



放医研環境セミナーシリーズ No. 23

長半減期核種の環境動態と線量評価

—超ウラン元素、 ^{129}I および ^{99}Tc を中心に—

鈴木 讓 編
河村日佐男

放医研環境セミナーシリーズ No. 23

長半減期核種の環境動態と線量評価

—超ウラン元素、 ^{129}I および ^{99}Tc を中心に—

鈴木 讓 編
河村日佐男

Environmental Transfer Behavior of Long-Lived
Radionuclides and Its Dose Evaluation
— Transuranics, ^{129}I and ^{99}Tc —

Proceedings of
The 23rd National Institute of Radiological Sciences
Seminar on Environmental Research
Chiba, November 30 – December 1, 1995

Edited by
Y. Suzuki
&
H. Kawamura

1996
National Institute of Radiological Sciences
Chiba, Japan

序 言

近い将来、青森県六ヶ所村において大型再処理施設が稼働し核燃料リサイクルが確立する予定であります。新原子力長計によればわが国の原子力発電においても今後 Pu 燃料の利用が見込まれ、これに伴い、高・低レベル放射性廃棄物の処理処分問題が本格化するものと考えられています。長半減期核種は将来に亘り環境影響をもたらす観点から現状認識と将来へのこれら核種による被曝低減化について考察することは環境放射線安全研究にたずさわる者にとっても重要であります。このため、大学、原研、動燃、民間および放医研の専門家等による討論は私どもの今後の研究の進展と方向性を探る上でも意義深いと考え、日本保健物理学会と共催して放医研環境セミナーを開催することになった次第であります。

11月30日、12月1日に「長半減期核種の環境動態と線量評価－超ウラン元素、 ^{129}I および ^{99}Tc を中心に－」と題して開催いたしました第23回放医研環境セミナーは2日間という短い期間でございましたが、さまざまなご意見を伺うことができました大変有意義な会であったと思っております。

最後に、セミナーに御協力下さった、また参加されたすべての方々に心からの謝意を表します。

第23回放医研環境セミナー実行委員会

委員長 鈴木 譲

開会の挨拶

皆様お早うございます。本日は、朝早くから本セミナーにおいて頂き有り難うございます。

今回の環境セミナーは、「長半減期核種の環境動態と線量評価 — 超ウラン元素、 ^{129}I および ^{99}Tc を中心に — 」と題して行われるわけですが、本研修の分野は、本所と支所との両方にまたがった分野の研究であろうと思います。

そういうことでありまして、放医研としては非常に重要と認識しているんですが、開会の時にご挨拶で申し上げるのも何ですけれども、放医研の先輩で梅垣洋一郎先生、放射線治療の大御所でありますけれども、私をつかまえて「重粒子よりも長寿命核種の消滅の方がずっと大事だよ。」といわれまして、「アレっ」と驚いたことが有るわけではありますが、私はまったくこの分野の素人でありますけれども、少し懐かしいのは、かつて長寿命核種、特にトランスウラニウムの消滅処理に関していささか参加したことがございますので、このプログラムを見ましても、そのあたりの研究についてもトピックスが出されるということで、懐かしさを感じたと言うようなこともございます。

何はともあれ、今日、明日、この会議が非常に有効に、情報交換あるいは研究の進展状況等がここで開陳されますことを希望しております。

最後になりましたけれども、この機会は、日本保健物理学会との共催でやらせて頂いているということで、会長の草間先生もここにいらしておりますので、お礼を申し上げたいと思います。

放射線医学総合研究所
所長 平尾 泰男

共催学会長挨拶

共催学会の日本保健物理学会から一言ご挨拶させていただきます。

世の中では地球環境問題が大きく取り上げられているところですが、放医研の環境セミナーも今回は23回を迎えるということですので、放射線あるいは放射性物質というのは、こういった環境セミナーを開く度に他の環境要因に比べて長い歴史を改めて感じさせられます。

今回特にこのテーマであります「長半減期核種の環境動態と線量評価」ということになると、特に地球環境問題を考えるときに将来の付加をどうするか、いわゆる環境倫理の問題から特にこういった長半減期核種の問題というのはたいへん、環境倫理の視点からも重要な課題だと考えております。従いまして、今回こういった長半減期核種の環境動態の問題を取り上げて頂いたというのは、たいへん時期を得たテーマの設定ではなかったかと思しますので、共催学会としてもお礼を申し上げるところでございます。

2日間に渡りまして東京大学の鈴木先生と東京工業大学の有富先生をお招きした特別講演と、3つのトピックスと6つのセッションは長半減期核種を広い視点から考えるように企画されていますので、参加いただきました皆様には2日間のセミナーを通して、ぜひ大きな成果を得て頂きますよう共催学会としても期待しております。

日本保健物理学会
学会長 草間 朋子

目 次

序言	鈴木 謙	
開会の辞	平尾 泰男	
共催学会長挨拶	草間 朋子	
座長一覧		
執筆者一覧		

特別講演 I

わが国の原子力利用長期計画と国際環境安全基準	鈴木 篤之	1
------------------------------	-------	---

トピックス (1)

六ヶ所再処理施設と放射線安全	瀧田 昭久	5
----------------------	-------	---

セッション 1

1. 沿岸における $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の分布と挙動	住谷 秀一	14
2. 外洋における超ウラン元素の分布と挙動	中村 清	24

トピックス (2)

1. アイリッシュ海沿岸堆積物中の長半減期核種	山本 政儀	30
2. 環境中での $^{239+240}\text{Pu}$ の移動性について	馬原 保典	44

セッション 2

1. 環境における ^{129}I の分布と挙動	村松 康行	57
2. 土壌中 ^{129}I の分布及び甲状腺中濃度について	関 李紀	69

セッション 3

1. 日本沿岸の海洋生態系における ^{99}Tc の分布と挙動	平野 茂樹	73
2. 環境における ^{99}Tc の移行と被ばく評価	渡部 輝久	78
3. 作物による土壌中 ^{99}Tc の吸収挙動について	柳 沢 啓	91

セッション4

- 1. 日本人における $^{239,240}\text{Pu}$ の体内分布 久松俊一 100
- 2. Pu 等の人体への摂取経路 河村日佐男 111

特別講演II

- 原子燃料及び放射性廃棄物の輸送 — 現状と将来 — 有富正憲 116

セッション5

- 長半減期核種の地球化学 松鶴秀夫 131

トピックス(3)

- 超ウラン元素の消滅処理技術の開発 向山武彦 142

セッション6

- 超ウラン元素の体内動態と線量評価モデル 稲葉次郎 150

- 閉会の辞 佐藤弘毅 159

- 第23回放医研環境セミナープログラム 160

- 第23回放医研環境セミナー実行委員会一覧 161

Contents

Editorial Note

List of Chairpersons

Contributors

SPECIAL LECTURE I

..... A. Suzuki

TOPICS (1)

Radiological Safety of Rokkasho Reprocessing Plant A. Takita

SESSION 1

1. Distribution and behavior of $^{239, 240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in coastal marine environment
..... S. Sumiya
2. Distribution and Behavior of Transuranics in the Open Ocean K. Nakamura

TOPICS (2)

1. Long-lived Radionuclides in the Coastal Sediments of the Irish Sea, UK
..... M. Yamamoto and J. Kuwabara
2. Mobility of $^{239+240}\text{Pu}$ in the environment Y. Mahara and A. Kudo

SESSION 2

1. Behaviour of ^{129}I in the environment Y. Muramatsu
2. Distribution of ^{129}I in soil and in cattle thyroid gland R. Seki

SESSION 3

1. Distribution of ^{99}Tc in The Marine Environment in Japan S. Hirano
2. Radiological Implication of Releases of ^{99}Tc into the Environment T. Watabe
3. Transfer of ^{99}Tc from soil to crops and its behavior in soil K. Yanagisawa

SESSION 4

1. $^{239,240}\text{Pu}$ distribution in the Japanese S. Hisamatsu
2. Pathway of transfer to the human body of plutonium and other long-lived radionuclides H. Kawamura

SPECIAL LECTURE II

..... M. Aritomi

SESSION 5

Geochemistry of Long-lived Radionuclides H. Matsuzuru

TOPICS (3)

Development of nuclear transmutation technology for transuranic elements T. Mukaiyama

SESSION 6

Dosimetric and Biokinetic Model for Transuranic Radionuclides J. Inaba

座 長 一 覧 (担当セッション順、敬称略)

List of Chairpersons

(所属は平成7年12月現在)

- | | | |
|---------------|---------|--------------|
| 1. 特別講演 I | 鈴木 讓 | 放射線医学総合研究所 |
| 2. トピックス (1) | 鈴木 讓 | 放射線医学総合研究所 |
| 3. セッション1 | 長 屋 裕 | (財)海洋生物環境研究所 |
| 4. トピックス (2) | 中 村 清 | 放射線医学総合研究所 |
| 5. セッション2 | 内 山 正 史 | 放射線医学総合研究所 |
| 6. セッション3 | 山 本 政 儀 | 金沢大学 |
| 7. セッション4 | 高 橋 千太郎 | 放射線医学総合研究所 |
| 8. 特別講演 II | 藤 元 憲 三 | 放射線医学総合研究所 |
| 9. セッション5 | 河 村 日佐男 | 放射線医学総合研究所 |
| 10. トピックス (3) | 平 野 茂 樹 | 放射線医学総合研究所 |
| 11. セッション6 | 阿 部 道 子 | 放射線医学総合研究所 |

執筆者一覧

(発表順、敬称略)

List of Contributors

(所属は平成7年12月現在)

鈴木篤之	東京大学	平野茂樹	放射線医学総合研究所
瀧田昭久	日本原燃株式会社	渡部輝久	放射線医学総合研究所
住谷秀一	動力炉・核燃料開発事業団	柳澤啓	放射線医学総合研究所
中村清	放射線医学総合研究所	久松俊一	秋田大学
山本政儀	金沢大学	河村日佐男	放射線医学総合研究所
馬原保典	勲電力中央研究所	有富正憲	東京工業大学
村松康行	放射線医学総合研究所	松鶴秀夫	日本原子力研究所
関李紀	筑波大学	向山武彦	日本原子力研究所

わが国の原子力利用長期計画と国際環境安全基準

鈴木 篤 之
東京大学

1. わが国の原子力開発利用計画 —— 平和利用と核不拡散に関連して

原子力の平和利用を取り巻く世界の環境は大きく変化している。核不拡散条約（NPT）は、1995年の再検討会議において、無期限延長になったが、冷戦時代と今日とでは条約自体の意味するところが変わってきている。冷戦構造崩壊後の世界平和の枠組みにとって NPT 体制の維持は不可欠であるということが、無期限延長を多くの国が支持する最大の理由であった。実際、NPT 体制までもが崩壊すれば、世界平和の秩序はますます昏迷の度を増したであろう。

NPT 体制はわが国の原子力の平和利用にとっても不可欠のものである。条約に盛り込まれた内容と精神を十分に理解することが、加盟国における原子力の平和利用を出来るだけ円滑に進めることにつながる。NPT は、その不平等性の故に日本が最大の被害を受けているという見方もないわけではないが、原子力の平和利用を推進する立場からすればむしろその恩恵に最も浴しているとも考えられる。国際的に受け容れられる他の方法がない限り、NPT 体制の維持に今後とも最大限の努力を傾けていくことが日本における原子力の平和利用にとって最も重要であるように思う。

中国をはじめとする東アジアにおける原子力発電の伸びが突出している。これまでは、日本、台湾、韓国のそれぞれが、それぞれに自らの原子力平和利用の計画を進めていけばよかったが、東アジア地域における原子力発電国がふえ、またその規模が拡大するにつれ、域内におけるより近密な国際協力の必要性が増して来ている。このため、日本においては、ヨーロッパ域内の原子力協力機構であるユラトムに類似した枠組みを東アジアにおいてももつべきではないかとの議論がある。しかしながら、東アジア諸国の多様性を考えると、ユラトムのような協力の形はもともと難しい面があり、環太平洋地域まで含めたより開かれた協力のあり方も検討に値しよう。

北朝鮮における核疑惑は、核不拡散体制の強化の必要性を再認識させた。問題は、東アジアにおいて、核不拡散性を保持しつつついに原子力の平和利用を円滑に進めていくかである。そのためには、原子力分野における協力をより近密なものとし、相互の信頼性と協調の枠組みを構築して行くことが重要である。

冷戦の終焉によって、旧ソ連の経済基盤は大きく揺らいでいる。このことがロシアをはじめとする旧ソ連の国々の原子力分野に少なからず影響を及ぼしている。ニュースソースの明らかでないものも多いようであるが、少量ながら核物質の密輸発覚のニュースは後を絶たない。核兵器の解体にともなって発生する余剰核物質の内、高濃縮ウランについては、米口間の交渉により、平和利用への有効活用を図るべくその計画が進行中であるが、プルトニウムについての取り扱いは未解決のままである。

米国では自国での軍事用の余剰プルトニウムも含めてその適切な管理の方法に対して真剣な検討が行われている。たとえばカナダの重水炉で燃料として利用することも具体的に検討されつつある。それには、

核軍縮への積極的貢献につながるのとカナダ側の思い入れが込められている。同じように、核軍縮への積極的貢献につながる日本の提案が期待されている。

プルトニウムに関連しては、日本のリサイクル利用計画が話題になっている。軍事部門からの余剰プルトニウムに手を焼いている時期に、大型の商用再処理工場を建設し本格的なプルトニウムのリサイクル利用を図ろうとするのは如何なるものかという批判的意見から、ウラン資源の有効利用やエネルギーセキュリティ上からも日本のプルトニウム平和利用は大いに進めるべしという積極的支持派まで様々である。最も本質的な点は、日本のように純粹に平和利用が目的の計画は、プルトニウムを利用することが目的ではなく原子力発電所の使用済み燃料管理の一環として行われようとしている点である。したがって、日本の計画を外国のプルトニウムで代替することはできない。

原子力発電を行えば必ず使用済みの燃料が発生する。それを、米国のように、廃棄物にしてしまうことも技術的には可能であるが、日本のような資源小国で地球規模での環境保護への貢献を重視しようとしている国においては、今後とも資源のリサイクルを追求していくことが肝要であり、プルトニウムのリサイクル利用にはグローバルな規模でのエネルギー問題の解決に長期的に役立つとの視点が欠かせない。

プルトニウムの平和利用を進めていく上で最も重要な点は、計画の透明性である。日本政府は、数年来、日本のプルトニウムの在庫量を公表し、またその将来の利用計画を発表しているが、平和利用に徹すると日本の意思を明らかにする上で、きわめて重要である。また一方、日本のプルトニウムの利用計画の如何にかかわらず、核拡散のリスクが世界的には現実に存在している点を見逃してはならない。そのリスクを最小化するための国際協力や国際協調に関し日本が主導的な役割を担うことも同じようにきわめて重要である。

技術目隠し論というのがある。新しい技術があまりにも急進的に溢れるほどたくさん押し寄せてくるために、人は、本来、自分の目で確かめながら、しかも遠くを見通しながら進むべきところを目隠しされてしまっているので、何も先が見えないという警鐘である。この論にたてば、新しい技術を社会に定着させる過程にはむしろ時間が必要だということになる。核不拡散性への配慮の重要性から原子力の社会的定着化には時間がかかる。しかし、この点はむしろ歓迎すべきことかも知れない。

原子力の平和利用に伴うリスクには、核拡散のリスクと臨界事故のリスク及び放射線影響のリスクの3つがある。当然のことながら、これらは相互に関連している。核拡散のリスクがなぜとくに憂慮されるかといえば、核反応エネルギーの暴発的開放、すなわち超臨界現象と関連があり、何故、急激な臨界超過による影響が懸念されるかといえば、それに伴う放射線の影響と大いに関連がある。これらのリスクはいわば階層的關係にあり、その根源は放射線影響のリスクにあるとも考えられる。しかるに、放射線はもともと自然界に存在している。原子力の平和利用が社会的により広く定着化していく過程には自然界の放射線に関する理解が進むことが不可欠であろう。

2. 国際環境安全基準——放射性廃棄物処分に關連して

国際原子力機関（IAEA）では、原子力安全条約にひき続き、放射性廃棄物安全条約が検討され始めている。一言で放射性廃棄物といっても、原子力発電に伴う廃棄物ばかりでなく、医療機関や研究所などのRIを取り扱う様々の事業所から発生するいわゆるRI廃棄物などもあり、多岐にわたる。さらに、原子力以外の分野においても、天然資源の採掘などに伴って発生する廃棄物の中に天然の放射能がいわば濃縮されてしまっていて放射性廃棄物と同等の放射能を有する廃棄物もあり、それまでも含めるとなるときわめて

多様になる。まずは、対象とすべき放射性廃棄物の範囲を明確にする必要があるが、放射性廃棄物の問題は、本来、国内的に解決されるべきものであっても、その解決の方法や考え方については、基本となるところは国際的に出来るだけ統一されていることが好ましく、その点から、安全条約の制定への期待が国際的に大きいものと思われる。

LAEA では、同条約の検討作業に先立ち、また、それとは独立した作業として、Radioactive Waste Safety Standard (RADWASS) Programme と称する検討作業を、ここ数年来精力的に行ってきた。放射性廃棄物管理の各段階にわたる Safety Fundamentals, Safety Standards, Safety Guides を LAEA の勧告として提言しようとするもので、既にいくつか公表されているものもある。

その中で、放射性廃棄物の原則(The Principles of Radioactive Waste Management)と題する Safety Fundamentals の原案がようやくまとまり、理事会での承認を得て95年9月に出版された。同原案に盛り込まれている安全管理の原則は次のようなものである。

原則1:人の健康の保護(Protection of human health)、原則2:関連する環境の保護(Protection of the environment)、原則3:人の健康や関連する環境への影響が国境を越えるかも知れないことへの配慮(Protection beyond national borders)、原則4:将来の人々の健康への影響に関する配慮(Protection of future generations)、原則5:将来の人々に過大な負担を与えないことへの配慮(Burdens on future generations)、原則6:国家レベルの法的規制(National legal framework)、原則7:発生量の抑制(Control of radioactive waste generation)、原則8:発生から管理のすべての段階にわたった総合化(Radioactive waste generation and management interdependencies)、原則9:管理施設の安全性(Safety of facilities)。

以上の原則の内、原則の1と2については、いわゆる安全性や環境安全性に留意する必要のある産業活動がおよそ考慮しなければならない原則で、原子力の場合は、その点がとくに協調されているが、放射性廃棄物管理に限ったことではない。原則の6や9も同様に考えてよいであろう。原則の7と8は、放射性廃棄物ばかりでなく廃棄物一般に適用されるべき原則で、とくに目新しいものではない。

それでは、原則の3、4、5はどうであろうか。いずれも、本来は、放射性廃棄物のみならずすべての廃棄物、とくにその処分に際して考慮されるべき原則である。しかし、原則3にあるように、「他国への影響があり得る場合には、それは自国内で許容できると判断されたものを超えないようにする責任がそれぞれの国にある」となると、たとえば酸性雨の例に明らかなように、それをすべて廃棄物について厳格に適用することは現実問題として容易でないであろう。原則の4や5に至ってはさらに難しいであろう。したがって、Safety Fundamentals の原則では、これらの3つの原則は、いずれも、道義上の配慮(ethical concerns) からとことわっている。放射性廃棄物の処分問題となるが、通常の廃棄物の処分問題以上に社会的に注目されることから、このような原則を盛り込むことはやはり重要であるように思う。そして、とくに、原則の4については、それをいかに満足すべきかが放射性廃棄物問題の安全性を論じる上でもっとも難しいことであるとされている。

この点に関しては、RADWASS プログラムにおいても大いに議論されたようである。その結果として、Safety Fundamentals の原案では、原則の4の解説の中で「将来の人々の健康への影響について予め評価してみて、それが、現在の社会において受け容れられている範囲を超えないようにする必要がある」と述べている。廃棄物処分に伴う安全性を何100年、何1,000年も先の人に対して評価するとすると、その頃の人々の食生活や社会活動などの生活様式を想定せざるを得ないが、それを正確に行うことは不可能に近いばかりか、科学的意義も乏しい。だからといって、将来の人々への影響を評価することを諦めずに、現

在のわれわれにとって可能な範囲でそれを評価し、その結果が、現在、われわれ自身が受け容れている水準を超えないことを確かめるべきであることを、原則4は求めている。それが道義的配慮の中味である。

いわゆる安全評価においては、評価の結果を判断する基準に照らして、それがいわば完全に満たされることを追求しようとすることが多い。原子力安全のように社会的注目度が高くなるととくにその傾向がどうしても強くなるが、放射性廃棄物処分の将来世代にわたる安全性に関しては、そのような完璧主義にかわって道義的ないわば最善主義を求めているところに、Safety Fundamentals の大きな意味があるように思う。

兵庫県南部地震によって安全神話が崩壊したといわれている。一度失った技術の信頼性を回復することは並大抵ではない。関東大震災の後にも技術非依存型社会へ回復すべきであるという意見が多かったといわれる。今回の大地震においても、そのような技術不信感が拡がった。技術は環境や自然を崩壊するものであるとの技術への不信感は根強いものがある。その技術の代表が原子力とされているようである。

与えられた安全原則や安全基準に対して、それらを完全に満たす技術を提供することが技術者の役割とされてきた。そのこと自体、今後とも重要であるが、このことが、技術がすべてを解決するとの技術至上主義的な印象を人々に与えているとすれば、技術者側にも幾分か責任があるかも知れない。安全原則や安全基準の中には、純技術的判断ばかりでなく社会的受容性に関連して決められているものが少なくないことを考えるならば、それらを定めるプロセスやそれを満足させるプロセスにおいて、技術者がその社会的責任を果たすことにはいかに最善を尽くしているかを広く示していくことも、今後はますます重要になるのではないかと思う。放射線防護の分野でいわれている「合理的に達成可能な範囲でできるだけ低く(ALARA)」の原則も、その含意するところは、実は、その点にあるのではなかろうかと思う。

放射性廃棄物処分の問題は優れて社会的な問題である。それを解決する責任の大部分は技術者にあり、また、それは可能だと思う。しかし、そのためには、技術的完璧主義というより社会的最善主義の重要性を技術者自身が認識するところから始める必要があるようである。

六ヶ所再処理施設と放射線安全

瀧田 昭久

日本原燃(株)

Radiological Safety of Rokkasho Reprocessing Plant

Akihisa Takita

Reprocessing Office, Japan Nuclear Fuel Limited.

Obuchi, Rokkasyo-mura, Aomori, 039-32 JAPAN

ABSTRACT - Some items to be considered in the radiological safety for the public around Rokkasho Reprocessing Plant are described.

The items are ;

- 1) Management of radioactive waste.
- 2) Monitoring for radioactive effluent.
- 3) Environmental radiation monitoring.
- 4) Assessment for dose equivalent.

Effective dose equivalent of the public caused of Rokkasyo Reprocessing Plant is assessed as 0.022mSv/y.

1. はじめに

再処理施設は、使用済燃料をせん断・溶解し、化学的な処理によって核燃料として再利用できるウランやプルトニウムを抽出するとともに、核分裂生成物等を廃棄物として安全に処理する化学プラントである。工程内設備には、多種・多量の放射性物質が存在するため、施設の内外にわたり放射線安全を確保することが重要である。

六ヶ所再処理施設では ALARA の精神に沿って施設に起因して受ける一般公衆および放射線業務従事者等の線量当量が合理的に達成できる限り低くなるよう十分な防護対策を講じている。

ここでは一般公衆に対する放射線安全の確保についてその概要を述べる。

2. 六ヶ所再処理施設の概要

六ヶ所再処理施設は Fig. 1 に示すように青森県六ヶ所村の弥栄平と呼ばれる台地に位置しており、敷地面積は約380万㎡である。

再処理施設の主要設備はほぼ工程毎に分割された建屋内に配置されており敷地の中央部には地上高150m

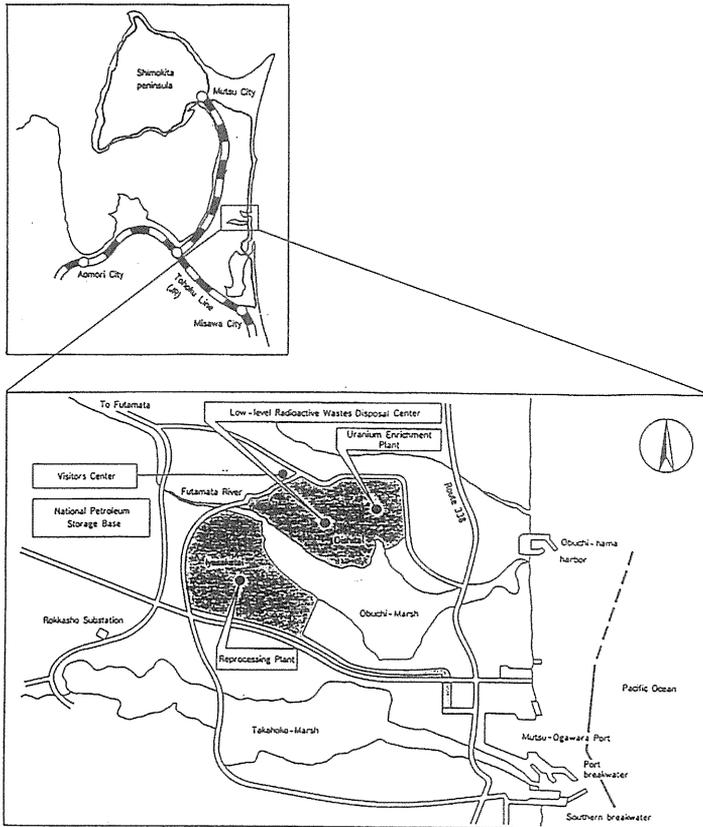


Fig. 1 再処理施設周辺
Surrounding of Rokkasyo Reprocessing Plant

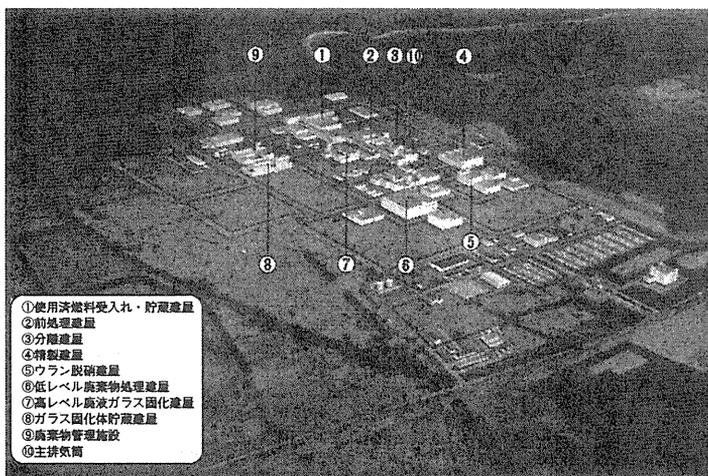


Fig.2 再処理工場完成予想図
Bird's eye view of Rokkasyo Reprocessing Plant

の主排気筒が設備される。また海洋放出出口はむつ小川原港湾区域内の沖合約3 km地点に設置される。

再処理施設の完成予想図を Fig. 2 に示す。

(1) 再処理の方法

再処理方法は仏国および動燃事業団等で実績のあるピューレックス法を採用している。再処理を行う使用済燃料は国内の軽水型原子力発電所で使用されたものを対象としており、再処理能力および仕様を Table-1 に示す。

(2) 再処理工程

再処理工程の概要を Fig. 3 に示す。

① 使用済燃料は原子力発電所で1年以上冷却した後、使用済燃料受入・貯蔵施設に搬入される。貯蔵プールでは放射能を減衰させるため発電所での冷却期間と合わせて4年以上の保管を行う。

② せん断・溶解工程では使用済燃料を細かく切断し、燃料の部分を硝酸で溶解し、分離工程に送る。被覆管など溶解されない物は固体廃棄物として容器に入れて貯蔵庫に保管される。

③ 分離工程では、燃料が溶解された硝酸溶液と溶媒と呼ばれる油性の溶液を接触させ、ウラン・プルトニウムと核分裂生成物とに分離する。さらにこのウランとプルトニウムも化学的性質の違いを利用して分離する。

④ 精製工程では、ウラン溶液およびプルトニウム溶液のそれぞれから微量含まれて

いる核分裂生成物をさらに取り除いて純度を高める。

⑤ 脱硝工程では、精製されたウラン溶液とウラン・プルトニウム混合溶液から硝酸を蒸発させて粉末状の製品とする。

⑥ 分離工程等で分離された核分裂生成物を含む高レベル廃液はガラス固化をして専用の貯蔵施設で一定期間貯蔵される。

Table-1 再処理能力と仕様
Reprocessing Capacity and Specifications of spent

再処理能力

年間の最大処理能力：800t・U
1日当たりの最大再処理能力：4.8t・U

再処理を行う使用済燃料の仕様

濃縮度：照射前燃料最高濃縮度：5wt %
使用済燃料集合体平均濃縮度：3.5wt %以下
冷却期間：再処理施設に受け入れるまでの冷却期間：1年以上
せん断処理するまでの冷却期間：4年以上
燃焼度：使用済燃料集合体最高燃焼度：55,000MWd/t・U
1日当たりの平均燃焼度：45,000MWd/t・U

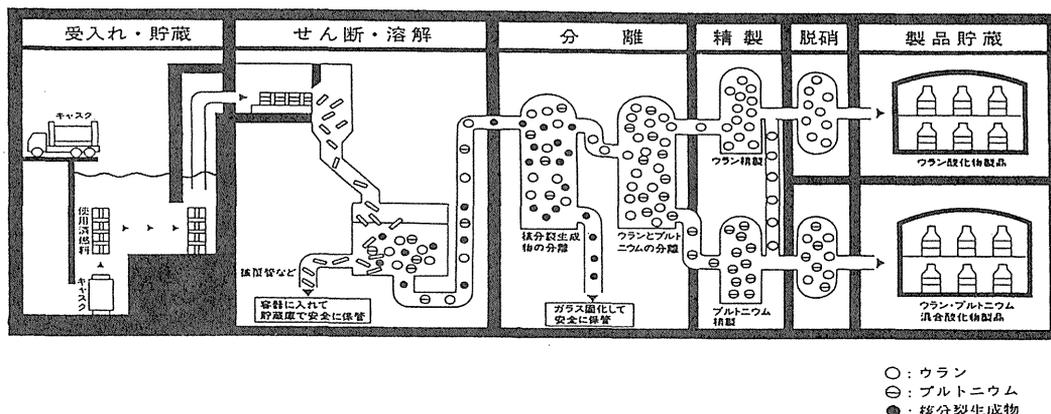


Fig. 3 再処理工程の概要
Reprocessing process

3. 放射性廃棄物処理

使用済燃料中に含まれる放射性物質は、Fig.4 に示す様に冷却期間とともに減少してくる。再処理施設の運転によって分離された核分裂生成物等は放射性廃棄物として処理される。大部分はガラス固化体や固体廃棄物の形で施設内に貯蔵管理されるが一部は気体又は液体廃棄物として環境中に放出される。

(1) 放射性廃棄物の廃棄に関する基本的な考え方

放射性廃棄物の廃棄については、放射性物質の放出に伴う一般公衆の線量当量が、法令に定める線量当量限度を超えないことはもとより、合理的に達成できる限り低くなるよう以下の観点から放出放射性物質の低減を行う。

- ① 放出放射性物質の低減効果が大きく、かつ、信頼性のある技術を採用する。
- ② 放射性廃棄物の化学的、物理的性状に応じ、各処理設備において最適な技術の組合せを行う。

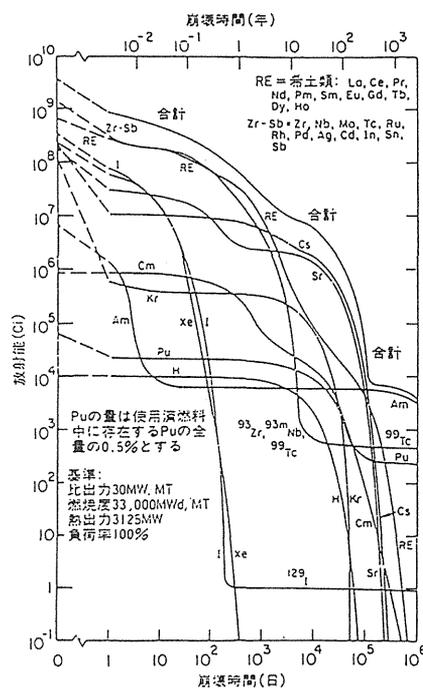


Fig. 4 放射性物質の冷却時間に対する変化¹⁾
Radioactivity in spent fuel vs Coolingtime

③ 放射性廃棄物をできるだけ施設内にとどめ、適切な形で貯蔵・保管する。

(2) 放射性廃棄物処理方法

再処理施設で発生する放射性廃棄物は、できる限り再処理施設内で貯蔵、管理し、環境に放出するもの以外の放射性物質については、その発生源に応じて減容、焼却、固化等の処理を行い、十分なしゃへい能力を有する廃棄物貯蔵設備に保管廃棄することにより、一般公衆の線量当量の低減化を図る。

気体廃棄物および液体廃棄物として環境に放出する放射性物質については、現在の実用可能な処理技術を考慮し、放出放射性物質量の低減化を図る。

気体廃棄物処理工程の概要を Fig. 5、液体廃棄物処理工程の概要を Fig. 6 に示す。

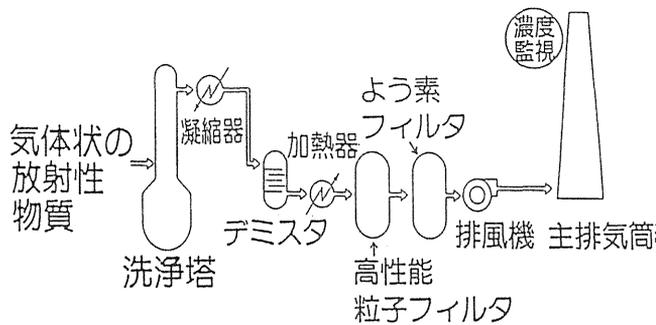


Fig.5 気体廃棄物処理工程の概要
Gaseous Waste Treatment System

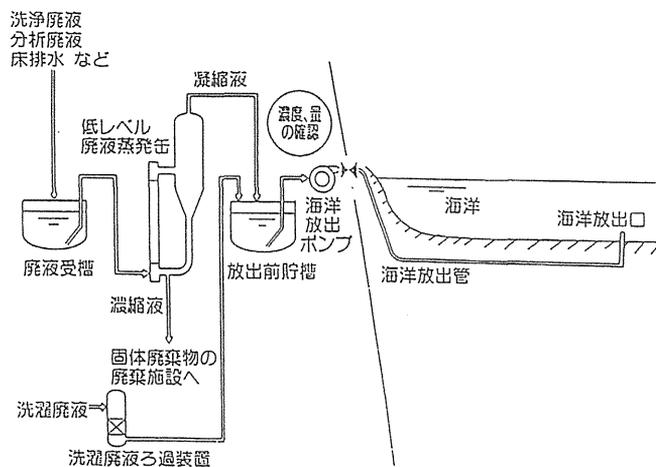


Fig.6 液体廃棄物処理工程の概要
Liquid Waste Treatment System

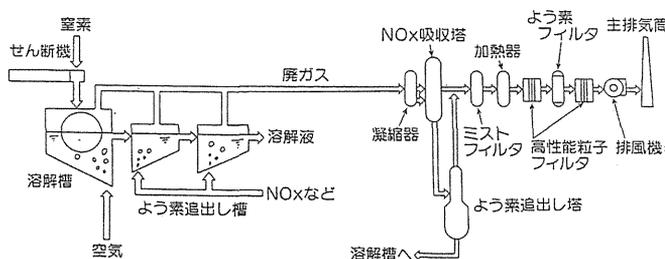


Fig. 7 よう素処理工程の概要
Iodine Treatment System

粒子状放射性物質は、気体側については、発生量に応じて、各廃ガス処理設備において、洗浄塔、デミスタ、高性能粒子フィルタ等を組み合わせて洗浄およびろ過により放出量の低減を図る。液体側については、廃液の種類および濃度に応じて、蒸発装置、ろ過装置、脱塩装置等を組み合わせて処理し、高レベル廃液あるいは、低レベル廃液として貯蔵することにより、溶液中に残る放射性物質の量を低減化する。

なお気体、液体の処理工程で処理しきれない微量の放射性物質については、十分な拡散、希釈能力をもつ放出口から放出することにより、一般公衆の線量当量の低減化を図る。

よう素は、気体状にしてよう素フィルタで吸着除去することが、放出の低減化に最も効果的であるため、溶液中から気相への追い出しを行い、最新の技術によるよう素フィルタにてほとんどのよう素を吸着除去し、環境への放出量を低減化する。

よう素処理の概要を Fig. 7 に示す。

希ガスおよび炭素-14は、農畜産物および生体には濃縮せず、また環境への蓄積がないことから、それらに起因する線量当量が十分に小さく、大気への放出に際しては、十分な希釈効果による濃度の低減化を図る。

トリチウムは、環境中では大部分がトリチウム水として存在するが、挙動が水と同じであり、海産物、農畜産物および生体には濃縮せず、また蓄積がないことから、それに起因

する線量当量が小さく、十分な拡散、希釈能力をもつ放出口から放出することにより、一般公衆の線量当量の低減化を図る。

(3) 放射性廃棄物の推定放出量

放射性廃棄物の推定放出量は以下のとおり推定している。

使用済燃料中に保有する各核種の量を、年間再処理量800 t・Upr、1日当り再処理する使用済燃料の平均燃焼度45,000 MWd/t・Upr 以下、冷却期間4年の条件を基に、ORIGEN 2コードを使用して推定する。この値に各処理工程での物理的・化学的挙動、除染係数等を考慮して放射性物質の放出量を算定する。

気体廃棄物および液体廃棄物として環境中へ放出される放射性物質の推定年間放出量を Table-2 および Table-3 に示す。

Table-2 気体廃棄物の推定放出量
Amount of Gaseous Waste

核種	放出量 (Bq/y)
Kr-85	3.3×10^{17}
その他希ガス	2.1×10^{14}
H-3	2.0×10^{15}
C-14	5.2×10^{13}
I-129	1.1×10^{10}
I-131	1.8×10^{10}
その他のよう素	1.8×10^{12}
その他 (α)	3.8×10^8
その他 (β, γ)	1.2×10^{11}

Table-3 液体廃棄物の推定放出量
Amount of Liquid Waste

核種	放出量 (Bq/y)
H-3	1.8×10^{16}
I-129	4.3×10^{10}
I-131	1.8×10^{11}
その他 (α)	5.4×10^9
その他 (β, γ)	8.2×10^{11}

4. 放射性廃棄物の放出管理

再処理施設外に放射性の気体廃棄物および液体廃棄物を放出する場合は、次に述べるように厳格な放出管理を行う。すなわち放射性廃棄物の放出に際しては、放出する放射性物質について放出管理の目標値を定め、これを超えないよう努める。

(1) 気体廃棄物の放出管理

気体廃棄物は、フィルタ類を経て主排気筒および換気筒から放出するが、この気体廃棄物の排気中の放射性物質濃度は、排気モニタリング設備によって監視および測定を行う。

排気中の放射性希ガスについては、排気モニタリングにより連続して測定、監視する一方、放射性よう素、炭素-14、放射性粒子およびトリチウムについては、排気モニタ付近に連続サンプリングができる排気サンプリング設備を設備し、定期的に測定する。

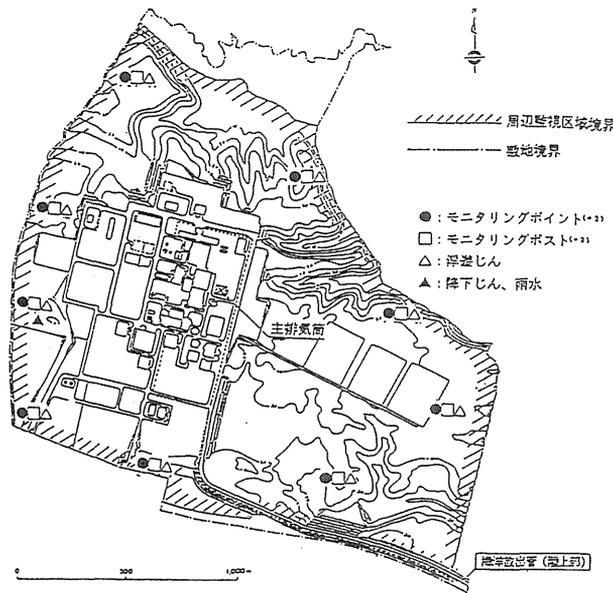
(2) 液体廃棄物の放出管理

液体廃棄物は、蒸発装置、ろ過装置、脱塩装置などで処理を行った後、低レベル廃液処理設備の海洋放出管理工程から海洋放出管を経て沖合約3kmの海中に放出する。

これらの液体廃棄物を放出する場合には、あらかじめ放出前貯槽においてサンプリングし、放射性物質の濃度を測定し、放出量を確認して放出する。

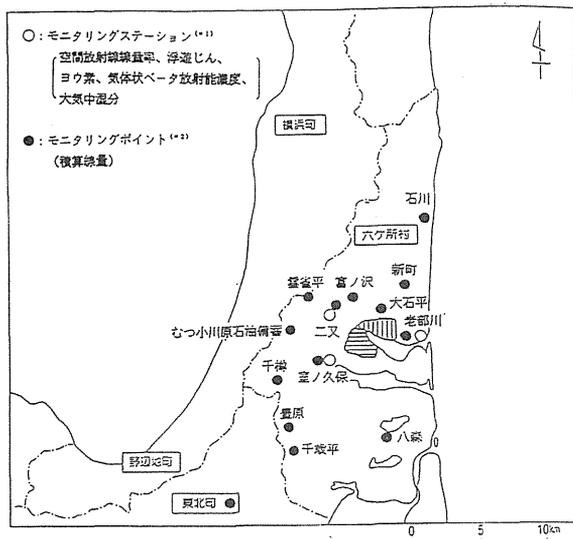
5. 環境モニタリング

敷地周辺の一般公衆の線量当量が合理的に達成できる限り低くなるよう、再処理施設には十分なしゃへいを設け、再処理施設からの直接線およびスカイシャイン線による線量当量を十分低くするとともに、気体廃棄物および液体廃棄物の放出に当たっては、前述のとおり、厳重な放出管理を行う。



(43) モニタリングポストとは、空間放射線線量率計を具備した野外国定施設をいう。

Fig. 8 モニタリングポイント、モニタリングポスト等の測定又は採取場所



(41) モニタリングステーションとは、空間放射線線量率計、気体状ベータ放射能能率計、ダストサンプラ（浮遊じん）採取、ヨウ素サンプリング装置及び大気中水分サンプリング装置を具備した野外国定施設をいう。

(42) モニタリングポイントとは、検算線量計を具備した野外国定施設をいう。

Fig. 9 再処理施設周辺における測定又は採取場所
Environmental Monitoring (2)

さらに異常がないことを確認するため、周辺監視区域境界付近および周辺地域において、放射線および放射性物質濃度の監視（以下環境モニタリングという）を行う。

環境モニタリングは原子力安全委員会「六ヶ所再処理施設周辺の環境放射線モニタリング計画について」²⁾に基づき、Fig. 8, 9, 10 に示す地点で実施する。

6. 一般公衆の線量当量評価

再処理施設から環境へ放出される気体廃棄物および液体廃棄物に含まれる放射性物質によって受ける一般公衆の線量当量は、法令に定める値を超えないことはもとより、合理的に達成できる限り低い値となることを、設計、運転、立地条件との関連において評価する。

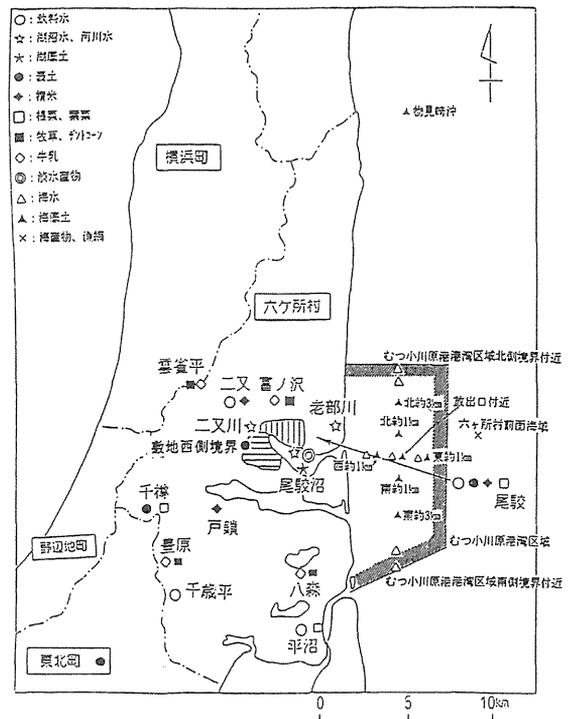


Fig. 10 再処理施設周辺における環境試料採取場所
Environmental Monitoring (3)

線量当量の計算に当たっては、国の指針を適用するとともに、周辺陸域および海域の利用状況等の地域特性を考慮した適切な解析モデルおよびパラメータを用いる。

(1) 大気放出に係る線量当量評価

大気放出される放射性物質により受ける線量当量評価経路は、

- ① 気体廃棄物中の放射性物質の放射性雲からの外部被ばく
- ② 気体廃棄物中の放射性物質の地表沈着による外部被ばく
- ③ 気体廃棄物中の放射性物質の呼吸摂取による内部被ばく
- ④ 農畜産物摂取による内部被ばく

などである。

大気放出に係る被ばく線量当量評価経路を Fig. 11 に示す。

放射性物質の大気への放出は、地上高150mの排気筒から行われる。この時の排気は、20m/s前後の速度で吹き出されるため、放射性物質は、さらに高い位置に吹き上げられ、風等により拡散してゆく。この拡散計算から、放射性雲からの外部被ばく、および呼吸摂取による内部被ばくを評価する。さらに拡散した放射性物質は、乾性沈着と降水沈着により、地表および農畜産物に沈着する。沈着した放射性物質が、長期間蓄積するとして、これから受ける線量を地表沈着による外部被ばくとして評価する。また農畜産物摂取による内部被ばくは、農作物に直接沈着した分からの寄与と、地表に蓄積し、根から農作物に吸収された分からの寄与を加え、評価する。

このような4経路の線量当量は、それぞれの経路において最大の線量当量を求めるが、農畜産物摂取による内部被ばくを除く3経路は、一地点において同時に被ばくするものであるため、各地点ごとに、3経路からの線量当量を足し合わせた結果が、最大となる地点での線量当量を評価する。農畜産物摂取による内部被ばくは、それらを摂取するまでの流通形態が複雑で、受ける放射線量の地域的な分布を評価することが困難なため、この経路における最大の線量当量を評価し、前述の3経路足し合わせによる最大線量と加えることにより、大気放出に係る線量当量として評価する。

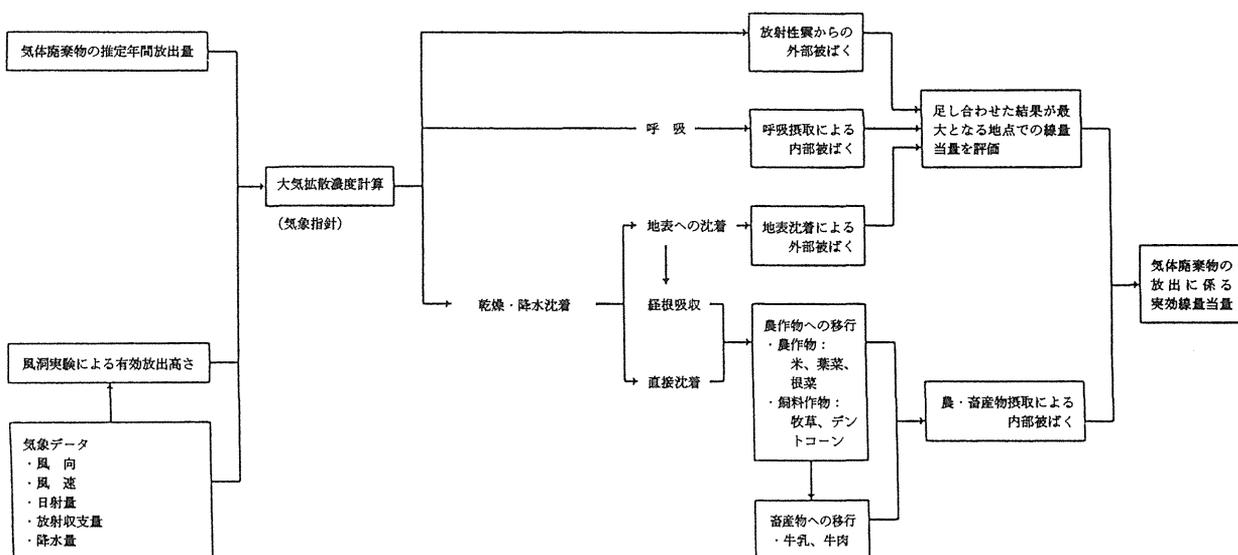


Fig. 11 気体廃棄物の放出に係る線量当量評価経路
Exposure Pathway by Gaseous Waste

(2) 海洋放出に係る線量当量評価

海洋放出される放射性物質により受ける線量当量評価経路は、

- ① 液体廃棄物中の放射性物質による外部被ばく
- ② 海産物に移行する液体廃棄物中の放射性物質の摂取による内部被ばく

である。

なお液体廃棄物中の放射性物質による外部被ばくは、当該海域における海浜利用、漁業等の実態を考慮の上、漁業漁労活動における海水面からの被ばく、漁網からの被ばく、船体からの被ばくなどである。

また海産物に移行する液体廃棄物中の放射性物質による内部被ばくは、当該海域における漁業実態および敷地周辺の一般公衆の食品摂取状況を考慮のうえ、魚類、海藻類、貝類、頭足類、および甲殻類の摂取を対象として行う。海洋放出に係る被ばく線量評価経路を Fig. 12 に示す。

放射性物質の海洋への放出は、海底に設置された放流管により沖合約3 km、水深47mの地点で行われる。このとき排液は、ノズルを通じて鉛直上向きに噴出され、周囲の海水を巻きこみ混合希釈されながら海面へ向かい、その後、海の流れと乱れにより拡散していく。このような海洋での拡散を、放出端から噴出エネルギーのなくなるまで、すなわち排液と周囲海水との密度差がなくなるまでは、三次元モデルを、それ以降は、平面二次元モデルを用いて、数値シミュレーションによって解析する。

評価海域としては、当該海域における漁業実態に基づき、漁場として指定されておらず、漁業活動が営まれていない範囲および放出口の位置を考慮のうえ、実効線量当量が最大となる地点を選定する。

海洋放出に係る線量当量の計算は、それぞれの経路ごとの対象海域での年間平均濃度を、数値シミュレーションの結果から求め、海産物摂取による内部被ばくは、濃縮係数法により、また外部被ばくは、現地漁労実態調査結果より算出する。これらの二経路からの線量は、被ばくが重複する可能性を考慮して、足し合わせて、海洋放出に係る線量当量として評価する。

(3) 評価結果

再処理施設から放出される気体廃棄物および液体廃棄物中の放射性物質による経路毎の線量当量を Ta -

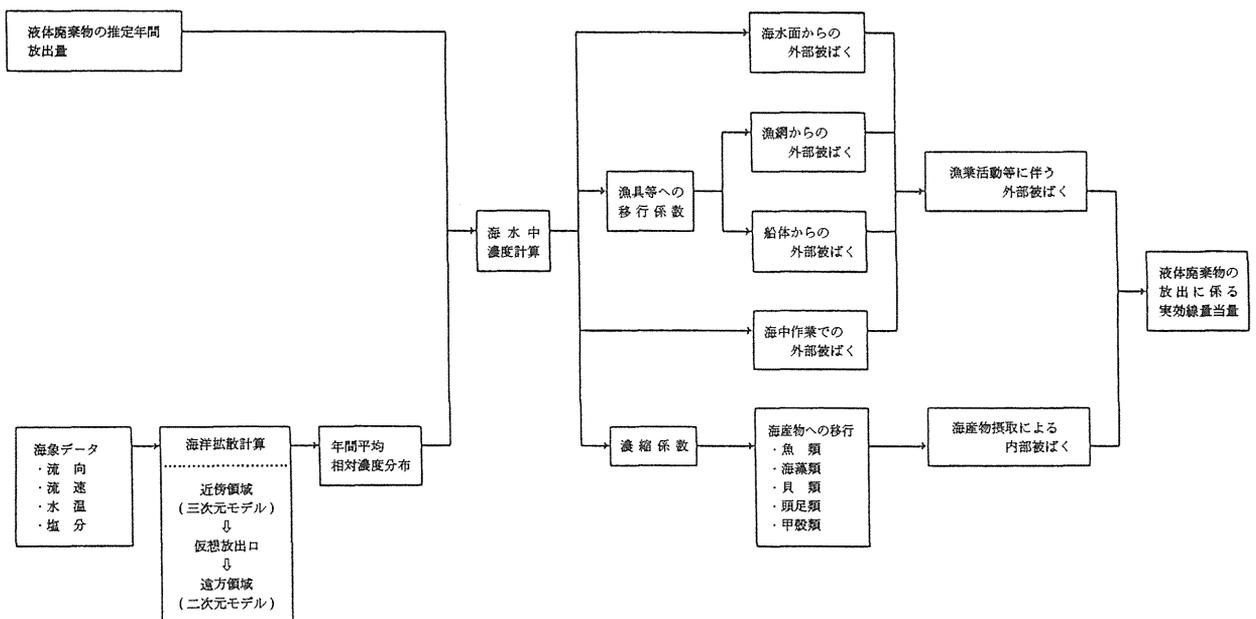


Fig. 12 液体廃棄物の放出に係る線量当量評価経路
Exposure Pathway by Liquid Waste

ble-4に示す。また線量当量に寄与している核種割合をFig. 13に示す。

周辺の一般公衆の線量当量は実効線量当量で年間約0.022 mSvであり十分小さい。

このことは、環境中に放出された放射性物質が、現地の気象、海象等の自然条件の下で、どのように移行、沈着していくかを解析した上で、長期蓄積、食物連鎖などを安全側に仮定して受ける線量を求めていることから、十分な安全確保がなされていると考える。

参考文献

- 1) Benedict, M., et al 清瀬量平訳：使用済燃料とプルトニウムの化学工学、原子力化学工学、第三分冊（1984）日刊工業新聞社
- 2) 原子力安全委員会：六ヶ所再処理施設周辺の環境放射線モニタリング計画について、平成7年1月

Table - 4 放射性廃棄物による実効線量当量
Effective Dose Equivalent based on Gaseous Waste and Liquid Waste

	経路	実効線量当量 (mSv/y)
気体廃棄物による線量当量	放射性雲からの外部被ばく	約 3.9×10^{-3}
	地表沈着による外部被ばく	約 2.9×10^{-3}
	呼吸摂取による内部被ばく	約 5.7×10^{-4}
	農作物摂取による内部被ばく	約 8.7×10^{-3}
	畜産物摂取による内部被ばく	約 8.9×10^{-4}
	大気合計	約 1.7×10^{-2}
液体廃棄物による線量当量	海水面からの外部被ばく	約 2.5×10^{-6}
	漁網からの外部被ばく	約 8.4×10^{-4}
	船体からの外部被ばく	約 2.0×10^{-6}
	海中作業での外部被ばく	約 4.6×10^{-5}
	海産物摂取による内部被ばく	約 4.1×10^{-3}
	海洋合計	約 5.0×10^{-3}
合計		約 2.2×10^{-2}

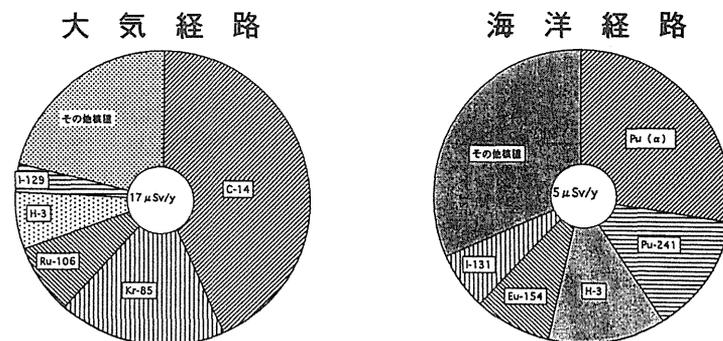


Fig. 13 線量当量に寄与している核種割合
Distribution of Radionuclide in Dose Equivalent

1. 沿岸における $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の分布と挙動

住谷 秀一

動力炉・核燃料開発事業団

Distribution and behavior of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in coastal marine environment

Shuichi Sumiya

Safety Division, Power Reactor & Nuclear Fuel Development Corporation

9-13, 1-chome, Akasaka, Minato-ku, Tokyo, 107, Japan

ABSTRACT—Transuranic (TRU) nuclides such as Pu, Am are very important nuclides to estimate the effective dose equivalent for public, because these nuclides are almost long-lived α emitters. We have studied distribution and behavior of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in the environment around Tokai-mura, Japan.

