントリーの核種間の比と今回測定した試料での核種間の比との比較を示すが、 $^{239, 240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$  比を除い

表 4 原子炉コアと環境試料での超ウラン元素諸核種間の放射能比(原子数比)の比較

Ratio	Ratios for core inventory <sup>a</sup>			Ratios for environmental samples		
	Unit 1	Unit 2	Unit 3	n	Mean $\pm$ SD	Median
(Activity ratio)						
$^{239, 240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	$7.86\times 10^{-9}$	$7.54\times 10^{-9}$	$9.96\times 10^{-9}$	137	$(2.34\pm 3.50)\times 10^{-7}$	$1.29\times 10^{-7}$
$^{238}\text{U}/^{239, 240}\text{Pu}$	$3.63\times 10^{-4}$	$3.66\times 10^{-4}$	$2.84\times 10^{-4}$	12	$(5.84\pm 4.43)\times 10^{-4}$	$5.12\times 10^{-4}$
$^{238}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$	2.9	2.4	2.3	137	$1.73\pm 0.75$	1.79
$^{241}\text{Pu}/^{239, 240}\text{Pu}$	140	146	126	n.m.		
$^{241}\text{Am}/^{239, 240}\text{Pu}$	0.35	0.23	0.23	122	$0.56\pm 0.16$	0.54
$^{242}\text{Cm}/^{239, 240}\text{Pu}$	56.1	46.5	43.3	122	$28.1\pm 13.1$	26.7
$^{243, 244}\text{Cm}/^{239, 240}\text{Pu}$	1.72	1.68	2.16	122	$1.10\pm 0.61$	1.06
(Atomic ratio)						
$^{242}\text{Cm}/^{243, 244}\text{Cm}$	32.5	27.6	20.0	122	$28.3\pm 9.9$	25.0
$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	0.34	0.32	0.36	9	$0.33\pm 0.02$	0.34

<sup>a</sup> Decay-corrected to the date of the accident on March 11, 2011.

<sup>b</sup> Nishihara et al., (2012).

n.m.: not measured.

て、両者は 2 倍以内でよく一致していることが分かった。このような結果は、U ( $^{236}\text{U}$  測定は広島大・坂口らとの共同)も含めて、Pu、Am、Cm が大きな分別をすること無く、微粉末となって蒸気と共に放出(carry-over)された可能性が高いことを示していると思われる。これらのデータは、原子炉の燃焼度、メルトダウン・メルトスルーの燃料破損状況の考察、さらに環境中での非揮発性(refractory)元素(Pu など)と揮発性(volatile)元素(Cs など)の拡散、降下挙動を比較検討する上で貴重なデータではないかと考えている。

## 7. これまでの超ウラン元素研究を通して

放射能・放射線は、もともと宇宙には元素誕生以来存在しながら、人間の目にも見えず五感にも感じない。19 世紀末になってやっと人間の工夫になる化学分離、物理的測定法の進歩によりこれらが測定できるようになり、また原子力発電の基本となるウラン( $^{235}\text{U}$ )の核分裂現象が 1939 年に東ドイツの科学者オット・ハーン(O. Hahn)らにより発見された。過去を振り返ると、この放射能・放射線の“影”の部分として、核兵器としての原爆・水爆(広島・長崎原爆(1945)、ビキニ水爆被災(1954)、それに続く米ソを中心として行われた大気圏内核実験からの放射性降下物)、そして時代は進み今度は核の平和利用(アメリカでのスリーマイル島原発事故(1979)、世界を震撼させた旧ソ連でのチェルノブイリ原発事故(1986)、JCO 臨界事故(1999)等)から、幾多の悲惨な核被災を経験し、同時に多くの放射性物質が環境に放出されてきた。そして、チェルノブイリ事故から 25 年後、今度は巨大地震とその後の大津波で

被災した東京電力・福島第一原子力発電所の事故によって大量の放射性物質が環境に放出され、通常の震災と放射能災害が複合・増幅し合う人類未体験の破局的災害が発生した。特に福島県の浜通りの市町村では、震災地の救援・復旧が強い放射能のために不可能になると共に、原発の事故処理や住民の放射能からの退避、避難も混迷をきわめた。今回の事故では、住民が懸念していたPuを初めとする超ウラン元素の放出は少なかった。原子エネルギーの利用が続く限り、このような研究の継続と若い研究者の確保が必須と思われる。今日、放射能測定については目覚ましい進歩(ICP-MS、TIMS、AMSなど)があり極低レベルのみならず同位体測定(isotopic fingerprint analysis)が可能となっている。極微量測定を行うためにも、化学分析の重要性を再認識して超ウラン元素の新たな環境化学分野が開けることを望んでいる。

ここでは、共に研究して来た学生や共同研究者の一人一人のお名前を記すことが出来なかったが、協力者の皆様に心から深謝申し上げます。ここに記した私の経験が何か参考になることがあれば幸いです。

最後に、このような原稿を書く機会を設けて戴いた(一財)九州環境管理協会、副理事長の松岡信明氏をはじめとする関係各位の方々にお礼を申し上げます。貴協会は、我が国の環境放射能測定において重要な役割を担っている。分析・測定の意義と測定結果の重みを考えながら一層ご活躍されることを期待しています。

## 参考文献

- 1) M. Yamamoto *et al.*, Estimation of close-in fallout  $^{137}\text{Cs}$  deposition level due to the Hiroshima atomic bomb from soil samples under houses built 1-4 years after the explosion, *Revist: The Hiroshima A-bomb with a Database, Volume 2 Hiroshima City 2013*, ISBN 978-4-9905935-1-3, p.35-43 (2013/3) .
- 2) 坂口 綾, 山本政儀, *et al.*, 環境中のウラン同位体 U-236 を利用した研究—海洋循環トーカーとしての確立を目指して, *分析化学*, **62** (第 11 号), 1001-1012 (2013) .
- 3) M. Yamamoto *et al.*,  $^{237}\text{Np}$  in help-palm leaves of Bontenchiku for fishing gear used by the Fifth Fukuryu-Maru: 40 years after “Bravo”, *Health Phys.*, **70**, 744-748 (1996) .
- 4) 山本政儀, 「特集—沿岸海底堆積物はどこまで解明されているのか」: 海底堆積物における長寿命人工放射性核種の分布と挙動—アイリッシュ海の沿岸堆積物—, *日本海水学会誌*, **57**, 192-204 (2003) .
- 5) T. Imanaka, M. Yamamoto *et al.*, Reconstruction of local fallout composition and gamma-ray exposure in a village contaminated by the first USSR nuclear test in the Semipalatinsk nuclear test site in Kazakhstan, *Radiat. Environment. Biophys.*, **49**, 673-684 (2010) .
- 6) M. Yamamoto *et al.*, Isotopic Pu, Am and Cm signatures in environmental samples contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, *J. Environ. Radioactivity*, **132**, 31-46 (2014) .