In this report, we summarized the distribution and behavior of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in sea water, marine products and sea bed sediment in coastal marine environment based on our data and other organization's data.

Concentrations of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in unfiltered coastal sea water around Tokai-mura were $2.7 \sim 32 \mu\text{Bq}/\ell$ (mg; $9.7 \mu\text{Bq}/\ell$), $0.50 \sim 7.5 \mu\text{Bq}/\ell$ (mg; $2.1 \mu\text{Bq}/\ell$) during 1982-1994, respectively and each concentration level was about the same level for this period. Furthermore, the partitions of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am between filtrate ($< 0.002 \mu\text{m}$), colloidal which was defined as trapped materials with ultrafiltration (about $0.002 - 0.22 \mu\text{m}$), suspended particulate ($0.22 - 0.45 \mu\text{m}$ and $> 0.45 \mu\text{m}$) in coastal sea water were examined. The results showed that $^{239,240}\text{Pu}$ in the coastal sea water mainly existed in the filtrate fraction and ^{241}Am in the coastal sea water predominantly existed in the particulate fraction.

Concentrations of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in coastal marine products around Tokai-mura during 1982-1994 were $0.062 \sim 0.89 \text{mBq}/\text{kg}$ fresh, $0.027 \sim 0.43 \text{mBq}/\text{kg}$ fresh for whitebait, $0.042 \sim 0.50 \text{mBq}/\text{kg}$ fresh, $0.027 \sim 0.31 \text{mBq}/\text{kg}$ fresh for flatfish, $0.78 \sim 11 \text{mBq}/\text{kg}$ fresh, $0.085 \sim 2.8 \text{mBq}/\text{kg}$ fresh for brown algae, $0.32 \sim 7.3 \text{mBq}/\text{kg}$ fresh, $0.60 \sim 5.7 \text{mBq}/\text{kg}$ fresh for shellfish, respectively.

Furthermore, Concentrations of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in coastal sea bed sediment around Tokai-mura during 1982-1994 were $0.054 \sim 1.5 \text{Bq}/\text{kg}$ dry, $0.043 \sim 0.67 \text{Bq}/\text{kg}$ dry, respectively. Concentration ratios of $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ were about 0.4 and almost the same level for this period.

1. はじめに

$^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am は、長半減期の α 線放射体であり、大気圏内核実験の影響等により環境中に広く分布し、線量当量評価を行う上で重要な核種である。このことから、環境中での分布と挙動について、国内外で多くの調査研究結果が報告されており、動燃事業団東海事業所においても、各種環境試料について調査してきている。

本報告では、茨城県東海村沿岸の海水、海産生物、海底土中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の分布と挙動について、動燃事業団において調査してきたデータを中心に国内外の他の研究機関が報告しているデータと併せて報告する。

2. 海水中での分布と挙動

海水中に供給された放射性物質は、海水を経て、海産生物、海底土へ移行することから、その挙動を把握するためには、海水中における放射性物質の分布状況を把握することが重要である。特に海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度は、粒子態や溶存態といった海水中での物理形態や酸化状態等の化学形態の違いにより変動するといわれている。

茨城県東海村沿岸の表層末ろ過ぎ海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度は1982年から1994年の調査期間においてそれぞれ2.7~32 $\mu\text{Bq}/\ell$ 、0.50~7.5 $\mu\text{Bq}/\ell$ の範囲であり、 $^{239,240}\text{Pu}$ で平均9.7 $\mu\text{Bq}/\ell$ 、 ^{241}Am で平均 2.1 $\mu\text{Bq}/\ell$ の濃度レベルではほぼ一定で推移している (Fig. 1)。一方、外洋のろ過海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度は、それぞれ北太平洋で 2.2~22 $\mu\text{Bq}/\ell$ 、0.37~4.1 $\mu\text{Bq}/\ell$ 、インド洋で 1.9~11 $\mu\text{Bq}/\ell$ 、0.74~1.5 $\mu\text{Bq}/\ell$ 、日本海で 2.2~15 $\mu\text{Bq}/\ell$ 、1.1~1.9 $\mu\text{Bq}/\ell$ のレベルと報告されており⁽¹⁾、沿岸海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度が外洋海水中の濃度よりわずかに高い傾向がみられる。これは沿岸海水中には外洋海水に比べ比較的少量の懸濁物が含まれていることに起因する末ろ過海水とろ過海水の違いによるものと考えられている⁽²⁾。なお、東海村沿岸海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度に対する ^{241}Am 濃度の放射能比は0.17~0.44の範囲で、平均すると0.2程度で推移している。

海水中の Pu 及び Am は、懸濁物とともに粒子態になりやすい核種として知られているが、その存在割合は調査海域や報告者によって異なっている。

このことから、東海村沿岸の表層海水について、溶存態、コロイド態、懸濁物(粒子態)に分け、それらの分布状況を把握するための検討を実施した。

海洋における元素の物理化学的存在形態に関しては種々の分類が提案されているが、その粒径によって、0.1 μm 以上の粒子態、 $10^{-3}\mu\text{m}$ 以上0.1 μm 未満のコロイド態、 $10^{-3}\mu\text{m}$ 未満の溶存態と大別されており、それぞれを弁別する分離法としては、精密ろ過、限外ろ過、逆浸透法がある。

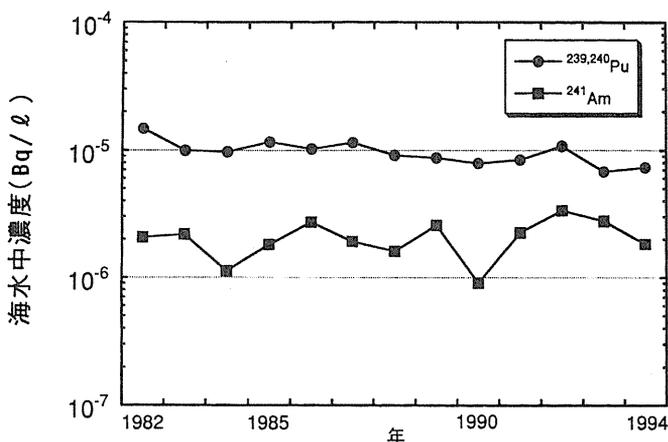


Fig. 1 東海村周辺沿岸海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度の経年変化 (未ろ過海水)
Annual variation of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am concentrations in unfiltered coastal sea water around Tokai-mura

本捕集法の検討では、0.45 μm 及び0.22 μm メンブランフィルタにより捕集したものを粒子態、コロイド態は画分子量1万；約 2×10^{-3} μm の限外ろ紙を用いて捕集したものをコロイド態、またこの限外ろ紙を通ったものを溶存態とした。

通常の海水中 Pu 及び Am の分析では、採水直後に試料に硝酸を添加し、採

水タンク内への壁面吸着を防止するが、本調査では硝酸添加による物理形態の変化を考慮し、物理形態別用試料には硝酸添加は行わず、採水後直ちにろ過処理に供した。

沿岸海水は日立港1件及び久慈沖約8 km点で3件の表層海水を採取し、Pu 分析を4件、Am 分析を2件実施した。

その結果を Table-1 に示す。沿岸海水の $^{239,240}\text{Pu}$ については、0.45 μm のメンブランフィルタで捕集した粒子態の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は全体の11~35% (平均19%) で、溶存態の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は全体の63~84% (平均78%) であった。また、0.22 μm のメンブランフィルタで捕集した粒子態及びコロイド態の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度はそれぞれ検出下限未満であった。同様に、 ^{241}Am については、0.45 μm のメンブランフィルタで捕集した粒子態の ^{241}Am 濃度は全体の50%及び59%で、溶存態の ^{241}Am 濃度は全体の37%及び38%であり、0.22 μm のメンブランフィルタで捕集した粒子態及びコロイド態の ^{241}Am 濃度は $^{239,240}\text{Pu}$ と同様にそれぞれ検出下限未満であった。

したがって、この沿岸海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の物理的な存在形態の調査結果では、 $^{239,240}\text{Pu}$ は、溶存態>粒子態>コロイド態の傾向で、また ^{241}Am については、粒子態>溶存態>コロイド態の傾向で存在することが分かった。

このことから、現在の沿岸海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am は、 $^{239,240}\text{Pu}$ は溶存態として、 ^{241}Am は粒子態として、それぞれ違った形態で海水中に分布することが示唆された。

また、沿岸海水中の粒子態及び溶存態における $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比は、Table-2 に示すとおり

Table-1 東海村沿岸海水中 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の物理形態 (粒径別) 調査結果
Results of physical separation for distribution of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in coastal surface sea water collected around Tokai-mura

物理形態	分析試料	$^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度 (Bq/ l) の相対割合 (%)	
		$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am
粒子態 >0.45 μm	メンブランフィルタ 0.45 μm	11~35 (平均19)	50, 59
粒子態 0.22~0.45 μm	メンブランフィルタ 0.22 μm	< 5	< 7
コロイド態 0.002~0.22 μm	限外フィルタ 分画分子量；1万	< 4	< 7
溶存態 <0.002 μm	ろ過海水	63~84 (平均78)	37, 38

Table-2 東海村周辺沿岸海水中粒子態及び溶存態における $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比
 $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios in 'Soluble' and 'Particulate' phases of coastal surface sea water collected around Tokai-mura

試料 No.	$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比		粒子態/溶存態
	粒子態	溶存態	
A	1.4 ± 0.23	0.13 ± 0.02	11 ± 2
B	0.70 ± 0.13	0.08 ± 0.01	9 ± 2
地中海沿岸海水 ⁽³⁾ 7地点19海水	0.4~1.2 平均 0.6 ± 0.3	0.041~0.12 平均 0.083~0.014	4~14 平均8 ± 4

であり、溶存態中の放射能比に対する粒子態中の放射能比は約10となり、放射能比からも粒子態として存在する ^{241}Am の割合が高いことが確認された。

Table-3 にこれまでに報告されている表層水における粒子態の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の存在割合を示す⁽³⁾。この表に示すように海域や報告者によって値が異なり、 $^{239,240}\text{Pu}$ では2~60%、 ^{241}Am では10~90%と、かなり幅のある報告がなされているが、この結果からも Am が Pu よりも粒子態としての存在割合が高いことが示されている。

Table-3 表層水における粒子態の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am ⁽³⁾
Association of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am to the suspended particulate matter
in surface waters from different marine ecosystems

Region	Total (mBq ⁻³)		粒子態 (%)		ϕ μm	Ref.
	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am		
大西洋	37	1.8 ⁻¹¹	<30	—	0.45	(a)
ビキニ環礁	1900	1100	40	90	0.45	(b)
ミシガン湖	25	0.8	5-40	—	0.45	(c)
アイリッシュ海東部	90×10 ³	60×10 ³	36	80	0.22	(d)
アイリッシュ海西部	750	550	36	52	0.22	(d)
アイリッシュ海東部	(0.8-20)×10 ³	(1-27)×10 ³	60	90	0.45	(e)
アイリッシュ海西部	300	50	2-15	30-60	0.45	(e)
地中海	37	2.2	4	10	0.45	(f)
地中海	15	2	4-15	30-60	0.22	(t)

ϕ Membrane porus diameter.

(a)Livingston and Bowen, 1977. (b)Nevisi and Schell, 1975. (c)Wahlgren and Marshall, 1975.

(d)Hetherington and Harvey, 1978. (e)Mitchell et al., 1991. (f)Holm et al., 1980. (t)This work.

また、海水から海水中懸濁物や海底堆積物への吸着の度合いを表すパラメータとして広く用いられている分配係数は、Table-4 に示すとおり、Pu で10⁴~10⁵、Am で10⁵~10⁶程度と報告されている⁽³⁾。

次に、物理形態とともに、海洋環境における核種の移行挙動に影響をもたらす重要な因子である化学形態等について、国内外で調査研究されているデータの一部を紹介する。

まず、表層海水中の粒子態における Pu を含めた放射性物質の化学形態（結合形態）については、0.05 M, pH4 の酢酸緩衝液、0.01 M, pH2 の塩酸溶液、0.1 M, pH1 の塩酸溶液及び濃硝酸混合溶液を用いた

Table-4 表層水における懸濁粒子と海水間における Pu 及び Am の分配係数⁽³⁾
Plutonium and Americium K_d s in surface sea water
from different marine ecosystems

Region	K_d (ℓkg^{-1})		Reference
	$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am	
アイリッシュ海	(3.1±0.8)×10 ⁵	(2.4±0.4)×10 ⁶	Kershaw et al., 1986
北海	(6±3)×10 ⁵	(2.8±1.5)×10 ⁶	Kershaw et al., 1986
アイリッシュ海西部	(8±2)×10 ⁴	(4±2)×10 ⁵	Mitchell et al., 1991
アイリッシュ海東部	(4±2)×10 ⁵	(3±1)×10 ⁶	Mitchell et al., 1991
ボンベイ湾	(0.5-1.5)×10 ⁵	—	Pillai & Mathew, 1975
Rhone River Delta	~6×10 ⁵	~10 ⁶	Martin & Thomas, 1990
地中海	(1.2±0.7)×10 ⁵	(0.9±0.5)×10 ⁶	This work

Reported uncertainties are ±1 σ

系統浸出法により、無機の5価、6価の金属、無機の4価の金属、ウラン6価の有機錯体及び不活性の有機錯体の4つのステージに分けて分析する方法が研究されている⁽⁴⁾。

この方法を用いた海水中粒子態の典型的な結合形態は、Fig. 2に示すように、UではU(VI)の有機錯体が支配的であるのに対し、Puでは硝酸+塩酸で加熱分解された残渣中での割合が最も多く、次にPu(IV)の無機錯体の割合が高いことが示されている⁽⁴⁾。そしてPuで最も高い割合を示す残渣中でのPuの結合形態は、この系統浸出法において残渣中のTn及びUが還元形の酸化形態の有機錯体であるという結果から、Pu(IV)の有機錯体であると推定されている⁽⁴⁾。

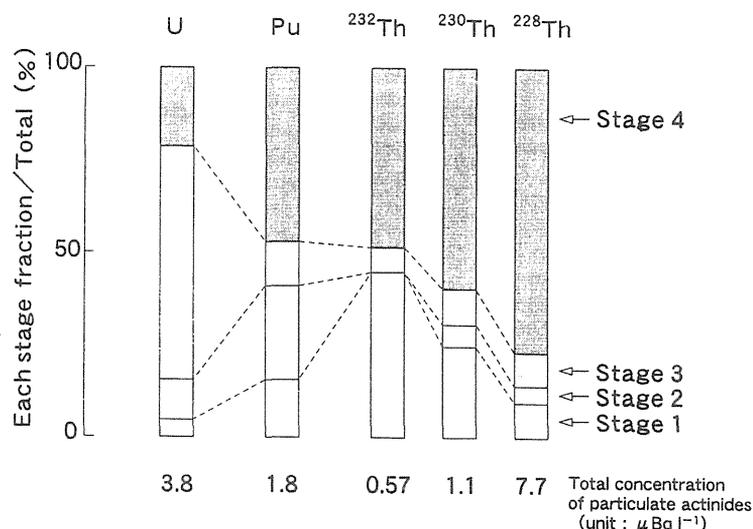


Fig. 2 系統浸出法を用いた海水中粒子状ウラン、プルトニウム及びトリウム同位体の典型的な結合形態割合⁽⁴⁾

A typical partitioning signature of particulate uranium, plutonium and thorium isotopes in seawater by using the sequential leaching method comprising four stages.

Stage-1 : 0.05 M 酢酸緩衝溶液 (pH4.0) 100ml、(V+VI) 価金属の無機錯体 (水酸化物、炭酸塩、ケイ酸塩)
 Stage-2 : 0.01 M 塩酸溶液 (pH 2.0) 100ml、IV 価金属の無機錯体
 Stage-3 : 0.1 M 塩酸溶液 (pH 1.0) 100ml、U (VI) の有機錯体
 Stage-4 : 濃硝酸及び塩酸による加熱残渣分解物

一方、Puの酸化形態については、還元形の(III+IV)価と酸化形の(V+VI)価のPuに分けて研究が行われており、Pu(III+IV)の方がPu(V+VI)より粒子態として懸濁粒子に吸着され易く⁽⁵⁾、アイリッシュ海の海水では、懸濁粒子(>0.22 μm)中でPu(III+IV)が多く、ろ過海中ではPu(V+VI)が多いことが報告されている⁽⁶⁾。また、地中海及び茨城県東海村沿岸の海水では、Pu(V+VI)の割合が全体の50~85%であったとの報告がなされている⁽⁷⁾。さらに近年海水等を対象としたPu(V)とPu(VI)の弁別分析法の研究がなされてきており^{(8),(9),(10),(11)}、それらの結果からは、海水中のPuの酸化形態はPu(V)が有力であることが示されている(Table-5 参照)⁽¹¹⁾。

3. 海産生物での分布と挙動

海水中に供給された放射性物質は海産生物へ移行(濃縮)し、公衆がこれら海産生物を食物として摂取す

Table-5 天然水中のPuの酸化状態(%)⁽¹¹⁾
 Plutonium oxidation states in natural water

	Pu(III+IV)	Pu(V)	Pu(VI)	Reference
雨水	34	66		(a)
地中海	42	58		(a)
アイリッシュ海	23	77	0	(b)
大西洋(I)	39	52	9	(b)
大西洋(II)	40	46	14	(b)
ミシガン湖	13	87	0	(b)

a Fukai et al. (1987).

b Orlandini et al. (1986).

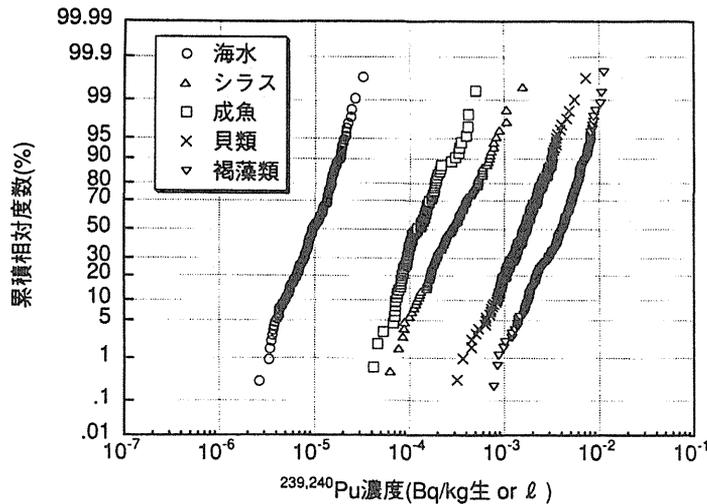


Fig. 3 東海村周辺沿岸海水及び海産生物中 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度の対数正規確率分布 (調査期間; 1982~1994年)
Log-normal distributions of $^{239,240}\text{Pu}$ concentration in coastal sea water and marine products around Tokai-mura

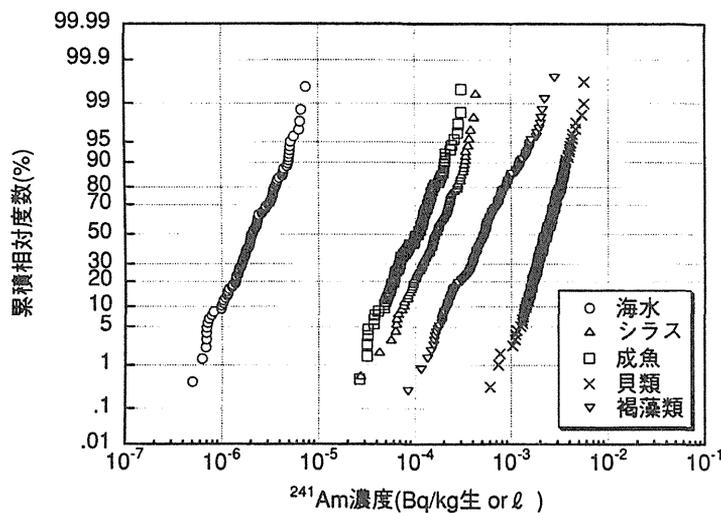


Fig. 4 東海村周辺沿岸海水及び海産生物中 ^{241}Am 濃度の対数正規確率分布 (調査期間; 1982~1994年)
Log-normal distributions of ^{241}Am concentration in coastal sea water and marine products around Tokai-mura

の方が高い濃縮係数を示す傾向が見られた。なお、濃縮係数の算出に当たっては、当該年ごとの海水中的 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度の幾何平均値に対する各海産生物中濃度の放射能比とした。今回得られた各海産生物の濃縮係数は、これまで同海域で調査された値^{(12),(13)} とほぼ一致したものであった。

一方、海産生物中の $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比を対数正規確率分布として整理すると Fig. 5 に示すようになる。各海産生物中の放射能比は若干大きい変動幅を示すものの、それぞれの放射能比の分布は、貝>成魚>シラス>海藻の傾向を示し、プランクトン等を摂取する貝、成魚、シラスにおける放射能比は、海水中的の粒子態における放射能比に近く、海藻の放射能比は海水中的の溶存態における放射能比に近い傾向がみられた。このことから、海水からこれら海産生物への $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の移行には、海洋における食物連鎖を含めた海水中的の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 物理形態が大きく関与しているものと思われる。

ることから、海産生物種毎の分布と挙動を把握することは、線量当量評価の観点から重要である。

茨城県東海村沿岸で1982年から1994年までに調査した海産生物中の種別毎の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度範囲は、Fig. 3 及び Fig. 4 に示すとおり、それぞれシラスで $0.062 \sim 0.89 \text{ mBq/kg}$ 生、 $0.027 \sim 0.43 \text{ mBq/kg}$ 生、成魚(カレイ、ヒラメ)で $0.042 \sim 0.50 \text{ mBq/kg}$ 生、 $0.027 \sim 0.31 \text{ mBq/kg}$ 生、褐藻類で $0.78 \sim 11 \text{ mBq/kg}$ 生、 $0.085 \sim 2.8 \text{ mBq/kg}$ 生、貝類で $0.32 \sim 7.3 \text{ mBq/kg}$ 生、 $0.60 \sim 5.7 \text{ mBq/kg}$ 生であり、 $^{239,240}\text{Pu}$ では褐藻類>貝類>シラス>成魚、 ^{241}Am では貝類>褐藻類>シラス>成魚の濃度傾向を示した。ここで、 $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am とでは褐藻類と貝類中の濃度傾向が逆転していることが分かる。

また、平衡状態を仮定した同海域でのフィールドデータを基に算出した Pu 及び Am の海産生物への濃縮係数は、Table-6 に示すように、それぞれ、シラスで30及び70、成魚(カレイ、ヒラメ)で10及び50、貝類で200及び1000、褐藻類で400及び300程度であり、褐藻類を除き Am

Table-6 東海村周辺沿岸海産生物における $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃縮係数
 Concentration factors of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am for coastal marine products around Tokai-mura

核種	海産生物種	データ数	範囲	濃縮係数 (注)	
				幾何平均値	幾何標準偏差
$^{239,240}\text{Pu}$	シラス	96	5.4~150	29	1.6
	成魚 (ヒラメ及びカレイ)	78	4.0~68	13	1.6
	褐藻類	216	78~1200	380	1.6
	貝類	153	36~500	170	1.5
^{241}Am	シラス	81	17~390	74	1.6
	成魚 (ヒラメ及びカレイ)	99	13~340	48	1.6
	褐藻類	183	31~1600	270	1.8
	貝類	147	230~3900	1200	1.5

(注) ; 調査期間 1982~1994年

$$\text{濃縮係数} = \frac{\text{当該年の海産生物中濃度 (Bq/kg 生)}}{\text{当該年の海水中濃度の幾何平均値 (Bq/l)}}$$

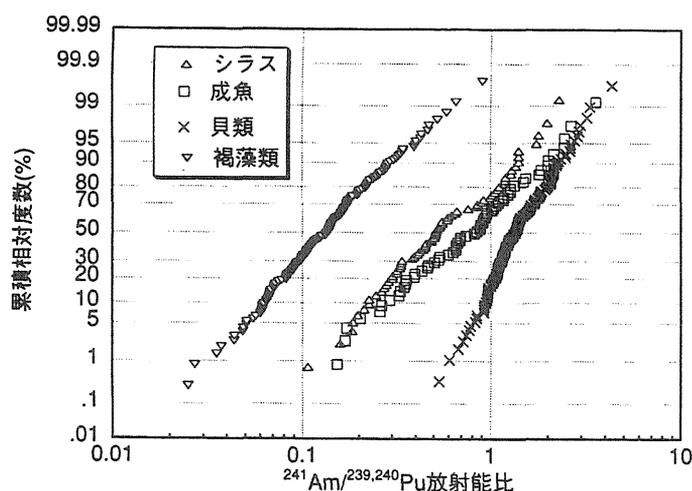


Fig. 5 東海村周辺沿岸海産生物中 $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比の対数正規確率分布 (調査期間; 1982~1994年)
 Log-normal distributions of $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios in coastal marine products around Tokai-mura

4. 海底土中での分布と挙動

海水中に供給された $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am は、前述のように種々の結合形態をとり海水中で粒子態となりその後海底に沈降し、また、海水中での分配係数が高いことから直接海底土に吸着するなど、海底に堆積し長期間堆積または蓄積されることが予想される。このため、 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の長期的な海洋での移行及び食物連鎖等を考慮すると、海底土中の分布と挙動を把握すること、また、それらの変動要因として考えられる有機物含量、粒子径 (比表面積) 等の土質や海底土との結合形態などとの関連についての調査も重要と考えられる。

茨城県東海村沿岸の海底土中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am の濃度は、Fig. 6 に示すように1982年から1994年の調査期間において、それぞれ0.054~1.5 Bq/kg 乾土、0.043~0.67 Bq/kg 乾土であり、 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度はほぼ一定に推移しており、 $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比は0.4程度であった。

一方、海底土中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度に影響すると考えられる有機物含量、比表面積との関連に

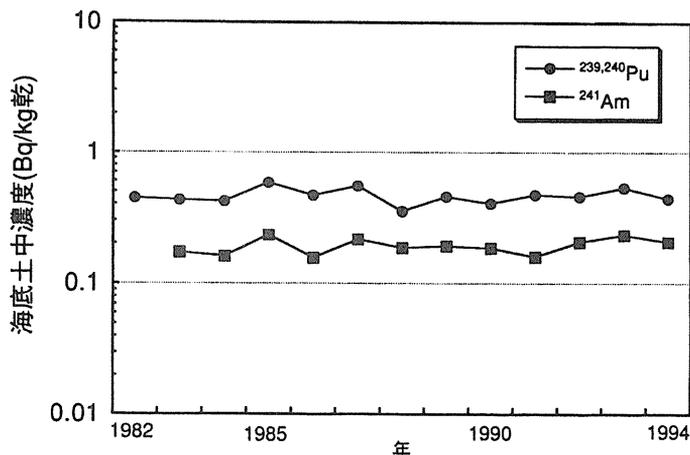


Fig. 6 東海村周辺沿岸海底土中 $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度の経年変化
Annual variation of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am concentrations in coastal sea bed sediment around Tokai-mura

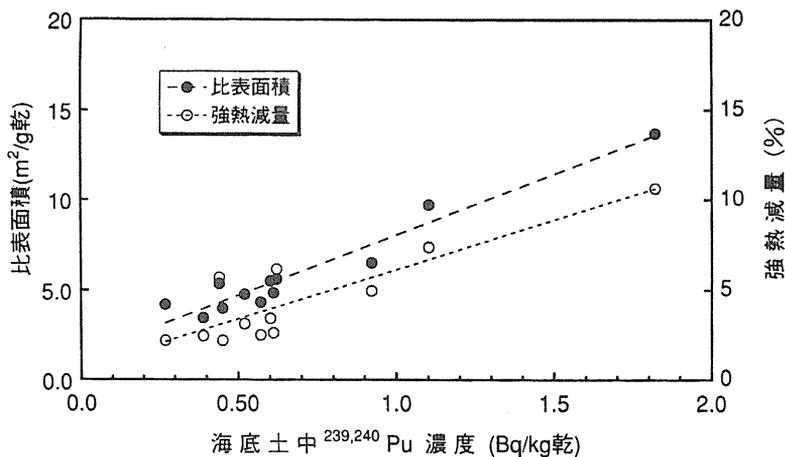


Fig. 7 東海村沿岸海底土中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度と比表面積及び強熱減量との相関⁽¹⁴⁾
Relationships between the concentrations of $^{239,240}\text{Pu}$ in Tokai coastal sea sediments, and the specific surface area and the ignition loss of the sea sediments

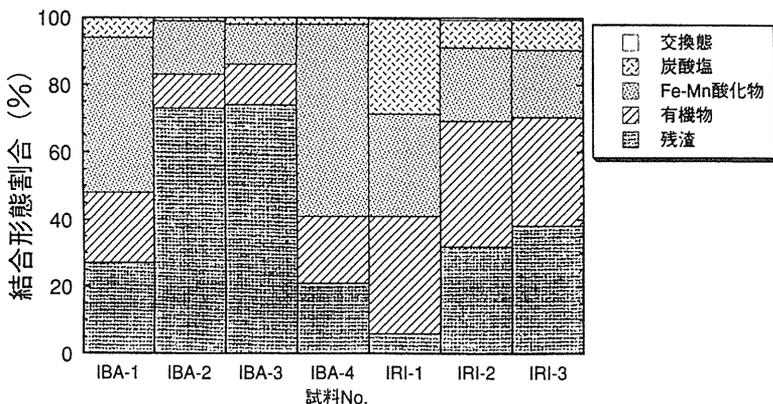


Fig. 8 沿岸堆積物中 $^{239,240}\text{Pu}$ の結合形態^{(16),(17)}
IBA - 1~4; 茨城県東海沿岸
IRI - 1~3; アイリッシュ海
Comparison of geochemical partitioning of $^{239,240}\text{Pu}$ in coastal sea sediments

については、 $^{239,240}\text{Pu}$ において Fig. 7 に示すように強熱減量（有機物含量）及び比表面積に対して正の相関が見られる⁽¹⁴⁾。また、Pu 及び Am の海底土中での結合形態については、Tessier らの分別溶出分離法⁽¹⁵⁾ をもとに、茨城県東海村沿岸⁽¹⁶⁾、アイリッシュ海⁽¹⁷⁾ 等の海底土について、可溶態（交換態）、炭酸塩結合態、Fe-Mn 酸化物結合態、有機物結合態及びケイ酸塩母材結合態の 5 つの結合形態に分けて調査がなされている。これらの調査結果からは、Pu 及び Am の結合形態は、試料の採取場所及び核種により違いが見られるが、Pu は主としてケイ酸塩母材結合態、Fe-Mn 酸化物結合態及び有機物結合態であり（Fig. 8 参照）、Am は主として Fe-Mn 酸化物結合態、炭酸塩結合態及び有機物結合態であることが示されている（Fig. 9 参照）。

5. おわりに

環境中の Pu 及び Am に関しては、国内外で多くの調査研究がなされてきているが、海洋環境中の Pu 及び Am 濃度は極めて低いことから、これら核種の海洋環境中での動態調査には分析上の種々の課題や評価結果の不確実性をともなうため、未解決の部分も多く残されている。このため、より現実的な沿岸海洋における Pu 及び Am の動態及び移行モデルの構築には、今後さらに物理化学形態等を含めたより詳細な調査研究が必要である。

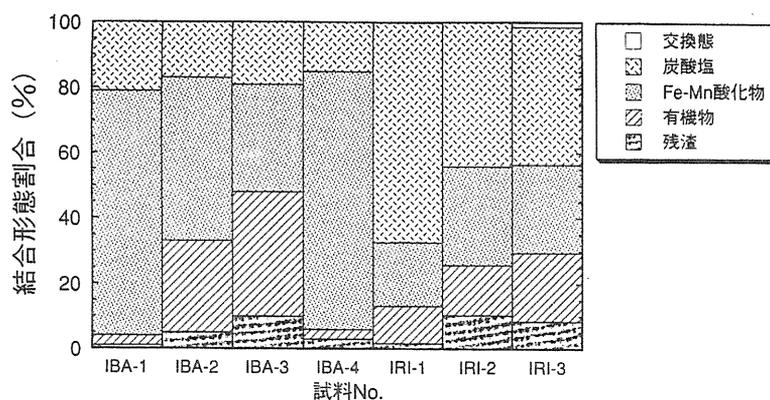


Fig. 9 沿岸堆積物中 ²⁴¹Am の結合形態^{(16),(17)}
 IBA - 1 ~ 4 ; 茨城県東海沿岸
 IRI - 1 ~ 3 ; アイリッシュ海
 Comparison of geochemical partitioning of ²⁴¹Am
 in coastal sea sediments

参考文献

- 1) Miyake, Y., et al., : Plutonium and americium in the environment, Proc. 6th Int. Congr. Radiat. Res., Toppan Print Co., Tokyo, 940-948, 1979
- 2) Yamato, A., : Concentration levels and behavior of transuranium nuclides in Japanese coastal marine environment, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, Vol. 156 No.2, 349-360, 1992
- 3) Molero, J., et al., : Particulate Distribution of Plutonium and Americium in Surface Waters from the Spanish Mediterranean Coast, J. Environ. Radioactivity, Vol.28 No.3, 271-283, 1995
- 4) Hirose, K. and Y. Sugimura, : Chemical speciation of particulate ²³⁸U, ^{239,240}Pu and Th isotopes in seawater, The Science of the Total Environment, 130/131, 517-527, 1993
- 5) Murray, C. N. and R. Fukai, : Adsorption-desorption characteristics of plutonium and americium with sediment particles in the estuarine environment, In Impact of nuclear releases into the aquatic environment, IAEA-SM-185/25, Vienna, 179-192, 1995
- 6) Nelson, D. M. and M. B. Lovett, : Oxidation state of plutonium in the Irish Sea, Nature, Vol.276, 599-601, 1978
- 7) 大和愛司 : 海水中プルトニウムの酸化状態、第8回放医研環境セミナー、海洋における生物濃縮とそれに影響を及ぼす因子、放医研環境セミナーシリーズ (1982)
- 8) Bondietti, E. A. and J. R. Trabalka, : Evidence for plutonium(V) in an alkaline, freshwater pond, Radiochem. Radioanal. Letters, 42/3, 169-176, 1980
- 9) Orlandini, K. A., et al., : Pu(V) as the stable form of oxidized plutonium in natural waters, Marine Chemistry, 18, 49-57, 1986
- 10) Gregory, R. Choppin and Asaya Kobashi, : Distribution of Pu(V) and Pu(VI) in seawater, Marine Chemistry, 30, 241-247, 1990
- 11) Choppin, G. R., : Redox speciation of plutonium in natural waters, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, Vol.147, No.1, 109-116, 1991
- 12) Hayashi, N., et al., : Study on the Behavior of Radionuclides in Marine Environment under the Monitor-

- ing program of the Tokai reprocessing Plant, Proceedings of the Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management, RECOD'91, Sendai, Japan, Vol.1, 247-252, 1991
- 13) 森澤正人 他:環境中 Pu および Am の挙動に関する研究、放射線防護技術特集、動燃技報 No.81, 118-121, 1992
 - 14) 茨城県における放射能調査 (36報)、茨城県公害技術センター、1993
 - 15) Tessier, A., et al., : Sequential extraction procedure for the speciation of particulate trace metals, Anal. Chem. Vol.51, No.7, 844-851, 1979
 - 16) 松本周一 他:東海沖における海底土中のプルトニウムの結合形態別分析、茨城県公害技術センター研究報告、No.6, 45-49, 1994
 - 17) Yamamoto, M., et al., : Chemical leaching behavior of ^{237}Np from intertidal coastal sediment in the Irish Sea, J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters, Vol.154, No.5, 299-307, 1990

2. 外洋における超ウラン元素の分布と挙動

中 村 清
放射線医学総合研究所

Distribution and Behavior of Transuranics in the Open Ocean

Kiyoshi Nakamura

Division of Marine Radioecology, National Institute of Radiological Sciences
3609 Isozaki, Hitachinaka-shi, Ibaraki, 311-12 Japan

ABSTRACT – The major source of $^{239,240}\text{Pu}$ in the open ocean is the global fallout from the atmospheric weapon testing. In 1987–1989, the latitudinal distribution of $^{239,240}\text{Pu}$ in the surface water showed the pattern reflecting a global deposition in both the Pacific and the Atlantic Ocean. The feature of the $^{239,240}\text{Pu}$ vertical distribution is that a subsurface maximum exists at depth from 200m to 1000m over a large area of the ocean. Inventories of $^{239,240}\text{Pu}$ in the water column are often higher than those expected from global fallout and close-in fallout is suggested to be the additional inventory in the Pacific Ocean. The $^{239,240}\text{Pu}$ inventory in sediment has the values in the range of 2 to 27% of that in sea water. The use of a multiple corer is suggested for sediment sampling.

1. はじめに

超ウラン元素として、外洋で測定されているのは ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , ^{241}Am が主なるものであり、大部分は大気圏内核実験の降下物が起源である。 ^{241}Pu は核実験で生成される量が $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0.009$ (atom ratio) とかなり多く、 β 崩壊して ^{241}Am になるという重要な核種であるが、測定例は少ない。 ^{239}Pu と ^{240}Pu は α -スペクトロメトリーでは分別出来ないので、一般には $^{239,240}\text{Pu}$ として両核種の合計で表されている。

2. 海水中の分布

表層水中の $^{239,240}\text{Pu}$ の平均滞留時間が数年と短く、最近ではフォールアウトの降下量が低下していることから表層への供給が少ないので、表面海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ の濃度は年々減少している。従って水平分布は同一の時期に得られた試料の結果からしか比較出来ない。数年分のデータをまとめて図示してみると、海域による濃度差の傾向が現れない。¹⁾ 西部北太平洋の 30°N から 0°N の間では²⁾、フォールアウト降下量と類似した緯度別パターンが表面水中濃度に観測され、北の濃度が高く南で低い傾向であった。さら

に1979/80年よりも1985/86年では濃度が低下していたという。1980～1982年の中部北太平洋の表面水でも40°Nから10°Nの海水中の濃度が高く、フォールアウト降下量を反映している。³⁾ 大西洋では1988/89年に73°Nから72°Sまでと広い海域で調査が行われ、北半球で濃度が高く、南半球で低い傾向が見られた。^{239,240}Puの濃度は1972/73年のGEOSECS航海の結果と比較すると1/5から1/4に減少し、南北大西洋での表面水中の^{239,240}Puの半減期は7～8年と計算された。この滞留時間は、表層への供給量のデータと表層水中の存在量から計算される。このように1963年頃を中心に核実験により大量に供給されたフォールアウトの降下量の緯度による変動の傾向は30年以上も保たれているようである。1964年に落下した航海衛星(SNAP-9A)からの寄与と思われる²³⁸Puは最近でも観測され、1988/1989年の南半球の表面水では⁴⁾ ²³⁸Pu/^{239,240}Pu比は0.14～0.22であったという。なおフォールアウトでは²³⁸Pu/^{239,240}Pu比は0.025と言われている。ヨーロッパの再処理工場から放出された^{239,240}Puや²⁴¹Amの大部分は近傍の海域で沈積し、¹³⁷Cs、¹³⁴Csや⁹⁰Srと異なり、大西洋への影響は少ないようである。

^{239,240}Puの鉛直分布の例をFig. 1およびFig. 2に示す。⁵⁾ この図は、1990年の赤道域西太平洋で採取された海水の分析結果である。St. AQ-7 (00°01.6'N, 178°64.9'E)では底層では高濃度になっていないがSt. AQ-13 (04°58.6'N, 168°57.5'E)では、底層の2点で中層より高濃度になっている。外洋における^{239,240}Puの鉛直分布の傾向は、200 m - 1000 mの亜表層に極大を示し、海域によっては底層でも高濃度を示す場合があるというのが特徴であり、¹³⁷Csや⁹⁰Srの鉛直パターンとは異なっている。⁶⁾

亜表層の極大については、表層に供給されたPuが、落下速度の大きい生物起源の沈降粒子に吸着されて表層から除かれ、亜表層で放出されるので濃度が極大となると説明されている。海域によって亜表層極大の位置や濃度が異なる点については研究が進んでいない。V. T. Bowen et al¹⁾は、1974年と1978年にはほぼ近くの海域で2回観測し、亜表層極大を示す深さが465mから515mへと変動したことを見出したが、検討の結果、水塊の鉛直方向よりむしろ水平方向への移流であろうと結論している。底層の高濃度域については、海底に堆積したPuの再溶出や沈降粒子の海底近くでの溶解等が考えられるが、高濃度が観測されない場合もあるので、未だ解明されているとはいえない。深海の海底近くの海水を堆積物粒子の

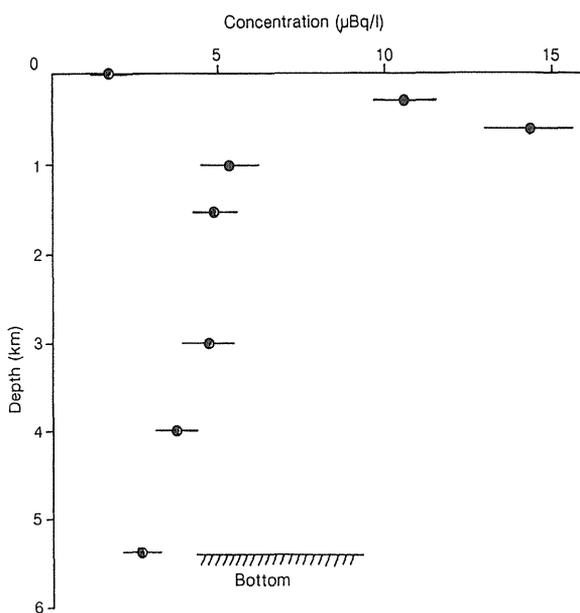


Fig. 1 Vertical profile of ^{239,240}Pu in sea water at St. AQ-7 in KH90-3 Cruise.

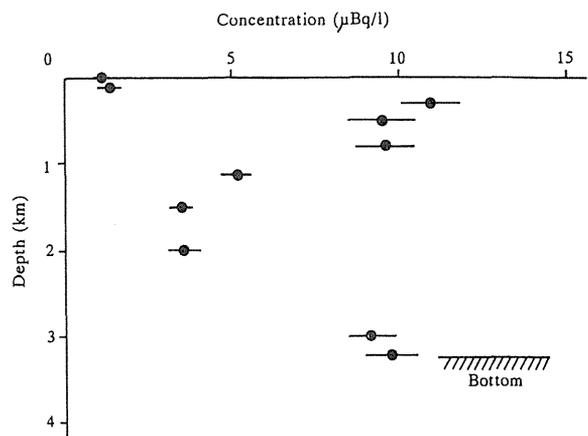


Fig. 2 Vertical profile of ^{239,240}Pu in sea water at St. AQ-13 in KH90-3 Cruise.

影響なく採取することは極めて困難であり、現在では海底上20~40 mの深層水の採水が一般的である。もっと海底に近い海水中のPu濃度が測定出来れば、研究が進むかも知れない。

海水柱 (Water Column) の表層から底層までの $^{239,240}\text{Pu}$ の全存在量を計算した例をFig. 3に示す。⁸⁾

これは1980年から1985年までの北太平洋での観測結果から計算したものである。図の左側の数字は、UNSCEAR (1977, 1982) から計算した緯度別のフォールアウト降下量である。海水柱の $^{239,240}\text{Pu}$ 存在

量はフォールアウト量よりも多い場合が多く、比率では特に南部で多い。これはビキニやエニウェトクで行われた核実験の際に近傍に供給されたものの寄与が大きいのと思われる。なお日本海でのデータは1984年の試料によるものであるが、1992年頃に発覚した旧ソ連による放射性廃棄物投棄の影響は見られない。太平洋での同緯度海域と比べてむしろ海水柱の存在量は少ないからである。また1995年7月に発表された日韓口3ヶ国の共同調査の報告⁹⁾でも日本海で $^{239,240}\text{Pu}$ の異常な濃度は検出されなかった。

$^{239,240}\text{Pu}$ は粒子に取り込まれ易いことがわかっている。北太平洋海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ は表面海水中では粒子形が12~35%であるが、亜表層極大層では6%、底層の高濃度域では1%であったという報告がある。¹⁰⁾最近海洋の物質循環に果たす大型沈降粒子の役割の大きいことがわかってきた。この粒子を採集するSediment Trapを使用している。¹¹⁾¹²⁾放医研で行ったSediment Trap実験の結果をFig. 4に示す。¹³⁾これは日本海溝北部海域のデータである。Puの粒子束には季節変動があり、秋から冬にかけて少ないことがわかる。この変動の傾向は粒子の全重量や生物起源粒子の量と一致していた。これはプランクトン等の生物活動の差によるものと思われる。

Puの酸化状態では、還元形(Pu(III), Pu(IV))と酸化形(Pu(V), (VI))が表層から深層まで同濃度であるが、底層では約90%が酸化形であったという。¹⁴⁾

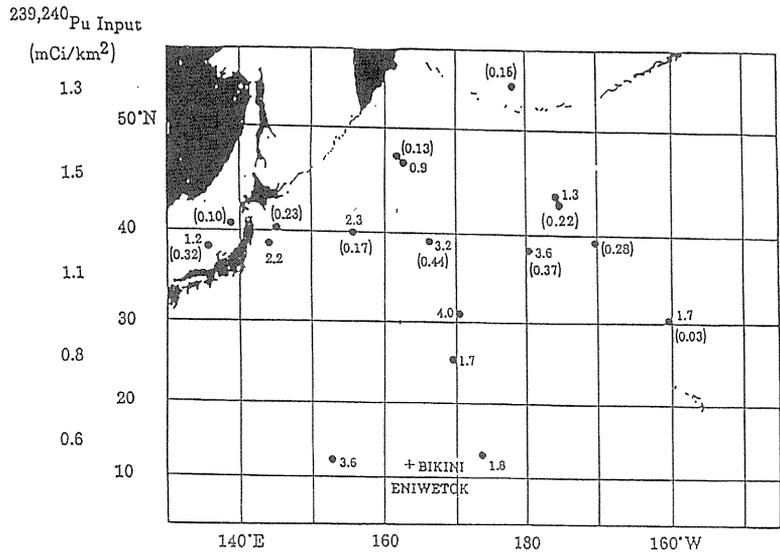


Fig. 3 $^{239,240}\text{Pu}$ inventories (mCi/km^2) in sea water and sediment columns (parethesized figure indicates a sediment datum).

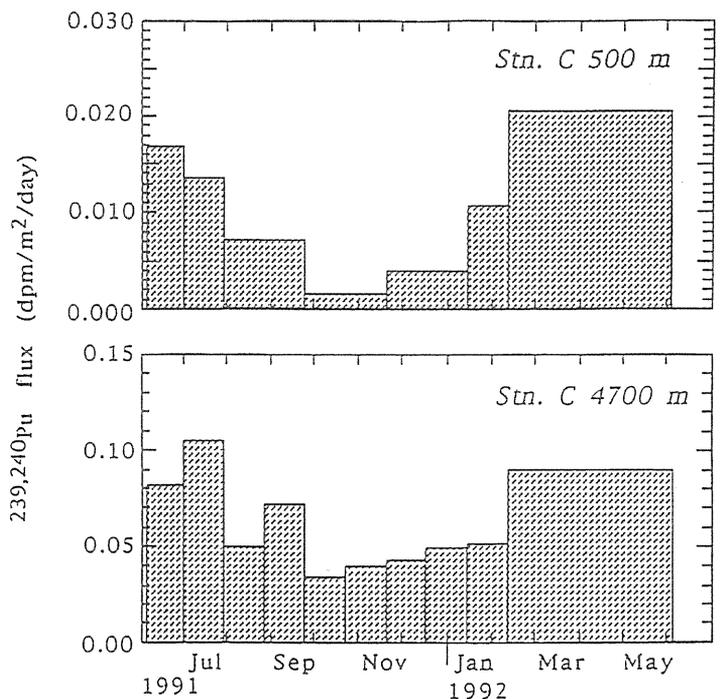


Fig. 4 Seasonal flux of $^{239,240}\text{Pu}$ in sediment trap experiment.

^{241}Pu の測定も試みられている。Fukai et al¹⁵⁾ は地中海の海水中の ^{241}Pu を測定したが、濃度変動の傾向は $^{239,240}\text{Pu}$ と同様であり、 $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は海域による変化はなかったという。一般的に ^{241}Pu の測定は、試料中の Pu Fraction を精製しておき、2～3年以上放置して生成してきた ^{241}Am の放射能を測定して、 ^{241}Pu に換算するという方法をとる。濃度が低いために大量の試料が必要であり、分析に手間がかかり、その上、 $^{239,240}\text{Pu}$ と分布が同様であると予想されるので、フォールアウト起源の ^{241}Pu の研究はその後あまり行われていない。 ^{241}Am は $^{239,240}\text{Pu}$ より濃度が低いので報告は少ない。鉛直分布は $^{239,240}\text{Pu}$ と類似の様相を示すが¹⁶⁾¹⁷⁾、 ^{241}Am は粒子との反応性が $^{239,240}\text{Pu}$ より強く、粒子形の割合が多いことが報告されている。¹⁷⁾ また ^{241}Am は海水中で ^{241}Pu ¹⁵⁾ から生成されてくるものもあり、時間の経過につれての濃度変動には興味を持たれ、海水中の溶存形、粒子形の存在割合、Sediment Trap に捕集される大型粒子中の存在量等、今後研究がさらに進展するであろう。

3. 堆積物中の分布

海水中に供給された $^{239,240}\text{Pu}$ 等が、生物起源の沈降粒子に結合して沈降するのが、堆積物へ $^{239,240}\text{Pu}$ が到達する主な経路であると考えられている。しかし、深海底へ投棄された放射性廃棄物から海中へ溶出した放射性物質が、近傍の海底堆積物へ吸着する場合も考えなければならない。最近はこの過程を推定するのに深海堆積物の Kd を研究する必要性が生じている。

フォールアウト起源の $^{239,240}\text{Pu}$ の存在量は、表層水中の生物活動の活発さ、それによる沈降大型粒子の発生量、海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ の濃度、存在量等によって異なってくる。沿岸に近い海域では、陸からの寄与があるので堆積物中の存在量は多くなる。¹⁸⁾ 北太平洋の堆積物中の $^{239,240}\text{Pu}$ は海水中的存在量の2～27%であった。⁸⁾ これは ^{137}Cs の1～5%より多く、 $^{239,240}\text{Pu}$ の方が ^{137}Cs より堆積しやすいことを示している。 $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ は0.04～0.028であり、緯度による規則性はなかった。しかしながら、深海底の堆積物の採取は技術的にも時間的にも困難さがあるので、密に多様の採取点から試料を得た例は少ない。従って、密に採取点を設けて多数の試料を分析すれば、新しい発見があるかも知れない。J. K. Cochran¹⁹⁾ はクリスマス島付近の堆積物中の $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比は1°Nから11°Nにかけて減少し、これは核実験場のクリスマス島の近くでは $^{239,240}\text{Pu}$ がより多く供給されたからだと述べている。 $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比はフォールアウトや海水中の比より高く、 ^{241}Am の方が堆積しやすいことを表している。¹⁶⁾

北大西洋の広い範囲の堆積物では $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ が地球規模のフォールアウトから予想される0.18より低く、1951年から1958年にかけて行われたネバダ実験場での核実験からのフォールアウト ($^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu} = 0.035$) の影響が考えられるという。²⁰⁾

海底堆積物中の $^{239,240}\text{Pu}$ の鉛直分布の例を Fig. 5 に示す。⁵⁾ これは1990年の赤道域西太平洋海域のデータである。10cm以上の深さまで $^{239,240}\text{Pu}$ が検出されている。深海の堆積物の堆積速度は非常に遅く1000年に何mmという程度が多い。従って、

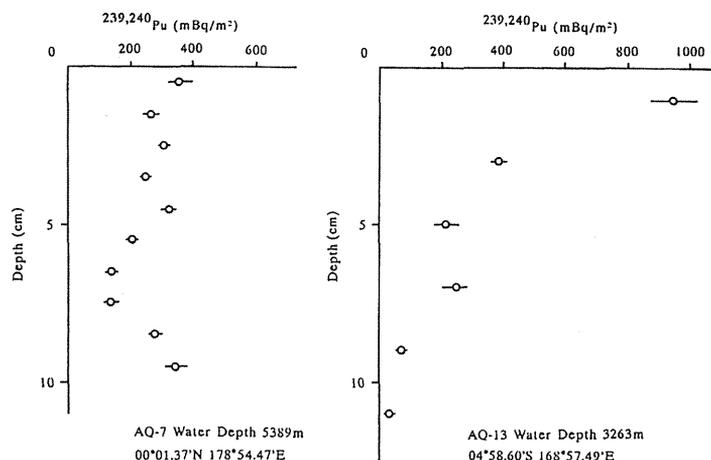


Fig. 5 Vertical profile of $^{239,240}\text{Pu}$ in sediment at St. AQ-7 and AQ-13 in KH90-3 Cruise.

その速度によれば、 $^{239,240}\text{Pu}$ は最上層にのみ存在するはずである。これは堆積物中に生息する生物によるものであると説明されている。堆積物中の $^{239,240}\text{Pu}$ 鉛直分布は、 ^{210}Pb から測定される攪乱と異なる場合があり¹⁹⁾²¹⁾、両核種の吸着している粒子の大きさや組成が異なっているためと考えられている。

深海の柱状堆積物の採取には、ボックスコーラーが使用されることが多かったが、マルチプルコーラーが開発されて、両コーラーでのデータを比較すると、ボックスコーラーでは堆積物の最表層が失われる場合があることがわかってきた。²²⁾ 最近では、外洋堆積物の表層付近の研究は、マルチプルコーラーで採取された試料のみを使う傾向になってきている。外洋の堆積物中の人工放射性物質のデータは、書き直されるべきものがありそうである。

4. 生物中の分布

外洋の生物についての超ウラン元素のデータは少ない。一般に生物中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は ^{137}Cs の1/10から1/100である。1964年から1977年までカリフォルニア沖で採取された回遊性の魚であるビンナガの肝臓中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は、1965年の最高0.64 dpm/kg.wet から1977年の0.10 dpm/kg.wet まで徐々に減少していた。²³⁾ これは太平洋の表層水の濃度の減少傾向を反映している。

最近では魚類の生息域である表層の海水の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度が低くなっているため、魚類中の濃度を調べて比較するのは困難な状態である。内蔵では有意の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度が観測される場合があるが、消化管内内容物の影響と思われる固体差が大きい。日本近海で漁獲された外洋性魚類では沿岸性の魚類に比べて $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は低い傾向であったが、寒海性の魚類（シロザケ）と暖海性の魚類（カツオ・メバチ）では差がないようである。²⁴⁾

北太平洋産のオキアミと南極オキアミの $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度（Whole body）の分析結果では、あまり差が見られずむしろ南極オキアミの方がやや高濃度であるように思われた。²⁵⁾ 海水中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は南極海域の方が低いと思われるが、差がないということは、種による濃縮係数に差があるかも知れない。

1984年に三陸沖とベーリング海で捕獲されたオットセイの分析結果では²⁵⁾、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は肝臓、腎臓、心臓で高く、筋肉、肺では低かった。骨中の濃度は11才の試料で高く、2、3才では魚類の骨とあまり差はなかった。オットセイは哺乳動物なので、吸入による $^{239,240}\text{Pu}$ の取り込みの寄与が大きいと思われる。陸上の野生哺乳類のデータは見当たらなかったため、日本人の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度と比較してみると、²⁶⁾ 各臓器ともオットセイの方が低かった。人間のデータは成人が主であり、年齢による蓄積効果の差かも知れない。

文献

- 1) T. NAKANISHI, M. YAJIMA, M. SENAGA, M. TAKEI, A. ISHIKAWA, K. SAKAMOTO and M. SAKANOUÉ : Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, 223(1984) 239–242
- 2) K. HIROSE, Y. SUGIMURA and M. AOYAMA : Applied Radiation and Isotopes, 43(1992) 349–359
- 3) Y. NAGAYA and K. NAKAMURA : J. Oceanogr. Soc. Japan, 40(1984) 416–424
- 4) E. HOLM, P. ROOS, R. B. R. PERSSON, R. BOJANOWSKI, A. AAKROG, S. P. NIELSEN and H. D. LIVINGSTON :in Radionuclides in the Study of Marine Processes Ed. by P. J. Kershaw and D. S. Woodhead, ELSEVIER, (1931) 3–11.
- 5) 中村 清、長屋 裕、成田尚史：日本地球化学会年会講演要旨集、(1991) P.154–155

- 6) E. R. SHOLKOVITZ : Earth–Science Reviews, 19(1983) 95–161
- 7) V. T. BOWEN, V. E. NOSHKIN, H. D. LIVINGSTON and H. L. VOLCHOK:Earth Planet, Sci. Lett., 49(1980) 411–434
- 8) Y. NAGAYA and K. NAKAMURA : J. Oceanogr. Soc. Japan, 43(1987) 345–355
- 9) Investigation of Environmental Radioactivity in Waste Dumping Areas of the Far-eastern Seas. Results from the First Japanese–Korean–Russian Joint Expedition 1994. July 1995
- 10) H. D. LIVINGSTON, D. R. MANN, S. A. CASSO, D. L. SUPRENANT and V. T. BOWEN:J. Environ. Radioactivity, 5(1987) 1–24
- 11) L. D. LIVINGSTON and R. F. ANDERSON : Nature, 303(1983) 228–231
- 12) M. P. BACON, C–N. HUH, A. P. FLEER and W. G. DEUSER : Deep–Sea Research, 32(1985) 273–286
- 13) 中村 清、山田正俊、成田尚史 : 海洋大循環の実態解明と結合観測システムに関する国際共同研究 (第 I 期 平成 2 ~ 4 年度) 成果報告書、(平成 6 年) 科学技術庁研究開発局、p.202–214
- 14) D. M. NELSON, A. E. CAREY and V. T. BOWEN : Earth Planet. Sci. Lett., 68(1984) 422–430
- 15) R. FUKAI, E. HOLM and S. BALLESTRA:in Isotope Marine Chemistry Ed. by E. D. GOLDBERG, Y. HORIBE and K. SARUHASHI, (1980) 1–8
- 16) T. NAKANISHI, M. SATOH, M. TAKEI, A. ISHIKAWA, M. MURATA, M. DAIRYOH and S. HIGUCHI : J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, 138(1990) 321–330
- 17) S. W. FOWLER, S. BALLESTRA, J. LAROSA and R. FUKAI:Deep–Sea Research, 30(1983) 1221–1223
- 18) Y. NAGAYA and K. NAKAMURA:in Deep Ocean Circulation, Physical and Chemical Aspects, (1993) 157–167
- 19) J. K. COCHRAN : Geochim. Cosmochim. Acta, 49(1985) 1195–1210
- 20) K. O. BUESSELER and E. R. SHOLKOVITZ : Geochim. Cosmochim. Acta, 31(1987) 2623–2637
- 21) H–S. YANG, Y. NOZAKI, H. SAKAI and K. NAKAMURA : Geochemical J., 20(1986) 29–40
- 22) F. LEGELEUX, J–L. REYSS and S. SCHMIDT : Earth Planet. Sci. Lett., 128(1994) 545–562
- 23) T. R. FOLSOM : in Isotope Marine Chemistry Ed. by E. GOLDBERG, Y. HORIBE and K. SARUHASHI, (1980) 51–117
- 24) Y. NAGAYA, Y. SUZUKI and K. NAKAMURA : Nippon Suisan Gakkaishi, 56(1990) 1599–1604
- 25) Y. NAGAYA and K. NAKAMURA : Nippon Suisan Gakkaishi, 53(1987) 873–879
- 26) Y. IGARASHI, R. SEKI and N. IKEDA : J. Radiat. Res., 27(1986) 213–218

1. アイリッシュ海沿岸堆積物中の長半減期核種

山本 政儀、桑原 潤

金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設

Long-lived Radionuclides in the Coastal Sediments of the Irish Sea, UK

Masayoshi Yamamoto and Jun Kuwabara

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

Tatsunokuchi, Ishikawa 923-12, Japan

ABSTRACT—Over the last four decades the Irish Sea has received controlled discharges of radioactive effluents from the Sellafield (Windscale) nuclear fuel reprocessing plant in Cumbria, UK. Enhanced levels of a range of fission, activation and transuranic elements have been reported in a variety of environmental media. Most of the $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am and about 10% of the ^{137}Cs have been retained in a deposit of the fine sediment near the discharge point. The quantities of radionuclids discharged annually from Sellafield decreased by two orders of magnitude from the mid-1970s to 1990, but estimated critical group internal and external exposure decreased by less than one order of magnitude over this period. Redistribution of the contaminated marine sediment is potentially of major significance.

In this paper, a review is presented of published work and recent our study relating to Sellafield waste long-lived radionuclides, especially transuranium elements, in Irish Sea sediments. The dominant mechanism (solution and/or particle transport) of supply of these radionuclides to intertidal sediments is discussed.

1. はじめに

現在、国内の原子力利用施設のほとんどが沿岸地域に立地している。沿岸帯は陸地と海域との単なる境界ではなくて両域の接合部である。施設からの人工放射性核種の放出は、大気からの放出を別にすれば、すべて沿岸帯をとおして行われる。沿岸帯では、放出された物質の分散という物理的な問題はもとより、化学的には溶存物質の不溶化、沈殿、再溶出の問題、生物的には物質代謝の問題が集中的に展開される海域であり、さらに物質の収支と循環が最も活発に演じられる場所である。沿岸帯で発生するこれらの諸過程を系統的・総合的により明確にし、質・量の両面からその実態を把握することは、環境保全の面からのみならず被ばく低減化の面からも重要である。特に将来長きに亘り環境放射能影響をもたらす長寿命放射性核種、とりわけ、超ウラン元素（ネプツニウム(Np)、プルトニウム(Pu)、アメリシウム(Am))の挙動

は重要である。

生物学的に危険な α 線放射体でしかも長寿命の多い超ウラン元素の沿岸帯での挙動研究は、汚染が始まって以来50年あまりしか経過していなく、過渡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、レベルが低く困難になりつつある。我々は、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をフィールドに、Pu や Am の リザーバーとして重要な沿岸堆積物に着目してこれら元素の挙動を研究してきた。ここでは、イギリスのアイリッシュ海沿岸の長半減期核種の汚染の実態とそのメカニズムを、すでに報告されている論文等を参照しつつ我々の結果も交えて紹介する。

2. セラフィールド核燃料再処理工場

イギリスには図1に示すように5つの大きな核関連会社がある¹⁾。セラフィールド核施設(図2)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、そこには核燃料の加工工場、原子炉、再処理工場、核廃棄物保管場が並ぶ。中でも再処理工場は世界で最も早くから稼働しており、セラフィールド再処理工場の規模と実績で並ぶのはフランスのラ・アーク工場のみである。もともと、本処理施設(第1工場)は第二次世界大戦後の1952年に軍事用プルトニウムの製造目的で始まったものである。動力炉用ガス炉の国内普及に伴い、1964年には第2工場(Magnox 燃料再処理に対応)の運転を開始した。第1、第2工場はこれまでに30,000 ton 以上の燃料を処理しており、第2工場は今世紀末まで引き続き、ガス炉燃料の再処理を行う予定である。なお、1990年代から酸化物燃料再処理のための THORP 工場(1200 ton/y の処理能力)の建設が進められている。1953~1971年の18年間は英国原子力公社(U. K. Atomic

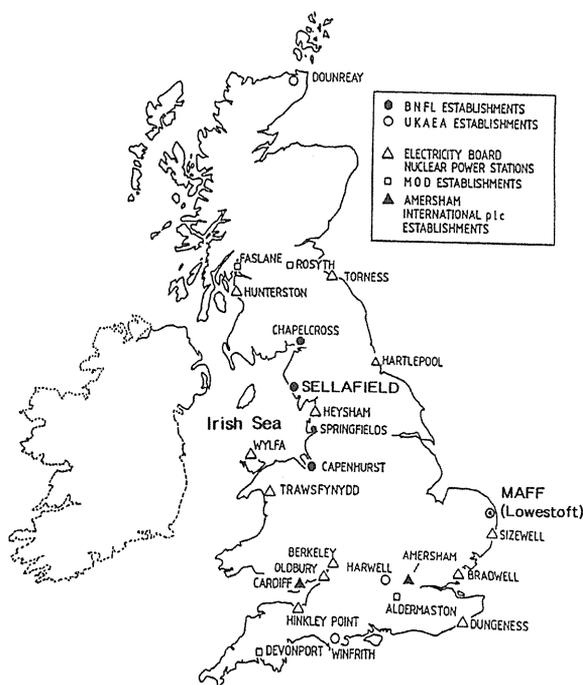


図1 イギリスの5つの大きな核関連会社

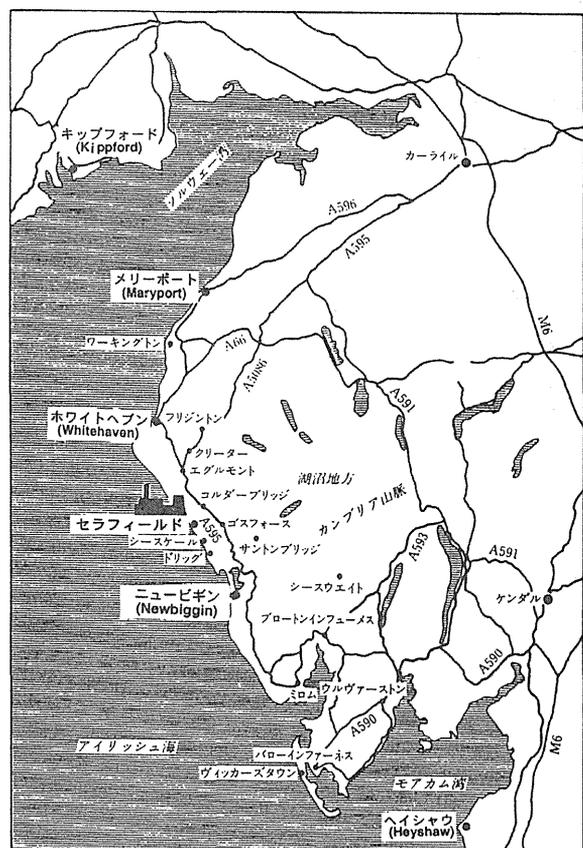


図2 セラフィールドと周辺地域

Energy Authority, UKAEA)が運用し、その後民間の英国核燃料公社(British Nuclear Fuels plc., BNFL)が操業を担当している²⁾。一般環境への放射性物質の放出管理(およびチェック)や環境モニタリングは主に Lowestoft にある MAFF (Ministry of Agriculture, Fisheries and Food) で実施されている。

3. アイリッシュ海

アイリッシュ海は南の St Davids Head と北の Mull of Galloway を境界とする半閉鎖系の海(47,000 km²)である。図3³⁾に示すように、Man 島東部の海域は20~50 m と比較的浅く、North Channel で最も深く275 m 以上ある。アイリッシュ海の全海水量は2430 km³ で、Man 島西部の海域が全体の80%を示している。大西洋からの潮汐の現象が南北の Channel をとおしてこのアイリッシュ海に顕著に伝わり、水平・鉛直方向の混合は活発である。表面海流は図3に示すように主として南から北に流れるが Man 島東部の海域は複雑である^{4,5)}。セラフィールド再処理工場から放出された放射性核種は、この潮汐現象や表面海流によって分散し、North Channel から大西洋に拡散していく。North Channel からの流出量は大きく変化するが、2~8 km³/day と評価されている³⁾。

4. 放出情報

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アイリッシュ海に放出(パイプラインを通して沿岸から2 km先)し続けてきた。図4にその目標値と共に全αおよび全βの放出量変化(1971~1989)を示す^{6,7)}。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ているが、1990年までに放出された¹³⁷Cs、^{239,240}Pu および²⁴¹Amの総量と大気圏内核実験およびチェルノブイリ原子炉事故からの放出量の比較を示す表1から、セラフィールド再処理工場は世界でも最大の放射能放出源であり、アイリッシュ海は世界でも放射能汚染の高い海であると言われてきた所以をうかがうことができる。

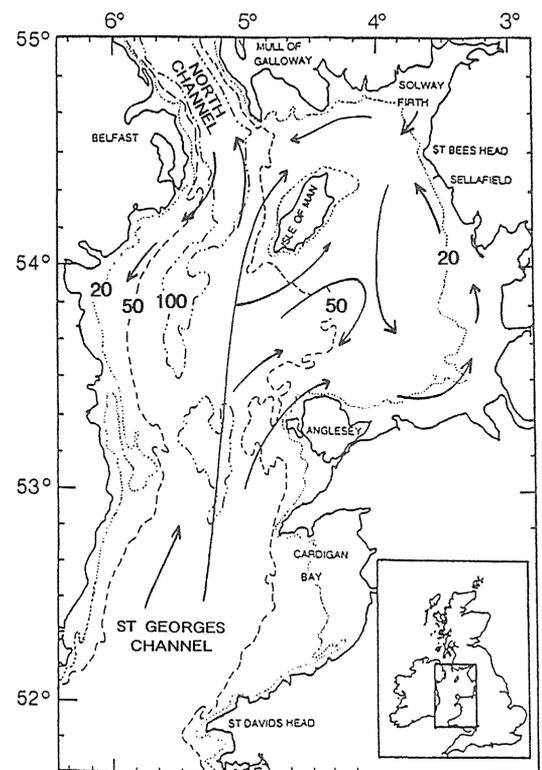


図3 アイリッシュ海の深度(m)と海流の動き

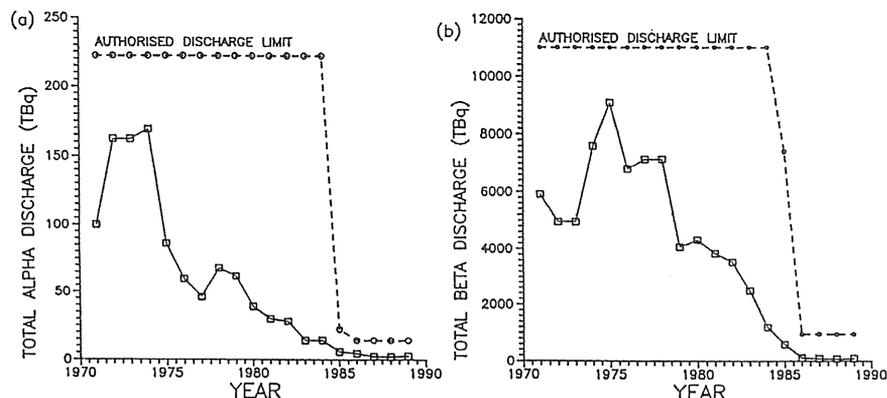


図4 セラフィールド核燃料再処理工場からの放射性廃液の年間放出管理目標値と (a) 全αおよび (b) 全βの放出量変化の比較(1971~1989年)

表1 (a) セラフィールド、(b) 大気圏核実験および (c) チェルノブイル原発事故からの放射性核種の環境放出量の比較

Nuclide	Activity (TBq)	Weight (kg)
<i>(a) Estimated environmental inventories of Sellafield waste radionuclides in 1990</i>		
^{137}Cs	3.0×10^4	9.4
$^{239,240}\text{Pu}$	6.8×10^2	253
$\text{Pu}(\alpha)$	7.3×10^2	
^{241}Am	8.9×10^2	7.0
<i>(b) Estimated input of radionuclides to the environment from atmospheric nuclear weapons tests</i>		
^{137}Cs	1.3×10^6	406
^{238}Pu	8.9×10^2	1.4
^{239}Pu	7.7×10^3	3400
^{240}Pu	5.7×10^3	680
^{241}Am	3.0×10^3	24 ^a
<i>(c) Estimated quantities of radionuclides released during the Chernobly reactor accident in 1986</i>		
Total activity	2×10^6	—
^{137}Cs	4×10^4	12.5

^a This figure represents the estimated environmental inventory of ^{241}Am in 1990 produced by decay of ^{241}Pu .

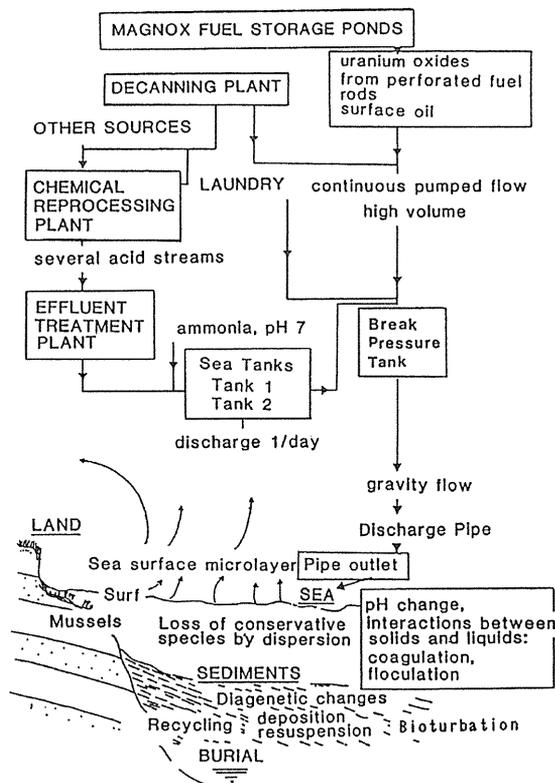


図5 BNFL 施設放射性廃液放出源とその影響要素

工場からの放射性廃液は図5にみられるように2通りの方法でアイリッシュ海に放出されている。大部分(>90%)の放射能は再処理廃液タンク(Sea Tanks)に含まれている。廃液中の放射性核種の存在形態については、表2に示す結果(1982年)が唯一報告されている⁸⁾。それによると、Sea Tanks中の $\text{Pu}(\alpha)$ 、 ^{241}Am および $^{243,244}\text{Cm}$ の約99%が、また ^{237}Np の60%が粒子状(>0.22 μm)として存在していることがわかる。この粒子は放出の際アンモニア水で廃液を中和する過程で生じた褐色のFloc(大部分は $\text{Fe}(\text{OH})_3$)で構成されている。Sea Tanks中の $\text{Pu}(\alpha)$ の大部分は低酸化状態(III+IV価)である。一方、 ^{237}Np は口過部分で5%粒子部分

で88%がIV価で存在しているが、Sea Tanks全体としては半分が高酸化状態(おそらくV価)にある。なお、このSea Tanks中の廃液を 10^4 倍に希釈して放置すると0.22 μm 以下の口過部分が Pu (V+VI価)化学形のもの増加とともに見られることが報告されている⁹⁾。 Am や Cm はIII価のみが存在する。また、廃液中には“Hot Particle”が存在していることがCR-39トラック法で確認されている。全放出量へのHot Particleに含まれる放射能の寄与評価は困難であるが、そのようなParticleが環境に放出されると数ヶ月後には可溶性になると報告されている¹⁰⁾。

5. 海底および潮間帯堆積物への蓄積

(1) 水平分布

海洋に放出されたこれらの諸元素は、図5¹⁰⁾の下図に示すように、加水分解、種々の陰イオンあるいは有機物との錯形成、コロイド生成、酸化還元反応、懸濁物への付着、吸着などを含む複雑な過程を経て、海水からス

表2 セラフィールド液体廃液中の超ウラン元素諸核種の特性 (1982年)

	Sea tanks		Pond water	
	Filtrate	Particulate	Filtrate	Particulate
% ²³⁸ Pu	1.3±0.3	98.7±3.6	12.0± 1.3	88.0± 5.4
% ^{239,240} Pu	1.4±0.1	98.7±2.2	13.2± 0.6	86.8± 2.6
% ²⁴¹ Am	1.6±0.2	98.4±3.9	2.0± 0.2	98.0± 4.2
% ^{243,244} Cm	0.0	100.0	4.1± 1.4	95.9±15.9
% ²³⁷ Np	38.4±3.6	61.6±6.4	88.2±47.1	11.8± 5.1
^{239,240} Pu/ ²³⁸ Pu	3.7±1.0	3.5±0.1	4.2± 0.4	3.8± 0.1
% ^{239,240} Pu in each fraction as Pu (V+VI)	2.2±7.3	1.4±0.5	96.0± 3.4	1.7± 0.4
% ²³⁷ Np in each fraction of Np (IV)	4.9±3.7	88.0±8.0	0.0	0.0

表3 海水 (0.45 μm ろ過水) と懸濁物間の人工放射性核種の分配 (Kd 値)

Main Elemental species	Measured distribution ratios Rd	Location
Tc VII	< 250	Irish Sea
Cs I	5 × 10 ² - 3 × 10 ³	Irish Sea
Co II	-2 × 10 ⁴	English Channel
Np V	3 × 10 ³ - 3 × 10 ⁴	Irish Sea
Pu V	6 × 10 ³ - 2 × 10 ⁴	Irish Sea
Pu IV	4 × 10 ⁵ - 6 × 10 ⁶	Irish Sea
Am III	2 × 10 ⁶ - 3 × 10 ⁶	Irish Sea
Cm III	1 × 10 ⁶ - 2 × 10 ⁶	Irish Sea

キャベンジングされて海底に沈積する。さらに堆積物内では生成攪拌、種々の続成作用を受け、一部は再び溶けて海に戻る。海底土 (懸濁物) —— 海水間の放射性核種の相互作用の評価には、一般に海水 1 l 当りの濃度に対しての海底土 (あるいは懸濁物) 1 kg 当りの濃度比で定義される分配比がよく用いられる。表3にアイリッシュ海で測定された ⁹⁹Tc および ¹³⁷Cs を含む超ウラン元素の分配比を示す¹¹⁾。平衡に達している状態での値が

どうかは不明であるが、与えられた元素の基礎的な物理・化学的特性についての知識がこの分配比から読みとれる。海水中の懸濁物量が10と20mg/lの場合について、表3に示す分配比から予測される海水中のCs、Np、Pu および Am の懸濁物中に存在する割合を試算した結果を図6に示す。この図からCsの大部分は可溶性として、またV価のNpは10~20%、IV価のPuとNp およびIII価のAmは大部分粒子状物質に取り込まれた形で存在していると予想できる。

アイリッシュ海における1969~1988年頃の表層堆積物についての¹³⁷Cs、^{239,240}Pu および ²⁴¹Am 濃度の水平分布の時間的推移を図7に示す³⁾。200Bq/kg以上の汚染地域は、いずれの核種も放出口を中心とした東沿岸海域に集中しておりその分布は時間の経過と共にかなり変動することがうかがわれる。沿岸地域のはかに、Man 島西部の海域に¹³⁷Csの局地的汚染地域が1974年以降の調査であらわれている。なお、このような濃度の水平分布との関連で、堆積物の粒度組成も図8に示すように調べられている⁹⁾。堆積物中の62.5 μm以下の重量%は、放出口沖合で、50~75%に達し、Man 島西部 Irland との中間部でも75%程度の部分がある。図9はその中のいくつかの東部沿岸地点 (図2を参照) での表層堆積物の¹³⁷Csと^{239,240}Pu濃度の変化を見たものであるが、放出口に近い地点 (Maryport, Whitehaven および Newbiggin) では時間の経過と共に濃度が急激に減少している^{6,7)}。遠方 (Heyshaw と Kippford) では濃度が約1桁

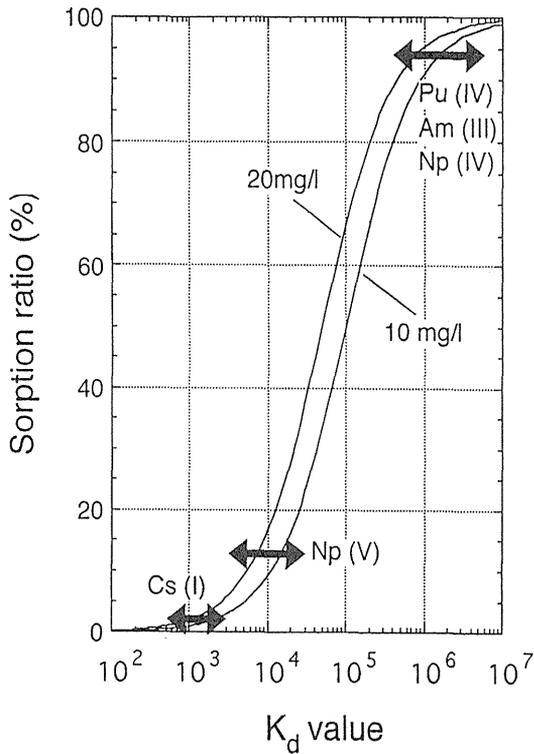


図6 吸着の分配比から予想される海水中の²³⁷Cs、²³⁷Np、Puおよび²⁴¹Amの粒子部分に存在する割合

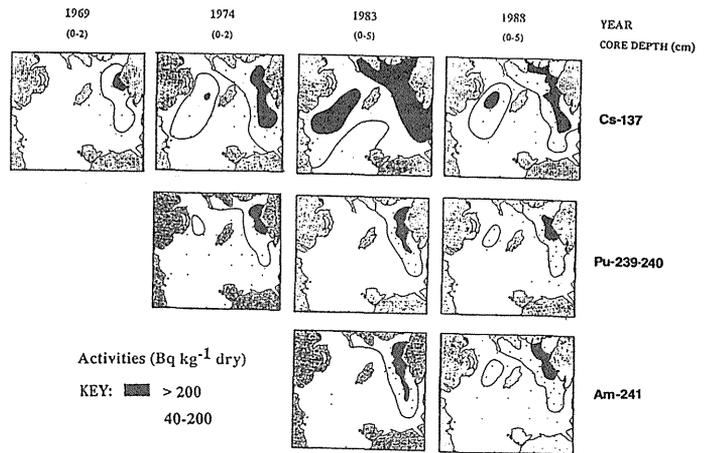


図7 アイリッシュ海の表層堆積物中¹³⁷Cs、^{239,240}Puおよび²⁴¹Am濃度の水平分布の経年変化(1969~1988年)

低く、ほぼ一定の値を示している。1970年代には地点間での大きな濃度差がみられるが、1980年代後半からはその差が小さくなりつつある。堆積物の濃度比較のために、図10に日本の若狭湾(福井県)周辺の表層堆積物の^{239,240}Puレベルを示しておく¹²⁾。

(2) 鉛直分布

堆積物は沈降粒子の放射能濃度に応じて濃度の時間的変化を堆積物中に深度分布として記録していく。仮に、セラフィールド再処理工場からの放出量と沈降粒子の放射能濃度が比例し、また堆積物中での核種の混合、続成作用が無視できるくらい少ないならば、堆積物中の濃度の深度分布は放出パターンを反映すると予想される。しかしながら、実際には、堆積する粒子それ自身の混合、堆積した後の底棲生物による生物攪拌、さらに続成作用などにより、堆積物中の放射性核種の深度分布は場所ごとに多様なパターンを呈する。図11に再処理工場から約10km南東に位置する

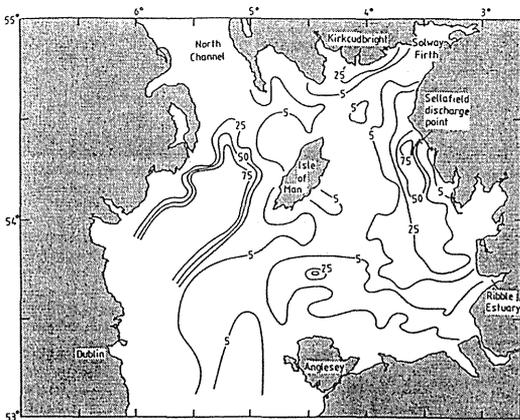


図8 アイリッシュ海の表層堆積物中の62.5 μm以下の重量%の水平分布

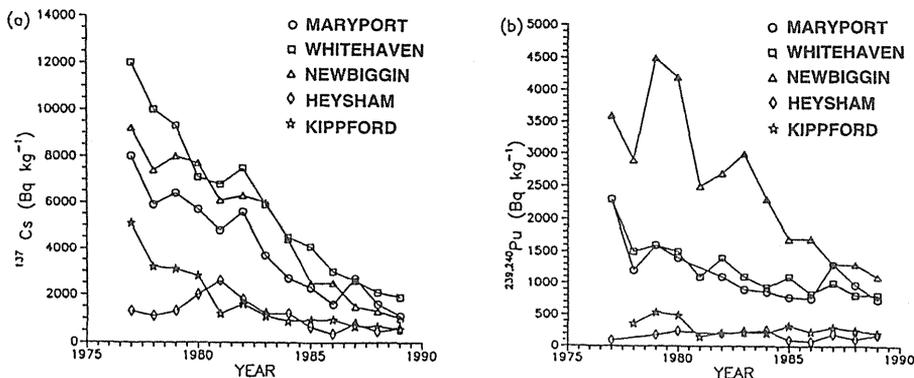


図9 アイリッシュ海東部沿岸地点における表層堆積物の¹³⁷Csと^{239,240}Pu濃度の経年変化

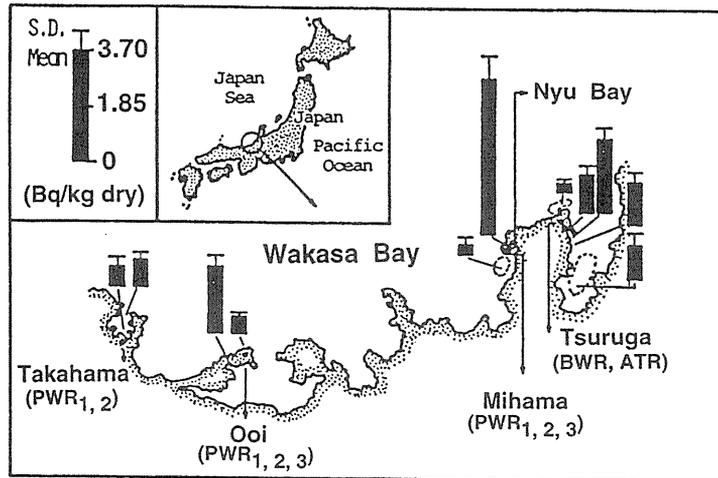


図10 若狭湾（福井県）周辺の沿岸表層堆積物中の^{239,240}Pu濃度（1976～1980年採取試料の平均）

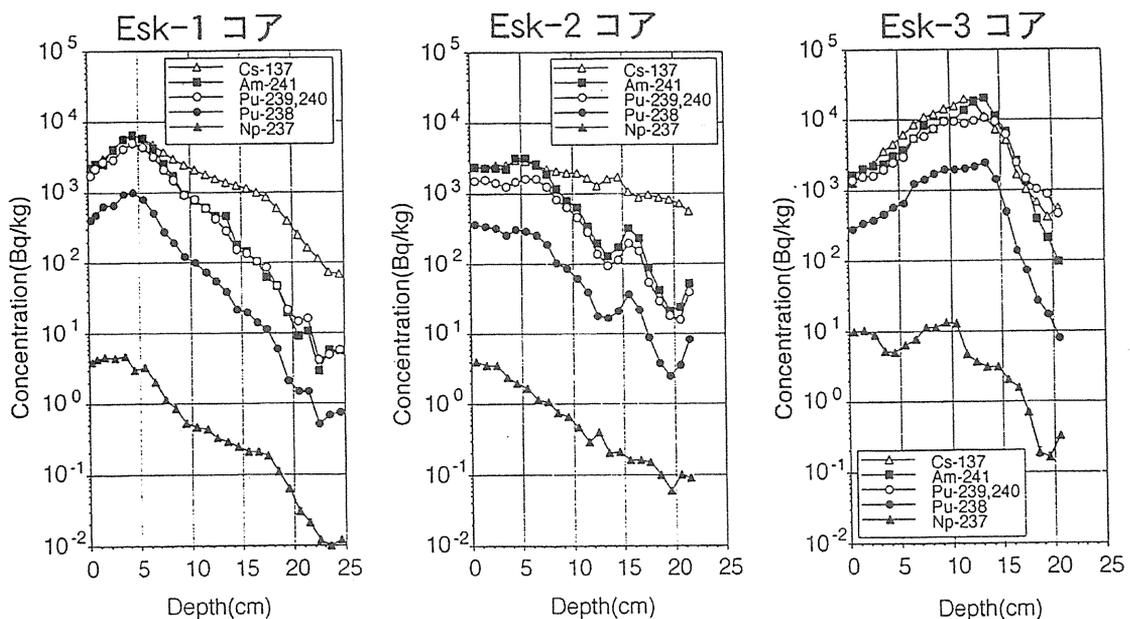


図11 Esk川河口の3地点で採取（1988年）したコア堆積物試料の¹³⁷Cs、²³⁷Np、^{239,240}Puおよび²⁴¹Am濃度の深度分布

Esk川河口の堆積物コア（1988年採取）について測定した¹³⁷Cs、²³⁷Np、同位体および²⁴¹Am濃度の深度分布を示した¹³⁾。試料の採取地点ごとに核種の濃度、深度分布のパターンが変化しており、特に Esk-1 および Esk-3 コアではっきりとした“Subsurface Peak”がみられる。図12に示す核種間の放射能比の分布は、Esk-1 および Esk-2 コアで¹³⁷Cs/Pu(α)比が深さと共に増加していることをのぞいて採取地点間の大きな差はない。1970年代後半から潮間帯堆積物中のセラフィールド起源の放射性核種（主として¹³⁷Cs、^{239,240}Pu および²⁴¹Am）の深度分布が数多く測定され¹⁴⁻¹⁷⁾、これら核種の放出歴との関係で議論されてきた。Aston と Stanners^{16,17)}は、Esk川河口の堆積物コアの¹³⁷Cs(¹³⁴Cs)およびPu同位体(^{239,240}Puと²³⁸Pu)の深度分布を年間放出量のデータを用いて移流・拡散方程式により分布の再現を試みた。放出口からこの河口への堆積物に沈積するまでに核種ごとに異なる数カ月の“Lag Time”を導入することの必要性を示したが、深度分布と放出パターンとのマッチングはかなり困難であることを指摘し

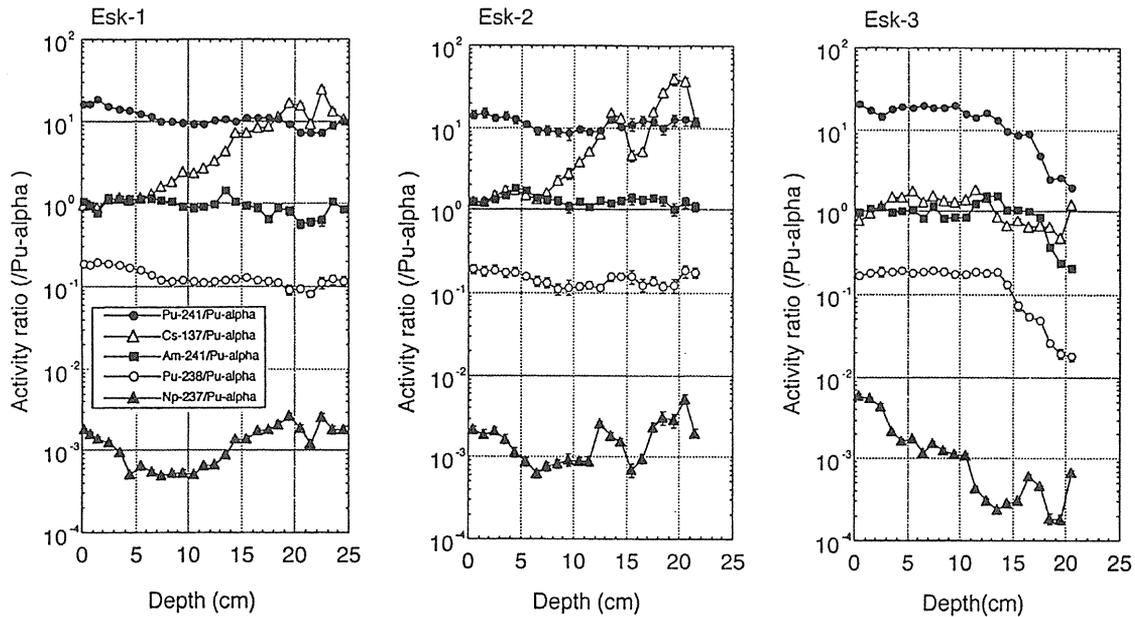


図12 Esk 川河口のコア堆積物 (図11) 中の放射性核種間の放射能比の深度分布

ている。

(3) 沿岸堆積物への移行

アイリッシュ海に放出された放射性核種の沿岸帯への移行には主として2つのメカニズムが考えられている^{7,18)}。1つは溶存状態として海流によって拡散 (Solution Transport) する場合、もう1つは放出口近くで高濃度に汚染された堆積物粒子が拡散 (Particle Transport) する場合である。これらのメカニズムは単独で作用しているというよりむしろ相互にからみあいながら放出された放射性核種の沿岸帯への移行の時間的・空間的な分布を決定している。Solution Transport においては、一様な場であれば放射性核種は海流によって分散しながら一定の除去率 (たとえば kd のような値に従って) で堆積物に除去されていく。海水中の濃度は放出口からの影響とともに指数関数的に減少していく。 kd 値が大きく異なる2核種の堆積物中の放射能比 (R) は放出口からの距離 (X) の関数として $R_x = R_o \exp^{-(k_1 - k_2)x}$ として表せるだろう。放出口周辺10km内に80%の²⁴¹Amと10%の¹³⁷Csが沈積しているといわれているが、このモデルを適用して100km離れた堆積物中の¹³⁷Cs/²⁴¹Am比を求めてみると約 10^6 オーダーになり、距離と共にこの比が増加することが予想できる。堆積物の再移動や混合が無視できるならば、堆積物の放射性核種の濃度や放射能比の深度分布は年間の放出量のそれらのパターンを反映することになる。一方 Particle Transport においては、主として放出口近くで高濃度に汚染された堆積物粒子の分散によって引き起こされると考えられる。放出口近傍の堆積物は、過度の混合をうけているとみなせる。このような堆積物粒子が沿岸に移行・沈積していくと、その濃度や放射能比の分布は毎年の放出量のそれよりもむしろ積算放出量を反映することになる。

上記のようなことを根底におきながら以下に我々がアイリッシュ海沿岸堆積物中の超ウラン元素の蓄積量の水平分布およびコア堆積物中の濃度および放射能比の分布からこれら元素の沿岸への輸送を検討した結果¹⁹⁾を述べる。試料には、一過性の表層堆積物ではなくて、アイリッシュ海沿岸で放出口から距離別に採取したコア堆積物 (150~100cm) を用いた (図13)。図には以前採取した表層堆積物の採取地点も示してある。得られた^{239,240}Pu、²⁴¹Am、¹³⁷Cs および²³⁷Npの蓄積量 (Bq/cm^2) を再処理工場から距離に対

してプロットしたものを図14に示した。 $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am については Eakins らが測定したデータ (○: 1983年)¹⁵⁾ も併せて示してある。いずれの核種もばらつきが大きいが、放出口から距離と共に蓄積量が減少する傾向がうかがわれる。さらに図15に、 $^{239,240}\text{Pu}$ 蓄積量との放射能比で放出口から距離との関係を見たものを示した。傾向としては、 $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は距離と共に指数関数的に増大するのに対して ^{241}Am および ^{238}Pu のそれはほぼ一定の蓄積量比で分布している。 ^{237}Np については ^{137}Cs ほどではないが距離とともに $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ 比が増加する傾向がみとめられる。

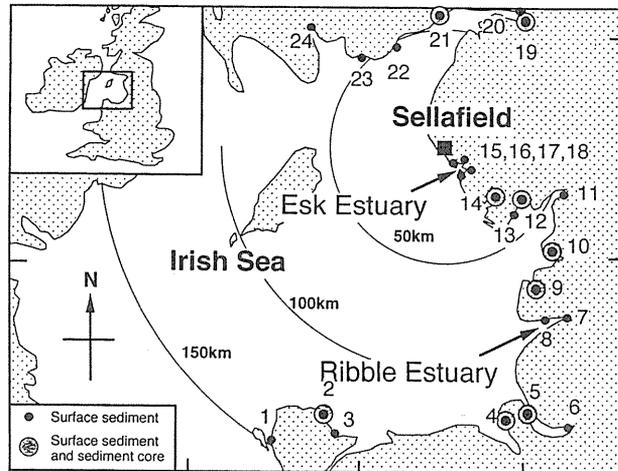


図13 アイリッシュ海沿岸での表層（1 cm深さ）およびコア堆積物（50-100cm深さ）試料の採取地点

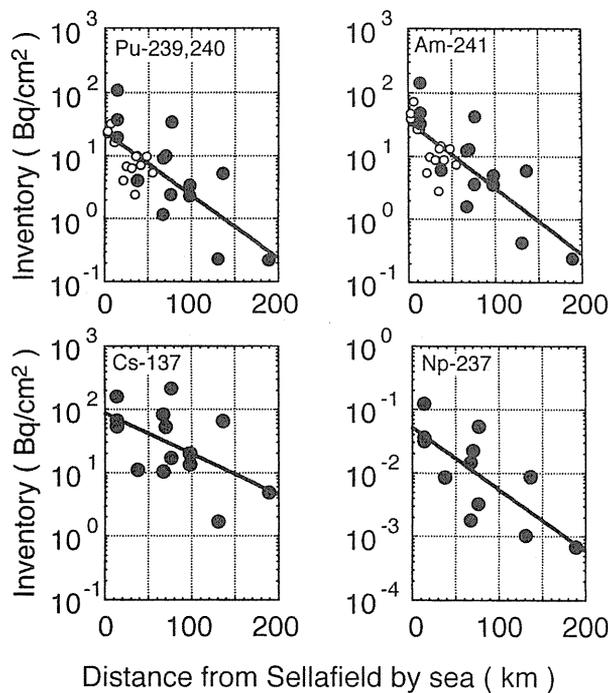


図14 コア堆積物中の ^{137}Cs 、 ^{237}Np 、 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am 蓄積量と放出口からの距離との関係

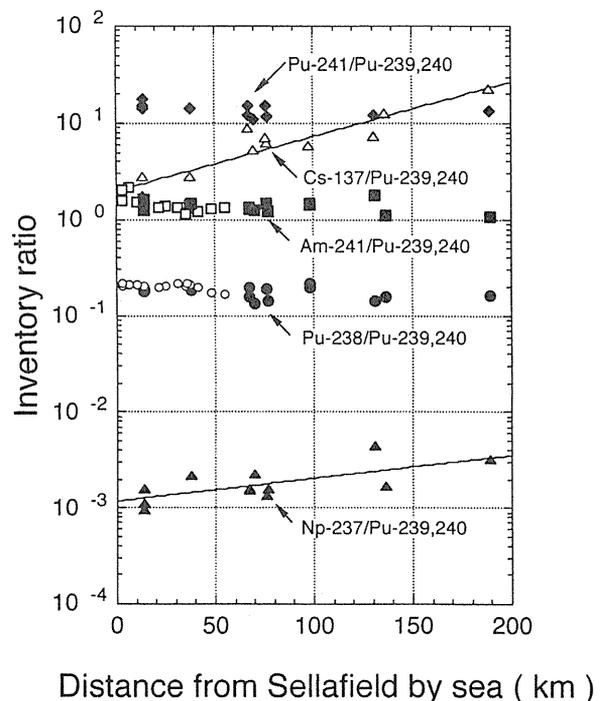


図15 堆積物コア中の放射性核種 (図14) の $^{239,240}\text{Pu}$ に対する蓄積量比と放出口からの距離との関係

次に、このデータについて放出量との関係で比較した結果を図16~18に示す。図中には我々が沿岸24地点から採取した表層堆積物の結果²⁰⁾ も含めて示してある。図16は、 ^{241}Am と $^{238,239,240}\text{Pu}$ の和で表される $\text{Pu}(\alpha)$ について放出量の比と蓄積量の比を比較したものである。●で示したのが各年のその年までの ^{241}Pu から ^{241}Am の成長も考慮した積算放出量の比である。下図にそれぞれの年間放出量と積算放出

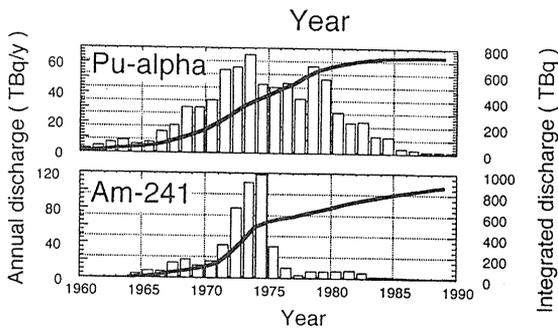
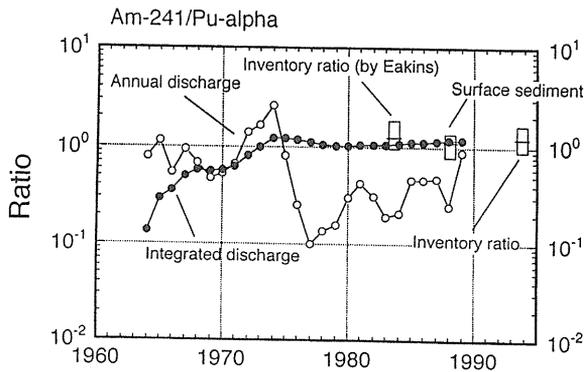


図16 堆積物中の $^{241}\text{Am}/\text{Pu}(\alpha)$ 蓄積量比と年間および積算放出量比との比較 (^{241}Am については、 ^{241}Pu からの成長を考慮してある)

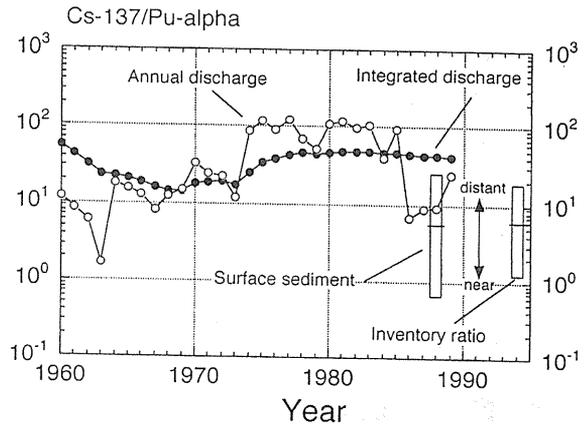


図17 堆積物中の $^{137}\text{Cs}/\text{Pu}(\alpha)$ 蓄積量比と年間および積算放出量比との比較

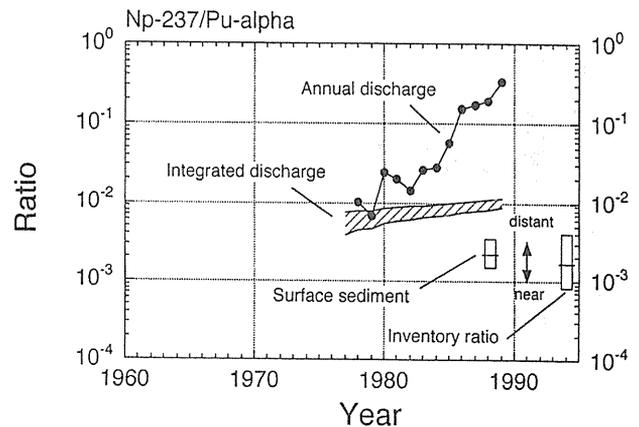


図18 堆積物中の $^{237}\text{Np}/\text{Pu}(\alpha)$ 蓄積量比と年間および積算放出量比との比較

量を示してある。今回測定した蓄積量の比、表層堆積物中の放射能比、さらに Eakins の報告した蓄積量の比を最大値と最小値の範囲として試料の採取年代に合わせてプロットしてある。範囲内にある横線は平均値である。年間放出量の比 (○) は大きな変動を示しているが、積算放出量の比 (●) は1975年以降ほぼ一定である。表層およびコア堆積物の蓄積量比の値は積算放出量の比とほぼ一致しており、これは Pu と Am が同様の挙動で沿岸に輸送されてきたことを示している。さらに注目すべきことは表層堆積物中の放射能比が蓄積量の比とほぼ一致しているということである。このことは放出された Pu と Am が沿岸に到達する以前に既に何らかの混合を受けていることを強く示唆する。 $^{137}\text{Cs}/\text{Pu}(\alpha)$ 比 (図17) についてみると、測定した蓄積量比および表層堆積物中の放射能比はどちらも大きく変動し、再処理に近いほどこの比は低く、遠くなるほど高くなる。全体としてこれらの比は年間放出量の比および積算放出量の比のどちらよりも低く、 ^{137}Cs が Pu よりも堆積物に移行しにくいことを反映している。測定した比が再処理工場からの距離と共に上昇することは ^{137}Cs が優先的により広範囲に輸送される経路が存在することを示しており、 ^{137}Cs が堆積物に移行しにくいことを考えあわせると、容存状態での輸送経路がこのような比の上昇をもたらしていると推定できる。図18に示す $^{237}\text{Np}/\text{Pu}(\alpha)$ 比については、1978年以降しか ^{237}Np 放出データがないため以前推定した1977年までの総放出量 2~4 TBq を用いて積算放出量比を算出した²¹⁾。全体として測定した蓄積量比と表層堆積物中の放射能比はどちらも年間および積算放出量比よりも低く ^{137}Cs と同様に Pu よりも堆積物に移行しにくいことがわかる。また蓄積量比が再処理工場からの距離と共に上昇する傾向は ^{137}Cs 程ではないものの、溶存状態での輸送が寄与していることを示唆している。

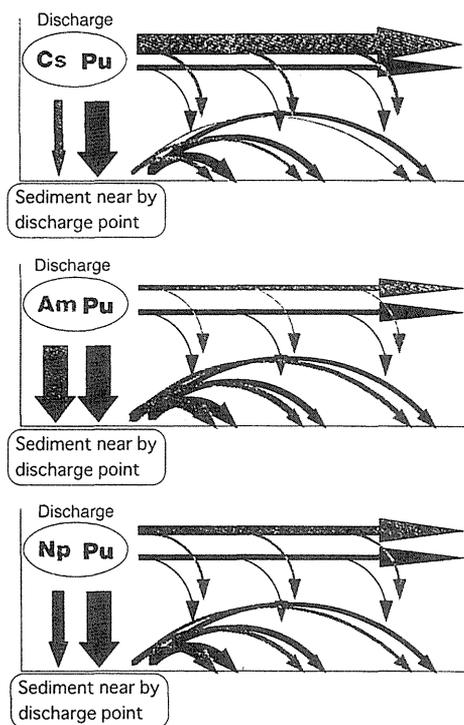


図19 セラフィールド再処理工場から放出された放射性核種 (^{137}Cs 、 ^{237}Np 、 Pu および ^{241}Am) の沿岸への移行

このような堆積物中の蓄積量比と放出量比、さらに放出口からの蓄積量の距離との関係を考え合わせると、放射性核種の沿岸への輸送機構は図19に示すようになると考えられる。図中には、 Pu と比較してどうなのかということを示してある。まず図上部の ^{137}Cs について考えて見ると、 ^{137}Cs はその大半が溶存状態で海水に残ると考えられる。一方放出された Pu はそのほとんどが放出口周辺の堆積物に移行すると考えられる。堆積物に移行した ^{137}Cs や Pu は粒子が分散するのに伴い、沿岸に運ばれる。量的には放出口に近いほど輸送量が多く、遠いほど小さくなる。一方溶存成分は海流に乗って急速に拡散する。溶存状態で沿岸堆積物に到着した ^{137}Cs はその一部が沿岸堆積物に移行するが、この輸送はその速い移動速度のためより遠方まで ^{137}Cs を輸送することができる。各地点での移行量はこの両者の和で与えられる。放出口近くでは相対的に粒子による輸送が大きな寄与を占めるので粒子による $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比が主に反映される。一方、遠方では溶存状態での ^{137}Cs の供給が大きな役割を占めるので $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$ 比が距離と共に上昇することになる。次に ^{241}Am と Pu の関係を考えてどちらともほとんどまず放出口近傍の堆積物に移行すると考えられる。各地点への供給は粒子の寄与が支配的であり、このため距離に対して放射能比は変化しないと考えられる。 ^{237}Np と Pu の関係は上記した ^{241}Am と ^{137}Cs の挙動の中間的なものになると考えられる。 ^{237}Np はどちらかと言えば堆積物粒子に移行する成分が多いと考えられる。このため放出口近くの沿岸堆積物中の ^{237}Np は主に粒子による輸送、そして遠くなるに従って徐々に溶存状態での供給が寄与していく。しかし、遠いところでは ^{137}Cs のように溶存状態での供給が支配的になるのではなく放射能比を数倍上昇させる程度の寄与になる。このように予想される輸送機構は放出された核種がどの程度の割合で放出口周辺の堆積物に移行するのかということではほぼ決まると考えられる。

次に、放出口周辺の堆積物では活発な混合が報告されており放出年代の異なる核種の混合が起こっている事が予想できる。堆積物中の深度分布から、より確かな証拠を見出すことができたのでこれを述べる。1990年に Esk 川河口より採取した堆積物コア (Esk-3) の中に $\text{Pu}(\alpha)$ 、 ^{241}Am の濃度およびその放射能比の深度分布について、対応する深さを年代にあてはめ年間および積算放出量と比較したものを図20に示した。上図には測定した $^{241}\text{Am}/\text{Pu}(\alpha)$ 放射能比を太線、そして年間放出量の比を●、 ^{241}Pu からの ^{241}Am の成長も考慮した積算放出量の比を○で示してある。下図には $\text{Pu}(\alpha)$ と ^{241}Am についてそれぞれ放射能濃度を実線と点線の太い線で、年間放出量を●と■、そして積算放出量を○と□で示してある。まず上図を見ると、測定した放射能比は年間放出量よりも積算放出量とよく一致している。これは各年代で沿岸にもたらされる核種は過去の全放出量によって決定されることを示しており、つまり、放出口周辺にいったん沈積した核種はそこで混合を受け、すべての年代の核種が混合した状態でその後沿岸に運ばれてくることを示している。ところが次に下図を見ると、測定した深度分布は常に増加傾向にある積算放出量とはパターンがまったく一致しないことが解る。年間放出量との対応を見ると最近の堆積物中の減少傾向

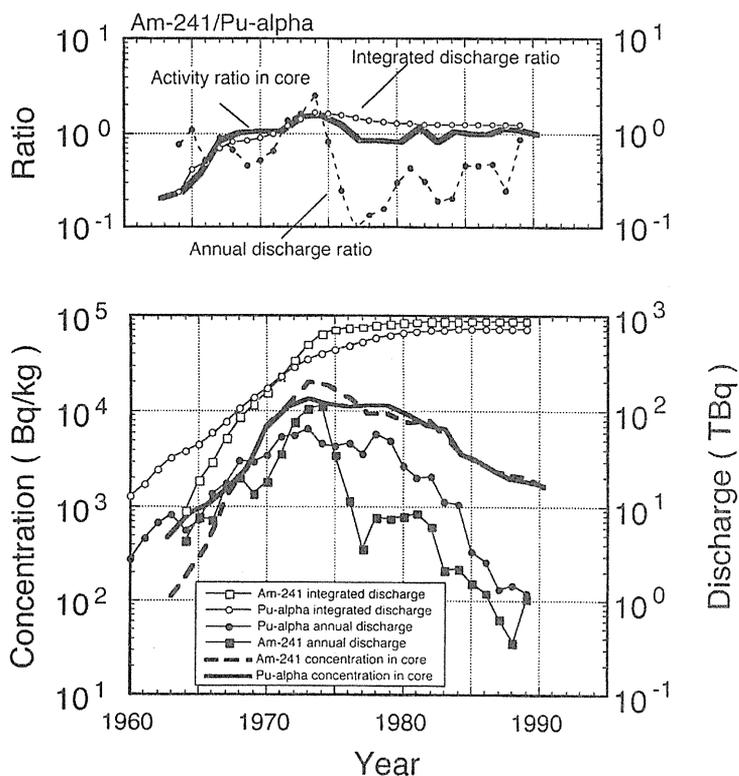
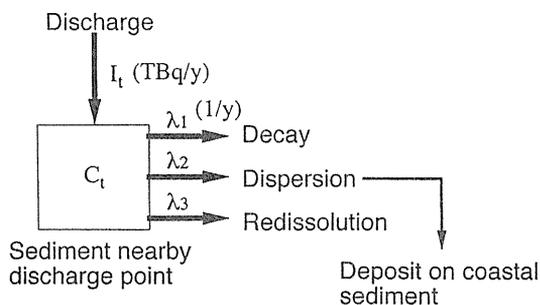


図20 Esk川河口のコア堆積物 (Esk-3) 中のPu(α)と²⁴¹Am濃度および放射能比とセラフィールド再処理工場からの年間および積算放出量比との比較

は年間放出量の急激な減少と比べるとかなり穏やかである。この事は過去の放出が100%の寄与で後の年に影響するのではなく、その年の放出はその次の年にはその何割かが影響する。また次の年にはさらにその何割かが影響するといったような混合機構を考える必要性があることを示唆している。

近年 Mackenzie らは粒子による輸送機構を表す単純なモデルを報告した^{7,18)}。このモデルがまさにその様な効果を与えるもので、このモデルの適用を試みた。

このモデルは放出口周辺の堆積物中の放射性核種濃度を計算するものでセラフィールド再処理工場からの供給を示す項と放出口周辺の堆積物からの除去を示す項から成っている (図21)。放出口周辺の堆積物からの除去過程は壊変、粒子



$$\frac{\partial C_t}{\partial t} = I_t - \Lambda C_t$$

$$\Lambda = \lambda_1 + \lambda_2 + \lambda_3$$

$$C(n) = \sum_{n=1}^N I(n) \exp\{-\Lambda((N+1)-n)\}$$

図21 粒子による輸送 (移行) モデル (Particle Transport Model : A. B. MacKenzie et al.)

の分散、再溶解の3つの過程から成り化学的挙動は3つめの再溶解過程に反映される。粒子の分散過程により沿岸に移行してきた放出口周辺の堆積粒子が沈積すると考えれば堆積粒子中の濃度の時間的な変遷は深度分布中に記録されるので、時間と深さの変換ファクターとして堆積速度が求められる。このモデルを用い、先の堆積物 (Esk-3) 中の深度分布の再現を試みた結果を図22に示した。太線が測定値、○で示したのが計算値である。上図が²⁴¹Am/Pu(α)放射能比、下図がPu(α)放射能濃度である。計算結果は濃度、放射能比共に測定したすべての深さに亘り、実測値をよく再現していることが分かる。

以上をまとめると、最終的にこのような輸送機構が考えられる。経路としては粒子による輸送経路、そして溶存状態での輸送経路の2つが存在し、放出直後の堆積物への移行割合が沿岸への輸送のこの2つの経路の寄与を決定す

る。さらに放出口周辺の堆積物中では活発な混合が生じており結果として沿岸に粒子によって運ばれてくる核種はその年の放出だけでなく過去の放出も影響しているということである。

6. おわりに

セラフィールド再処理工場からの放出量は1970年代に最大の放出があり、1980年代に入ってから約2オーダー以上に激減した。この減少量にともなって、人体への内部および外部被ばく線量も当初2オーダー以上に減少することが予想されたが、実際には1オーダー以下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の堆積物が長寿命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アイリッシュ海は警告している。

最後に、原稿とりまとめに協力いただいた当施設中本美智代氏に感謝します。

参考文献

- 1) Hunt, G. J. (1987): Radioactivity in Surface and Coastal Waters of the British Isles. Aquatic Environment Monitoring Report No.18, MAFF, Lowestoft, UK.
- 2) The United Kingdom Atomic Energy Authority, (1978): Reprocessing and Waste Management in the UK. Atom, No.373, 19-25.
- 3) MaCartney, M., Kershaw, P. J., Woodhead, D. S., Denoon, D. C. (1994): Artificial Radionuclides in the Surface Sediments of the Irish Sea, 1968-1988, Sci. Total Environ., 141, 103-138.
- 4) Donovan, D. T., Cooper, L. H. N. (1966): Irish Sea and Celtic Sea, In: The Encyclopedia of Oceanography (Fairbridge, P. W., Ed.), Reinhold Publishing Corporation, New York, p.408-413.
- 5) Roger, T., Wilson, S. (1974): Caesium-137 as a Water Movement Tracer in the St George's Channel. Nature, 248, 125-127.
- 6) MAFF, (1971-1989): Radioactivity in Surface and Coastal Waters of the British Isles. Aquatic Environment Monitoring Reports. Ministry of Agriculture Fisheries and Food, Lowestoft, U. K.
- 7) MacKenzie, A. B., Scott, R. D. (1993). Sellafield Waste Radionuclides in the Irish Sea Intertidal and Salt Marsh Sediments. Environ. Geochem. Health, 15, 173-184.
- 8) Pentreath, R. J., Lovett, M. B., Jefferies, D. F., Woodhead, D. S., Talbot, J. W., Mitchell, N. T. (1984): Impact of Public Radiation Exposure of Transuranium Nuclides Discharged in Liquid Waste from Fuel Element Reprocessing at Sellafield, UK. In: Radioactive Waste Management, IAEA-CN-43/32, Vienna, 315-329.
- 9) Pentreath, R. J., Woodhead, D. S., Kershaw, P. J., Jefferies, D. F., Lovett, M. B. (1986): The Behaviour of Plutonium and Americium in the Irish Sea. Rapp. P. -v. Reun. Cons. int. Explor. Mer., 186, 60-69.
- 10) Hamilton, E. L. (1985): The Disposal of Radioactive Wastes into the Marine Environment - The Presence

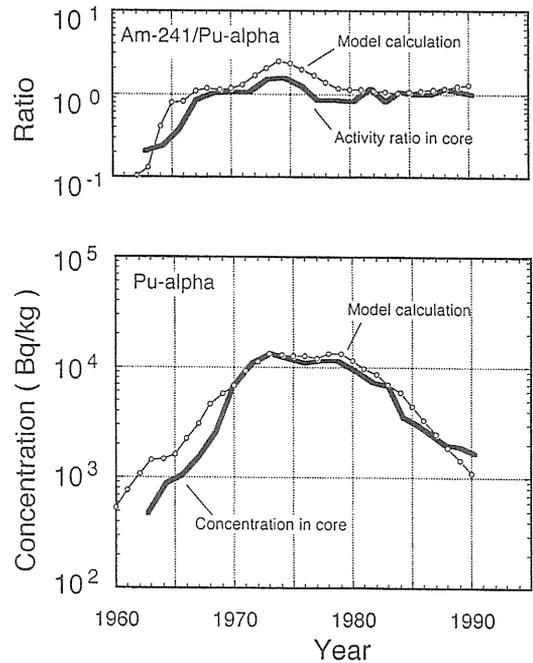


図22 モデル計算によるPu(α)濃度および $^{241}\text{Am}/\text{Pu}(\alpha)$ 放射能比の深度分布(Esk-3コア)の再現

Sedimentation rate : 0.75 g/cm² y
Removal half-time
Pu : 2.0 y
Am : 2.5 y

of Hot Particles containing Pu and Am in the Source Term. Mineralogical Magazine, 49, 177-194.

- 11) Harvey, B. R., Leonard, K. S., Lovett, M. B. (1991) : In : Low-Level Measurements of Man-made Radionuclides in the Environment (Garcia-Leon, M., Madurga, B., Eds.) , World Scientific, p.263-292.
- 12) Yamamoto, M., Igarashi, S., Yoshioka, M., Kitagawa, T., Sakanoue, M. (1984) : Transuranic Elements in Nyu Bay Sediments. Health Phys., 46, 455-460.
- 13) Kuwabara, J., Yamamoto, M., Assinder, D. J. (1955) : (in press) .
- 14) Kershaw, P. J., Woodhead, D. S., Malcolm, S. J., Allington, D. J., Lovett, M. B. (1990) : A Sediment History of Sellafield Discharge. J. Environ. Radioactivity, 12, 201-241.
- 15) Eakins, J. D., Morgan, A., Baston, G. M. N., Pratley, F. W., Strange, L. P., Burton, P. J. (1990) : Measurements of α -Emitting Plutonium and Americium in the Intertidal Sands of West Cumbria, UK. J. Environ. Radioactivity, 11, 37-54.
- 16) Stanners, D. A., Aston, S. R. (1984) : The Use of Reprocessing Effluent Radionuclides in the Geochronology of Recent Sediments. Chemical Geology, 44, 19-32.
- 17) Aston, S. R., Stanners, D. A. (1979) : The Determination of Estuarine Sedimentation Rates by $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ and Other Artificial Radionuclides Profiles. Estuarine, Coastal Mar. Sci., 9, 529-541.
- 18) MacKenzie, A. B., Scott, R. D., Allan, R. L., Ben Shaban, Y. A., Cook, G. T., Pulford, I. D. (1994) : Sediment Radionuclide Profiles - Implications for Mechanisms of Sellafield Waste Dispersal in the Irish Sea. J. Environ. Radioactivity, 23, 39-69.
- 19) Kuwabara, J., Yamamoto, M., Assinder, D. J. (1995) : (in press) .
- 20) Assinder, D. J., Yamamoto, M., Kim, C. K., Seki, R., Takaku, Y., Yamauchi, Y., Igarashi, S., Komura, K., Ueno, K. (1993) : Radioisotopes of Thirteen Elements in Intertidal Coastal and Estuarine Sediments in the Irish Sea. J. Radioanal Nucl. Chem., 170, 333-346.
- 21) Kuwabara, J., Yamamoto, M., Assinder, D. J., Komura, K., Ueno, K. (1996) : Sediment Profiles of ^{237}Np in the Irish Sea - Estimation of the Total Amount of ^{237}Np Discharged from Sellafield. Radiochim. Acta, 73, 73-81.

2. 環境中での $^{239+240}\text{Pu}$ の移動性について

馬原 保典、工藤 章 *

(財)電力中央研究所、カナダ国立科学院
(* 京都大学原子炉実験所)

Mobility of $^{239+240}\text{Pu}$ in the environment

Yasunori Mahara

Central Research Institute of Electric Power Industry,
1646 Abiko, Abiko-shi, Chiba, 270-11, Japan

Akira Kudo

Institute for Environmental Research and Technology,
National Research Council of Canada, Ottawa, Canada, K1A 0R6

ABSTRACT—To estimate the mobility of $^{239+240}\text{Pu}$ in the environment, the intensive surveys of the $^{239+240}\text{Pu}$ distribution were conducted in various environmental materials (soils, sediments and plants) in the Nishiyama area 3Km east of the hypocenter, which received heavily deposition of a local fallout from the nuclear explosion of 1945, in Nagasaki after 40 years.

The vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr were determined in unsaturated soil cores up to 500cm deep. ^{137}Cs and ^{90}Sr were the reference to assess the mobility of $^{239+240}\text{Pu}$. Most fallout radionuclides were found in the top soil to 30cm deep from the ground surface (95 % of ^{90}Sr , 99 % of ^{137}Cs and 97 % of $^{239+240}\text{Pu}$). However, ^{90}Sr and $^{239+240}\text{Pu}$ were detected in the groundwater below a depth of 200cm. No ^{137}Cs was found below 40cm from the ground surface or in groundwater. These observations reveal that about 3 % of total $^{239+240}\text{Pu}$ in soil has been moving faster than the remaining. The 1945 sharp peak of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs were found in sediment cores collected from the Nishiyama reservoir. On the other hand, since ^{90}Sr is mobile in fresh water sediments, there was no 1945 ^{90}Sr peak in the sediment cores. $^{239+240}\text{Pu}$ peaks were unexpectedly discovered in pre-1945 sediment core sections, but ^{90}Sr and ^{137}Cs were not found. In contrast with the ^{137}Cs distribution in sediment cores, ^{137}Cs in tree rings had spread by diffusion from the bark to the center of the tree independent of a fallout deposition record. Most of the $^{239+240}\text{Pu}$ was distributed in the tree rings dependent on the same fallout deposition record as found in sediment cores. Furthermore, a very small amount of $^{239+240}\text{Pu}$ (about 1 %) was found in pre-1945 tree rings.

Consequently, judging from the environmental surveys of $^{239+240}\text{Pu}$ Nagasaki, the mobile Pu was produced in various environments, though very low level. The production rates were 10 % in sediments, 3 % in soil and 1 % in tree, respectively. The production of the mobile Pu in the environment strongly depends on natural organic materials, bacterial activities, aerobic and anaerobic conditions

I. はじめに

低レベル・高レベル廃棄物の処分の安全性について議論する場合、長半減期核種の環境中での挙動を無視することはできない。とりわけ超ウラン元素の地中・生物移行とそれに伴う線量評価は避けて通れないであろう。その際、超ウラン元素の移動性や分配係数について原位置条件下で情報を得ることは極めて重要なことである。しかしながら、ホット試験によって原位置条件下で情報を得ることは極めて困難である。そのためにこのセミナーでは、環境中に存在し長い期間環境媒体と相互反応を繰り返してきたと思われるフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr を用いた原位置での分配係数等の測定事例と、これら核種の環境中での移動性についてフィールド調査によって得られた結果をもとに $^{239+240}\text{Pu}$ の移動性について述べる。

II. フォールアウト Pu 調査の概要

長崎におけるフォールアウト Pu 調査は、1981年より開始した。調査は、環境に放出された Pu の地球規模でのマス・バランスをとるために①土壌^{1),2),3)}、②底質（貯水池、海底土）⁴⁾、③地下水⁵⁾、④生物（農作物、樹木、魚類）⁶⁾と比較のために、⑤フランスの樹木⁷⁾、と⑥北極氷床の氷柱^{8),9)}、を対象に国際共同研究として現在も進行中である。ここでは、①、②、③、④と⑤について述べる。長崎における調査は、局地フォールアウトが集中的に降下したと考えられている西山水源地周辺において土壌、地下水、樹木、生姜とさつまいもの農作物と、タニシとフナの魚類を含めた生物試料の採取を行った。Pu 降下の履歴を調べるために西山貯水池と爆心地から南南東 7 kmにある小ヶ倉貯水池、さらには長崎市の東側に位置する橘湾においても底質試料を採取した。Fig. 1 に長崎における調査地点を、また Fig. 2 に長崎の結果と比較のために長崎から8000km離れているフランスにおいて実施した樹木の調査地点を示す。フォールアウト Pu の土壌中での移動速度を調べるためにフォールアウト降下量の多い 2 地点で最大深度500cmまでの土壌（ $\phi=30\text{cm}$ ）を未攪乱で連続採取した。地下水については、沢の湧水ならびに土壌採取後の掘削孔より採取した。これらの詳細については参考文献 1, 2, 3, 4, 6 を参照されたい。

III. 分析試料の調整

1. 分析試料の調整

各環境試料中の ^{137}Cs 、 ^{90}Sr 、 $^{239+240}\text{Pu}$ の分析のために土壌試料は、植物の根茎や落ち葉を除去した後110℃で48時間乾燥した後ボールミルで粉碎し調整した。底質試料については、土壌試料同様に調整した。杉の年輪サンプルについては樹齢78年の樹幹を厚さ10cmの100枚程の円盤に切断し、3年毎に年輪を分離しそれを1試料とした。各試料は、350℃で灰化し測定試料とした。

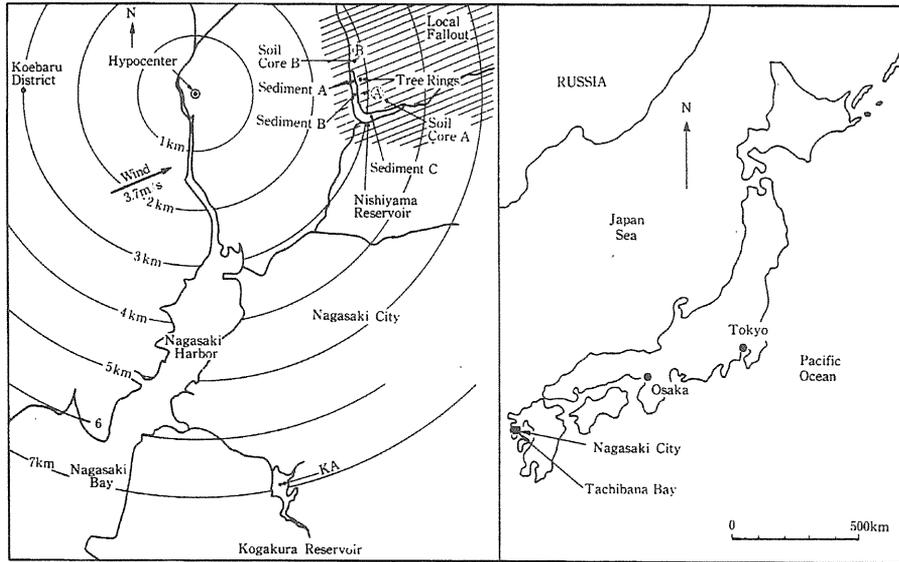


Fig. 1 Location of the local fallout deposited area in Nagasaki and the sampling sites for soil cores, sediments cores and the tree rings of Sugi.

2. 放射能の分析試料

(1) $^{239+240}\text{Pu}$ 分析

$^{239+240}\text{Pu}$ の濃度は ^{236}Pu をスパイク用トレーサーとして添加した後アメリカ、ドイツ、日本で行われている通常の化学分離の手法に準拠し分離電着し、 α 粒子スペクトロメータのキャリブレーションは IAEA の標準土壌 (SD-N-1/1, Soil-6) を同様に処理をし、カナダの放射線計量局のスタンダード ^{241}Am を用いて行った。測定限界は、0.01kgの土壌、底質、灰化試料当たり0.05 Bq/kgである。

(2) ^{137}Cs 分析

^{137}Cs の濃度は、鉛、陸奥鉄、銅とアクリルで多重遮蔽したピュア Ge 検出器をもつ γ 線スペクトロメータを用いて max. 5×10^5 秒で測定した。測定限界は、0.1kgの土壌、底質、灰化試料当たりの0.05 Bq/kgである。

(3) ^{90}Sr 分析

^{90}Sr 濃度は、HASL-300¹⁰⁾ に準拠して土壌、底質試料から ^{90}Sr を分離し、放射線の計測には ^{90}Y を ^{90}Sr より水酸化鉄共沈法により 2π ガスフロー・カウンターで1000分 (100分10サイクル) 測定した。この方法での検出限界は、0.1kg試料当たり0.2 Bq/kgである。

なお、 $^{239+240}\text{Pu}$ 分析は、カナダ国立科学院環境化学研究所において行った。

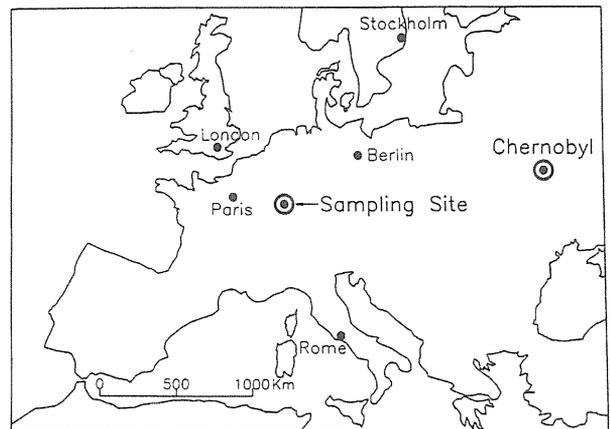
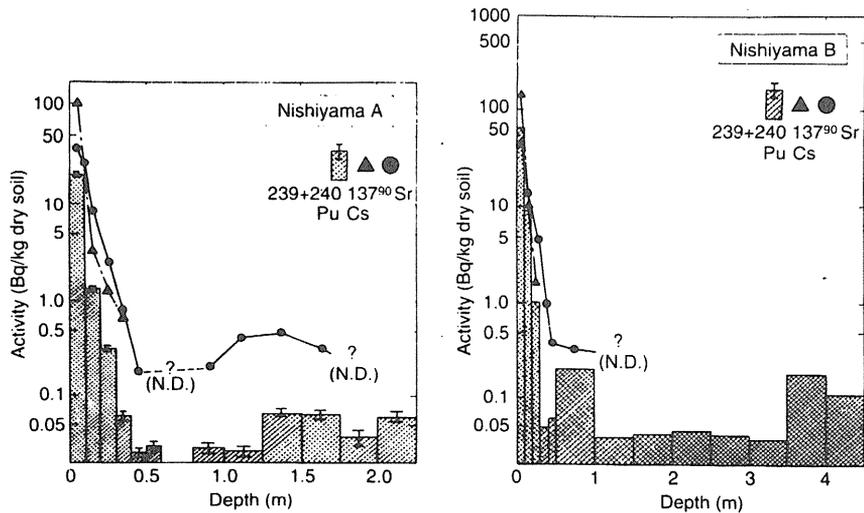


Fig.2 Sampling site of French white fir and spruce in France.

IV. 調査結果とその評価

1. 土壌中フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の分布と移動速度

土壌中フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の鉛直分布を調べるために、Fig. 1 に示す A、B の 2 地点で最大深度



Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr in Soil of Nagasaki

Fig. 3 Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr into two undisturbed 30cm diam. soil cores collected from sites A and B in Nishiyama (N. D.: Not detected)

500cmまでの直径30cmの土壌コアを未攪乱状態で連続的に採取して $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の濃度を測定した。測定結果を Fig. 3 に示す。

フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の大部分は地表から深度30cmまでにその大部分が吸着されており、総吸着量のそれぞれ97%、99%、95%であった。フォールアウト ^{90}Sr は、30cm以深でも観測されコアAでは、200cm深度にまで分布しており、 $^{239+240}\text{Pu}$ は、コアA、Bでそれぞれ孔底まで観測された。 ^{137}Cs は ^{90}Sr や $^{239+240}\text{Pu}$ の分布とは対照的に40cm以深では存在が確認されなかった。

大部分のフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr が吸着されている30cm深度までの不飽和土壌中での各核種の地中での移動速度を求めるために次式で示される

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial Z^2} - V_x \frac{\partial C}{\partial Z} - \lambda C \quad \dots\dots\dots (1)$$

を境界条件

$$\left. \begin{array}{lll} C = 0 & Z = > 0 & t = 0 \\ C = C_0 & \exp(-\lambda t) & Z = 0 \\ C = 0 & & Z = \infty \end{array} \right\} \quad \dots\dots\dots (2)$$

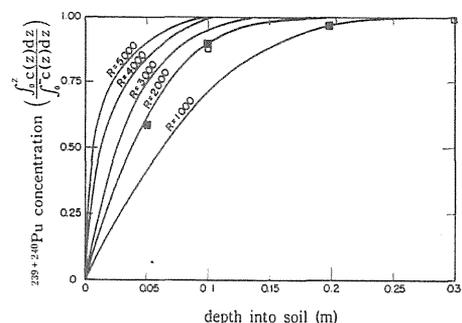
で解いた。解析解

$$C = \frac{C_0}{2} \exp(-\lambda t) \left[\exp\left(\frac{V_x}{D} Z\right) \operatorname{erfc}\left(\frac{Z + V_x/R \times t}{2\sqrt{D/R \cdot t}}\right) + \operatorname{erfc}\left(\frac{Z V_x/R \times t}{2\sqrt{D/R \cdot t}}\right) \right] \quad \dots\dots\dots (3)$$

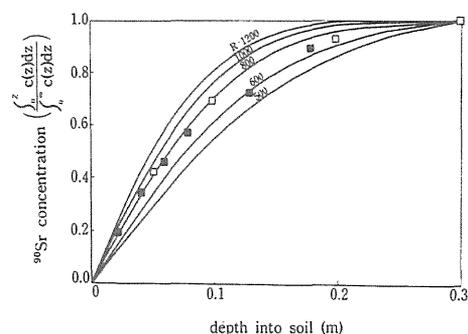
を用いて核種の移動速度ならびに原位置条件で評価推定された分配係数 (Kd) を求めた。その際 $^{239+240}\text{Pu}$ は半減期が長いので式 (3) において $\lambda = 0$ と置いた解析解を用いた。また、 $^{239+240}\text{Pu}$ は全 Pu に占める局地フォールアウトの量が95%以上であることを考慮して1945年に全 Pu が降下したと考えた。一方、 ^{90}Sr

と ^{137}Cs はグローバルフォールアウトの降下量と半減期補正が無視できないために、1945年に局地フォールアウトが、また1963年にグローバルフォールアウトの全量が降下したものと仮定し評価を行った。ちなみに、1984年の時点で土壌の中に含まれる ^{90}Sr の47%が1945年の局地フォールアウトであり残りの53%グローバルフォールアウトである。また、 ^{137}Cs は50%づつが局地フォールアウトとグローバル・フォールアウトの寄与である。地下水の鉛直移流浸透速度は、降水中に含まれるトリチウム (HTO) の降下履歴と不飽和土壌土中水のトリチウム濃度と比較して推定した値 2.5m/yr を用いた。その値は臭素イオンをトレーサーとして原位置で土中水の鉛直浸透速度を観測し得られた値ともほぼ一致した。フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の実測分布と解析結果との比較を Fig. 4 に示す。また、この結果をもとに推定した $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の原位置での分配係数の大きさは、各々 960, 1200, 300ml/gであった。これらの値は、同じ土壌と現場で採取した地下水を用いてバッチ法とカラム法によって室内実験によって測定した分配係数に比べて $^{239+240}\text{Pu}$ で一桁小さく、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr では逆に 2 倍ほど大きくなる傾向が見られた。 $^{239+240}\text{Pu}$ で小さくなった理由としては、フォールアウト Pu の酸化状態は高温で酸化されたために Pu (V) と考えられる室内実験で用いた ^{239}Pu は、Pu (IV) であったため、Nelson 等¹¹⁾ が指摘したように Pu (V) が Pu (IV) よりも土壌に吸着されにくいことを反映した結果と考えられる。一方、 ^{137}Cs と ^{90}Sr でフォールアウトの方が分配係数が大きくなった理由としては、これらの核種は酸化状態の違い、微生物の影響や溶存有機物の影響を受ける度合いが低いことを考慮すると、この違いは吸着時間の長さの違い、つまりフォールアウト核種の場合は40年以上の相互反応の結果であるのに対し、室内実験での相互反応の時間は24時間と極めて短いことが、その原因の一つと考えられる。 ^{137}Cs と ^{90}Sr の吸着メカニズムが、土壌のイオン交換反応であると考えられるならば24時間という時間は必ずしも短くない。これらの結果は核種の土壌に対する吸着メカニズムが、短時間で終わるイオン交換反応とゆっくりと進行する不可逆吸着を主体とする続性作用とから構成されていると考えられる。同様な結果がチョークリバーで放射性廃液を注入処分してできた放射性核種の移行プリュームの中でも観測されている¹²⁾。

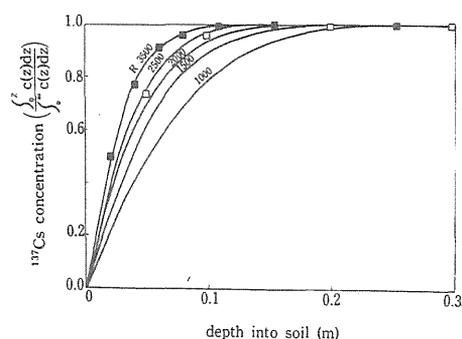
なお、ここで述べた解析手法等については、J. Geophysical Research と J. Environmental Quality に発表した拙稿に詳細に述べているのでそれを参照されたい。



Estimation of Retardation Factor (R) of $^{239+240}\text{Pu}$



Estimation of Retardation Factor (R) of ^{90}Sr



Estimation of Retardation Factor (R) of ^{137}Cs

Fig. 4 Comparison between fallout $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr measured in undisturbed soil cores A and B, and theoretical accumulation curves for radionuclides analyzed by one-dimensional diffusion equation.

2. 地下水

ボーリング孔内より採水した地下水200 l を0.45 μmの孔径を持つメンブラン・フィルターで濾過した地下水中の溶存 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{237}Cs 、 ^{90}Sr の濃度を測定した。その結果、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{90}Sr は、各々 $0.024 \pm 0.005\text{Bq}/\text{m}^3$ 、 $0.963 \pm 0.385\text{Bq}/\text{m}^3$ で検出されたが、一方、 ^{137}Cs は、検出限界下であった。このことは、土壌中でこれら核種の移動性とも良い相関を持っており、 ^{137}Cs が $^{239+240}\text{Pu}$ や ^{90}Sr に比べてその移動速度が小さいことを示唆している。

3. 底質

西山貯水池と小ヶ倉貯水池において底質コア内のフォールアウト核種の鉛直濃度分布を調査した。2つの貯水池の結果を比較すると西山貯水池の方に、1945年の局所フォールアウトと1963年頃のグローバル・フォールアウトの降下履歴が認められる。これに対し、小ヶ倉貯水池の底質の中では、1963年頃と1975年頃にグローバル・フォールアウトのPuピークが明瞭に認められる。さらに、以外なことは、1945年頃の深度(28~36cm)からも極めて小さいながらPuのピークが認められる。この小さなピークが1945年の原爆ピークであることは、同一深度の底質中では、深度22cmより深い部分では ^{137}Cs が、また底質や土壌の中ではその移動性が大きい ^{90}Sr が深度28cmより深い部分では全く検出されないこと、Puについてもこのピークの上にある底質層である24~28cm深度のサンプルからは検出されなかったことから、きわめてわずかではあるが、局所フォールアウトとしてのPuの降下が爆心から南7km付近でもあったものと判断される。各底質の深度と堆積年代との関係は、Excess ^{210}Pb の減衰を基に決定した。小ヶ倉の底質サンプル中に含まれる全Puの中で1945年の原爆フォールアウトの寄与率は約11%であった。これは、後述する西山

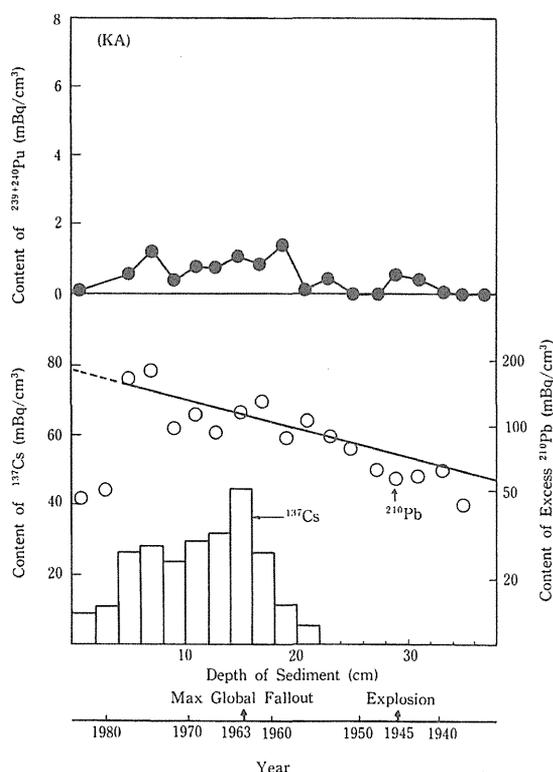


Fig. 5 Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr and Ex. ^{210}Pb in sediment core collected from Kogakura reservoir.

貯水池の観測結果(グローバルの寄与率は、総Pu量の5%以下)とは、対象的な結果であった。逆にこの結果は、Ⅳ. 1で述べたように局所フォールアウトの降下が極めて限られた地域に集中的に生じたことを支持している。Fig. 5に小ヶ倉貯水池底質中のフォールアウト核種の鉛直濃度分布を示す。一方、西山貯水池の底質内の $^{239+240}\text{Pu}$ 、 ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の鉛直濃度分布をFig. 6に示す。これを見ると、貯水池の最も深い部分で採取したSediment-Cのサンプル中には、1930年代から1982年頃までのフォールアウトの降下履歴が比較的良好な状態で残されていることが分かる。特に ^{137}Cs はいずれのSedimentサンプルにおいてもその降下履歴は残されているが、Sediment-BとSediment-Aでは局所フォールアウトのピークは明瞭であるがグローバルのピークは局所フォールアウトのピークと重なって余り明確ではない。Sediment-AとSediment-Bは、貯水池の中でも比較的水深が、浅い部分で採取された事もあって1982年に発生した大洪水の影響を受けてコアの浅い部分(Sediment-A: ~30cm, Sediment-B: 10cm)は、

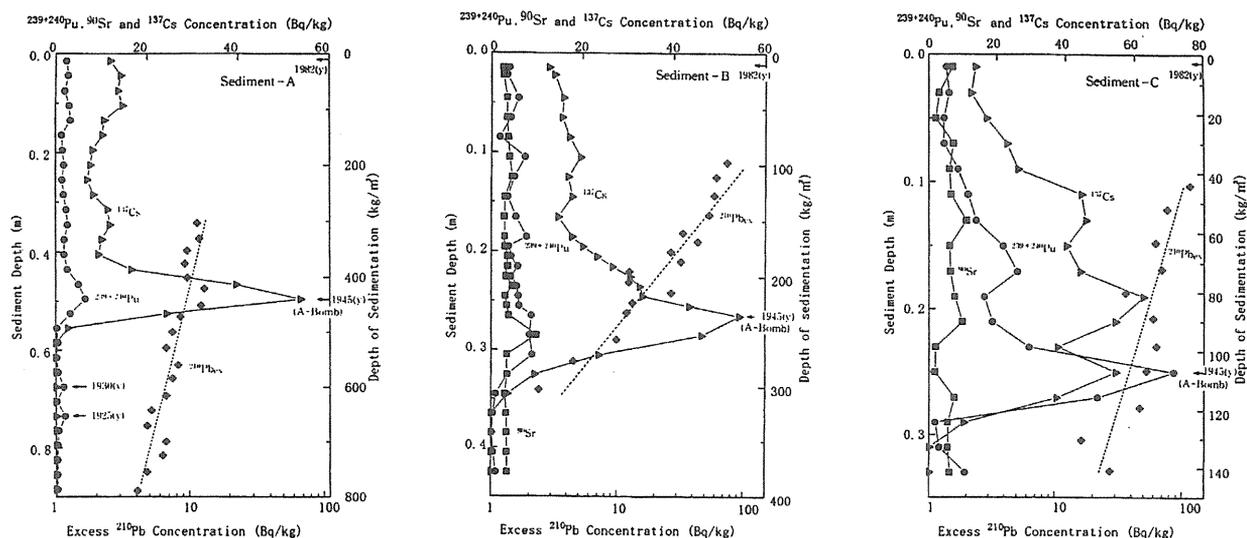


Fig. 6 Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr and Ex. ^{210}Pb in sediment cores collected from Nishiyama reservoir.

降下の履歴が乱されている可能性が高い。既に述べたように ^{90}Sr は底質内での移動性が高いために降下の履歴は余り明瞭ではない。降下履歴の保存がよい Sediment-C の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の濃度分布と ($^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$) 比を活用することにより西山地区の土壤中に吸着されているフォールアウト ^{137}Cs と ^{90}Sr の起源 (局所/グローバル) の割合を明らかにできる。その結果はすでに IV. 1 で報告済みである。

Sediment-A の30cm以深の洪水の影響を受けていないコア部分の深度50cm付近に局所フォールアウトの $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の大きなピークが見られる。 ^{137}Cs は、深度57cmまでは検出されるがそれより以深で全く検出されない、一方 $^{239+240}\text{Pu}$ は、コアの最深部の90cmまで非常に濃度は低いながら検出される。特に、注目すべき点は、深度65~75cmの間に比較濃度が高いピークが2ヶ所見られることである。まず、この点について考慮する際に検討しておかなければならない点は $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の測定上の検出限界の問題があるが、ここでは、Pu と Cs で測定方法は異なるが、いずれも検出限界が同一になるよう分析に供する試料量等で調整をしたので、同一検出限界条件にあるものと考えられる。そこでこのピーク濃度が Sediment-A の最大 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度 6.43Bq/g の1/3~1/4に達すること、同一深度の底質中で ^{137}Cs が検出されないこと、さらには、この深度の底質の堆積年代が1925~1932年頃であることを考慮すると大部分の局所フォールアウトの Pu とは化学形態の異なる移動性の高い $^{239+240}\text{Pu}$ が、僅かながら存在することを示唆しているようである。また、貯水池の底で水の動きや底棲生物などの攪乱による水理的・生物学的な乱れの大きさを表す底質混合拡散係数 (Particle Mixing Coefficients) の値は、 $De = 0.078 \sim 0.12\text{cm}^2/\text{yr}$ であった。これらの値を用いて、各底質中に残されている局所フォールアウトのピークの底質中での分散について解析して見たが、その結果 Sediment-A 中の65~75cmに見られる比較的濃度の大きなピークは、底質混合拡散移動効果の範囲を越えていることが明らかとなった (Fig. 7 参照)。

以上の詳細は、既報告の Health Physics, Vol. 54 ならびに J. Environmental Quality, Vol. 22 を参照されたい。

4. 樹木の年齢

フォールアウト放射性核種が樹木等に吸収される経路は、大きく分けて、①大気から直接葉や樹皮を通

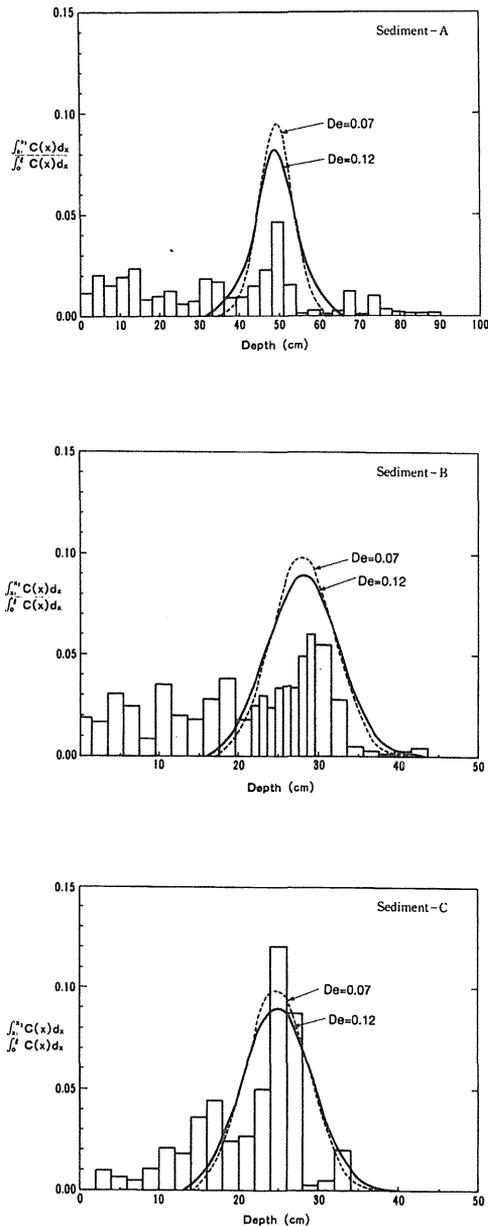


Fig. 7 Comparison between $^{239+240}\text{Pu}$ measured cores (A, B and C) and theoretical distribution curves for the local fallout $^{239+240}\text{Pu}$. De : particle mixing coefficient (cm^2/yr)

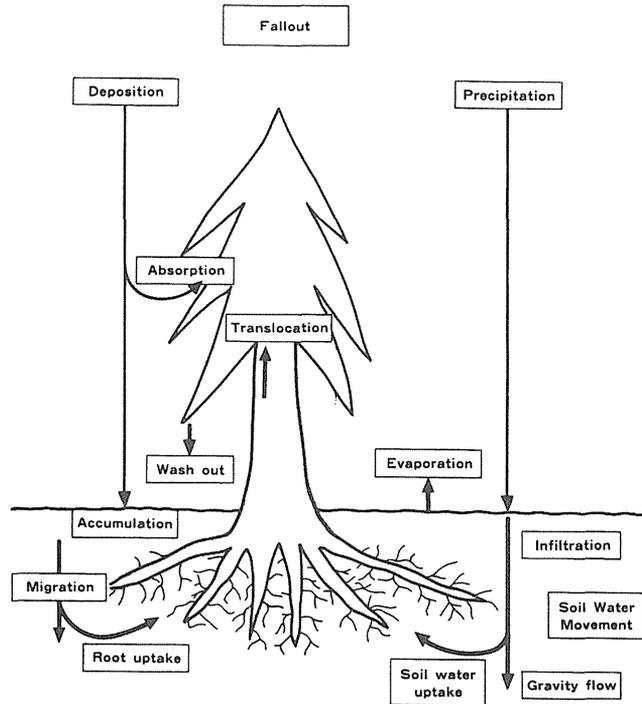


Fig. 8 Fallout radionuclides transfer and water movement in a soil - tree system.

して吸収される経路と、②一度、土壤中に蓄積され土壤水と共に移動し、根より吸収される経路とがある (Fig. 8 参照)。ここでは、長崎の杉と比較のために行ったフランス・ナンシー市の French White Fir と Pine の結果について述べる。

長崎で、樹齢78年の杉の年輪を3年毎に分け、 ^{40}K と ^{137}Cs の濃度分布を測定した結果を Fig. 9 に示す。この結果を見ると極めて特徴的なことが分かる。 ^{40}K と ^{137}Cs は、非常に良く似た分布をしていることが分かる。また、 ^{137}Cs の分布にはフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴的なものは認められず、樹皮・辺材部分から心材に向かって急激に濃度上昇が起こり心材の部分では、濃度がほぼ一定となる逆S字型の濃度分布を示す。濃度の上昇は、辺材から心材の遷移境界部分で著しい。 ^{40}K と ^{137}Cs が同様な分布を持つということは、K と Cs がアルカリ

金属であり化学的には極めて類似の挙動を取る可能性が高いことと、K は植物にとっては必須栄養元素であることを考慮すると樹木の中では、 ^{137}Cs の移動性の高い (mobile) ことは理解ができるところである。

$^{239+240}\text{Pu}$ の分布は、 ^{137}Cs の濃度分布とは著しく異なり樹木の組織の違い、つまり辺材と心材の違いによってその濃度分布が左右されることはないようである。Fig. 9 に示す核実験によって大気圏へ放出された ^{137}Cs の降下履歴と比較すると良く似た分布をしていることが分かる (Fig. 10)。比較的大きな濃度ピークが、1944年～1946年、1956～1958年に認められる。ピークの大きさは、1965～1967年、1956～1958

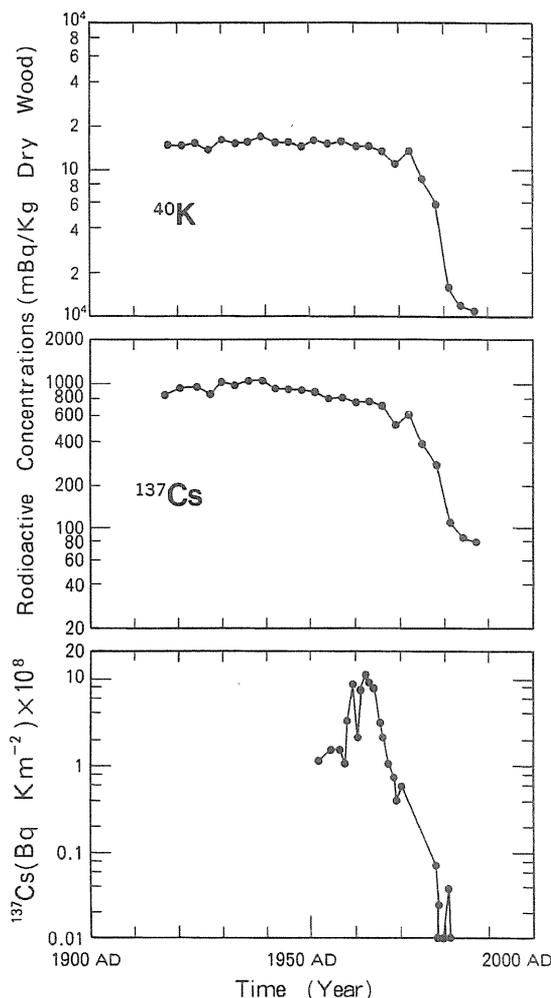
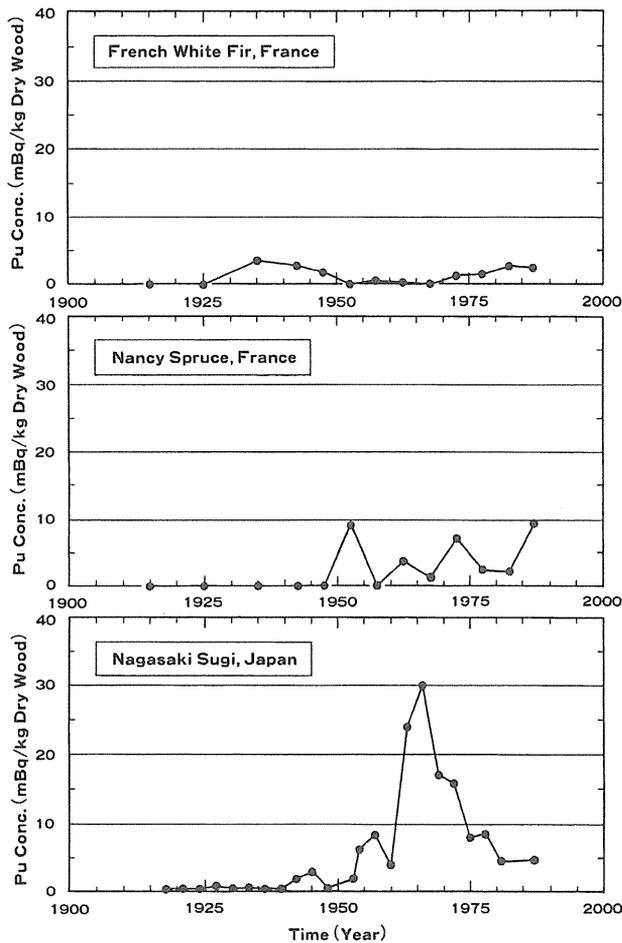


Fig. 9 ^{137}Cs distribution in Nagasaki sugi tree rings compared with ^{40}K

られることである。これらのピークは、いずれも原爆フォールアウトの降下が起こった1945年以前に観測される。つまり、 $^{239+240}\text{Pu}$ がまだ環境に放出されない以前の年輪中に存在することを意味しており、この事は、我々が今までに得た知見とは若干矛盾するように思える。ここでの観測結果は、 $^{239+240}\text{Pu}$ の中には一部環境中では移動性の高い成分が出来ることを示唆していると解釈しなければ説明ができない。同様な観測結果は、ランスのナンシーで採取した樅の年輪にも認められ、Puの最大濃度は、1935年前後の年輪中に検出された (Fig. 10 参照)。もちろん、ナンシーでは、1945年の局地フォールアウトの影響は認められず、グローバルのフォールアウトの影響のみであり、最大値はグローバルの最大降下の1963年よりも約30年も早く出現しており、樹木への吸収経路の違いあるいは、吸収後の挙動の違いを考えなければならないことを示唆している。さらに意外な事実として長崎の杉年輪中に残された $^{239+240}\text{Pu}$ の降下履歴と Sediment-A の中に残された $^{239+240}\text{Pu}$ の降下履歴とが極めて良く似ていることである。杉年輪中のサンプルを採取した場所と Sediment-A を採取した場所とは、陸上と貯水池の中と言う違いはあるがほぼ同じ場所であり、その意味ではフォールアウト核種の降下状態はほぼ同じであったと考えられる。Sediment-A の中にも1945年以前の1925~1932年に堆積した底質中に $^{239+240}\text{Pu}$ の2つの小さなピークが存在することは、すでに述べたところである。Fig. 11 に年輪中の $^{239+240}\text{Pu}$ と Sediment-A 中の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度分布を年代を重ね合わせて示す。

年、1944~1946年の順番で1944~1946年のピークつまり原爆ピークは、他のグローバルフォール・ピークより低い。この事は、周辺土壌中の $^{239+240}\text{Pu}$ の大部分 (95%) が1945年の原爆の局地フォールアウトによってもたらされていることを考慮すると意外なことである。この事は、局地フォールアウトでは生物への吸収の度合いが異なることを示唆している。これらの原因としては、フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の粒径の違い、化学的な違いや暴露時間の違い等々考えられるが明らかではない。また、最もグローバル・フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の降下が大きかったと考えられる1963年に最大濃度ピークが出現せず、2~3年遅れて濃度ピークが現れているが、その理由も良くわかっていない。しかしながら、 $^{239+240}\text{Pu}$ の降下履歴が年輪中に残されていることを考えると、 $^{239+240}\text{Pu}$ の大部分が樹木の葉や樹幹を通して吸収されたと考えられるのが妥当であろう。何故ならば、地上に降下した $^{239+240}\text{Pu}$ は土壌に強く吸着されるので、地表数センチメートルに蓄積され主に杉の根が広がって吸収活性の高い地表より1m深さよりも上方に蓄積されており、直接樹根によって吸収される確率は非常に低いと思われるからである。さらに、 $^{239+240}\text{Pu}$ の分布において注目すべき事は、前述の3つのピーク以外に、小さいながら2つのピークが1932~1934年と1926~1928年に認め



$^{239+240}\text{Pu}$ Concentrations in Tree Rings from France and Japan.

Fig. 10 $^{239+240}\text{Pu}$ concentrations in tree rings from France and Japan.

という対照的な挙動を示すことが明らかとなった。

なお、ここで述べた詳細な内容については、Environmental Radioactivity, Vol. 21 ならびに Applied Radiation Isotopes Vol. 46^(7),13) を参照されたい。

V. 溶存有機物の Pu の移動性への係わり

長崎での調査結果を見ると、大部分の Pu とは若干その挙動（移動性）の異なる Pu が存在することが判明した。これら Pu は水の動き方の違いにより説明するよりは、化学的な形態の違いにより大部分の Pu とは挙動が異なる考える方が合理的である。Pu の土壌（底質）中の移動を考えた場合、土壌への吸着され易さの目安となる分配係数について次のような試験を行った例がある⁵⁾。まず、砂と Pu (IV) の溶液を 1 : 100 の割合で混合し、バッチ法にて分配係数を測定したらその値は pH : 8 で $K_d = 5 \times 10^3$ (ml/g) 程度であった。一方、同じ土壌と地下水を用いてカラム法で分配係数を測定したら、分配係数は pH : 8 で K_d はやはり同程度であった。次に、このカラム試験においてカラムより流出した ^{239}Pu を含む溶液を $0.45 \mu\text{m}$ のメンブラン・フィルターで濾過した後の溶液と新しい砂試料を用いて前述のバッチ法と同じ手順で分配係数を測定すると分配係数は $K_d = 50$ (ml/g) (pH : 8) となり、最初に測定したバッチ法ならびにカラム法の値の 1/100 程度に低下する現象が見られた (Fig. 12 参照)。試験の前後で酸化数の

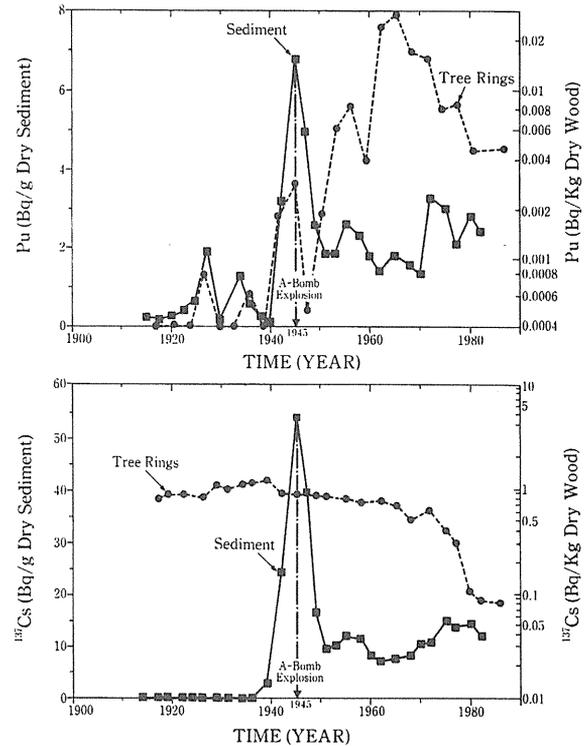


Fig. 11 Distributions of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in sediment core and tree rings.

また参考までに年輪中の ^{137}Cs と Sediment - A 中の分布を示す。これらの結果を比較すると、 $^{239+240}\text{Pu}$ は土壌や樹木の中では基本的には移動性は低い、 ^{137}Cs は土壌や底質の中では移動性は低い、樹木のように生物体の中では移動性は非常に高いという対照的な挙動を示すことが明らかとなった。

変動 (Pu(IV) → Pu(V)) は認められなかった。一方、溶存有機物量については、計測データがないので明らかではないが、2回土壌と接触しているので増加の可能性は否定できない。溶存有機物の影響については、Puと天然キレート剤との錯体形成によってPuの分配係数が減少することが指摘されてきた。Fig. 13に Nelson等^{14,15)}が自然環境下でフォールアウトPuを用いて求めたKdと、室内で²³⁹⁺²⁴⁰Puをトレーサーとして用いて実験を行い計測したKdと溶存有機物の相関性を求めた古典的な結果を示す。溶存炭素量が1桁増加するとPuの分配係数はほぼ1桁減少する傾向が見られる。また、Bulman等¹⁶⁾は可溶性の腐植物質と錯体を形成しているPuが地中で移動性が高まること、また、土壌から溶出されるPuが分子量が大きく異なる2つのグループに分別されることを報告している。この結果はPuと錯体を造る天然の有機物には、少なくとも高分子のものと低分子のものがあることを示唆している。これらと関連するものとして、セルロース系の有機物がアルカリ分解を受けた中間成生物である iso-saccharinate (2-c-hydroxymethyl-3-deoxy-D-erythro-pentonic acid, 分子量: 192)が増加してくると、Puを含め超ウラン元素の溶解度が上昇しPu等の分配係数が減少することを英国のAEAグループは報告している¹⁷⁾。しかしながら、この低分子物質である iso-saccharinate が環境中でどの程度安定であるかはまだ明らかにはされていない。例えば、除染剤に用いられる人工キレート剤であるEDTA(分子量: 348)は環境中では非常に安定であると思われるが、好気的な土壌環境下では比較的簡単に微生物によって分解されるとの報告もある¹⁸⁾。いずれにせよ、Puの環境中の移動性を議論する場合には、天然有機物の存在は無視できない。それと同時に有機物(主体はセルロース)が、微生物によって分解された分解成生物が天然のキレート剤として働く可能性が高く、活発に地表付近で天然キレート剤が生成されていると考えられる。長崎のフォールアウトPuの大部分(97%)は、地表より30cmまでに蓄積されており、残りの

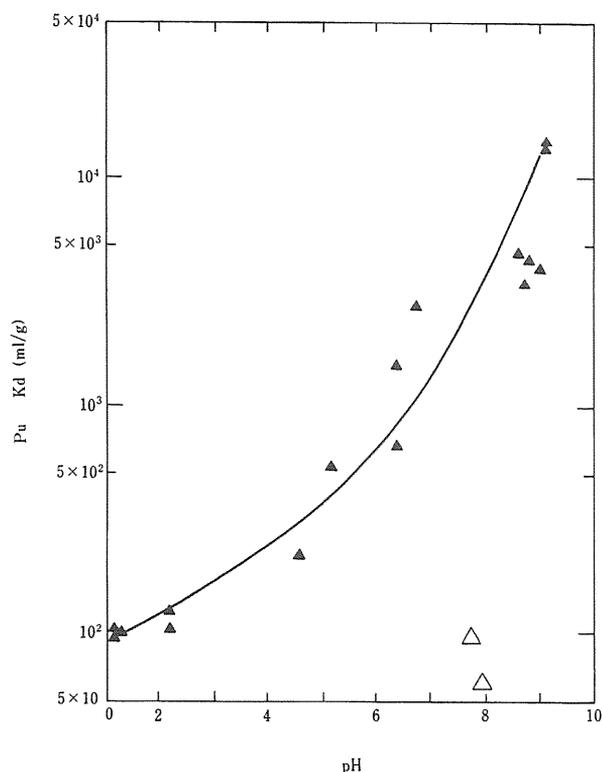


Fig. 12 Changes in the Kd of ²³⁹Pu measured with a batch method using sandy soil varying pHs and Kds for the untrapped ²³⁹Pu contained in effluent from the sandy soil column.

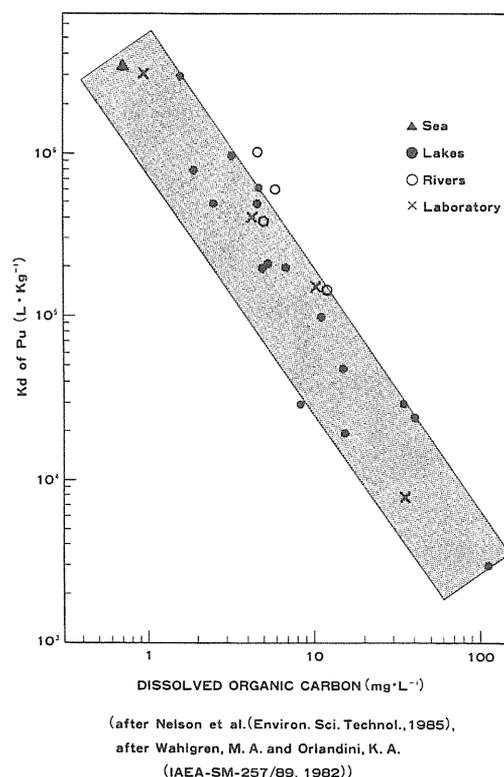


Fig. 13 Correlation between the Kd of fallout Pu measured in the natural system and the dissolved organic carbon concentration, and comparison with the laboratory Pu Kd.

3%が希薄なほぼ一定濃度で地下水表面近くの岩盤上にまで達しているPuの鉛直分布は、地表近傍で生成された天然有機キレート剤によって形成された可能性が高いことが推測される。

VI. まとめ

天然の溶存有機物がキレート剤としてPuと結合し溶解度が上昇し土壌などへの分配係数が減少することがフォールアウトPuの調査から数多く報告されている。これらの報告と今回の長崎での調査結果とを合わせて検討すると、有機物が多量に存在する地表（湖底）近傍ではキレート化し移動性の高いPuが、少なからず造られる可能性が高いことが示唆される。このように不溶性のフォールアウトPuとは、化学的な挙動の異なる移動性の高いPuが生成される割合は、フォールアウトPuの置かれた環境条件によって大きく異なるようである。ちなみに長崎の調査結果からは、このようなPuは、底質環境、土壌環境、樹木の中では総Puの10%、3%、1%程度含まれるようである（Fig. 14 参照）。

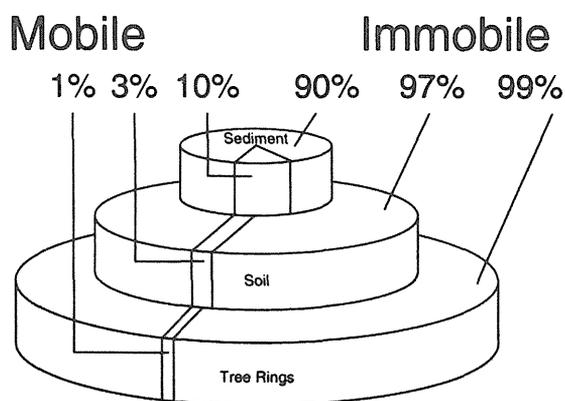


Fig. 14 Mobility of plutonium in the environment (soil, sediments and tree rings)

参考文献

- 1) Mahara, Y., (1993) Storage and Migration of Fallout Strontium-90 and Cesium-137 for Over 40 Years in the Surface Soil of Nagasaki, *J. Environ. Qual.* 22, 722-930.
- 2) Mahara, Y., and Miyahara, S., (1984) Residual Plutonium Migration in Soil of Nagasaki, *J. Geophys. Res.*, 89 (B9), 7931-7936.
- 3) Kudo, A., Mahara, Y., Kauri, T. and Santry, D. C., (1991) Fate of Plutonium Released from the Nagasaki A-Bomb, Japan, *Wat. Sci. Tech.*, 23, 291-300.
- 4) Mahara, Y., Kudo, A., Kauri, T., Santry, D. C., and Miyahara, S., (1988) Mobile Pu in Reservoir Sediments of Nagasaki, Japan, *Health Phys.*, 54, 107-111.
- 5) Mahara, Y., and Matsuzuru, H., (1989) Mobile and Immobile Plutonium in a Groundwater Environment, *Water Res.*, 23, 43-50.
- 6) Kudo, A., Suzuki, T., Santry, D. C., Mahara, Y. and Garrec, J. P., Effectiveness of Tree Rings for Recording Pu History at Nagasaki, Japan, *J. Environ. Radioactivity*, 21, 55-63.
- 7) Garrec, J-P., Suzuki, T., Mahara, Y., Santry, D. C., Miyahara, S., Sugahara, M., Zheng, J. and Kudo, A., (1995) Plutonium in Tree Rings from France and Japan, *Appl. Radiat. Isot.*, 46, 1271-1278.
- 8) Kudo, A., Mahara, Y., Santry, D.C., Suzuki, T., Miyahara, S., Sugahara, M., Zheng, J., and Garrec, P. J., (1995) Plutonium Mass Balance Released from Nagasaki A-Bomb and the Applicability for Future Environmental Research, *Appl. Radiat. Isot.*, 46, 1089-1098.
- 9) Kudo, A., Koerner, R. M., Fisher, D. A., Bougeois, J., Santry, D. C., Mahara, Y., and Sugahara, M. (1995) Plutonium from Nagasaki A-bomb as a Possible Tracer for Global Transport, Using Existing Initial Conditions and Ice Cores, *NATO ASI Series, Vol. I 30, Ice Studies of Global Biogeochemical Cycles*

(ed. by Robert J. Delmas), Springer-Verlag Berlin Heidelberg.

- 10) Harley, J. H., (ed.) (1972) Health and Safety Laboratory Procedures Manual. Rep. HASL-300 U. S. Energy Res. and Dev. Admin., New York.
- 11) Nelson, D. M. and Lovett, M. B., (1978) Oxidation States of Plutonium in the Irish Sea, *Nature* 276, 599-601.
- 12) Killey, R. W. D. (1982) long-Term Strontium-90 Behavior in a Sand Aquifer, p.811, *In Environmental Migration of Long-lived Radionuclides*, IAEA, Vienna.
- 13) Mahara, Y. and Kudo, A., (1995) Plutonium Released by the Nagasaki A-Bomb : Mobility in the Environment, *Appl. Radiat. Isot.*, Vol.46, 1191-1201.
- 14) Nelson, D. M., Penrose, W. R., Karttunen, J. O. and Mahlhauff, P. (1985) Effects of Dissolved Organic Carbon on the Adsorption Properties of Plutonium in Natural Waters, *Environ. Sci. Technol.*, 19, 127-131.
- 15) Wahlgren, M. A. and Orlandini, K. A. (1982) Comparison of the Geochemical Behaviour of Plutonium, Thorium and Uranium in Selected North American Lakes, pp.757-774, *In Environmental Migration of Long-lived Radionuclides*, IAEA, Vienna.
- 16) Bulman, R. A., Wedgwood, A. J. and Szabo, G., (1992) Investigations into the chemical Forms of ^{239}Pu in a West Cumbrian Saltmarsh Soil Radiolabelled by an Environmental Process, *Sci. Total Environ.*, 114, 215-226.
- 17) Baston, G. M. N., Berry, J. A., Bond, K. A., Boulton, K. A., Brownsword, M., and Linklater, C. M., (1993) Effects of Cellulosic Degradation Products on Actinide Sorption on Geological Materials, *Proc. Migration 93*, Charleston, South Carolina, USA, December.
- 18) Tiedje, J. M. (1977) Influence of environmental Parameters on EDTA Biodegradation in Soils and Sediments, *J. Environ. Qual.* 6, 21-26.

1. 環境における ^{129}I の挙動

村松 康行

放射線医学総合研究所

Behaviour of ^{129}I in the environment

Yasuyuki Muramatsu

Division of Radioecology

National Institute of Radiological Sciences

3609 Isozaki, Hitachinaka-shi,

Ibaraki, 311-12 Japan

ABSTRACT—Iodine-129 (radiological half-life: 16 million years) is one of the most important long-lived radionuclides released into the environment through nuclear applications. We have carried out several studies on the levels and behaviour of radioactive and stable iodine in the environment to obtain information related to the radiation assessment of nuclear facilities (e.g. nuclear fuel reprocessing plants).

In this paper, we summarize our recent investigations on the following points:

- (1) chemical forms of iodine in the atmosphere,
- (2) deposition of gaseous iodine on plants,
- (3) iodine in soil,
- (4) transfer of iodine from soil to plants,
- (5) volatilization of iodine from the soil-plants system,
- (6) levels of ^{129}I in the environment.

As a topic, determination of ^{129}I in Chernobyl soil for the estimation of ^{131}I levels at the accident is also described.

1. 緒言

ヨウ素-129は半減期が1600万年とヨウ素の放射性同位体の中でいちばん長寿命の核種である。自然界では、U、Thの自発核分裂や大気中のXeと宇宙線の核反応などにより生成されており、安定ヨウ素(^{127}I)との比は水圏で 10^{-14} 程度と推定されている。しかし、核実験や原子力施設に起因して ^{129}I が人工的に生成され、その一部が環境中に放出されたため、現在では ^{129}I の環境レベルは上昇している。NCRP (1983)¹⁾は、核実験により大気中に放出された ^{129}I の総量を約10 Ciと試算している。また、原子力発電に伴い発

生ずる使用済核燃料中に含まれる ^{129}I の量は紀元2000年までに世界全体で3700 Ciに達すると推定される。そのうち0.5%に当たる約7.4 Ciが再処理の過程で大気中に放出されるとNCRPは予測している。

ヨウ素は必須元素であり、甲状腺の機能に重要な役割を果たしている。もしも、放射性ヨウ素を体内に取り込んだ場合、甲状腺に濃縮される。そのため、放射性ヨウ素の環境中における挙動と人への移行経路を調べることは、再処理施設から放出される核種の環境安全を評価する上で重要である。特に、 ^{129}I は長半減期核種であるため長期的な視点から環境中で挙動を評価する必要がある。しかし、ヨウ素は種々の化学形をとるため、環境中での挙動は複雑であり、知見が充分得られているとは言えない。

大気中におけるヨウ素の主な化学形は、分子状ヨウ素 (I_2) とヨウ化メチル (CH_3I) であり、その他にも、HOI やダスト等に吸着した粒子状も存在する^{2,3)}。水に溶けた状態としては、ヨウ化物イオン (I^-) とヨウ素酸イオン (IO_3^-) が主であるが、有機物に吸着した形態が存在するという報告もある。ヨウ素の挙動を考える場合、これらの化学形態別に取り扱う必要がある。 ^{129}I は長寿命核種であることから、一旦環境に入った場合、安定ヨウ素 (^{127}I) と挙動を伴いすると考えられる。そのため、安定ヨウ素の生物地球化学的データは、 ^{129}I の環境挙動を予測する上でも重要である。ここでは、 ^{129}I の環境中での分布と挙動について、筆者らが行った研究成果を中心に以下の項目について述べる。

- ・大気中での化学形^{3,4,5)}
- ・大気から植物への沈着^{6,7,8)}
- ・土壌中における挙動^{9,10,11)}
- ・土壌-植物移行係数^{12,13,14,15)}
- ・土壌-植物系からの揮散¹⁶⁾
- ・環境における ^{129}I のレベル^{17,18,19)}

また、再処理施設等に起因する環境安全評価とは直接関係はないが、 ^{129}I を用いたチェルノブイリ事故時の ^{131}I レベルの推定についてもトピックスとして簡単に紹介する。

2. 大気中での化学形

大気中での ^{129}I の挙動を考える場合、安定ヨウ素の濃度と化学形を考慮する必要がある。大気中での安定ヨウ素の供給源は海洋である。海水におけるヨウ素の化学形は、物理化学的に見ると IO_3^- が安定であるが、表面海水では生物作用により一部が I^- に変化している。Miyake & Tsunogai(1963)²⁰⁾は、表面海水中の I^- が紫外線的作用により酸化され I_2 となり大気中に揮散すると推定した。しかし、最近の説では、この酸化作用よりも、海水中の微生物や藻類的作用によりヨウ素が有機化され、ヨウ化メチル (CH_3I) として大気中に放出される経路が主と考えられるようになった (Rasmussen 他 1982)²¹⁾。また、Yoshida & Muramatsu(1995)⁴⁾がひたちなか市と東海村で採取した大気中のヨウ素の濃度と化学形を調べた結果からも、有機ヨウ素の占める割合が約70%以上であり、無機ヨウ素 (I_2 , HOI) や粒子状ヨウ素 (ダストに付着したもの) よりもはるかに多かった (詳しくは Table-1 にひたちなか市の例を示す)。濃度的には、これら3つの化学形の合計は約 $20\text{ng}/\text{m}^3$ であった。

^{129}I の大気中の化学形態に関する詳しいデータは見当ない。使用済み核燃料中に存在する ^{129}I は無機形が主であると考えられるが、大気中に放出される割合は、有機ヨウ素が排気フィルター (トラップ) で完全に除去されにくいため有機形のほうが多いと推定される。また、 I_2 など無機形のヨウ素は大気に出るとダストなどに吸着されたり、雨水に溶け込むため、相対的に減少すると考えられる。一方では、有機

Table-1 Concentrations of iodine in the air collected in Tokai-mura.

Iodine species	Iodine concentration (ng m ⁻³)	
	Range	Mean
Particulate	0.3-1.7	1.1
Inorganic	1.2-2.8	1.9
Organic	7.9-15.3	10.9
Total	9.7-19.5	14.1

Note: Samples were determined by neutron activation analysis.

ヨウ素は大気中で紫外線の作用で無機ヨウ素に変化する傾向にある。ヨウ化メチルの大気中における滞留時間は、紫外線の強さなどにも関係し、報告値にも幅があり、1～8日という値が出されている。チェルノブイリ事故により放出された¹³¹Iの化学形を見ると、Noguchi & Murata (1988)²²⁾が事故後日本で採取した大気の報告値では、有機形：70%、I₂：5%、HOI：6%、粒子状：19%であった。今まで、大気中のヨウ素としては、I₂だけしか考慮していない場合も少なくなかった。また、大気の放射性ヨウ素のモニタリングでは、エアフィルターのみを用いている例もあり、それだけでは粒子状のヨウ素しか採取できない。上述した安定及び放射性ヨウ素のデータから見ても、大気中のヨウ素の化学形としては、有機ヨウ素（主としてヨウ化メチル）と無機ヨウ素（I₂やHOI）の異なる形態について評価を行う必要がある。大気中のガス状ヨウ素（化学形態別）がどの程度雨水に溶け込むのか、またその機構（レインアウト、ウォッシュアウトなど）についての知見は非常に少ないので、今後データを集める必要があろう。参考として筆者らが行った雨水中の安定ヨウ素の含有量に関するデータをFig. 1に示す。図には示していないが雨水のI/Cl比は海水に比べてはるかに大きく、ヨウ素が海水から選択的に揮散していることが示唆された。また、雨水中のヨウ素の化学形を調べたところ、チェルノブイリ事故時に日本で採取した雨水中では¹³¹I⁻と¹³¹IO₃⁻の両方のフラクションが存在した²³⁾。雨水中でのI⁻とIO₃⁻の安定性をRIトレーサー実験で調べたところ、時間経過に伴いIO₃⁻がI⁻（又は有機形）に変化することが認められた。

3. 大気から植物への沈着

ガス状ヨウ素の植物への沈着の程度を表すパラメータとして、沈着速度 (Deposition Velocity) が用いられている。沈着速度には単位面積の土地に生育する植物への沈着量で表すV_gと、単位重量当たりで表すV_Dがある。牧草など地表を覆っている植物に関しては、地表の面積当たりで表すV_gが適しているが、葉菜等に関しては栽培密度なども場所により大きく異なることから、V_Dを用いる方が良いと考えられる。また、穀類などはV_Dの他にも粒当たりの沈着速度 (V_s) で表すこともある。Table-2 にそれらをまとめる。

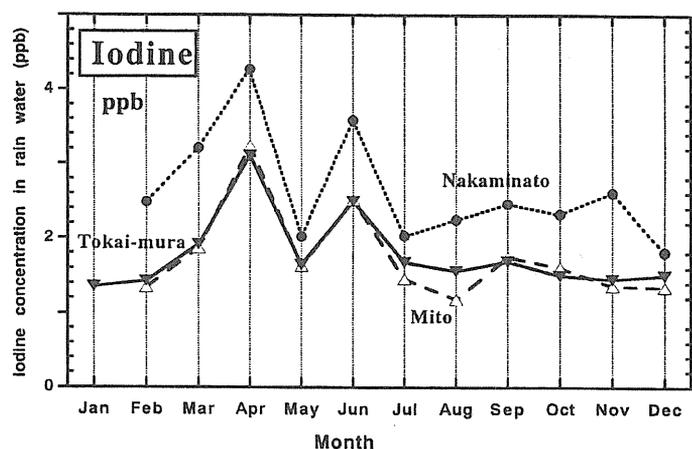


Fig. 1 Concentrations of iodine in rain water samples collected every month during 1993 at 3 different places in Ibaraki. (Distance from the sea: Nakaminato; 0.05km, Tokai-mura; 1km and Mito; 15km)

Table-2 Definition of deposition velocities (V_D , V_S and V_G) used in this study.

$$V_G (\text{cm s}^{-1}) = \frac{\text{Amount of iodine deposited on plant grown per unit area of ground}}{\text{Iodine concentration in air} \times \text{exposure time}}$$

$$V_D (\text{cm}^3\text{g}^{-1} \text{s}^{-1}) = \frac{\text{Amount of iodine deposited on unit weight of plant}}{\text{Iodine concentration in air} \times \text{exposure time}}$$

$$V_S (\text{cm}^3(100\text{grains})^{-1}\text{s}^{-1}) = \frac{\text{Amount of iodine deposited on unit grain number}}{\text{Iodine concentration in air} \times \text{exposure time}}$$

V_G , V_D , V_S は栽培密度や粒当たりの重量を加味することにより変換できる。

欧米では、放射性ヨウ素の汚染経路として、大気→牧草→ミルク→人が重要視されており、牧草への沈着速度に関するデータが多く出されている^{25,26)}。しかし、我が国の場合は、欧米に比べ乳製品の摂取量が少ないため、牧草ではなく、米や野菜類の農作物からの経路が重要である。¹³¹I (半減期：8日) による汚染の場合、米は保存がきくため半減期の短い¹³¹I は数カ月放置すれば減少してしまう。そのため、米へのヨウ素の沈着速度に関するデータを取る必要はなかった。しかし、¹²⁹I に関しては半減期が長いいため保存することによる減少は期待できない。また、我が国の場合米の摂取量が多いため、米からの寄与を把握しておくことが大切である。

そこで、筆者らは、 CH_3I 及び I_2 の水稲への沈着速度を放医研那珂湊支所にあるヨウ素チェンバーを用いて調べた。その結果を Table-3 に示す^{6,8)}。この表から見ると、単位重量当たりの水稲の籾への沈着

Table-3 Deposition velocities (V_D , V_S and V_G) for CH_3I and I_2 to rough rice during the fruiting stage (mean value).

Chemical species	V_D $\text{cm}^3\text{g}^{-1} \text{s}^{-1}$	V_S $\text{cm}^3(100 \text{ grains s})^{-1}$	V_G cm s^{-1}
CH_3I	0.00048	0.00090	2.7×10^{-5}
I_2	0.15	0.44	8.7×10^{-3}

速度 (V_D) は、 $\text{CH}_3\text{I}(0.005\text{cm}^3\text{g}^{-1}\text{s}^{-1})$ の方が $\text{I}_2 (0.15\text{cm}^3\text{g}^{-1} \text{s}^{-1})$ に比べてはるかに小さいことが分かる。つまり、ヨウ素の化学形の違いにより水稲の籾に沈着する量が大きく異なり、 I_2 のほうが CH_3I よりも数百倍沈着し易い。Nakamura & Ohmomo^{27,28)} によると、ハウレン草など葉菜の場合も、 I_2 のほうが CH_3I よりも2桁ほど沈着速度が大きい (Table-4)。

次に、籾内での分布を Table-5 に示す。 I_2 で曝露した場合、沈着したヨウ素のわずか2%程度が白米に存在し、ほとんどが籾殻に付着していることが分かった⁶⁾。一方、 CH_3I の場合は、平均38%が白米に

Table-4 Deposition velocities of I_2 CH_3I for spinach.^{24,25)}

Iodine species	$V_D (\text{cm}^3\text{g}^{-1} \text{s}^{-1})$	$V_G (\text{cm s}^{-1})$
CH_3I	0.01	0.0017
I_2	0.93	0.15

Table-5 Distribution ratio of iodine in rice grains exposed to CH₃I and I₂ during the fruting stage (mean value).

Chemical species	Distribution ratio of iodine in rice grains		
	Rough rice	Brown rice	Polished rice
CH ₃ I	1.0	0.49	0.38
I ₂	1.0	0.05	0.02
Weight ratio	1.0	0.82	0.72

存在していた⁸⁾。白米に入る割合は、曝露時期によっても異なり、湖熟期の後半の方がそれ以前よりも大きいことが認められた。これは、籾が熟して乾いてくると表面にヒビが入り、中に浸透する割合が大きくなることに原因すると考える。

以上のことから、水稻の籾でも葉菜においても沈着速度は I₂ の方が CH₃I よりも 2 桁またはそれ以上大きいことが明らかである。籾については、可食部である白米まで浸透する割合がヨウ素の化学形によって大きく異なり、白米に入る割合は、沈着速度とは逆に、CH₃I の方が I₂ よりも 20 倍近く大きいことが分かった。大気中でのヨウ素の化学形態を把握しておくことが、植物への沈着量を精度良く推定する上でも大切である。

4. 土壌中における挙動

土壌は、母材となる地殻の岩石が風化作用を受け、さらに生物の活動により生成された有機物が加わり出て来たと考えられる。母材である岩石中のヨウ素濃度は通常 0.1ppm 以下と低い。筆者らが放射化分析法により土壌中のヨウ素を定量した結果を Table-6 に示す。これより水田土のヨウ素濃度が畑土や森林土に比べ顕著に低いことが分かるが、この理由については後で述べる。一方、畑土や森林土では母材となる岩石の値 (0.1ppm 以下) より 2 桁以上高いことが分かる。これは、土壌がその生成過程でヨウ素を濃縮してきたと考える。また、岩石が風化し土壌ができて行くに従いヨウ素が濃縮することを示す例として、Table-7 に富士の裾野の青木ヶ原で採取した試料の分析結果を示す。青木ヶ原は約 1000 年前に富士

Table-6 Concentration of iodine in soil collected in Japan (mg/kg).

Soil type	Concentration range	Mean value
Forest soil	8.3 - 49	29
Field soil	6.7 - 59	27
Rice paddy soil	1.0 - 9.6	5

Table-7 Concentration of iodine in soil and lava samples collected from Aokigahara forest, Yamanashi Prefecture.

Samples	mg kg ⁻¹
Parent rock	<0.1
Lava (inner part, partly weathered)	0.22
Lava (surface, weathered)	1.1
Soil (on the lava)	8.3

山から流れ出た熔岩の上に植物が生育して森林生態系が形成されてできている。熔岩の表面は風化され、そこに落葉等がまざり不均一であるが土壌ができている。ヨウ素濃度は、母岩<熔岩（一部風化）<風化が進んだ熔岩<土壌の順に大きくなることが認められる。

Bowen は土壌中のヨウ素濃度の平均的な値として 5 ppm を報告している。これは、主として欧米のデータをまとめたものである。日本の値が Table-6 で示すように Bowen の値より高い理由として、①日本の土壌（主として火山灰土壌）がヨウ素を吸着し易いこと、②日本の大気中のヨウ素濃度は海に囲まれているため高いこと、③降水量が多いためヨウ素の降下量が大きいこと、の3つが主であると考えられる。このように、土壌中にヨウ素が蓄積し易いことは ^{129}I の土壌環境における挙動を予測する上で考慮しなければならない重要な点である。

土壌中でのヨウ素の移行のし易さ、つまり吸着の程度は土壌-溶液分配係数 (distribution coefficient, Kd) で表すことができる。この Kd(L/kg) は、「土壌中の核種濃度」を「土壌溶液中の核種濃度」で割った値である。ヨウ素の Kd を、バッチ実験法により I^- と IO_3^- の2つの化学形について調べた¹⁰⁾。その結果を Table-8 に示す。畑土（黒ボク土）は、 I^- 及び IO_3^- 共に Kd 値が7000以上と特に高く、ヨウ素に対する吸着力が大きいことが分かる。水田土（灰色低地土）の Kd は黒ボク土の値よりも低い。砂質土や粘土鉱物の値はさらに小さく、これらに対するヨウ素の吸着は少ないと言える。ただし、 IO_3^- に対する酸化鉄の Kd は520と比較的大きい傾向にあった。黒ボク土が非常に高い Kd 値を示す理由としては、黒ボク土中に多く含まれる遊離したアルミや鉄及びそれらと有機物との化合物が関係していると推定される。黒ボク土に含まれる代表的な鉱物であるアロフェンへの吸着は、 IO_3^- は高いが、 I^- はそれほど高くなかった。吸着に及ぼす pH の影響を調べたところ、pH が低いほうが吸着し易いことが認められた。

土壌を前処理として、オートクレーブにかけたり加熱すると、 I^- の Kd は大きく減少する現象が見られた。このことから、吸着に熱を加えることにより変化するもの、つまり、土壌中の微生物やそれらが出した酵素などが関与している可能性もある。

黒ボク土は火山灰を母材とした有機物に富んだ土壌で、我が国の畑地に占める割合が一番大きい。上に述べたように、ヨウ素 (I^- 及び IO_3^-) に対し高い吸着力を示すことから、雨水等降下物により土壌表面に加わったヨウ素は安定・放射性同位体を問わず表層土壌に保持され易いと考えられる。

雨水を通じて土壌に加わるヨウ素の量を以下の通り推定した。筆者等の雨水の分析結果（茨城における1年間の平均）よりヨウ素濃度は雨水で 1.8ppb、それに年間降水量1400mm（水戸における値）を掛け合わせると、地表 1 cm² 当たりの年間のヨウ素の湿性沈着量は約250ngとなる。表層土壌へのヨウ素の沈着

Table-8 Distribution coefficient (K_d) for soil and related materials.

	$K_d(\text{ml g}^{-1})$	
	I^-	IO_3^-
Andosol (wheat field)	7500	7000
Gray lowland soil (paddy field)	560	430
Sandy soil	35	32
Kaolinite	0.5	0.7
Al_2O_3	0.2	<0.1
Fe_2O_3	47	520

経路としてはこのほかに、ガス状ヨウ素が植物に乾性沈着して、それが土壌に加わる経路が考えられる。黒ボク土の生成過程で、ススキの草原ができ有機物が蓄積したと考えて、前述した大気中のヨウ素濃度 ($I_2 : 2.7 \times 10^{-6} \text{ngcm}^{-3}$ 、 $\text{CH}_3\text{I} : 14 \times 10^{-6} \text{ng/cm}^3$)、ススキについて推定した沈着速度 (稲の葉の値から推定すると、 $I_2 : 0.6 \text{cms}^{-1}$ 、 $\text{CH}_3\text{I} : 0.006 \text{cms}^{-1}$)、ススキの生育期間 (5ヶ月) より乾性沈着量を試算したところ約 20ngcm^{-2} となった。この値は、湿性沈着の推定値の約 8% であり、土壌へのヨウ素の蓄積は降水を通じて湿性沈着経路からの寄与のほうが大きいと思われる。ただし、エアロゾルやダストなどに吸着したヨウ素についてはここでは考慮していないが、例えば、森林などトラップ効果がある場合については無視できないと思われる。

5. 土壌－植物移行係数

土壌から農作物への放射性核種 (又は安定元素) の移行を推定するためのパラメータとして最も重要なものは、土壌－植物移行係数 (Transfer Factor: TF) である。これは、植物中の放射性核種 (又は安定元素) の濃度を土壌中の濃度で割った値として定義される。 ^{131}I の場合は、土壌が汚染されたとしても、半減期が短いことからしばらく放置し減衰を待つことができる。 ^{129}I は半減期が非常に長く、また、上述したように土壌に濃縮する傾向があるため、土壌から植物への移行に関するデータを得ることはとても大切である。ヨウ素の移行係数についての情報はそれほど多くない。筆者等は、放医研東海施設のバイオトロンを用いて、 ^{125}I をトレーサーとして土壌に添加し、各種植物への取り込みに関する RI トレーサー実験を行った^{12,13)}。実験に使用した土壌は、黒ボク土である。水稻については、黒ボク土以外にも水田土壌として一般的な灰色低地土も用いた RI トレーサー実験 (水稻の例) の概要を Fig. 2 に示す。

移行係数に関して得られたデータを Table-9 にまとめる。キャベツやコマツ菜などの葉菜の移行係数は 0.01 前後であり¹⁴⁾、IAEA(1982)²⁸⁾ の農作物可食部一般についての値である 0.02 と同程度であった。しかし、米 (白米) への移行係数は 0.002 と 1 桁低かった。我が国の場合農作物に占める米の割合は多いことから、もしも、IAEA の値 (農作物一般に対する) を用いるとすると、過大評価につながる。また、イモ類ではさらに低い値が認められた。このように移行係数値が植物の種類により大きく異なることから、

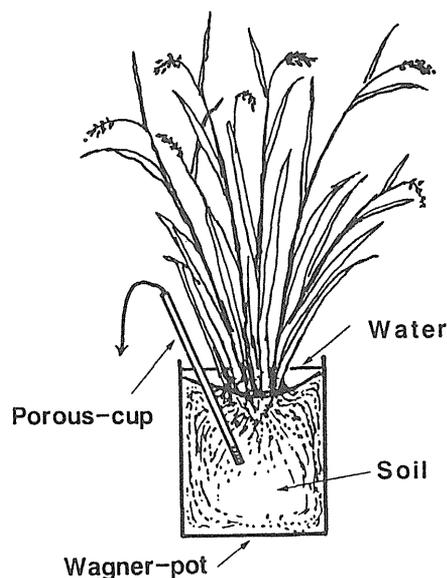


Fig.2 Illustrations of the pot experiment and a rice plant.

Crops	TF
Rice (polished)	0.0019
Spinach	0.0031
Komatsuna	0.016
Tomato	0.0003
Soybeans	0.0029
Carrot	0.001
Sweet potato	0.0002
IAEA recommended	0.02

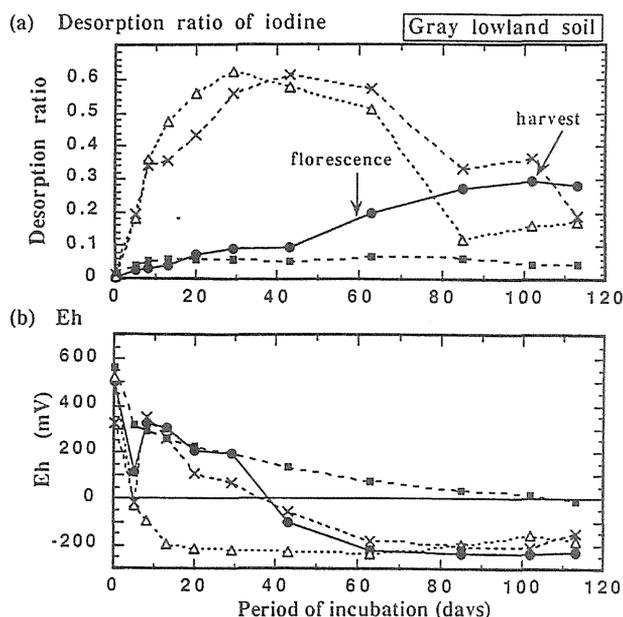


Fig. 3 Temporal changes of (a) desorption ratio of iodine and (b) Eh in Gray lowland soil after waterlogging.

ことが認められた。この土壤溶液中の ^{125}I 濃度の変化は、Eh（酸化還元電位）の低下と関係していることが明らかになった¹⁵⁾。一方、比較として同時に調べた無作付の土壤（稲を植えず水のみ加えた）では、顕著な ^{125}I の濃度の増加は見られなかった。また、イナワラやグルコースなど微生物の栄養となる物質を加えた無作付土壤では、微生物の活動により酸素が消費され酸化還元電位の急激な低下が認められた。Ehの値が下がることが土壤溶液中にヨウ素が溶け出す原因と推定される。これらのことから、湛水状態で稲を植えることで微生物の根圏域の活動が盛んになり、土壤の還元状態が発達し、その結果、土壤に吸着した ^{125}I が溶出すると考えられる。水田土壤では、湛水状態で水稻の栽培を行うことから、土壤中のヨウ素は溶け出し易くなり、そのことが前述した水田土壤中のヨウ素濃度（Table-6）が低い原因になっていると思われる。

放射性ヨウ素の植物への経根吸収は、その化学形態により大きく異なる。水耕栽培により $^{125}\text{I}^-$ と $^{125}\text{IO}_3^-$ のコマツナへの取り込みを見たところ、 I^- の方が IO_3^- の形態に比べて数倍以上取り込まれ易いことが分かった²⁹⁾。また、 I^- について見ると、植物が若い時期のほうが濃縮率は高く、一方、 IO_3^- では植物の生育段階による差はそれほど大きくなかった（Fig. 4）。

6. 土壤-植物系からのヨウ素の揮散

土壤に添加した放射性ヨウ素が植物を通じて大気中に揮散することが認められた^{12,16)}。ポット栽培では、添加した放射性ヨウ素の約8%が栽培期間中に大気中に放出された¹²⁾。土壤に添加した化学形は無機形(I^-)であったが、揮散した形態は有機形に変化していた。さらに詳しい化学形をガスクロマトグラフィ法により調べたところ、主として CH_3I であることが明らかになった¹⁶⁾。揮散量を水稻とオート麦で比べた結果をFig. 5に示す。図から分かるように湛水状態で栽培した水稻からの揮散のほうが畑状態で栽培したオート麦に比べ1桁以上高かった。揮散量は開花期の少し前が特に高い傾向にあった。

また、無作付の土壤からの揮散も認められたが、植物を植えたほうが顕著に高いことが分かった。無作

農作物の可食部の種類などごとの値を設定することが、精度の高い安全評価を行う上で必要であろう。また、土壤の種類も移行係数を左右する重要なファクターの一つである。黒ボク土は前に述べたように、ヨウ素に対する吸着力が高いため、畑植物への移行係数は灰色低地土などに比べて小さい傾向にある。しかし、水田においては、還元作用が関係するため両者の土壤では大きな差はなかった。

土壤から植物への元素の取り込みは、土壤溶液中の濃度と関係すると考えられる。水稻を栽培する過程での土壤溶液中の放射性ヨウ素濃度の変化を調べた（Fig. 3）。その結果、栽培初期は、添加したヨウ素のトレーサー（ ^{125}I ）のほとんどが土壤に吸着され、土壤溶液中の濃度は低かった。

しかし、水稻の成長と共に ^{125}I の濃度が増加する

付でも、湛水状態の土壌からのほうが畑状態のものより揮散量は大きかった。CH₃Iの水田における生成過程は次の様に考える。稲の成長と共に、土壌に吸着していたヨウ素(I⁻又はIO₃⁻)が溶け出す。水田のように嫌気性の強いところでは、methyl halide transferase等の酵素の働きによりCH₃Iが作られる。それが、水稲の根で吸収され、茎を通じて大気中に出て行く。CH₃Iの揮散の図(Fig. 5)は、水稲からのメタンの発生

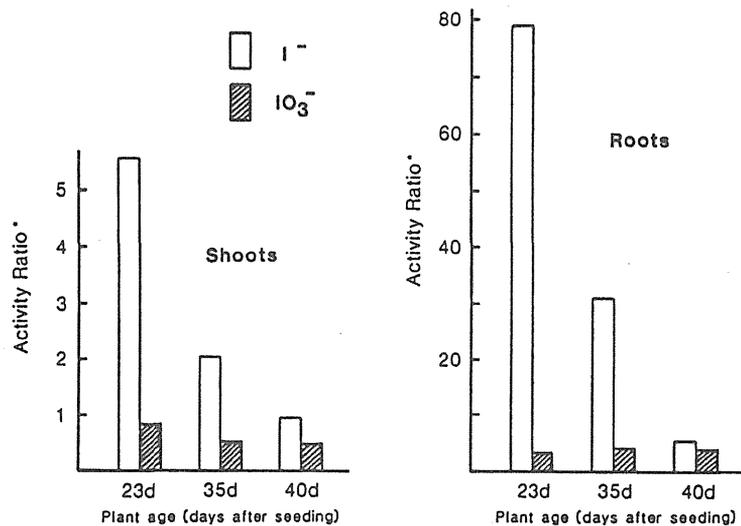


Fig. 4 One day uptake of iodide and iodate by Komatsuna, *Brassica Rapa uar. pervidis*, of different growth stage.

(Note)

*Activity ratio is defined as activity per unit weight of plant sample divided by the activity of the culture solution.

No stable iodine was added to the culture solution as carrier.

のパターンとも似ており、何らかの関係があるかと思われる。ヨウ素の植物からの揮散経路は、今までは殆ど無視されてきた。しかし、水田や湿地帯における放射性ヨウ素の移行を解析・評価する上で無視できないと考える。

7. 環境における¹²⁹Iのレベル

環境試料中での¹²⁹Iの濃度は非常に低いので分析が難しい。筆者らは中性子放射化分析法により、土壌試料を中心に、その他雨水、松葉、海藻等に含まれる¹²⁹Iの定量を行った^{17,18,19}。

東海村及びその周辺で採取した環境試料(合計約50試料)に関して筆者らが分析した結果をFig. 6にまとめる。図には¹²⁹I濃度及び¹²⁹I/¹²⁷I比の範囲を試料の種類ごとに示してある。¹²⁹I濃度は、森林土(松林や杉林の土壌)で高い傾向にあり、水田と畑土で

は同程度であった。森林土が高いのは、森林のフィルター効果のため、大気中に放出された¹²⁹Iが樹冠に沈着し、それが雨水で洗われたり、また落葉することにより森林土壌に加わり、濃度が空地の土より高くなったと考える。松葉でも採取時期や場所によっては土壌と同程度の濃度を示す試料もあった。これら環境試料中の¹²⁹Iの起源は、大気圏核実験により放出されたものと、再処理施設のスタックから放出されたものの2つが主である。東海村及びその周辺で採取した表層土壌中でのいちばん高い¹²⁹I濃度は、約

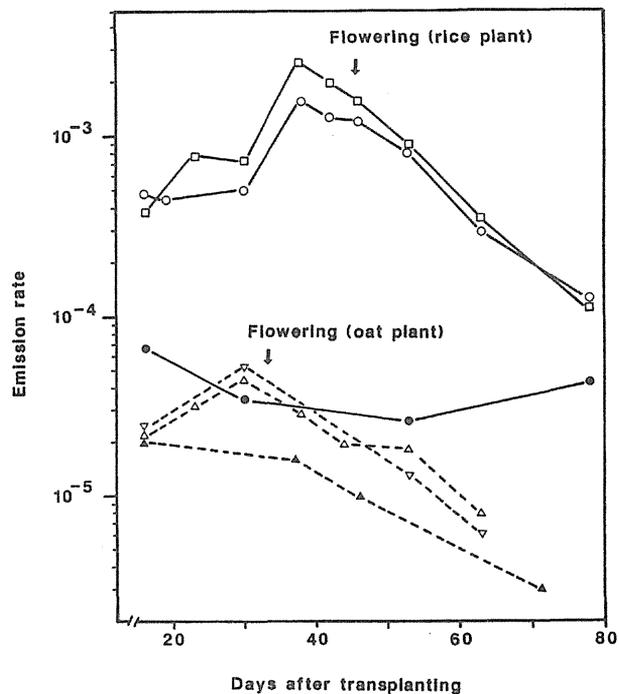


Fig. 5 Variation of organic iodine emission rate with time from rice (○, □) and oats (△, ▽) plants, unplanted flooded soil (●) and unplanted non-flooded soil (▲)¹⁸⁾.

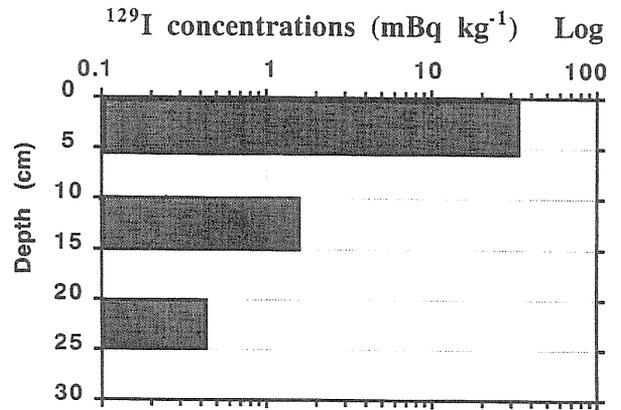
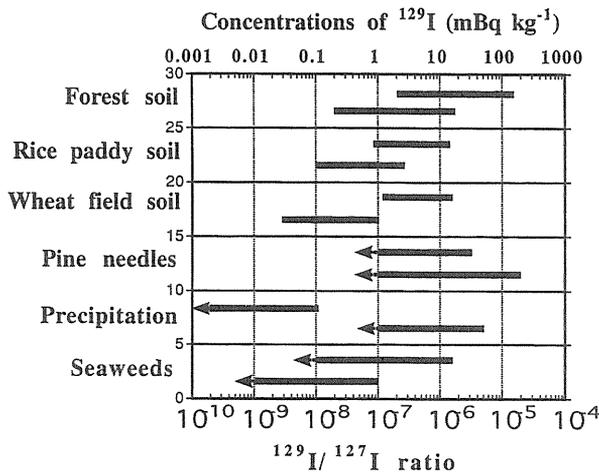


Fig. 6 Levels of ¹²⁹I in environmental samples collected around Tokaimura. Fig. 7 Vertical distribution of ¹²⁹I in soil collected from a small forest in Tokai-mura, Ibaraki.

0.18Bq/kg (乾土)である。この値は他の地域の濃度よりも高い傾向にあるが、¹³⁷Csの我が国の表層土壌の一般的な値(数10Bq/kg)に比べて非常に小さい。土壌中の¹²⁹I及び¹²⁷Iの深度分布を見ると、¹²⁷Iは深さによる差があまりないが、¹²⁹Iは表層土壌(特に0~5cm)に多くが保持されている(Fig. 7)。¹²⁹I/¹²⁷I比を見ると、松葉と雨水で特に高い傾向にあった。それは、¹²⁹Iは大気中に放出されるが、そこでの安定ヨウ素(¹²⁷I)の濃度が低いため¹²⁹I/¹²⁷I比は高くなる一方、土壌など安定ヨウ素濃度が高い試料では、¹²⁹Iの濃度がある程度高くても¹²⁹I/¹²⁷I比は低くなる。

海藻中の¹²⁹Iが全て海水から供給されると考えると、海藻の種類に関係なく¹²⁹I/¹²⁷I比はほぼ同じと考えられる。海水中の¹²⁷I濃度は約50ppbと高いため、¹²⁹I/¹²⁷I比は極低い(10⁻¹⁰以下)と推定される。しかし、分析結果から、海藻の種類により大きな差があることが分かった。¹²⁹I/¹²⁷I比が高い傾向にあったのはフノリであり、次にヒジキであった。ワカメでは検出限界以下(<10⁻⁹)であった。フノリとヒジキは海岸の岩場の潮間帯に育成する。つまり、引き潮の時には長時間大気にさらされている。特に、フノリは潮間帯の上部に育成するため大気との接触時間は長い。これらのことから考えると、潮間帯に育成する海藻については、海洋からだけではなくガス状放射性ヨウ素の大気からの直接沈着経路も無視できないであろう。

米についても¹²⁹Iの分析を試みたが、濃度が非常に低いため検出できなかった。RIを用いたトレーサー実験で求めた、土壌-植物移行係数(0.0019)と水田土壌中の¹²⁹Iの濃度(東海における分析値:13mBq/kg)から計算すると、0.02mBq/Kg程度と非常に低いレベルであることが推定された。

8. チェルノブイリ試料中の¹²⁹I

チェルノブイリ事故により、環境中に放出された放射性核種の総量(希ガスを除く)はUNSCEAR²⁸⁾によると1~2×10¹⁸Bqであり、そのうち¹³¹Iは2.6×10¹⁷Bqと推定されている。事故後、ベラルーシなどでは小児の甲状腺腫が増加しているという報告があり³¹⁾、¹³¹Iが原因となっている可能性が指摘されている。しかし、旧ソ連各地における事故直後の¹³¹Iの信頼できるデータは少なく、被曝線量と疾病との因果関係は明らかになっていない。¹³¹Iは半減期が短いため事故後数ヶ月が経ってしまえば測定は不可能である。事故により、¹²⁹Iも少量ではあるが放出されており、UNSCEA²⁸⁾によるとその量は約3×10¹⁰Bqであるとされている。そこで、¹²⁹Iの土壌中におけるレベルを測定することにより、¹³¹Iにより

Table-10 ^{129}I concentration and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio in a Chernobyl soil sample (IAEA Soil-375) and those of background values obtained in Japan

	(mBq kg ⁻¹)	(ratio)
Chernobyl soil (IAEA Soil-375)	1.6	17 x 10 ⁻⁸
Control soil samples (Japan)		
Tokyo	0.78	0.6 x 10 ⁻⁸
Nagoya	0.13	0.7 x 10 ⁻⁸
Nagasaki	0.13	0.16 x 10 ⁻⁸

汚染を受けた場所かどうかを推定することが可能である。この研究は、海外でも始まったばかりであり、現時点では、結果はまだ殆ど出ていない。筆者らが、IAEA が採取したチェルノブイリの汚染土を分析した結果を Table-10 に示す¹⁹⁾。また同表には、 ^{129}I の日本のバックグラウンド値も同時に示してある。これらの分析値を見るとチェルノブイリの土壌中の ^{129}I (又は $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比) は高い傾向にあるようだ。しかし、核実験により地表に加わった ^{129}I も存在するので、事故当時の ^{131}I による汚染の推測を行うためには、さらに分析データを増す必要がある。

9. おわりに

ここでは、長寿命核種である ^{129}I の環境中における挙動及びそのメカニズムを明らかにするために、 ^{129}I と安定ヨウ素である ^{127}I の環境中でのレベル、並びに、RI トレーサー実験に関する筆者らの研究成果を中心にまとめた。

化学形の違いにより、大気から植物への沈着速度、土壌への吸着、植物への移行が大きく異なることが認められた。ヨウ素の環境中での化学形の変化やそのメカニズムに関して不明な点も多いので、今後さらに明らかにしていくことが必要であろう。

最初に述べたが、 ^{129}I は長寿命核種であるため、長期的に見ると環境中では安定ヨウ素と同様な挙動をとると考えられる。そのため、 ^{129}I の安全評価を行う場合、放射性ヨウ素だけでなく安定ヨウ素についての生物地球化学的データもさらに蓄積していくことが望まれる。

参考文献

- 1) NCRP, Iodine-129: Evaluation of releases from unclear power generation. NCRP Report No. 75, National Council on Radiation Protection and Measurement, Bethesda (1983).
- 2) D. C. Whitehead: Environmental International, 10, 321-339 (1984).
- 3) 村松康行: ヨウ素「大気の化学」、季刊化学総説、日本化学会編(東京)、学会出版センター、116-122 (1990).
- 4) S. Yoshida and Y. Muramatsu: J. Radioanal. Nucl. Chem. Art., 196, 293-300 (1995).
- 5) Y. Muramatsu and S. Yoshida: Proceedings of Winter Conference on Plasma Spectrochemistry, Fort Lauderdale, Florida, in press (1996).
- 6) S. Uchida, Y. Muramatsu, M. Sumiya, Y. Ohmomo, S. Yamaguchi, H. Obata and M. Umebayashi: Health Phys., 55, 779-782 (1988).

- 7) S. Uchida, Y. Muramatsu, M. Sumiya and Y. Ohmomo: *Health Phys.*, 60, 675–679 (1991).
- 8) Y. Muramatsu, S. Uchida, M. Sumiya and Y. Ohmomo: *Health Phys.*, 71, 759–764 (1996).
- 9) Y. Muramatsu and S. Yoshida: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles*, 169, 73–80 (1993).
- 10) Y. Muramatsu, S. Uchida, P. Sriyotha and K. Sriyotha: *Water, Air and Soil Pollution* 49, 225–138 (1990).
- 11) S. Yoshida, Y. Muramatsu and S. Uchida: *Water, Air, and Soil Pollution*, 63, 321–329 (1992).
- 12) Y. Muramatsu, S. Uchida, M. Sumiya, Y. Ohmomo and H. Obata: *Water, Air and Soil Pollution* 45, 157–171 (1989).
- 13) Y. Muramatsu, S. Uchida and Y. Ohmomo: *J. Radiation Research*, 34, 214–220 (1993).
- 14) Y. Muramatsu, S. Yoshida and T. Ban-nai: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.* 194, 303–310 (1995).
- 15) Y. Muramatsu, S. Yoshida, S. Uchida and A. Hasebe: *Water, Air and Soil Pollution*, 86, 359–371 (1996).
- 16) Y. Muramatsu and S. Yoshida: *Atmospheric Environment*, 29, 21–25 (1995).
- 17) Y. Muramatsu and Y. Ohmomo: *Sci. Tot. Environ.*, 48, 33–43 (1986).
- 18) Y. Muramatsu, S. Uchida and Y. Ohmomo: *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, 138, 377–384 (1990).
- 19) Y. Muramatsu, S. Yoshida and T. Ban-nai: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.* 194, 303–310 (1995).
- 20) Y. Miyake and S. Tsunogai: *J. Geophys. Res.*, 68, 3989–3993 (1963).
- 21) R. A. Rasmussen, M. A. K. Khalil, R. Gunawardena and S. D. Hoyt: *J. Geophys. Res.*, 87, 3086–3090 (1982).
- 22) H. Noguchi and M. Murata: *J. Environ. Radioactivity*, 7, 65–74 (1988).
- 23) Y. Muramatsu, M. Sumiya and Y. Ohmomo: *The Science of the Total Environment*, 67, 149–158 (1987).
- 24) Y. Muramatsu and Y. Ohmomo: *J. Radioanal. Nucl. Chem. Art.*, 124, 123–134 (1988).
- 25) P. J. Barry and A. C. Chamberlain: *Health Phys.*, 9, 1149–1157 (1963).
- 26) F. O. Hoffman: *Health Phys*, 32, 437–441 (1976).
- 27) Y. Nakamura and Y. Ohmomo: *Health Phys.*, 38, 307–314 (1980).
- 28) Y. Nakamura and Y. Ohmomo: *Health Phys.*, 38, 315–320 (1980).
- 29) IAEA: “Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Releases”, IAEA Safety Series No. 57, IAEA, Vienna (1982).
- 30) Y. Muramatsu, D. Christoffers and Y. Ohmomo: *J. Radiation Research*, 24, 326–338 (1983).
- 31) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. Sources, effects and risks of ionizing radiation. United Nations, New York, UNSCEAR 1988 Report, 75 (1988).
- 32) K. Baverstock, B. Egloff, A. Pinchera, C. Ruchti and D. Williams: *Nature*, 359, 21–22 (1992).

2. 土壌中 ^{129}I の分布及び甲状腺中濃度について

関 李 紀

筑波大学化学系

Distribution of ^{129}I in soil and in cattle thyroid gland

Riki Seki

Department of Chemistry, University of Tsukuba

1-1-1 Ten-ou-dai, Tsukuba, Ibaraki 305, Japan

ABSTRACT—Depth profile of ^{129}I in surface soil was measured with some long-lived radionuclides. In the organic rich soil ^{129}I remained in the surface. Distribution ratio of radioiodine in surface soil decreased after heated, irradiated by γ -ray, and fumigated with chloroform. So radioiodine were trapped by the effect of living in the surface soil.

Iodine and ^{129}I in thyroid gland of cattle and human were measured by neutron activation analysis and compared each other. $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio in Japanese thyroid gland are lower than cattle. And also those data of Japanese human thyroid were lower than European.

環境に放出された ^{129}I は大気から直接または降水とともに土壌へ移行し、その後、水や動、植物を経て循環する。土壌はそういった循環サイクルの初期に位置する。また、水や動、植物を食物として摂取することによって、ヒトは ^{129}I を取り込むことになる。また、脊椎動物の甲状腺には甲状腺ホルモンの形で、ヨウ素が濃縮している。そのため、ヒトの体内に取り込まれたヨウ素は甲状腺に濃縮することになる。そこで、土壌中のヨウ素の挙動についての研究と甲状腺の ^{129}I 分析結果を示した。

1. 放射性ヨウ素の土壌中の挙動について

土壌は母岩である岩石の破片や粘土鉱物などの無機物とフミン酸、フルボ酸の有機物、その他に大きくはもぐらやみみずから細菌、酵母などの土壌微生物を含めた生物も存在する複雑な環境である。これまで、土壌中の放射性ヨウ素の挙動については多くの研究があり、どの様な土壌に放射性ヨウ素が保持されるか、どのようにして土壌か他の系に移行するかが議論されてきた。放射性ヨウ素の移行は分配係数または分配比で論ずることができる。土壌を構成する成分のうち、粘土鉱物については粘土表面は電気的に負に帯電しているので、ヨウ化物イオンやヨウ素酸イオンのような陰イオンは電気的に吸着しないこと、同様の理由でフミン酸やフルボ酸のような酸にも吸着しないと考えることができる。

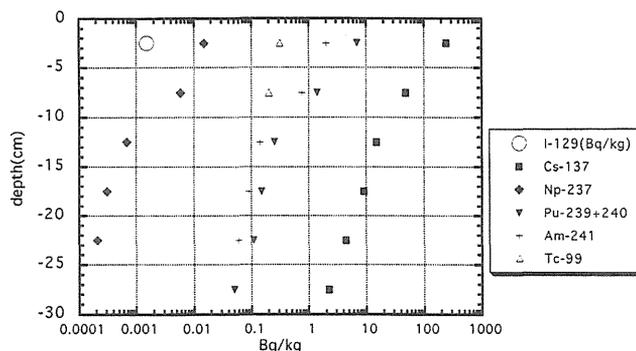


Fig. 1 Depth profile of ^{99}Tc , ^{129}I , ^{137}Cs , ^{237}Np , $^{239+240}\text{Pu}$, ^{241}Am in Oketsu surface soil in Fukui Pref. in Japan.

Table-1 Depth profile of iodine in surface soil collected in Okuetsu, Fukui Pref. in Japan.

depth (cm)	iodine (mg/kg)	^{129}I (mBq/kg)	$^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$
dead leaves	15	2.2	2.2×10^{-8}
0-5	18	1.9	1.7×10^{-8}
5-10	18	—	—
10-15	16	—	—
15-20	27	—	—
20-25	26	—	—
25-30	23	—	—

Table-2 Distribution ratio of iodine for surface soil collected in Okuetsu, Fukui Pref. after treatment.

treatment	D(ml/g)
frozen	62
hold in 4°C	300
air dried	71
dried at 110°C	24
heated at 400°C	0.28
γ -ray 10K Gy	42
γ -ray 25K Gy	30
γ -ray 50K Gy	43
fumigated for 1h	72
fumigated for 7h	71
fumigated for 24h	64
sterilized in autoclave	6.4

を求めるときには風乾土壌を用いるのが常であるが、採取した土壌の状態を保つように冷蔵保存した方がヨウ素をよく吸着する。風乾土壌では γ 線照射したものやクロロホルムで燻蒸した場合とほぼ同じ程度であった。燻蒸や γ 線照射は殺菌効果があり、この処理でヨウ素の吸着に影響するのは、生物の量、有機物の豊富な土壌でヨウ素が下方に移行しないのは、生物の存在によるものと考えられる。

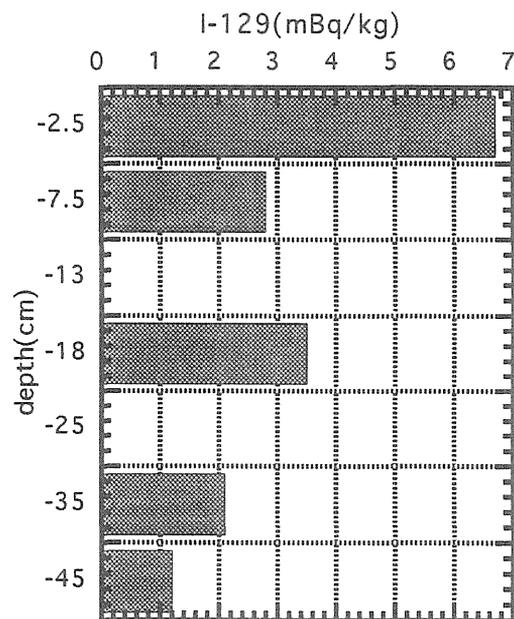


Fig. 2 Depth profile of iodine in surface soil collected in Tokai, Ibaraki Pref. in Japan.

ところが、フォールアウトの多い福井県の奥越高原の表層土壌で、長半減期の放射性核種の下層への移行を調べたところ、環境中で陽イオンの形で存在すると考えられる Am、Pu、Cs などと

もに陰イオンで存在するテクネチウムが下層に移行するのに対し、 ^{129}I は落ち葉など堆積物および表層(0-5cm)にとどまることがわかった。(図1、表1)一方、茨城県の東海村の海岸の砂質土壌では図2に示すように、深さ50cmまで移行していた¹⁾。上記奥越高原の土壌は杉林で採取したもので、表層には落ち葉が降り積もっている状態で、水分が約70%で有機物15%で無機成分の50%以上は細砂であった。東海村の土壌は水分、有機物とも2%以下で残りはほとんど粗砂である。この吸着挙動の違いは水分を含む有機物相にあると予想され、ヨウ素の化学形の考察からは土壌の主成分に対する物理的または化学的吸着でないことを予想させるものである。

そこで、土壌に各種の処理を施し、トレーサー実験によって土壌に対するヨウ素の分配比(ml/g)を求めた。表2に示したように、400°Cで加熱し、粘土鉱物だけとした場合に分配比は小さくほとんど吸着しない。また、通常土壌への吸着分配係数

2. 甲状腺中のヨウ素-129について

脊椎動物の甲状腺には放射性ヨウ素が濃縮していると考えられ、その動物の生息地や食物などの摂取状況を反映するものである。本来、目的とするのはヒトの甲状腺であるが、試料の入手が困難であるため、牛などの家畜の甲状腺を主として分析した。試料は、放射化分析で分析した。まず試料を燃焼し、活性炭に吸着させたヨウ素を日本原子力研究所の JRR-4 の T-パイプで3時間照射し、照射後活性炭から浸出したヨウ素をイオン交換と溶媒抽出などで単離した。原子炉の中性子照射で ^{129}I (n, γ) ^{130}I および ^{127}I ($n, 2n$) ^{126}I 反応でできた ^{130}I (12.36h)、 ^{126}I (13.0d) の γ 線を測定して、 ^{129}I 、 ^{127}I の放射能および $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$ 比を求めた。図3にわれわれの分析した牛とヒトの甲状腺の結果を示した²⁾。横軸に甲状腺あたりの ^{127}I の量、縦軸には ^{129}I の放射能をプロットしたが、45°の直線が $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$ の原子数にあたる。青森と筑波、那須、熊本などで飼育されていたもので、雌、雄、去勢の有無、ホルスタイン、日本短角種などの種類、放牧の有無等の違いはほとんどなく、飼育地の差がわずかにあると考えられる。ヒトの甲状腺では牛に比べて原子数比が小さく、ヒトへの移行はまだ小さい。これは日本人が海草をよく摂取していることから、食性の違いを示すように考えられる。図4に示したようにヨーロッパ1979年から1990年のデータは採取した年によって、 $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$ 比が増加していく傾向がみられた³⁾⁴⁾。同じ著者のチリー(1986)のデータはわれわれの日本の1983年のデータに近く、ヨーロッパよりかなり小さい値であった。

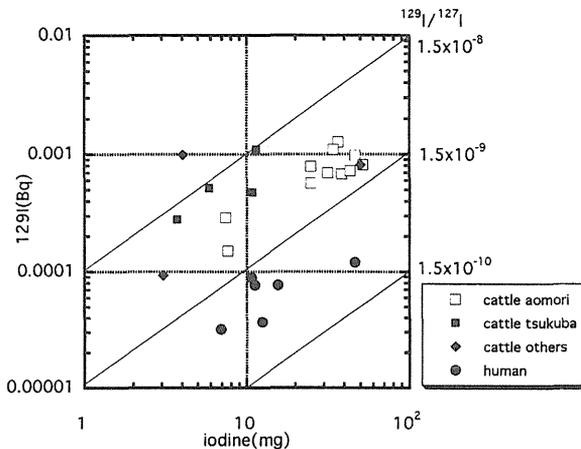


Fig. 3 Iodine and ^{129}I in cattle thyroid gland collected in Aomori Pref., Tsukuba, Ibaraki Pref. and other area in Japan. Human thyroid collected in 1983 in Tokyo.

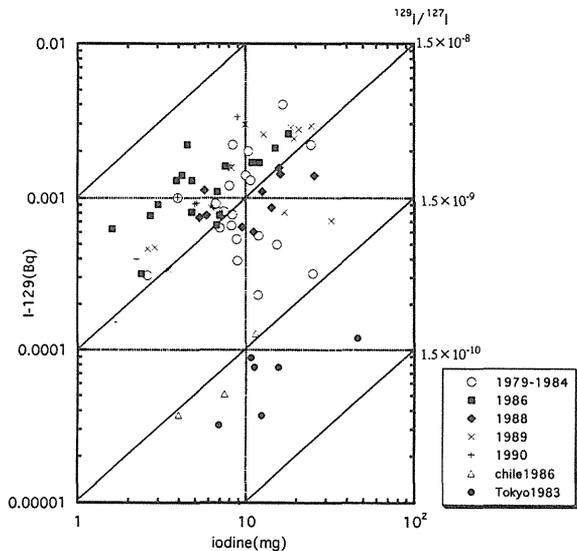


Fig. 4 Iodine and ^{129}I in human thyroid gland of European, Chilean³⁾⁴⁾ and Japanese.

3. 結論

土壌中で放射性ヨウ素は生きている微生物などによって、トラップされる。

牛の甲状腺の $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$ 比は産地によって変化する。

日本人の甲状腺の $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$ 比は牛よりも低く、ヨーロッパのデータと比較するとかなり小さい。これは日本の汚染の程度を示すものであるが、もっとデータを収集する必要がある。

文献

- 1) R. Seki, E. Kimura, T. Takahashi, N. Ikeda: J. Radioanal. Nucl. Chem., 138(1),17–31(1990).
- 2) R. Seki, T. Hatano: J. Radioanal. Nucl. Chem., 182(1), 157–163(1994).
- 3) J. Handl, A. Pfau, F. W. Huth: Health Physics 58(5), 609–618(1990).
- 4) J. Handl, E. Oliver, D. Jakob, K. J. Johanson, and P. Schuller: Health Physics, 65(3), 265–271(1993).

1. 日本沿岸の海洋生態系における⁹⁹Tcの分布と挙動

平野茂樹

放射線医学総合研究所

Distribution of ⁹⁹Tc in The Marine Environment in Japan

Shigeki Hirano

National Institute of Radiological Sciences

Abstract—Concentrations of ⁹⁹Tc were determined in *Sargassum thunbergii* collected from various coasts of the Japanese Islands. The highest was 1.5Bq/kg·raw in the algae collected in Hitachinaka City, Ibaraki Pref. The lowest was 4.5mBq/kg·raw in the sample from Chigura Town, Chiba Pref. Concentration of ⁹⁹Tc in Seawater was not able to determine in most areas except for Hitachinaka City, where ⁹⁹Tc was observed almost continuously. The range of the concentration was from below the detection limit (10mBq/m³) to 140mBq/m³.

1. 諸言

海洋環境に放出される⁹⁹Tcは将来幾つかの点で人間の生活に係りを持つと思われる。その理由の第一には半減期が長い事とウランの核分裂収率が高いため、核燃料サイクルが確立すると共に再処理工場等の事業所に蓄積し、徐々にその量を増すと思われる。また、再処理および燃料に加工する際に低レベル廃液として海洋に放出される事が予想される。第二に、海洋に放出された場合には通常TcO₄⁻イオンとして海水中に安定に存在し、粒子状になったり懸濁物に吸着して沈降する事はほとんど期待されないために表面海水の濃度が徐々に増加する。第三に、海藻に高濃度に濃縮される事が知られており、海藻を食品として消費する日本人にとってはその濃度を常に監視しなければならない。

現在、海水中の⁹⁹Tcレベルは低く、(1mBq/m³程度と思われる)自然放射線に比較して人間に対する影響は無視する事が出来るが、将来もこの状態が続くかどうかはわからない。従って、将来に備えるため主に海藻に含まれる⁹⁹Tcの濃度を測定してその地域的、経時的変動を考察した。

2. 環境試料中の⁹⁹Tcの分析法

環境試料に含まれる⁹⁹Tcの濃度は現在のところ非常に低く、分析に供される放射能濃度は数mBq/kg程度である。また、⁹⁹Tcは0.292MeVのβ-線しか放出しないので低バックグラウンドのβ-線計測機が通常用いられるが、その原子数を直接数える装置、例えば、ICP-MSや質量分析計によっても測定できる。Fig. 1に⁹⁹Tc、²³⁹Pu、²⁴⁰Puおよび²⁴¹Amについて放射能(縦軸)と質量(横軸)の関係をグラ

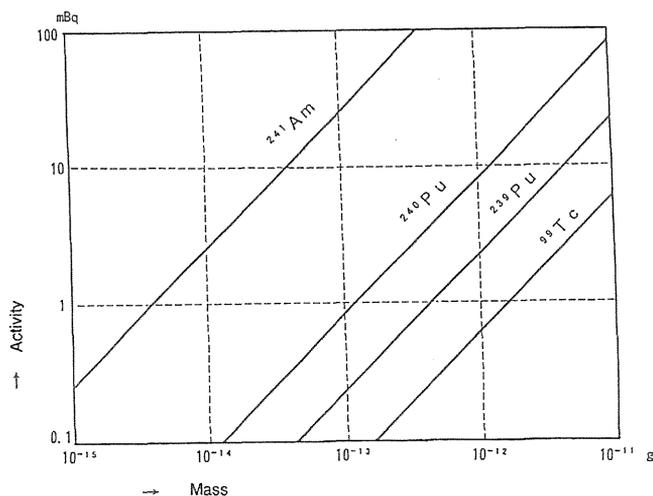


Fig.1 Relation between mass of an isotope and activity

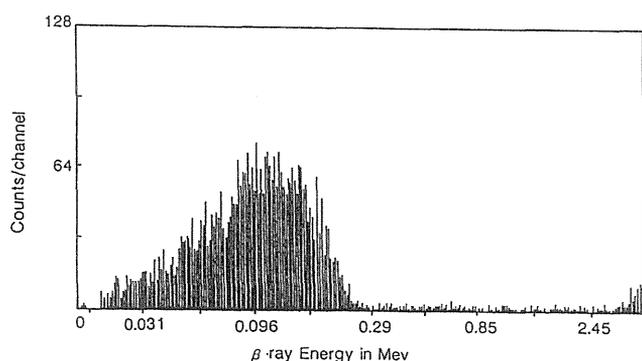


Fig.2 Beta-ray spectrum of ^{99}Tc in *Sargassum thunbergii* collected at Hitachinaka-shi.

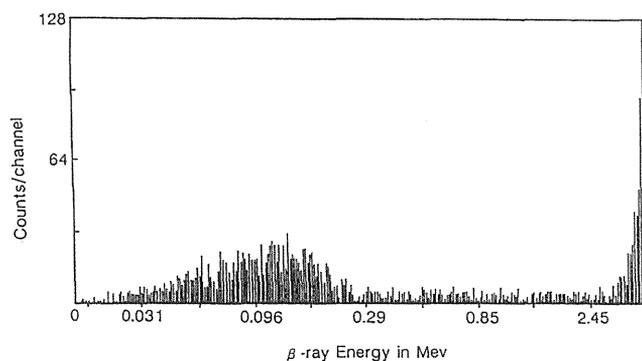


Fig.3 Beta-ray spectrum of ^{99}Tc in *Sargassum thunbergii* collected at Kitaibaraki-shi.

フにして示したが、 ^{99}Tc の場合は数 pg が約 1mBq に相当し、放射能測定と質量分析のいずれも有効に利用できる。

ここでは放射能測定の中の β -線スペクトルを利用した方法について述べる。

生物試料は 110 $^{\circ}\text{C}$ で乾燥し、450 $^{\circ}\text{C}$ で灰化した後に溶媒抽出法^{1,2)}を用いて ^{99}Tc を単離した。単離した ^{99}Tc は硫化第 2 銅に供沈させた後、径 30mm の濾紙に濾集し、乾燥したものをステンレス皿にマウントして β -線計測用の試料とした。

Fig.2 に β -線スペクトルの一例を示した。これはひたちなか市で採取したウミトラノオ、*Sargassum thunbergii* から分離した ^{99}Tc スペクトルで、960 分間計数したものであり、その濃度はほぼ 1Bq/kg 生であった。また Fig.3 には青森県鯉ヶ沢で採取したウミトラオのスペクトルを示した。これは 3,300 分間計測し、濃度は 33mBq/kg 生であった。

海水中の ^{99}Tc は陰イオン交換樹脂に海水を通し前濃縮した後、樹脂を乾燥、灰化した後生物試料と同様に測定試料を調整した。

3. 茨城県沿岸の海藻中の ^{99}Tc 濃度

褐藻類は ^{99}Tc を高濃度に濃縮する事が知られており、大洗町、ひたちなか市、日立市および北茨城市沿岸にはアラメ、*Eisenia bicyclis*, の群落が見られる。この種は通年生育しており ^{99}Tc の環境レベルを知るためには重要な海藻である。その他にヒジキ、*Hijikia fusiforme*, ネジモク、*Sargassum Sagamianum*, イワヒゲ、*Myelophycus simplex*, 等の褐藻類が初冬から初夏の頃に生育している。

^{99}Tc の濃度について見るとウミトラノオ>ヒジキ>ネジモク、イワヒゲ>アラメの順である事が知られたのでウミトラノオを重点的に、また継続して測定した。1988 年から 1995 年に北茨城市で得られた値を表 1 に、またひたちなか市の値を表 2 にまとめた。値はすべて試料を 5 回に分けて分析測定し、その平均値と標準偏差で表した。まず北茨城市のウミトラノオについて見ると時々高い値が観察されるが 10mBq/kg 生から 20mBq/kg 生の範囲にある事がわかる。一方、ひたちなか市ではウミトラノオの ^{99}Tc 濃度は大きく変動し 50mBq/kg 生から 1,500mBq/kg 生を超える場合のある事がわかる。また短期間に濃

Table-1 Change of concentrations of ⁹⁹Tc in *Sargassum thunbergii* collected at Kitaibaraki-shi.

	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995
Jan.	—	—	—	—	—	—	—	—
Feb.	—	—	—	—	—	—	—	—
Mar.	18.6±4.9	10.7±6.6	6.3±7.2	—	7.5±2.6	9.4±2.5	—	9.56±0.88
Apr.	—	—	—	2.9±1.2	—	—	10.0±1.42	—
May	—	18.4±6.8	7.3±2.8	—	14.6±2.8	—	31.1±3.36	14.3±1.76
June	—	16.9±2.7	6.8±2.2	11.0±1.7	10.6±2.1	8.9 ± 2.5	—	—
Jul.	—	18.2±2.3	9.3±2.2	14.9±3.2	—	33.8±1.41	—	—
Aug.	—	—	—	—	—	23.9 ± 2.54	17.0 ± 1.83	—

Table-2 Change of concentrations of ⁹⁹Tc in *Sargassum thunbergii* collected at Hitachinaka-shi.

	1988	1989	1990	1991	1992	1993	1994	1995
Jan.	133± 34	104±52	1,095±74	—	43±16	64± 17	467± 98	91.6± 6.7
Feb.	1,037±585	198±61	511±61	56±11	70±28	60±8.4	539±115	179±11
Mar.	1,565±319	170±63	215±51	58±22	121±24	129± 60	458± 53	321±24
Apr.	413± 54	318±30	144±26	139±32	91±20	123± 24	294± 58	238±26
May	278±125	229±67	125±25	63±19	69± 7	126± 37	406± 59	162±20
June	807±195	197±48	96±23	74±21	108±14	221± 65	585± 39	215±41
Jul.	546±144	136±54	51±14	63±11	98±26	1,162±132	436± 63	199± 9.4
Aug.	—	—	—	—	93±16	1,247±243	496± 54	160±25
(Oct.)	(204± 42)	(178±9.3)	—	—	—	—	—	—

度が大きく上下する事も観察される。これらの事は異なる濃度の⁹⁹Tcを含む水塊がウミトラノオの生育している場所を次々に通過していると想像される。

4. 各地沿岸のウミトラノオの⁹⁹Tc濃度

ウミトラノオは九州から北海道の各地沿岸に生育しており、また⁹⁹Tcを高度に濃縮する性質があるので海洋における⁹⁹Tcの濃度を知る指標生物として有用である。筆者らは各地沿岸からこのウミトラノオを採取して⁹⁹Tcを分析測定した結果、茨城県を除く太平洋側では千葉県千倉町の4.5mBq/kg生から青森県六ヶ所村の15.7mBq/kg生の範囲にあり、日本海側では北海道余市の11.7mBq/kg生から青森県深浦の36.2mBq/kg生の範囲にあった。

5. ウミトラノオによる⁹⁹Tcの濃縮係数

海産物による放射性核種の濃縮係数とは平衡状態における海水と生物の間の濃度比と定義されており現実にはほとんど有り得ない状態で得るべき値ではあるが、便宜上平衡状態に近い状態の濃度比を用いる事が多い。ひたちなか市では海水とウミトラノオの両者について⁹⁹Tc濃度が定量されているのでこの値を用いてウミトラノオによる⁹⁹Tcの濃縮係数を算出した。その結果6,600から12,000の値がえられ10回の異なる時期についての平均と標準偏差は $(10.0 \pm 2.0) \times 10^3$ であった。

6. 海水中の⁹⁹Tc濃度

過去の核実験に由来する海水中の⁹⁹Tc濃度はこの核種と類似の挙動を取る¹³⁷Csの濃度が3 mBq/ℓ

である事から $1 \mu\text{Bq/l}$ のオーダーであろうと考えられる。従って、外洋水から直接この ^{99}Tc を分析測定する事は非常に難しいが、アイリッシュ海では原子力施設からの放出による ^{99}Tc が測定されている^{3,4)}。また日本でも筆者がひたちなか市で低濃度の ^{99}Tc を 500l の海水から定量している^{1,2)}。

Fig. 4 に 1993 年から 1995 年間のひたちなか市磯崎における海水中の ^{99}Tc 濃度の変動を図示した。変動の中はかなり大きく定量下限 (10mBq/m^3 , 下向きの矢印で表示) より低い値から 100mBq/m^3 を超える値まで観察された。

しかしながら、ひたちなか市以外の日本近海ではまだ 10mBq/m^3 を超える濃度の ^{99}Tc は検出されていない。筆者は青森県六ヶ村および鮎ヶ沢町、新潟県佐渡ヶ島の相川町、福井県小浜市と宮崎県延岡市で各 1 m^3 の海水を処理して ^{99}Tc の定量を試みたがいずれの地方においても検出下限を超える値は検出する事が出来なかった。また、1990 年には東京大学海洋研究所の白鳳丸に乗船する機会を得て東経 160° と 175° の赤道付近の海水を 7 試料、各 1 m^3 を分析測定したが ^{99}Tc を検出する事は出来なかった。

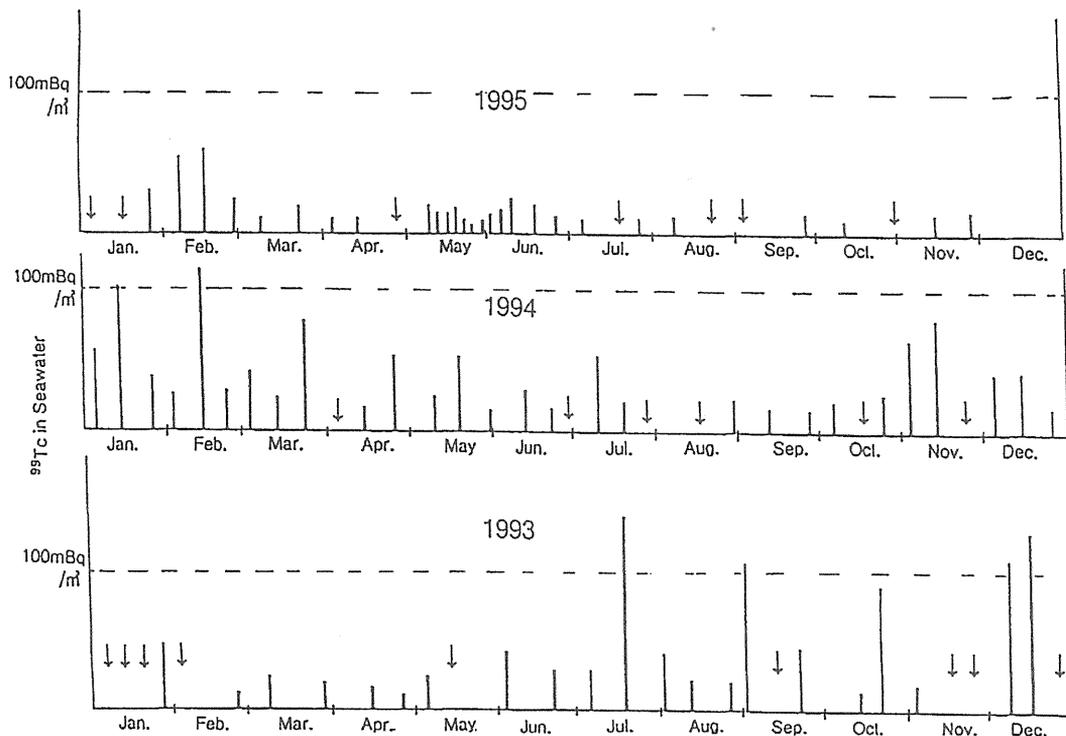


Fig. 4 Change of concentrations of ^{99}Tc in seawater collected at Hitachinaka-shi.

7. 結語

日本列島沿岸の海水中の ^{99}Tc 濃度は一部の地域を除いて実測されていないが、ウミトラノオなどの褐藻類からは分析測定されており、その値と濃縮係数 (ウミトラノオの値を 10,000 と仮定する。) から逆算すると次の様な値が推定される、すなわちウミトラノオの濃度の低い千葉県千倉町では 0.45mBq/m^3 、一番高い値が測定されている青森県深浦では 3.6mBq/m^3 であろうと思われる。各地のウミトラノオの濃度からも太平洋側より日本海側で幾分高い傾向が観察され、その原因として幾つかの事が考えられる。その第一は過去の放射能調査のデータから太平洋側よりフォールアウトによる放射能濃度の高い事が指摘されており、これは気象条件の差ではないかと言われている。第二は日本海が陸地に囲まれた緑辺海である

ために陸地に降下したフォールアウトが河川により日本海に集められたと考える事もできる。

ウミトラノオは沖縄を除く日本列島の全域に分布しており、また⁹⁹Tcの濃縮係数も高いものでモニタリングの指標生物として適当な種である。恐らく海洋は⁹⁹Tcの最終的な溜り場所となるであろうからその濃度変動の監視を継続する必要がある。

ウミトラノオより⁹⁹Tcの濃縮係数が高い海藻にヒバマタの類が有り、日本近海では北海道にエゾイシゲとヒバマタの二種が生育している。これと近縁の種について太平洋でも分析測定されているので今後比較検討する必要もある。

参考文献

- 1) S. Hirano, M. Matsuba and H. Kamada, Radioisotopes, 38 186 (1989).
- 2) S. Hirano and M. Matsuba, Radiochimica Acta, 63 79 (1993).
- 3) N. T. Mitchell, Fish. Radio. Biol. Lab. Tech, Report, 9 (1973).
- 4) G. J. Hunt, Aquat, Environ. Monitor Report, No 12 (1985).

2. 環境における⁹⁹Tcの移行と被ばく評価

渡部 輝久

放射線医学総合研究所

Radiological Implication of Releases of ⁹⁹Tc into the Environment

Laboratory for Radioecology, NIRS, NAKAMINATO

Teruhisa WATABE

Chemical, physical and ecological characteristics and properties of ⁹⁹Tc were briefly reviewed from the radiation protection view point to be required for establishing the nuclear fuel cycle. The global inventory of ⁹⁹Tc originating from nuclear industries was estimated to amount to 1500 TBq up to 1983, whereas the nuclear test explosions released a total of 177 TBq of ⁹⁹Tc to the environment since 1945. The ⁹⁹Tc inventory is anticipated to increase from now on as that of ¹²⁹I which is regarded as one of the most critical nuclides in the assessments of the impacts in the human environment at planning of construction and operation of uranium fuel cycle facilities in the regulations of USA. A comparison of the importance in the assessments of radiation dose was made between ⁹⁹Tc and ¹²⁹I by reviewing the numerical values of the parameters to be used for calculation of doses. It was recommended that the uncertainties remaining in those parameters, especially those for the affinity of plants for ⁹⁹Tc in both terrestrial and aquatic environment be minimized by further research efforts. The results of an exercise of dose estimation carried out in the monitoring program in the aquatic environment around the Sellafield facilities which released radioactivity including ⁹⁹Tc in the liquid effluents was also reviewed. It was shown that the committed effective dose determined on the basis of monitoring data was substantially less than the 1 mSv limit which might be used as a criteria to require the consideration of 'intervention'. It was also shown that the release of a total of approximately 100 TBq of radioactivity in 1993 caused radiation exposure of the population through the food chain, dose of which corresponded to 0.04 mSv year⁻¹, and that the contribution of ⁹⁹Tc to the total dose was 5%. That dose was less than the maximum constraint recommended by National Radiological Protection Board (NRPB, UK) for a single new source of 0.3 mSv. Experience of UK may suggest that more efforts be made in order to establish so-called 'upper bound' against various radiation sources in 'the future situation' also in Japan.

1. はじめに

原子番号43のテクネチウム (Tc) は、同位体のすべてが放射性である。半減期が最も長いものでも ^{98}Tc の 4.8×10^6 年であり、地球の年齢 4.6×10^9 年よりは短く、原始起源のものは、環境中には存在しない。 Tc の多くの同位体はウラン-235等の熱中性子による核分裂で生成される。その中でも収率の高い ^{99}Tc は、 2.14×10^5 年の半減期を有し、核爆発実験に起因する環境放射能の線源の一つとして環境中での存在が予想され確認されてきた。現在、環境中に存在する ^{99}Tc の大部分は、1945年以後の核爆発実験によると考えられる¹⁾。一方、 ^{99}Tc は、 ^{129}I 、 ^{237}Np などとともに、原子力の平和利用の進展にともなって、地球上でのインベントリーの増加が見込まれる超長半減期核種の一つである。使用済核燃料再処理や放射性廃棄物の処理処分等の原始燃料サイクルの確立がはかられている今日、環境や人類に対する影響を評価する上で最も重要な対象核種の一つであるとされている。

環境中での ^{99}Tc の挙動は、存在量の少なさ、分析測定の難しさ等によって必ずしも十分な知識は得られてはいない。したがって、放出放射性物質による人体の被曝線量評価にはヨウ素との相似性から導かれた環境パラメータが用いられる場合も少なくない。環境パラメータの一つである土壌-農作物の濃度比として米国で用いられてきた値、乾燥土壌中濃度に対する湿重量ベースの農作物中濃度0.25もこの例である。しかし、 ^{99}Tc に関する研究が進むにつれ、 ^{99}Tc の生物親和性、特に植物による効率的な吸収が知られるようになりパラメータ値の妥当性の見当が必要になってきている。Till らは、再処理燃料を処理するウラン濃縮工場から放出される ^{99}Tc について土壌-農作物移行比としての推奨値0.25と報告値、50を用いて周辺住民の線量評価を試みた。その結果、後者の場合、甲状腺、消化管の預託線量は、それぞれ、0.8mSv、0.18mSv と推定された。米国環境庁は、甲状腺を除く臓器・全身に対する線量限度を年間 0.25mSv、甲状腺に対して 0.75mSv を与えており、計算値はこれらとほぼ同等か若干大きなものとなっている。原子力施設から放出される ^{99}Tc が線量評価上重要であること、 ^{99}Tc の環境パラメータに関するデータの蓄積の重要性を指摘した最初の例である²⁾。

本セミナーでは、 ^{99}Tc の放出源、環境パラメータについて ^{129}I との比較を試み、 ^{99}Tc の放出に係わる線量評価の実際について概括する。

2. ^{99}Tc の放出源

米国においては、原子燃料（ウラン燃料）サイクル施設の立地や稼働に関しては、1969年に制定された国家環境対策法（NEPA）の理念に則り、それらの環境に与える影響を事前に評価することが義務づけられている³⁾。事業者は、計画されている行為の環境への影響を法に定められた項目について分析評価することが求められ、これをもとに規制当局により行為の問題点、他部局や関係者からの反駁等を網羅した報告書が作成され、環境庁や関連の連邦および地方規制部局に配布され、また公開ヒアリング等を通じて意見の提示が求められている。これらの情報公開や議論をふまえて規制当局の判断が加えられることになっている。これらの手続きは、エネルギーに関する連邦規制法（CFR）、Title 10、Part 51 に詳細に規定されている。環境影響について分析評価する項目としては、環境にどのような影響は、また悪い影響が、あるいは回復不能な影響が及ぼされるか、どのような代替的な行為があるのか、そして、行為のもたらす直接的短期的影響のほかに行為の維持管理等に係わるどのような長期的な影響があるのか、等があげられている。また、考慮されるべき環境に負荷される因子は、10CFR、Part 51 の表 S-3 に与えられており、

表1 米国連邦規制法、10 CFR Part 51 で示されている環境アセスメントで考慮されるべきウラン燃料サイクルからの放出放射性核種
 [Normalized to model LWR annual fuel requirement [WASH-1248] or reference reactor year [NUREG-0116]]

[Normalized to model LWR annual fuel requirement[WASH-1248] or reference reactor year[NUREG-0116]]

Environmental considerations	Total	Maximum effect per annual fuel requirement or reference reactor year of model 1,000MWe LWR
NATURAL RESOURCES USE		
EFFLUENTS-CHEMICAL(MT)		
EFFLUENTS-RADIOLOGICAL(CURIES)		
Gases (including entrainment):		
Rn-222	0.02	Presently under reconsideration by the Commission.
Ra-226	0.02	
Th-230	0.034	
Uranium	18.1	
Tritium(thousands)	24	
C-14	400	
Kr-85(thousands)	0.14	
Ru-106	1.3	
I-129	0.83	
I-131	0.203	
Tc-99		Presently under reconsideration by the Commission.
Fission products and transurnics		
Liquids:		
Uranium and daughters	2.1	Principally from milling - included tailings liquor and returned to ground - no effects; therefore, no effect on environment.
Ra-226	0.0034	From UF ₆ production.
Th-230	0.0015	
Th-234	0.01	From fuel fabrication plants - concentration 10 CFR 20 for total processing 26 annual fuel requirements for model LWR.
Fission and activation products	5.9×10 ⁶	
Solids(buried on site):		
Other than high level (shallow)	11,300	7,100 Ci comes from low level reactor wastes and 1,500 Ci comes from reactor decontamination and decommissioning - buried at land burial facilities. 600 Ci comes from mills - included in tailings returned to ground. Approximately 60 Ci comes from conversion and spent fuel storage. No significant effluent to the environment.
TRU and HLW (deep)	1.1×10 ⁷	Buried at Federal Repository.
Effluents-thermal		
Transportation(person-rem):		
Exposure of workers and general public	2.5	
Occupational exposure (person-rem)	22.6	From reprocessing and waste management.

"CODE OF FEDERAL REGULATIONS(1994): Environmental Protection Regulations for Domestic Licensing and Related Regulatory Functions, Title 10 - Energy, Part 51."

"CODE OF FEDERAL REGULATIONS (1994): Environmental Protection Regulations for Domestic Licensing and Related Regulatory Functions, Title 10 - Energy, Part 51."

放出の可能性のある放射性物質の種類や量についても与えられている。これらを表1に示す。

表S-3には、⁹⁹Tcは含まれていないが、⁹⁹Tcの環境影響については個々のケースで考慮されるべきことが記されている。Tillは、表作成の間のいきさつとして、「原子燃料サイクル過程において使用済燃料中の¹²⁹Iの全量が環境に放出されるという保守的な仮定が⁹⁹Tc放出による諸影響をとりあえず補償する」という公聴会での議論があったことを紹介している⁴⁾。現在、⁹⁹Tcの放出源情報や環境挙動は、徐々に明らかにされつつある。これらの知見に基づいて正確な環境影響評価が行われるべきことは言うまでもないことであろう。

テクネチウムの同位体は、前述したようにすべて放射性である。現在の可能性が考えられているものを含めると質量数が90より110まで30種近くに及び、質量数の高いものは主にウラン等の核分裂によって生成される。テクネチウムの同位体の一覧および²³⁵Uからの生成スキームを、それぞれ、表2、表3に示した^{5),6)}。テクネチウムは、融点、2172℃、沸点、4877℃を有する比重、11.5の金属で、硝酸、王水、濃硫酸に溶け塩酸には不溶とされている⁷⁾。テクネチウムは0、+2、+4、+5、+6、および+7価の酸化状態をとることが知られており、その中で最も安定な化学形は過テクネチウム酸イオン、TcO₄⁻と水和生成物TcO₂である。前者は、水溶液中でイオン状態で環境中において易動性が高く、後者は不溶性で易動性は極めて低いとされ、前者は糖などの有機物や塩化スズなどにより容易に還元される。両者が環境中での存在が考えられている典型的な化学種である。また、揮発性の高いTc₂O₇、HTcO₄やTcF₆が知

表2 テクネチウムの同位体

Isotope	Half-life	Class*	Type of decay	Method of preparation
Tc-90	50 s	C	β^+	$^{92}\text{Mo}(p,3n)$
Tc-90	7.9 s	C	β^+	$^{92}\text{Mo}(p,3n)$
Tc-91	3.14 m	C	β^+ , EC	$^{92}\text{Mo}(p,2n)$
Tc-91	3.3 m	C	β^+ , EC	$^{92}\text{Mo}(p,2n)$
Tc-92	4.4 m	B	β^+ , EC	$^{92}\text{Mo}(d,2n)$; $^{92}\text{Mo}(p,n)$
Tc-93	2.7 h	A	EC, β^+	$^{92}\text{Mo}(d,n)$; $^{92}\text{Mo}(p,\gamma)$
Tc-93m	43 m	A	IT, EC	$^{92}\text{Mo}(d,n)$; $^{92}\text{Mo}(p,\gamma)$; $^{93}\text{Nb}(\alpha,4n)$
Tc-94	293 m	A	EC, β^+	$^{93}\text{Nb}(\alpha,3n)$; $^{94}\text{Mo}(d,2n)$; $^{94}\text{Mo}(p,n)$; $^{93}\text{Nb}(^3\text{He},2n)$
Tc-94m	52 m	A	β^+ , EC	$^{93}\text{Nb}(\alpha,3n)$; $^{94}\text{Mo}(d,2n)$; $^{94}\text{Mo}(p,n)$; daughter ^{94}Ru
Tc-95	20 h	A	EC, no β^+	$^{95}\text{Mo}(p,n)$; $^{94}\text{Mo}(d,n)$; $^{95}\text{Mo}(d,2n)$
Tc-95m	61 d	A	EC, β^+	$^{95}\text{Mo}(p,n)$; $^{94}\text{Mo}(d,n)$; $^{95}\text{Mo}(d,2n)$
Tc-96	4.3 d	A	EC, no β^+	$^{93}\text{Nb}(\alpha,n)$; $^{96}\text{Mo}(p,n)$; $^{96}\text{Mo}(d,2n)$; $^{95}\text{Mo}(p,\gamma)$
Tc-96m	52 m	A	IT, EC, β^+	$^{93}\text{Nb}(\alpha,n)$; $^{96}\text{Mo}(p,n)$; $^{96}\text{Mo}(d,2n)$; $^{95}\text{Mo}(d,n)$; $^{95}\text{Mo}(p,\gamma)$
Tc-97	2.6×10^6 y	A	EC	$^{96}\text{Ru}(n,\gamma)$; $^{97}\text{Ru}(\text{EC})$
Tc-97m	90 d	A	IT	$^{96}\text{Ru}(d,n)$; $^{97}\text{Mo}(p,n)$; $^{97}\text{Mo}(d,2n)$; $^{96}\text{Ru}(n,\gamma)$; $^{97}\text{Ru}(\text{EC})$
Tc-98	4.2×10^6 y	A	β^-	$^{98}\text{Mo}(p,n)$; $^{96}\text{Ru}(n,\gamma)$; $^{97}\text{Ru}(\text{EC})$; $^{97}\text{Tc}(n,\gamma)$
Tc-99	2.14×10^5 y	A	β^-	fission; $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)$; $^{99}\text{Mo}(\beta^-)$
Tc-99m	6.02 h	A	IT, β^-	daughter ^{99}Mo
Tc-100	15.8 s	A	β^-	$^{99}\text{Tc}(n,\gamma)$; $^{100}\text{Mo}(p,n)$; $^{103}\text{Rh}(n,\alpha)$
Tc-101	14.3 m	A	β^-	$^{100}\text{Mo}(n,\gamma)$; $^{101}\text{Mo}(\beta^-)$
Tc-102	5.3 s	B	β^-	daughter ^{102}Mo
Tc-102m	4.4 m	B	β^- , IT	$^{102}\text{Ru}(n,p)$; fission
Tc-103	50 s	A	β^-	fission; $^{104}\text{Ru}(n,np)$; $^{104}\text{Ru}(\gamma,p)$
Tc-104	18.1 m	B	β^-	fission; $^{104}\text{Ru}(n,p)$
Tc-105	7.6 m	A	β^-	fission
Tc-106	36 s	B	β^-	fission
Tc-107	21.2 s	B	β^-	fission
Tc-108	5.1 s	B	β^-	fission
Tc-109	1.4 s	B	β^-	fission
Tc-110	0.82 s	C	β^-	fission

A: Element and mass number certain;

B: Element certain and mass number probable;

C: Element probable and mass number certain or probable.

"C. Michael Lederer and Virginia S. Shirley Eds., Table of Isotopes, 7th Edition, John Wiley & Sons, Inc., New York, 1978"

表3 U-235核分裂物質の生成と収率

98				$^{98}\text{Mo}(\text{stable})$ 5.78 $\sigma_c: 0.51(\text{barns})$
99	$^{99}\text{Zr}(30\text{s}) \rightarrow$	$^{99}\text{Nb}(3\text{m}) \rightarrow$	$^{99}\text{Mo}(66\text{h})$ 6.06	$\begin{cases} \rightarrow ^{99}\text{Tc}(6.0\text{h}) \\ \rightarrow ^{99}\text{Tc}(2.1 \times 10^5\text{y}) \end{cases} \rightarrow ^{99}\text{Ru}(\text{stable})$
100				$^{100}\text{Mo}(\text{stable})$ 6.3
101			$^{101}\text{Mo}(14.6\text{m})$ 5.6	$\rightarrow ^{101}\text{Tc}(14.3\text{m}) \rightarrow ^{101}\text{Ru}(\text{stable})$ 5.0
102			$^{102}\text{Mo}(11.5\text{m})$ 4.3	$\begin{cases} \rightarrow ^{102}\text{Tc}(4.1\text{m}) \\ \rightarrow ^{102}\text{Tc} \end{cases} \rightarrow ^{102}\text{Ru}(\text{stable})$ 4.1
103		$^{103}\text{Tc}(1.2\text{m}) \rightarrow$	$^{103}\text{Ru}(39.7\text{d})$ 3	$\begin{cases} \rightarrow ^{103\text{m}}\text{Rh}(57\text{m}) \\ \rightarrow ^{103}\text{Rh}(\text{stable}) \end{cases}$
104			$(^{104}\text{Mo}(<2.5\text{m})) \rightarrow$	$^{104}\text{Tc}(18\text{m}) \rightarrow ^{104}\text{Ru}(\text{stable})$ 1.8
105	$(^{105}\text{Mo}(<2\text{m})) \rightarrow$	$^{105}\text{Tc}(10\text{m}) \rightarrow$	$^{105}\text{Ru}(4.45\text{h})$ 0.2	$\begin{cases} \rightarrow ^{105\text{m}}\text{Rh}(38\text{s}) \\ \rightarrow ^{105}\text{Rh}(35.3\text{h}) \end{cases} \rightarrow ^{105}\text{Pd}(\text{stable})$
106			$^{106}\text{Ru}(1.01\text{y})$ 0.38	$\rightarrow ^{106}\text{Rh}(30\text{s}) \rightarrow ^{106}\text{Pd}(\text{stable})$
107	$(^{107}\text{Tc}(<1\text{m})) \rightarrow$	$^{107}\text{Ru}(4.8\text{m})$	$\begin{cases} \rightarrow ^{107\text{m}}\text{Rh}(6\text{s}) \\ \rightarrow ^{107}\text{Rh}(22\text{m}) \end{cases}$ 0.19	$\rightarrow ^{107}\text{Pd}(7 \times 10^5\text{y}) \rightarrow ^{107}\text{Ag}(\text{stable})$
108		$(^{108}\text{Tc}(<1\text{m})) \rightarrow$	$^{108}\text{Ru}(4.4\text{m})$	$\rightarrow ^{108}\text{Rh}(18\text{s}) \rightarrow ^{108}\text{Pd}(\text{stable})$
129		$^{129}\text{Sb}(4.6\text{h})$	$\begin{cases} \rightarrow ^{129\text{m}}\text{Te}(37\text{d}) \\ \rightarrow ^{129}\text{Te}(72\text{m}) \end{cases}$ 0.2	$\rightarrow ^{129}\text{I}(1.7 \times 10^7\text{y}) \rightarrow ^{129}\text{Xe}(\text{stable})$

"Seymour Katzoff: Nucleonics, Vol. 16, No. 4, 1958"

られており、とくに原子燃料サイクル施設からの大気放出を評価するときに考慮に入れなければならない化学種とされている。

現在環境中に存在する ^{99}Tc は、1945年以後の核爆発実験によると考えられる。1980年までの大気圏内の核爆発量は、217.2Mt といわれ、 ^{99}Tc の生成量は、284kg、177TBq と見積もられている¹⁾。しかし、今後地球上でのインベントリー増加をもたらすものは原子力の平和利用によるものである。1983年までに全世界の原子力発電所において生成された電力は、762GW(e)y(2500GW(t)y) とされている。原子力利用による ^{99}Tc の生成率を 6TBq/GW(t)y と仮定するとすでに、15000TBq が存在することになる⁸⁾。ここで電気出力 1000MW、年間稼働率80%の軽水炉を想定する。この平均的な軽水炉での燃料燃焼度は、33000MWd/MT、1年に 35MT の新燃料の装填が必要とされる。前述の米国連邦規制法中の表 S-3 は、このような標準的な原子炉で正規化した場合を想定し核燃料サイクル施設からの放出量評価を行ったものである。このときの使用済燃料中の ^{99}Tc 濃度は Till によれば 530GBq/MT と推定されている。ちなみに ^{90}Sr 、 ^{137}Cs に対しては、2.8PBq/MT、4.1PBq/MT の生成が推定されている。ウラン燃料サイクルにおいては、使用済燃料の再処理以降の過程が主たる ^{99}Tc の放出源と考えられている。すなわち、燃料中のテクネチウムは、硝酸による溶解で過テクネチウム酸となり TBP 溶媒抽出で一部は、硝酸ウラニルと挙動をともにし、一部は、脱硝、焼結過程で揮発性の高い Tc_2O_7 に変換されるとされている。使用済燃料中の大部分は核分裂生成物中に分裂されるため高レベル放射性廃棄物処理処分での挙動が問題となるが、とくにガラス固化体製造過程での逸散が重要である。再処理過程で放射性ヨウ素のようなアルキル化による有機化合物の生成は起こらないと考えられており、揮発性の高い Tc_2O_7 や HTcO_4 もスクラバーにより除去されるためにこれらの過程での ^{99}Tc の大気放出は少ないと考えられている。TILL はウラン燃料サイクルでの最も重要な ^{99}Tc の放出源は再処理による回収ウランの濃縮過程での混入した TcF_6 の大気放出であることを指摘し、また米国における施設からの放出を報告している⁴⁾。上述の標準原子炉での燃料使用量で正規化した各ウラン燃料サイクル施設から TILL によって推定された ^{99}Tc 放出量を表 4 に示す。

3. ^{99}Tc 、 ^{129}I に関する環境パラメータ

環境および人体に及ぼす影響を考察する場合長半減期核種の重要性は、原子燃料サイクル、とくに「バックエンド」において顕著となることはすでに述べたとおりである。また、長半減期核種は、時間経過とともに相対的にその重要性が増大する。図 1、2 はそれぞれ沸騰水型原子炉と加圧水型原子炉の使用済燃料単位重量当たりに含まれる放射性核種成の時間経過を表したものである⁹⁾。核分裂生成物では ^{137}Cs や ^{90}Sr 等の比較的長い半減期を有する核種も数百年の時間経過では依然として重要性は高いが、 ^{79}Se 、 ^{93}Zr 、 $^{93\text{m}}\text{Nb}$ 、 ^{126}Sn 、 ^{126}Sb 、 ^{135}Cs 、 ^{151}Sm 、そして ^{99}Tc や ^{129}I の全放射能に対する寄与が時間とともに大きくなっていくことが理解される。そして、このような時間の範

表 4 ウラン燃料サイクル施設からの Tc-99 環境放出

Fuel Cycle Facility	Release(Ci/RRY)*	
	Air	Liquid
Mining/Milling	0	0
Reprocessing	05.1×10^{-6}	0
UF6 Conversion	5.1×10^{-4}	1.0×10^{-3}
Enrichment	5.8×10^{-3}	2.2×10^{-1}
U-Fuel Fabrication	5.4×10^{-4}	2.9×10^{-4}
High-level Waste Solidification	5.1×10^{-6}	0
High-level Waste Disposal	2.4×10^{-10}	0
Low-level Waste Disposal	0	3.2×10^{-6}

* : Reference Reactor Year
 "John E. Till: In: Desmet, G. and Myttenaere, C. Ed., Technetium in the Environment, EUR-10102-EN, 1-20, Elsevier Applied Science Publishers Ltd., Barking (UK), 1986"

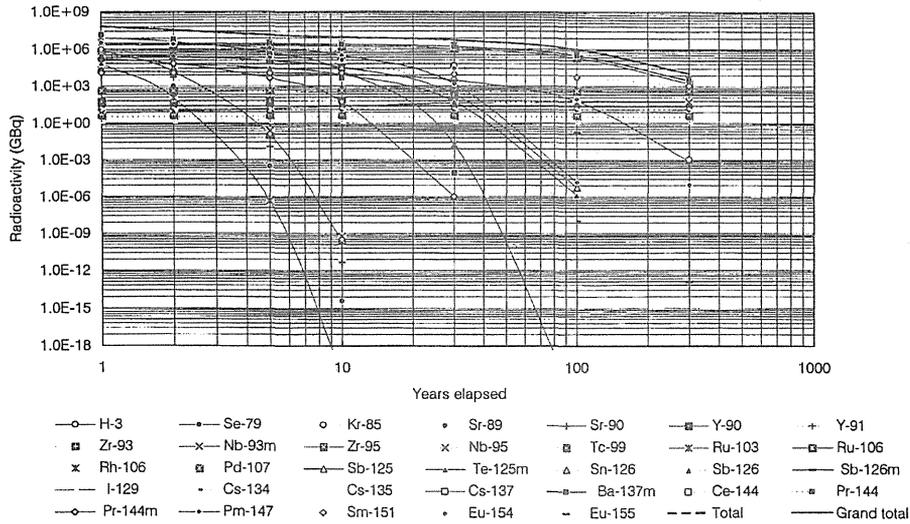


図1 沸騰水型原子炉の使用済燃料単位重量中の核分裂生成物の放射能の時間経過

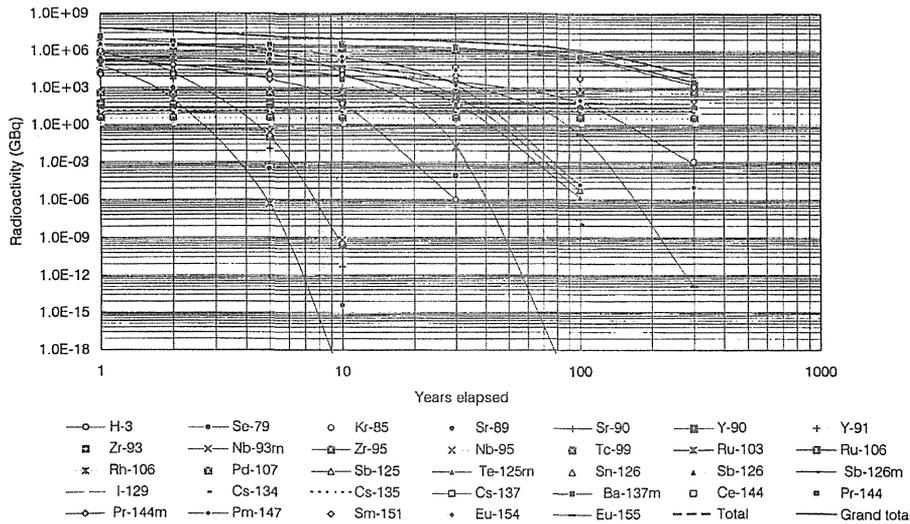


図2 加圧水型原子炉の使用済燃料単位重量中の核分裂生成物の放射能の時間経過

冊では、 ^{99}Tc は、 ^{129}I よりほぼ1桁インベントリーは、大きい。表5-1にテクネチウムとヨウ素の化学特性を比較した^{10),11)}。ヨウ素は常温でも蒸気圧は高く、有機ヨウ素 (CH_3I) の場合では融点、沸点とも低く通常ヒトの住む環境条件下でも気体として存在することが予想される。テクネチウムにおいても Tc_2O_7 では高温で蒸気圧は高く、水銀の数分の1程度を示し、揮発性が比較的高いといえる。大気放出の可能性のある化学形である。図3、4には、水溶液中のテクネチウム、ヨウ素の化学形態を酸化還元電位-pHダイアグラム上に示した¹²⁾。通常の酸素の多い環境では、前者は TcO_4^- が後者は $\text{I}^-(\text{IO}_3^-)$ が優勢である。 TcO_4^- は、 I^- と同様に土壌粒子や岩石に吸着しにくく、水とともに移動しやす

表5-1 テクネチウムとヨウ素の化学的性質の比較

	Technetium		Iodine	
Vapour pressure	10^{-1}mm at 100°C	Tc_2O_7	0.03 torr at 0°C 0.469 torr at 30°C	Elemental iodine Elemental iodine
Melting point	$2140 \pm 20^\circ\text{C}$	Tc(metal)	113.6°C	Elemental iodine
	119.5°C	Tc_2O_7	-66.45°C	CH_3I
Boiling point	4877°C	Tc(metal)	182.8°C	
	311°C	Tc_2O_7	42.4°C	CH_3I

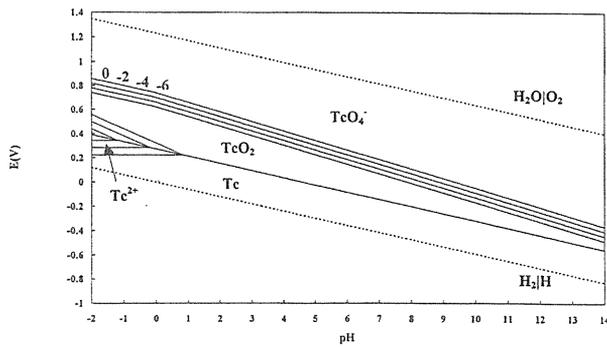


図3 テクネチウムの水溶液中での Eh-ph ダイアグラム

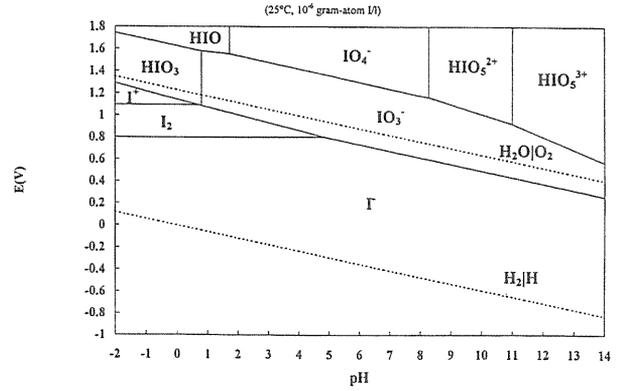


図4 ヨウ素の水溶液中での Eh-ph ダイアグラム

く環境中での易動性が高い。土壌粒子と土壌間隙水との平衡状態での物質の分配を後者に対する前者の濃度の比で表し分配係数 (Kd) と定義されるが、分配係数は、土壌中の放射性物質の移動を水の移動に対する遅延の程度を示すパラメータとして用いられる。表5-2には、二つの物質の分配係数を示したが、一般に、テクネチウムは、ヨウ素より分配係数値は小さく、環境中での易動性もより高いものと推測される。

テクネチウムの環境パラメータ誘導には、とくにテクネチウムの生物親和性に留意することが重要である。陸上環境で放射能物質の土壌-農作物移行は、放射性物質の土壌中濃度に対する植物中濃度の比で表され、線量評価ではこれらの比の値が用意されている。テクネチウムの土壌-農作物移行に関する実験値は近年多数報告されてきているが、一般にヨウ素に比較し極めて大きく、植物の必須元素の移行比と同等である。表5-2に土壌-植物移行比の推奨値および報告値を示す。表で明らかのように、テクネチウムに関しては、報告値は大きなばらつきがあり、より確かな値の誘導、あるいはばらつきをもたらす要因を明らかにすることが求められる。水圏環境においても海藻、とくに褐藻類による顕著な取込が知られており、わが国のように褐藻類を食品として用いる場合には、線量評価上十分な注意が必要である。テクネチウムの海水中濃度に対する生物中濃度の比、いわゆる濃縮係数も ^{95m}Tc の使用が可能となるにつれ報告値は蓄積され、また褐藻類の一部では、ヨウ素と同様に高い濃縮係数を示すことが明らかになっている。

表5-2 テクネチウムとヨウ素の環境パラメータの比較 (陸上環境)

		Technetium		Iodine		
Soil	Concentration	0.01 pg g ⁻¹	derived from ⁹⁰ Sr and ¹³⁷ Cs values	0.5 μg g ⁻¹	mineral soils	
	Distribution coefficient (Kd)	0 ~ 2.8 ml g ⁻¹	TcO ₄ ⁻	5 μg g ⁻¹	organic soils	
Plants	Leaching coefficient	2.61 × 10 ⁻¹ yr ⁻¹		0.8 ~ 52.6 ml g ⁻¹		
	Concentration			1.16 × 10 ⁻¹ yr ⁻¹		
	Concentration factor (pasture vegetation)	2 × 10 ¹	Bq g ⁻¹ dry vegetation per Bq g ⁻¹ dry soil (IAEA)	0.4 μg g ⁻¹ d.w.	9 × 10 ¹	Bq g ⁻¹ dry vegetation per Bq g ⁻¹ dry soil (IAEA)
	Concentration factor (food crops)	5 × 10 ⁰	Bq g ⁻¹ fresh food per Bq g ⁻¹ dry soil (IAEA)		2 × 10 ²	Bq g ⁻¹ fresh food per Bq g ⁻¹ dry soil (IAEA)
	Concentration factor	27 ~ 421	dry basis for plants		0.4	General (dry basis) dry basis for plants
		12 ~ 326	wet basis for plants		0.1 ~ 0.8	
	Michaelis-Menten constant (Km)			(3.0 ~ 3.2) × 10 ⁻⁶ M I ⁻	1 ~ 1000 μM I ⁻	
	Maximum uptake (Vmax)			(6.8 ~ 8.4) × 10 ⁻⁸ mol I ⁻ g ⁻¹	2 ~ 1000 μM I ⁻	
	Deposition velocity			1 × 10 ⁻² m s ⁻¹	Elemental iodine	
				5 × 10 ⁻⁴ m s ⁻¹	HOI	
			3 × 10 ⁻⁴ ~ 3 × 10 ⁻⁵ m s ⁻¹	CH ₃ I		
			1 × 10 ⁻³	particulate iodine		
	Normalised deposition velocity			0.1 m ³ kg ⁻¹ s ⁻¹	Elemental iodine	
				5 × 10 ⁻³ m ³ kg ⁻¹ s ⁻¹	HOI	
				3 × 10 ⁻⁵ m ³ kg ⁻¹ s ⁻¹	CH ₃ I	
				1 × 10 ⁻² m ³ kg ⁻¹ s ⁻¹	particulate iodine	
	Weathering half-life	15.9 ~ 18.7 d		9.06 ~ 13 d	molecular and particulate iodine	

表 5-2 テクネチウムおよびヨウ素の環境パラメータの比較 (続き: 家畜)

Cattle	Transfer coefficient to milk (Fm) Metabolic rate constant of elements in animals	Technetium		Iodine	
		$1 \times 10^{-2} \text{ d l}^{-1}$	default value (IAEA)	$1 \times 10^{-2} \text{ d l}^{-1}$	default value (IAEA)
				3.5 d^{-1}	loss rate of I in urine from the compartment relevant to immediate homogenisation for cow
				0.35 d^{-1}	loss rate of I in urine from the compartment relevant to immediate homogenisation for cow
				6.9 d^{-1}	loss rate of I in urine from the compartment relevant to immediate homogenisation for goat
				7.0 d^{-1}	loss rate of I in milk from th compartment relevant to immediate homogenisation for goat
		0.07	Integrated rate of loss in milk over all time		

表 5-2 テクネチウムおよびヨウ素の環境パラメータの比較 (続き: 水圏環境)

Water	Concentration	Technetium		Iodine	
				$55 \mu \text{ l}^{-1}$	seawater
				$1.5 \mu \text{ g l}^{-1}$	freshwater
Sediments	Concentration			$0.5 \mu \text{ g g}^{-1}$	marine
	Distribution coefficient (Kd)			10^4 ml g^{-1}	marine
				$3 \times 10^2 \text{ ml g}^{-1}$	freshwater
Plants				$700 \mu \text{ g g}^{-1}$	dry basis for marine plants
				$0.4 \mu \text{ g g}^{-1}$	dry basis for freshwater plants
	Concentration factor	1×10^4	marine (IAEA)	1×10^3	marine (IAEA)
		5×10^3		$1.5 \times 10^2 \sim 10^4$	marine
Invertebrates	Concentration			3×10^2	freshwater
				$1 \mu \text{ g g}^{-1}$	wet basis for marine invertebrates
				$0.3 \mu \text{ g g}^{-1}$	wet basis for freshwater invertebrates
	Concentration factor	1×10^3	marine crustacea (IAEA)	1×10^2	marine crustacea (IAEA)
		1×10^2	marine molluscs (IAEA)	1×10^2	marine molluscs (IAEA)
		5	freshwater (IAEA)	4×10^2	freshwater (IAEA)
		10^2	marine molluscs	5×10^1	marine
		3×10^1	marine invertebrates other than crustacea	$10^1 \sim 2 \times 10^2$	freshwater
Fish	Concentration			$0.5 \mu \text{ g g}^{-1}$	wet basis for marine fish
				$0.05 \mu \text{ g g}^{-1}$	wet basis for freshwater fish
	Concentration factor	10^1	marine (IAEA)	10^1	marine (IAEA)
		2×10^1	freshwater (IAEA)	4×10^1	freshwater (IAEA)
		3×10^1	marine	10^1	marine
				3×10^1	freshwater

表 5-2 テクネチウムおよびヨウ素の環境パラメータの比較 (続き: 人体内代謝)

f ₁ value	3 months	Technetium		Iodine	
		1		1	
	1 year	0.5		1	
	5 year	0.5		1	
	10 year	0.5		1	
	15 year	0.5		1	
	adult	0.5		1	
Biokinetic data for adult	Distribution-1	4%	Thyroid		
		10%	Stomach wall		
		3%	Liver		
		83%	Other tissues		
	Distribution-2			30%	uptake bu thyroid
				20%	faecal excretion
	Biological half-time	0.5 day	thyroid	0.25 day	blood (T _a)
		1.6 day	Comp. A (75 %)	80 days	thyroid (T _b)
		3.7 days	Comp. B (20 %)	12 days	Rest of body (T _c)
		22 days	Comp. C (5 %)		
		0.02 day	Transfer. comp.		
Effective dose as a result of ingestion of radionuclides	3 months	$1.0 \times 10^{-4} \text{ Sv/Bq}$	Tc-99	$1.1 \times 10^{-7} \text{ Sv/Bq}$	apparent half-time for thyroid I-129
	1 year	$4.8 \times 10^{-9} \text{ Sv/Bq}$	Tc-99	$1.3 \times 10^{-7} \text{ Sv/Bq}$	I-129
	5 year	$2.3 \times 10^{-9} \text{ Sv/Bq}$	Tc-99	$1.0 \times 10^{-7} \text{ Sv/Bq}$	I-129
	10 year	$1.3 \times 10^{-9} \text{ Sv/Bq}$	Tc-99	$1.1 \times 10^{-7} \text{ Sv/Bq}$	I-129
	15 year	$8.2 \times 10^{-10} \text{ Sv/Bq}$	Tc-99	$8.4 \times 10^{-8} \text{ Sv/Bq}$	I-129
	adult	$6.4 \times 10^{-10} \text{ Sv/Bq}$	Tc-99	$6.4 \times 10^{-8} \text{ Sv/Bq}$	I-129

今後は、ヨーロッパ大西洋沿岸諸国で行われているように海洋環境の⁹⁹Tc 汚染指標としての海藻の利用の可能性をはかるとともに褐藻類による Tc 吸収機構の解明が望まれるところである。

一部の植物による特異的な吸収が知られていることに比較し、テクネチウムの動物における生理代謝に関しては特異性を指摘する報告はないようである。しかし、生体内代謝に関するヨウ素との相似性は広く知られており、人体内においても甲状腺への選択的な移行は線量計算にも十分な考慮が必要である。国際放射線防護委員会は種々の放射性核種の公衆に対する線量対摂取換算係数の誘導を試みているが、テクネチウムについても消化管吸収率の0.8から0.5~1（3ヶ月の幼児）の見直しとともに各年齢での換算係数が与えられており、正確な線量評価が期待されるようになってきた。¹³⁾テクネチウムおよびヨウ素についての各種の化学的、生物学的物性値ならびに環境パラメータを表5-2に示す。

4. ⁹⁹Tc の線量評価の実際

過去核爆発実験で地球規模で環境中に放出された⁹⁹Tc は、177TBq と推定される。一方、すでに述べたように原子力の平和利用で生成された⁹⁹Tc は1983年までに 1500TBq と推定されている。もし、それまでに使用された燃料の10%に再処理が施され、1980年まではそれに含まれる⁹⁹Tc の全量が、それ以降

表6 再処理施設からの放射性物質の放出量 (TBq) -セラフィールド/英国-

		1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989
³ H	A ¹⁾	444	444	296	222	290	252	459	360	268	349	268	171	78.3	185.6	677
	L ²⁾	1400	1200	910	1050	1200	1280	1966	1750	1831	1586	1062	2150	1375	1724	2144
¹⁴ C	A				4.1	3.5	8.2	18.6	9.2	6.8	7.0	7.0	5.4	9.5	3.6	3.9
	L											1.3	2.6	2.1	3.0	2.0
⁸⁵ Kr	A	44000	44000	33000	26000	35000	31000	52000	44000	41800	37100	23800	53300	34000	39800	51700
⁹⁰ Sr	A			0.041	0.048	0.009	0.018	0.003	0.0009	0.0007	0.0004	0.0004				
	L	466	381	427	597	250	352	280	319	204	72	52	18.3	15	10.1	9.2
¹⁰⁶ Ru	A				0.0078	0.003	0.013	0.004	0.002	0.0003	0.0003	0.00008				
	L	762	766	816	810	390	340	530	419	553	348	81	28	22.1	23.6	25
¹²⁹ I	A			0.0059	0.0026	0.006	0.015	0.01	0.01	0.009	0.01	0.007	0.03	0.019	0.024	0.024
	L			0.11	0.074	0.12	<0.14	<0.19	<0.1	<0.2	<0.1	<0.1	0.12	0.1	0.13	0.17
¹³¹ I	A			0.0026	0.015	0.03	0.001	0.3	0.006	0.005	0.002	0.002	0.003	0.004	0.002	0.002
	L				0.027	0.025	0.036	0.006	0.0006	0.0004	0.0004	0.0004				
¹³⁴ Cs	A				594	404	240	170	138	89	35	30				
	L				0.23	0.24	0.24	0.45	0.08	0.01	0.007	0.004	0.002	0.007	0.004	0.005
¹³⁷ Cs	A				4480	4090	3000	2400	2000	1200	434	325	17.9	11.8	13.3	28.6
	L															
³² S	L				1.8	1.4	1.0	0.51	0.8	30.8	0.7	0.8				
⁵⁴ Mn	L				0.22	0.037	<0.063	<0.0095	<0.1	<0.2	<0.2	<0.2				
⁵⁵ Fe	L				2.3	1.8	1.1	1.2	0.9	1.1	0.9	0.7				
⁶⁰ Co	L				1.0	0.52	0.78	0.74	1.1	1.7	1.3	2.3				
⁶³ Ni	L				1.5	0.18	0.41	0.53	0.5	1.1	1.5	0.4				
⁶⁵ Zn	L				0.037	0.022	0.033	<0.034	<0.04	<0.04	<0.03	<0.06				
⁸⁸ Sr	L				9.9	7.5	12	11	<13	<8.5	<3.0	<1.8				
⁹² Zr	L			92	82	60	60	130	212	211	162	18				
⁹⁵ Nb	L			203	148	98	100	200	304	385	312	28				
⁹⁹ Tc	L				179	43	57	5.8	3.6	4.4	4.3	1.9				
¹⁰³ Ru	L				8.5	5.8	4.6	11	17	19	8.4	1.6				
^{110m} Ag	L				0.33	0.033	0.044	0.14	0.1	<0.1	<0.1	<0.1				
¹²² Sb	L				29	14	21	26	23	18	12	11				
¹⁴⁴ Ce	L			152	104	83	37	17	22	24	9	<5				
¹⁵² Eu	L				10	3.7	4.7	3.5	<0.6	<0.2	<0.2	<0.1				
¹⁵⁴ Eu	L				38	1.9	2.0	1.6	<1.0	<0.5	<0.3	0.1				
¹⁵⁵ Eu	L				7.8	4.0	4.2	2.6	<1.2	<0.6	<0.3	0.2				
Uranium*	L				10936	6000	4861	4499	6011	2602	2037	2447				
²³⁷ Np	L				0.6	0.33	0.67	0.41	0.3	0.3	0.3	0.2				
²³⁸ Pu	L				12	12	6.9	5	4.7	2.9	2.6	0.8				
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	L			36****	46	37	20	15	16	8.7	8.3	2.6				
²⁴¹ Pu	L				981	1773	1500	728	600	485	331	345	81			
²⁴¹ Am	L				3.6	7.9	7.9	8.3	8.8	6.4	2.2	2.3	1.6			
²⁴² Cm	L				0.55	0.37	0.33	0.19	0.28	0.4	0.1	<0.1				
²⁴³⁺²⁴⁴ Cm	L				0.33	0.15	0.19	0.11	0.14	0.1	0.1	<0.1				
Total α	A	0.0028	0.0019	0.001	0.00089	0.001	0.0005	0.001	0.0007	0.0005	0.0004	0.0006				
	L	85	60	46	68	62	39	30	28	14	14	6				
Total β	A**	0.07	0.13	0.28	0.34	0.31	0.538	0.403	0.03	0.022	0.0171	0.0129				
	L***	9065	6771	7129	7124	4100	4300	3800	3500	2489	1190	587				
Electrical energy generated (GW)		3.2	3.2	2.1	1.8	2.5	2.21	3.71	3.14	2.96	2.65	1.7	3.81	2.43	2.84	3.69

1) : airborne effluents
 2) : liquid effluents
 * : kg
 ** : particulate release
 *** : other than ³H
 **** : ²³⁸Pu, ²³⁹Pu, ²⁴⁰Pu

from : UNSCEAR 1982 Report, 1988 Report and 1993 Report

表7 再処理施設からの放射性物質の放出量 (TBq) - ラ・アーク/フランス -

		1975	1976	1977	1978	1979	1980	1981	1982	1983	1984	1985	1986	1987	1988	1989
³ H	A ¹⁾	3.3	1.8	11	4.1		9.1	9.9	6.3	8.1	8.5	31.8	6	15	21	25
	L ²⁾			331	728		539	708	810	1160	1460	2590	2300	3000	2500	3700
¹⁴ C	A											0.7	0.7			
	L															
⁸⁵ Kr	A	24000	13000	25000	29000		30525	35816	51800	51800	27010	70300	29000	35000	27000	42000
⁹⁰ Sr	A															
	L	75	40	73	140		29.4	27.1	86.3	141.6	109.6	46.5	78	65	48	41
¹⁰⁶ Ru	A															
	L	829	555	540	801		387	331	470	337	351	437	470			
¹²⁹ I	A						0.0178	0.0107	0.0159	0.0207	0.027	0.0215				
	L									0.1	0.1	0.2	0.13			
¹³¹ I	A															
	L															
¹³⁴ Cs	A															
	L						3.7	6	8.4	4.9	4.8	8.2				
¹³⁷ Cs	A															
	L						26.8	38.6	50.5	23	29.8	29.4	29	7.6	8.5	13
³⁵ S	L															
⁵⁴ Mn	L															
⁵⁵ Fe	L															
⁶⁰ Co	L						2.7	4	3.1	13.5	24.6	15.3				
⁶³ Ni	L															
⁶⁵ Zn	L															
⁸⁹ Sr	L															
⁹⁵ Zr	L						0.07	0.09	0.5	1.1	0.08	0.01				
⁹⁵ Nb	L															
⁹⁹ Tc	L									11.7	12.9	25.9				
¹⁰³ Ru	L															
^{110m} Ag	L															
¹²⁵ Sb	L						50.9	43.8	74.5	149	132	109				
¹⁴⁴ Ce	L						2.7	4.1	3.1	2.4	3.2	2.2				
¹⁵² Eu	L															
¹⁵⁴ Eu	L															
¹⁵⁵ Eu	L															
Uranium*	L															
²³⁵ Np	L															
²³⁸ Pu	L															
²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	L															
²⁴¹ Pu	L															
²⁴¹ Am	L															
²⁴² Cm	L															
²⁴³⁺²⁴⁴ Cm	L															
Total α	A	5.9×10 ⁻¹⁰	7.4×10 ⁻¹¹	1.1×10 ⁻⁷	1.1×10 ⁻⁶		0.00011	0.00003	0.00001	0.00001	4×10 ⁻⁶	0.00001				
	L	0.49	0.37	0.67	0.51		0.51	0.54	0.64	0.48	0.71	0.72				
Total β	A**	0.0006	0.0003	0.0001	0.0001		0.00007	0.00005	0.00003	0.00003	0.00004	0.00007				
	L***	1180	714	765	1092		398	836	1260	1180	1160	1200				
Electrical energy generated (GW)		1.6	0.84	1.8	2.1		2.65	3.11	4.5	4.5	2.35	6.11	2.52	3.04	2.35	3.65

1) : airborne effluents
 2) : liquid effluents
 * : kg
 ** : particulate release
 *** : other than ³H

from : UNSCEAR 1982 Report, 1988 Report and 1993 Report

は10%が環境中に放出されたとすると、⁹⁹Tc 放出量は、1000TBq の桁に達すると推定される⁸⁾。このうち放出源として主要なものの一つが、再処理施設である。表6、7に国連レポートに報告された英国(セラフィールド)およびフランス(ラ・アーク)の再処理施設からの放射性気体ならびに液体廃棄物の環境への放出量の経年変化を示す^{14),15),16)}。ただし、1993年レポートにおいては廃棄物中の各種組成は、主要核種のみ記載となっている。セラフィールドからの放出は1981年前は貯蔵タンク中の過去の処理廃液の放出を反映して高く、またそれ以降は毎年の処理量に見合った量の放出があったとされ、放出率は0.44TBq/GW(t)、⁹⁹Tcの生成量の理論値6TBq/GW(t)の7%が環境放出されたと見積もられている⁸⁾。1993年のセラフィールド再処理施設からの放出実績は表8のとおりであり、⁹⁹Tcは廃棄物中における主要な構成成分となっている。セラフィールド周辺、とくに海域でのモニタリングは精力的に実施されており、表9に示したような海産生物中の核種分析結果を得ている。これらのモニタリング結果を基に主要核種について算出した決定集団における個人の預託実効線量は表10に示したように0.1mSvとされている。ここで、注意が必要なことは、得られた線量をもって一般公衆に対する線量限度1mSv・year⁻¹と比較することが必ずしも厳密には適当ではないということである。すなわち、モニタリング結果に基づく線量は、すでに環境中に存在する過去放出された放射性物質に起因する線量も含んでおり、環境中に既に存在する

表8 セラフィールド再処理施設からの液体廃棄物中の主要放射性核種放出量 (1993)

Radioactivity	Discharge limit (annual equivalent)	Discharges during 1993	
		TBq	% of limit
Total alpha	10	2.59	26
Total beta	500	97	9
Tririum	3500	2310	66
Carbon-14	4	2.03	51
Cobalt-60	8	0.087	1.1
Strontium-90	35	17.1	49
Zirconium-95 + Niobium-95	180	9.61	5.3
Technetium-99	10	6.06	61
Ruthenium-106	170	17.1	10
Iodine-129	0.4	0.161	40
Caesium-134	10	1.19	13
Caesium-137	110	21.9	20
Cerium-144	22	2.51	11
Plutonium alpha	7	1.33	19
Plutonium-241	170	37.5	22
Americium-241	3	0.873	29

"Ministry of Agriculture, Fisheries and Food Directorate of Fisheries Research: Radioactivity in Surface and Coastal Waters of British Isles, 1993, Aquatic Environment Monitoring Report, Number 42, Lowestoft, 1994."

放射性物質による被ばくに対しては「介入」の原則が適用されるべきであるからである。しかし、何かしらの「介入」措置を講じることを検討するためには、過去の放出に起因する線量を含めて、 $1\text{mSv} \cdot \text{year}^{-1}$ の線量と比較することは不合理ではないと考えられる。英国放射線防護庁(NRPB)は、様々な放射線源からの被ばくを被る場合、個々の線源に対して受ける最大線量を年間 0.3mSv に制限すべきことを勧告している。1993年のセラフィールド再処理施設からの放出量に基づいて計算した、その年に受ける線量を同表右欄に示したが、 0.04mSv と上に示した「アッパーバウンド」よりは低いことが確認されている¹⁷⁾。このうちに

⁹⁹Tc は5%寄与を示しており、現在も依然として線量評価上重要な放射性核種と位置付けされねばならないものの一つであるといわなければならない。

5. おわりに

近年、分析技術の向上に伴って環境レベルの⁹⁹Tcの検出が可能になってきている。また、未だに高価とはいえ、トレーサーとして遊離な^{95m}Tcを用いた実験も行える状況である。表5-2に示したように

表9 セラフィールド施設周辺海域での海産生物中の放射性核種濃度

Marine organisms	Mean radioactivity concentration(Bq kg ⁻¹ (wet))																	
	Total beta	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	¹⁴ C	⁶⁰ Co	⁶⁵ Zn	⁹⁰ Sr	⁹⁶ Zr	⁹⁵ Nb	⁹⁹ Tc	¹⁰⁶ Ru	¹⁰⁶ Ru	^{110m} Ag	¹²⁵ Sb	¹⁴⁴ Ce	¹⁴⁷ Pm	¹⁵⁴ Eu	¹⁵⁵ Eu
Fish																		
Cod	150 - 160	0.17 - 0.37	18 - 24	41	ND		0.044			0.13								
Plaice	130 - 150	0.04 - 0.33	14 - 23	76	ND		0.087			1.1								
Grey mullet	130	0.22	19															
Bass	140	0.13	17															
Dab	150	0.06	18															
Whiting	130	0.19	31															
Spurdog	100	ND	17															
Flounder	130	ND	28															
Shellfish																		
Crabs	100	0.08	5.4	76	0.61	ND	1.1	0.06	ND	3.4	0.08	4.9	15	0.1	0.11	1	ND	ND
Lobsters	290	0.1	9.4	130	0.49	0.13	0.42	ND	ND	390	ND	1.3	23	0.12	0.07	2.1	ND	ND
Winkles	280	ND	17	62	2.4	ND	6.7	2.6	3.1	38	ND	63	44	3	3.4	5.4	0.32	0.29
Mussels	160	0.03	5	NA	1.5	ND	NA	1	0.88	NA	0.07	29	0.97	1.7	0.98	NA	0.67	0.13
Limpets	340	ND	21	NA	1.3	ND	NA	5.1	5	NA	0.13	73	30	6.8	3.7	NA	1	ND
Whelks	240	ND	5.4	NA	3.9	ND	NA	ND	ND	NA	ND	48	75	1.7	ND	NA	ND	ND
Porphyra	110 - 160	-0.02	0.59	6	-0.28		-0.85	-1.5	-1.5	-0.99	-0.20	-52	-1.4	-1.9	-0.7			-0.04

"Ministry of Agriculture, Fisheries and Food Directorate of Fisheries Research: Radioactivity in Surface and Coastal Waters of the British Isles, 1993, Aquatic Environment Monitoring Report Number 42, Lowestoft, 1994."

表10 アイリッシュ海海産生物摂取によって受ける被ばく線量 (1993)

Exposed population	Consumption rate used in assessment kg year ⁻¹	Nuclide	Exposure*				Exposure due to discharges in 1993* (ICRP-60) mSv year ⁻¹
			ICRP-26		ICRP-60		
			DPUI** Sv Bq ⁻¹	mSv	DPUI** Sv Bq ⁻¹	mSv	
Consumers in local fishing community	Fish ^{a)}	⁹⁰ Sr	3.77×10^{-3}	0.004	3.22×10^{-3}	0.003	0.007
		¹⁰⁶ Ru	7.50×10^{-3}	0.005	1.10×10^{-2}	0.007	0.013
	Crustaceans ^{b)} Molluscs ^{c)}	^{110m} Ag	2.89×10^{-3}	0.002	3.00×10^{-3}	0.002	
		¹³⁷ Cs	1.30×10^{-2}	0.009	1.30×10^{-2}	0.009	0.004
		²³⁷ Np	5.40×10^{-7}	0.002	3.20×10^{-7}	0.001	0.002
		²³⁸ Pu	4.30×10^{-7}	0.007	2.60×10^{-7}	0.004	
		²³⁹⁺²⁴⁰ Pu	4.80×10^{-7}	0.034	2.80×10^{-7}	0.021	0.005 ^{d)}
		²⁴¹ Pu	9.30×10^{-9}	0.01	5.30×10^{-9}	0.006	0.003
		²⁴¹ Am	4.90×10^{-7}	0.077	2.90×10^{-7}	0.046	0.004
		¹⁴ C	5.60×10^{-10}		5.60×10^{-10}		0.002
⁹⁹ Tc	3.46×10^{-10}		6.70×10^{-10}		0.002		
	Total		0.15		0.1	0.04	

* : Gut transfer factor for Pu and Am of 0.0002 and 0.0005 in winkles and other species respectively;
 ** : Dose per unit intake by ingestion;
 a) : Cod : Plaice = 0.5 : 0.5
 b) : Crabs : Lobsters = 0.3 : 0.2
 c) : Winkles : other molluscs = 0.3 : 0.2
 d) : ²³⁸⁺²³⁹⁺²⁴⁰Pu

テクネチウムに関する環境パラメータには、多くの不確実性を含んでいることを確認し、合理的なパラメータを誘導し得る実験データや調査データを蓄積することが急務である。これらのデータを積み上げることによってバックエンド技術・施設の実施、稼働に際して有効なモニタリング技術の開発が可能となり、周辺住民の被ばく低減化にも寄与し得ると考えられる。一方、わが国においては様々な放射線源に対する線量目標値、あるいは「アッパーバウンド」の導入が十分ではない状況である。放射線防護に関する公衆の理解を深めるためにも、これらに関する研究は必要であると考えられる。

参考文献

- 1) 渡部輝久、鎌田 博：テクネチウムのラジオエコロジー、保健物理、20, 227-240(1985)
- 2) TILL, J. E., HOFFMAN, F. O. and DUNNING, Jr., D. E.: A new Look at ⁹⁹Tc Releases to the Atmosphere, Health Physics, 36, 21-30 (1979)
- 3) CODE OF FEDERAL REGULATIONS: Licensing and Regulatory Policy and Procedures for Environmental Protection, 10 CFR Part 51 (1980)
- 4) TILL, J. E.: Source Terms for Technetium-99 from Nuclear Fuel Cycle Facilities, EUR-10102-EN, p1-20, in: Desmet, G. and Myttenaere, C. (ed.), Technetium in the Environment, Proc. Seminar on the Behaviour of Technetium in the Environment held in Cadarache (FR) on 23-26 Oct 1984, ISBN 0-85334-421-3, Barking (UK), Elsevier Applied Science Publishers Ltd. (1986)
- 5) LEADERER, C. M. and SHIRLEY, V. S. (ed.): Table of Isotopes, 7th Edition, John Wiley & Sons, Inc., New York (1978)
- 6) KATCOFF, S.: Fission-Product Yields from U, Th and Pu, Nucleonics, 16(4), 79-85 (1958)
- 7) WEAST, R. C. and ASTLE, M. J. (ed.): CRC Handbook of Chemistry and Physics, 59th Edition, CRC Press Inc., Florida, (1978)
- 8) LUYKX, F.: Technetium Discharges into the Environment, EUR-10102-EN, p21-27, in: Desmet, G. and Myttenaere, C. (ed.), Technetium in the Environment, Proc. Seminar on the Behaviour of Technetium in the Environment held in Cadarache (FR) on 23-26 Oct 1984, ISBN 0-85334-421-3, Barking (UK), Elsevier Applied Science Publishers Ltd. (1986)
- 9) CROFF, A. G. and ALEXANDER, C. W.: Decay Characteristics of Once-Through LWR and LMFBR Spent Fuels, High-Level Wastes, and Fuel-Assembly Structural Material Wastes, ORNL/TM-7431(1980)
- 10) 国立天文台編：理科年表、第 64 冊、丸善（株）(1991)
- 11) ANDERS, E.: The Radiochemistry of Technetium, NAS-NS-3021(1960)
- 12) POURBAIX, M.: Atlas of Electrochemical Equilibria in Aqueous Solutions, Pergamon Press, Brussels (1966)
- 13) INTERNATIONAL COMMISSION ON RADIOLOGICAL PROTECTION: Age Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 2, ICRP Publication 67 (Annals of the ICRP Vol.23 No.3/4), Pergamon (1993)
- 14) UNITED NATIONS: Sources and Biological Effects, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1982 Report to the General Assembly, with annexes, United Nations sales publica-

tion E. 82. IX. 8, United Nations, New York, 1982.

- 15) UNITED NATIONS: Effects and Risks of Ionizing Radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1988 Report to the General Assembly, with annexes, United Nations sales publication E. 88. IX. 7, United Nations, New York, 1982
- 16) UNITED NATIONS: Sources and Effects of Ionizing Radiation, United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993 Report to the General Assembly, with annexes, United Nations sales publication E. 94. IX. 2, United Nations, New York, 1993.
- 17) MINISTRY OF AGRICULTURE, FISHERIES AND FOOD DIRECTORATE OF FISHERIES RESEARCH: Radioactivity in Surface and Coastal Waters of the British Isles, 1993, Aquatic Environment Monitoring Report No.42, MAFF Directorate of Fisheries Research, Lowestoft, 1994.

3. ^{99}Tc の土壌から農作物への移行と土壌中における挙動について

柳 沢 啓

放射線医学総合研究所

Transfer of ^{99}Tc from soil to crops and its behavior in soil

Kei Yanagisawa

Division of Radioecology

National Institute of Radiological Sciences

3609 Isozaki, Hitachinaka-shi,

Ibaraki, 311-12 Japan

ABSTRACT – The purpose of this paper is to summarize the transfer factors of technetium from soil to edible part of crops obtained by the author. Andosol (a typical Japanese soil) was mainly used in the experiments. Soil to plant transfer factors of Tc for leaf vegetables such as spinach and komatsuna (*Brassica rapa L.*) were considerably higher than those for edible parts of non-leaf vegetables (carrot, onion, sweet potato, tomato) and cereals (wheat, upland rice, paddy rice). In case of paddy rice, two types of soil (Andosol and Gray lowland soil) were used for the experiments. These transfer factors for hulled grains (brown rice) were much smaller than those for other crops obtained in our experiments. The transfer factors for brown rice obtained for Gray lowland soil were higher than those for Andosol. Since the values of transfer factors of Tc are highly dependent on the plant species, different transfer factor values should be established for plant groups categorized by the type of their edible parts, e. g. leaf vegetables, root vegetables, cereals etc. The low transfer factors observed in rice grain would be explained by the immobilization of Tc under reducing conditions in the flooded soil. The higher transfer factors observed in rice grain cultivated in Gray lowland soil than in Andosol can be explained by the higher Tc concentration in the soil solution of Gray lowland soil than that in Andosol. A preliminary incubation experiment on the soluble technetium suggested that the soluble technetium observed in the soil solution of rice plant was associated with organic matter dissolved in the water.

1. 緒言

テクネチウム-99は半減期が長く (2.1×10^5 年) 核分裂収率もセシウム-137およびストロンチウム-90と同程度である。テクネチウムは水中など通常の好氣的条件下では TcO_4^- の化学形が最も安定であると考えられており、この化学形は環境中で動きやすく、また、極めて植物に吸収され易い。被曝評価のために土壌から農作物可食部に移行する放射性核種の量を推定するパラメータとして移行係数が広く用いられている。これは農作物中の放射性核種濃度 (Bq/kg 生物重量) を栽培した土壌中の放射性核種濃度 (Bq/kg 乾燥重量) で除した値である。海外においては以前からテクネチウムの移行係数を求める研究が行われてきたが、その値は100以上から1以下まで幅が広い。これは土壌や実験条件が異なると得られる移行係数も異なるためである。IAEA によるテクネチウムの農作物一般に関する移行係数の値は5とされており¹⁾、これは放射性核種中最も高い値である。したがって土壌から農作物への移行に係わる挙動を解明し、正確な移行係数を求めることは極めて重要である。食品として利用される農作物を日本と欧米と比較した場合、日本の食習慣の特徴は、水田で栽培した米を多く利用することが挙げられる。水田は畑と異なり湛水に伴って土壌が還元化する性質がある。テクネチウムを TcO_4^- の化学形で水田土壌に添加した

Table-1 Soil to plant transfer factors of Tc
(from IAEA Technical Report
Series No. 364)

Cereals ⁺ (Grain)	0.73
Fodder	1.5
Grass	7.6
Pea, bean (Pod)	1.1
Turnip (Root)	9.5
Potato (Tuber)	0.05
Cabbage	1.4
Lettuce	16
Spinach	208

⁺Cereals were on a dry weight basis.

場合、水田土壌中では還元されて TcO_2 など水に不溶性の化学形に変わりイネに移行しにくくなることが予想される。実際に米への移行係数が低いものであれば IAEA の値をそのまま用いた場合過大評価になると考えられる。また、野菜は食品として利用する部位 (可食部) が葉、根、果実などのように異なっており正確な評価を行うためには、こうした点も考慮した各種農作物に固有の移行係数を求める必要がある。近年、欧米諸国において集められた各種農作物に関するテクネチウムの移行係数が出版されている²⁾が Table-1 のように移行係数の求められた農作物の種類は少ない。本報は、今までに放医研で得られた日本の土壌におけるテクネチウムの各種農作物への移行係数をこれらと比較するとともに、これと関連した各種条件下における土壌中のテクネチウムの挙動を述べたものである。

2. 実験方法の概要

移行係数を実験的に求めるためにトレーサー実験を行った。収穫物を得るまでに必要な農作物の栽培期間は通常2~3ヶ月程度の短いものから6ヶ月以上に及ぶものまでである。したがって、あまり半減期の短いトレーサーは不適當である。テクネチウムの場合、⁹⁹Tc および ^{95m}Tc が使用可能であるが ⁹⁹Tc は、多量に添加すると農作物の生育を阻害する毒性が顕著であることから ^{95m}Tc (半減期61日) を使用した。実験に使用した土壌は大部分関東地方に広く分布する黒ボク土 (Andosol) でありこの土は茨城県東海村で採取したものである。また、水稲の栽培実験には水田土壌として広く分布する茨城県水戸市で採取した灰色低地土も使用した。両者の化学的性質は Table-2 のようであった。各種農作物を栽培する際に土壌

Table-2 Chemical properties of soil used in the experiment

	Andosol	Gray lowland soil
CEC (me/100g of dry soil)	16.6	10.2
Total carbon (%)	4.3	2.4
pH	5.3	5.7

CEC: Cation exchange capacity

Table-3 Amount of chemical fertilizer, lime and ^{95m}Tc tracer mixed with one pot of soil³¹⁻⁶¹

Crops	Chemical fertilizer		Lime	$^{95m}\text{TcO}_4^-$
	N: P: K	g per pot		
Paddy rice	8:20:18	3g	-	1480 kBq
Upland rice	8:20:18	3g	-	320 kBq
Wheat	8:20:18	3g	-	93 kBq
Cabbage	14:10:13	3g	1g	93 kBq
Chinese cabbage	14:10:13	3g	1g	93 kBq
Spinach	14:10:13	3g	1g	93 kBq
Komatsuna	14:10:13	3g	1g	93 kBq
Carrot	14:10:13	3g	1g	93 kBq
Onion	14:10:13	3g	1g	93 kBq
Sweet potato	14:10:13	3g	1g	93 kBq
Tomato	14:10:13	3g	1g	93 kBq

に添加した肥料、石灰およびトレーサーを Table-3 に示す。これらを約2.8kgの土壤に添加してよく攪拌した後 1/5000a ワグネルポットに入れて農作物の苗を移植、あるいは播種した。実験に使用した農作物の種類と栽培期間および栽培条件などは Table-4 のようであった。農作物は収穫後、各器官に解体しポリエチレンバイアルに取り測定試料とした。土壤はよく攪拌した後、1部を採取して ^{95m}Tc 濃度を測定した。 ^{95m}Tc の測定はNaIオートウエル(Aloka ARC-300)を使用し、半減期の補正は実験開始時に合わせた。試料の乾燥重量は、凍結乾燥の後、秤量した。移行係数は前述のように、農作物中の放射性

Table-4 Conditions and cultivation period for various crops³¹⁻⁶¹

Crops	Precultivation period	Cultivation period	Conditions for cultivation	
			Day	Night
Paddy rice	20-30d	120d	28 °C (14h)	24 °C (10h)
Upland rice	20d	120d	28 °C (14h)	25 °C (10h)
Wheat	30d(21d at 5 °C)	120d	28 °C (14h)	24 °C (10h)
Cabbage	25d	60d	24 °C (12h)	20 °C (12h)
Chinese cabbage	25d	60d	24 °C (12h)	20 °C (12h)
Spinach	none(seed)	50d	24 °C (12h)	20 °C (12h)
Komatsuna	none(seed)	40d	24 °C (12h)	20 °C (12h)
Carrot	none(seed)	60d	28 °C (14h)	24 °C (10h)
Onion	25d	90d	24 °C (12h)	20 °C (12h)
Sweet potato	non(cutting)	90d	28 °C (14h)	24 °C (10h)
Tomato	30d	90d	28 °C (14h)	25 °C (10h)

Table-5 Transfer factors of Tc from soil to edible part of crops³⁾⁻⁶⁾

Crops	Transfer factor
Paddy rice	0.00005
Paddy rice (Glay lowland soil)	0.0006
Upland rice	0.02
Wheat	0.03
Cabbage	0.3
Chinese cabbage	0.1
Spinach	2.4
Komatsuna	1.1
Carrot	0.3
Onion	0.05
Sweet potato	0.03
Tomato	0.03

核種濃度 (Bq kg⁻¹ f.w.) / 土壌中の放射性核種濃度 (Bq kg⁻¹ d.w.) と定義されているが、土壌中の ^{95m}Tc の濃度は実験開始時と比べ、実験終了時には低下していると考えられる。したがって、移行係数を計算する際の土壌中の Tc 濃度は実験開始時と終了時の平均値とした。また、植物体中の Tc 濃度はイネ、ムギのように収穫時に枯れるものについては乾物中の Tc 濃度とした。土壌溶液中の ^{95m}Tc の測定は以下のような方法で行った。すなわちポーラスカップを土壌表面から約10 cm の深さまで土壌に挿入して土壌溶液を適時シリンジで吸引採取しこれらをオートウエルで測定した。湛水状態の土壌中の酸化還元電位は土壌に挿入した白金電極を用いて適時測定した。

3. 結果と考察

(1) テクネチウムの土壌から各種農作物への移行係数

今までに放医研で得られたテクネチウムの土壌から各種野可食部への移行係数を Table-5 に示す³⁾⁻⁶⁾。これらは栽培した各農作物から得られた試料のうち可食部と考えられる部分の ^{95m}Tc 濃度の平均値から算出したものである。したがってハクサイおよびキャベツの場合は、結球していない外側の葉は除き、コマツナ、ハウレンソウにおいては子葉とその後展開した古い葉数枚は、収穫時には黄化していたために移行係数の計算からは除いた。これらの移行係数を比較すると水稻玄米への移行係数が他の農作物と比較して著しく低かった。これは IAEA による移行係数(5)¹⁾及び IAEA-IUR による穀類の値(0.73)²⁾と比較すると著しく低い値であり、移行係数として5あるいは0.73を使用した場合、日本のように米の消費量の多い食生活では過大評価となると考えられる。これに対し、ハウレンソウやコマツナのように緑色の葉を食品として利用する農作物の場合は得られた移行係数の値は IAEA の値(5)とほぼ同等であった。ハウレンソウの移行係数を IAEA-IUR の値(208)と比較すると著者らの値は著しく低い値である。同様にキャベツの値(1.4)について著者らの値(0.3)と比較するとハウレンソウと同様、著者らの求めた値の法が低かった。こうした移行係数の違いは栽培期間や栽培条件および土壌の性質の違いによると考えられる。したがって移行係数を実験的に求める際には各種実験条件や対象となる農作物の性質が移行係数にどのような影響を及ぼすか明らかにする必要がある。

(2) テクネチウムの吸収と農作物体内における挙動

ハウレンソウやコマツナと同じように葉を可食部として利用する野菜であってもキャベツ、ハクサイのような結球野菜では、表のようにハウレンソウやコマツナと比較して低い移行係数であった。キャベツ、ハクサイのような結球野菜の可食部の葉がハウレンソウ、コマツナのような非結球野菜の葉と異なる点として葉が結球しているために水の蒸散が少ない事が推察される。このことはまた土壌から吸収したテクネチウムが葉に移行する際には蒸散流が大きな役割を果していることを示唆している。この点を確かめるために以下のような実験を行った。

すなわち発芽後約1ヶ月間水耕栽培したコマツナを2区に分け、一方は展開した新しい葉1枚の葉身をビニール袋で包み蒸散を阻害する処理を行った。他の一方はそのまま何もせず対照とした。^{95m}Tcを添加した水耕液に両者を通し、24時間人工気象装置内で栽培した後蒸散阻害処理を行った葉と対照のコマツナと同じ葉位の葉に移行した^{95m}Tcを葉の^{95m}Tc濃度を測定し比較した。対照を100とした濃度比で両者を比較したところTable-6のように蒸散を阻害することによって^{95m}Tcの葉への移行が低下した。これらの結果は根で吸収したテクネチウムは主に蒸散流によって植物体内の導管を経由して葉に移行する事を示していると考えられる。

こうして葉に蓄積されたテクネチウムは植物体内で、どう挙動しているのであろうか。植物体内では先に述べたような根で吸収した水と栄養塩類を植物の各器官に輸送する導管系と、主として葉で合成された光合成産物等を他の器官へ輸送する篩管系が物質の移行経路として機能している。盛んに光合成を行う葉以外の器官は展開不十分な葉も含め主に篩管系によって葉から光合成産物の供給を受け生長する。葉から各器官への光合成産物の転流は同時に葉から他器官への塩類の輸送も行っている。こうした点から本研究で得られたテクネチウムの移行係数を比較すると子実、果実、イモ、根などを可食部とする農作物はいずれも移行係数が低く、タマネギのように可食部が葉であっても貯蔵器官としての葉は、トマトの果実やサツマイモのイモと殆ど変わらない値であった。

Table-6 Effect of the low transpiration treatment on the accumulation of ^{95m}Tc from nutrient solution to komatsuna leaves

Low transpiration treatment	Control
10.1	100.0

The value was calculated relative to control

Table-7 Transfer factors of ^{95m}Tc from soil to various organs of tomato⁴⁾

Organ	Transfer factor
leaf(new)	57
leaf(old)	135
red fruit	0.3
green fruit	0.1
stem(upper part)	4.1
stem(under part)	5.2

Based on a dry weight basis.

テクネチウムの植物体内における分布を比較するために、トマトにおける葉と各器官の移行係数をTable-7に示す。表のように各種農作物における可食部の移行係数と同様、葉の移行係数は著しく高い。また、同じ葉であっても古い葉の方が新しい葉よりも移行係数は高く、経時的にテクネチウムを蓄積していることが示唆される。これらの結果から、植物体に一度に吸収されたテクネチウムは主として葉に蓄積され葉から他器官への再転流は小さいと考えられる。農作物の可食部は根、茎、葉、果実、種子など各種器官が食品として利用されており植物個体に対するその生理的な役割や生活史における生育段階も異なっている。したがって、Table-5に示されたように農作物毎に移行係数が異なるのは当然であって土壤から農作物可食部への正確な移行係数を得るためには各種農作物毎、あるいは葉菜、根菜、果菜のように野菜の種類毎に移行係数を求めていく必要がある。

(3) 水田土壌中におけるテクネチウム挙動

テクネチウムの移行係数は農作物の種類に応じてその値が異なると考えられるが、栽培条件の相違が移行係数に及ぼす影響について水稲と陸稲、及び小麦について比較してみよう。先にTable-5で示したよ

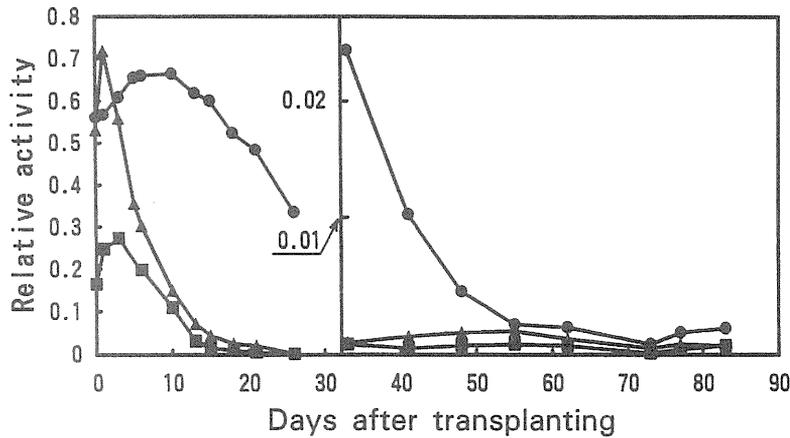


Fig. 1 Changes in the activity of ^{95m}Tc in soil solution as a function of time.

- ▲ : Soil solution collected from the flooded soil.
- : Surface water collected from the flooded soil.
- : Soil solution collected from non flooded soil.

Note: Since the ^{95m}Tc activities in soil solutions collected after 30 days were very low, scale of the Y axis is changed.

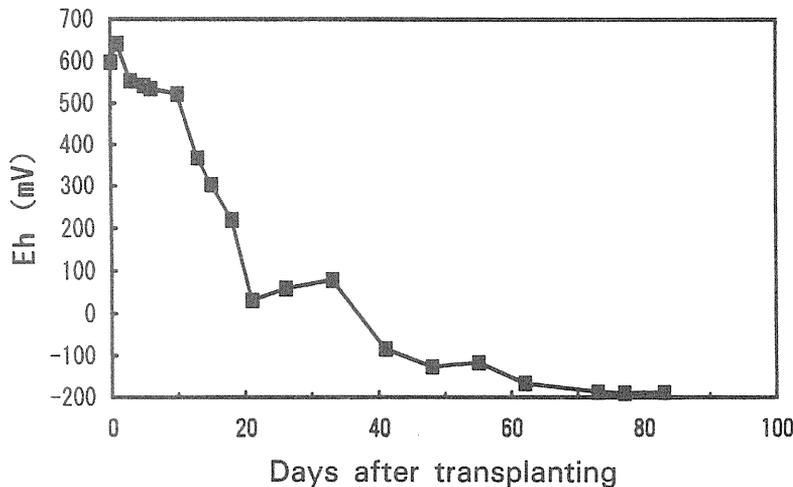


Fig. 2 Changes of the Eh values measured in the pots with rice plant as a function of time.

うに土壌から水稲への移行係数は他の農作物と比較して著しく低い傾向がある。これに対し陸稲および小麦の移行係数は野菜と比較すると低い値であるが両者の値はほぼ同様であった。水稲の移行係数が陸稲および小麦と比較して低いのは栽培期間を通じて湛水を行う事に関連していることが示唆される。陸稲と水稲を栽培した際の土壌溶液中の ^{95m}Tc 濃度の経時変化と水稲栽培土における酸化還元電位の経時変化を Fig. 1 および Fig. 2 に示す⁵⁾。Fig. 1 のように栽培開始後湛水した水稲土壌溶液中のテクネチウム濃度は急速に低下した。これに対し湛水しなかった陸稲栽培土の土壌溶液では ^{95m}Tc 濃度が徐々に低下するものの、栽培期間を通じて水稲栽培土の土壌溶液と比較して高濃度であった。水稲土壌中の酸化還元電位も栽培開始後著しく低下した。これらの変化から、水稲栽培土に添加した $^{95m}\text{TcO}_4^-$ は湛水後、早い時期に Eh の低下に伴って大部分が土壌の固相に吸着または水に溶けにくい化学形に変化したものと思われる。このように水稲が生育している土壌溶

液中の Tc 濃度が低下することにより水稲の移行係数が低くなるのであろう。

土壌溶液中の Tc の濃度と Eh の低下は Tc (VII) として土壌に添加したテクネチウムが速やかに水に不溶な Tc (IV) などに变化して土壌構成成分と結合したことが推察される。Mousny および Myttenaere⁷⁾ はテクネチウムの土壌から植物への移行係数は畑状態においても徐々に低下し、その主な原因は Tc の土壌による固定であると述べている。したがって土壌による Tc の固定が湛水条件下においては畑状態よりも著しく早く進むとも考えられる。土壌に固定された Tc の化学形は TcO_2 又は Tc と土壌有機物の結合体と考えられる (Van Loon et al.⁸⁾, Sekine et al.⁹⁾) が Henrot¹⁰⁾ らは土壌によるテクネチウムの固定の可能性として微生物の作用に着目し微生物による Tc の取り込みを嫌気的な条件と好気的な条件を比較した。その結果微生物による Tc の固定は嫌気的な条件下で著しく高くなることを報告している。

湛水条件下では土壌の還元化に伴って各種作用により土壌にテクネチウムが固定され、イネに移行しにくい化学形に変化することが推測される。このように湛水条件下でイネを栽培すると移行係数が低くなることは明らかであるが、これはあらゆる土壌について共通した現象であろうか。また、湛水条件下であれば移行係数はほぼ同じ値になるのであろうか。移行係数を異なる土壌を用いて求めた場合、Table-5のように灰色低地土と黒ボク土を比較すると灰色低地土の方が高い値を示した⁶⁾。栽培期間中適時採取した土壌溶液中の^{95m}Tc濃度の変化はFig. 3のように灰色低地土の方が高かった。こ

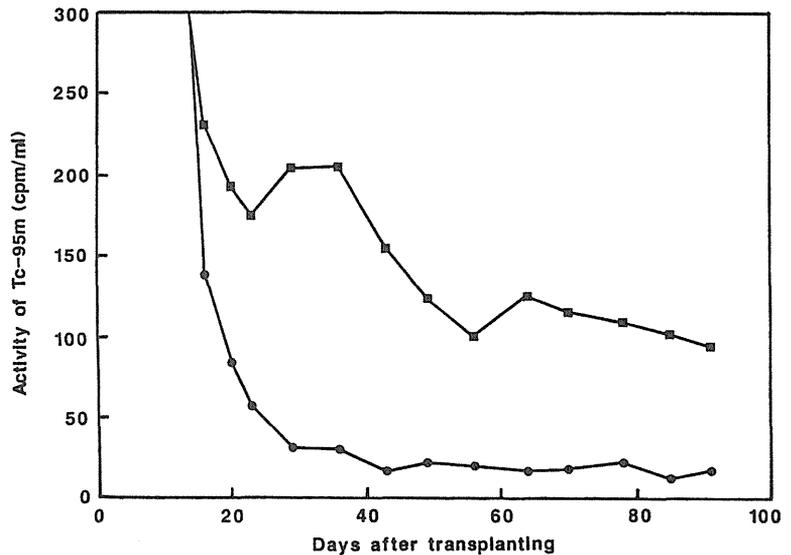


Fig. 3 Changes in the activity of ^{95m}Tc in soil solution as a function of time.
 ■ : Soil solution collected from Gray lowland soil.
 ● : Soil solution collected from Andosol.

のことは、イネが土壌溶液中に存在する水溶性のテクネチウムを吸収し、これがイネ、玄米に移行していると考えれば黒ボク土と比較して灰色低地土で移行係数が高くなる事と一致する。一方この期間のEhの変化は黒ボク土よりも灰色低地土の方が若干低く、土壌溶液中の水溶性テクネチウム濃度の変化と土壌のEhの低下が必ずしも一致しなかった。従って黒ボク土と灰色低地土には、同じように還元化の進んだ条件下であっても土壌溶液中の水溶性テクネチウムの生成に係わる異なった性質があると考えられる。

土壌に添加したテクネチウムが土壌に固定される理由としては土壌有機物との結合、TcO₂などへの変化に伴う沈殿、及び微生物の作用による固定などが考えられる。Van Loon⁸⁾によれば好気的な条件下においても土壌中には水溶性の有機物とテクネチウムの結合体が生成する。土壌有機物とテクネチウムの結合体の生成が還元条件下で促進されるものと考えれば、黒ボク土と灰色低地土に見いだされた水溶性テクネチウムは土壌有機物とテクネチウムの結合体である可能性が大きい。現在、この点について著者らは研究を進めておりまだ十分とは言えないが予備実験の結果、以下のような事が明らかになりつつある。

(4) 水田土壌溶液中の水溶性テクネチウムの化学形

土壌溶液中の有機物をVan Loonら⁸⁾の方法に従ってゲル濾過クロマトグラフィーで分析したところFig. 4に示すように黒ボク土と比較して灰色低地土の水溶性有機物の濃度が著しく高かった。遠心管(50ml)に灰色低地土を20g、^{95m}TcO₄⁻、グルコース10mgおよび水40mgを加えて2ヶ月間培養した後、水溶性のテクネチウムを遠心分離して同じようにゲル濾過クロマトグラフィーで分析し、各フラクションの^{95m}Tc濃度を紫外線吸収チャートと対応させるとFig. 5のようであった。図のような水溶性テクネチウムは水溶性土壌有機物と同じ挙動を示し無機体のTcO₄のピークは検出されなかった。これらの結果は、湛水土壌の土壌溶液中に存在するテクネチウムは水溶性土壌有機物との結合体として存在することを示唆するものであり、黒ボク土と比較して灰色低地土の方が土壌溶液中のテクネチウム濃度が高いのはテクネチウムと結合する水溶性有機物の濃度が高いことによると考えられる。

テクネチウムと土壌有機物との結合体の生成は還元によって促進されると考えられているが結合の際の

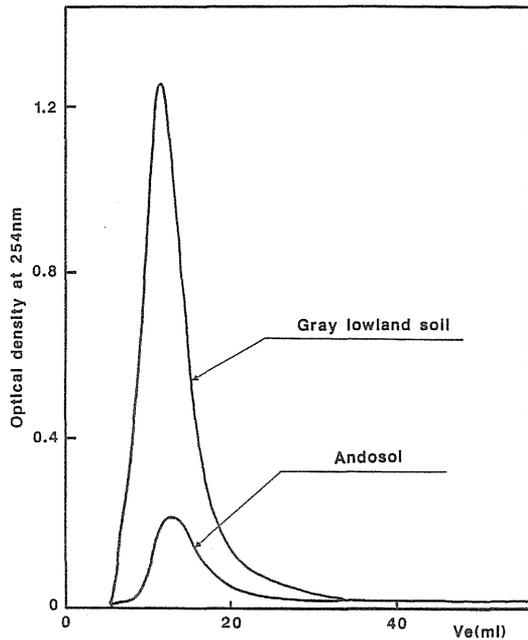


Fig. 4 Gel chromatogram (G-25) of soluble soil organic matter extracted from Andosol and Gray lowland soil.
(ϕ : 1cm, column length: 10cm, eluent: NaCl 10^{-1} M, flow rate: 0.4 ml/min)

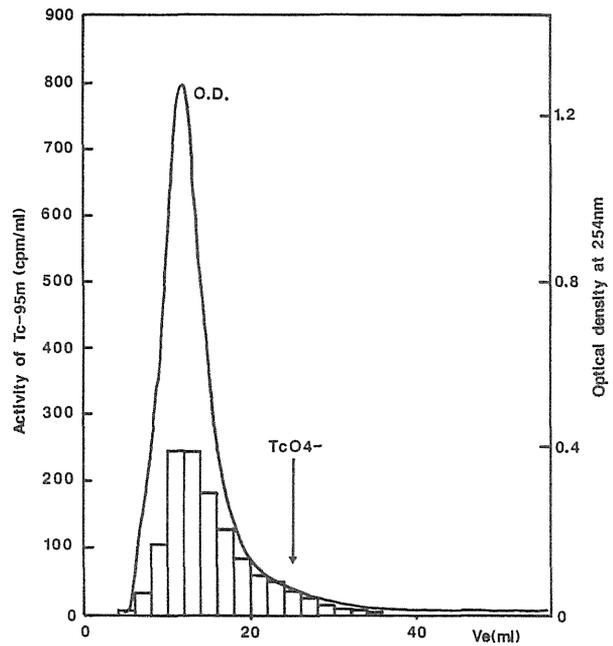


Fig. 5 Gel chromatogram (G-25) of soluble ^{95m}Tc -soil organic matter complex.
(ϕ : 1cm, column length: 10cm, eluent: NaCl 10^{-1} M, flow rate: 0.4 ml/min)

テクネチウムの化学形について関根ら⁹⁾は3価であると報告している。水田土壌中におけるテクネチウムの挙動を考える場合、テクネチウムと土壌有機物との結合体のイネへの移行を考慮しなければならないが、このような結合体のテクネチウムを土壌あるいは土壌溶液からイネがどのように吸収するかという点については殆ど未知である。Sheppardら¹¹⁾はイネの根が根圏に放出する酸素に着目し、根と接する土壌に固定されたテクネチウムが稲の根から放出される酸素により酸化されて溶出し、イネに吸収される経路について実験を行ったが、必ずしも明確な結果は得られなかった。先にも述べたようにテクネチウムと土壌有機物との結合体は湛水を行わない畑状態においても徐々に生成されていることが分かっており、その性質と挙動を明らかにすることは土壌-農作物系のみならず環境中におけるテクネチウムの挙動を解明する際大きな手掛かりになると考えられる。

4. おわりに

土壌から農作物可食部への移行係数として現在出版されているもののうち最も新しいものはIAEA-IUR²⁾による移行係数である。これは以前IAEA¹⁾から出版された値と比較すれば農作物毎の値が示されており種類が多くなっている。しかしながら現実には食品として利用されている農作物の種類と比較すればその種類は著しく少ない。テクネチウムは有機物との反応など複雑な化学的性質のために農作物の種類や土壌、および栽培方法が異なると得られる移行係数の変動が大きくなることが予想される。したがってテクネチウムの土壌から農作物への移行係数を正確なものにするためには多くの種類の農作物や土壌を用いた実験を行わなければならない、その組み合わせは極めて多くなる。こうした問題を克服し研究対象を絞り込むためにも土壌中や農作物体内におけるテクネチウムの挙動メカニズムを明らかにすることが不可欠である。今後、こうした分野の研究が進められていることが期待される。

参考文献

- 1) IAEA: Generic Models and Parameters for Assessing the Environmental Transfer of Radionuclides from Routine Release, IAEA Safety Series No. 57, IAEA, Vienna 1982, p. 64.
- 2) IAEA: Handbook of Parameter Values for the Prediction of Radionuclide Transfer in Temperate Environments, IAEA Technical Report Series No. 364, IAEA, Vienna 1994, p. 20.
- 3) K. Yanagisawa, Y. Muramatsu and H. Kamada: Radioisotopes, 41, 397–402 (1992) .
- 4) K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: Radiochimica Acta, 63, 83–86 (1993).
- 5) K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: J. Radiat. Res., 36, 171–178 (1995).
- 6) K. Yanagisawa and Y. Muramatsu: J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 197, 203–210 (1995).
- 7) J. M. Mousny and C. Myttenaere: Plant and Soil, 61, 403–412 (1981).
- 8) L. Van Loon, M. Stalmans, A. Maes, A. Cremers and M. Cogneau: In “Technetium in the Environment”, Eds. G. Desmet and C. Myttenaere, pp. 143–153, Elsevier Applied Science Publishers, London 1986.
- 9) T. Sekine, A. Watanabe, K. Yoshihara and J. I. Kim: Radiochimica Acta, 63, 87–90 (1993)
- 10) J. Henrot: Health Phys., 57, 239–245 (1989).
- 11) S. C. Sheppard and W. G. Evenden: J. Environ. Qual., 20, 738–744 (1991).

1. 日本人における^{239,240}Puの体内分布

久松俊一

秋田大学医学部

^{239,240}Pu distribution in the Japanese

HISAMATSU Shun'ichi

Department of Public Health, Akita University School of Medicine

1-1-1 Hondo, Akita 010, Japan

Abstract—Distribution of ^{239,240}Pu and ²⁴¹Am in the Japanese were reviewed, and compared with those estimated with ICRP metabolic models. Inhalation and ingestion amount of these nuclides were calculated from simple models, and used as input to the ICRP metabolic models. ICRP-30 model or the combination of ICRP-66 lung model and ICRP-67 metabolic model were used for the calculation. The estimated ^{239,240}Pu concentrations in lung, liver, skeleton, kidney and muscle by using of the combination of ICRP-66 and 67 models agreed well with the measured data in most cases. The contribution of ingestion intake to body burden of ^{239,240}Pu was estimated to be 12% with 5×10^{-4} as f_1 value. The combination of ICRP-66 and 67 model could described fairly well the organ burden of ²⁴¹Am measured in Akita and Niigata district. The ²⁴¹Am grown from ²⁴¹Pu in the human body was calculated to contribute 90% of the burden.

1. はじめに

生体中の Pu、および Am などの超ウラン元素の代謝は戦後精力的に研究されてきた。多くの動物実験が行われてきたが、それに比較して、人体に関する知見は豊富なものではない。それでも、職業被爆者や 1940年代の人体実験についてのデータがあり、これらの十分とは言えない結果を中心とし、動物実験のデータを参考にして人体代謝モデルが作られてきた。人体のデータに関しては、これらの他に大気内核実験によって世界中にばらまかれたいわゆるフォールアウト Pu を用いての研究が行われてきている。日本での人体中 Pu の体内分布の測定はほとんど全てがフォールアウト Pu を対象として行われてきた。これは、現在では²³⁹Pu を使った人体実験は考えられないことと、幸いにして職業被爆者が少ないためである。フォールアウト Pu を用いての人体に関する研究の特徴は以下のようなになる。

1. 被曝形態が長期の極低レベル被曝である。
2. 経肺、経口摂取が混在している。

3. 被曝量の正確な推定が困難である。
4. 人体組織中での濃度は低く、必ずしも容易に測定できるレベルではない。
5. 男女両性がそろえやすい。

この中で、3. の被曝量の推定が最大の問題点となるが、まったく見当がつかないわけではなく、適当な環境モデルを適用することにより、平均的な値は推定できる。ここでは、まず、日本における測定値をまとめ、さらに、被曝量の推定法とそれを基にした代謝モデルによる推定値との比較を行う。

2. 日本における実測データ

(1) 測定について

日本における人体中 $^{239,240}\text{Pu}$ 実測値は1970年代より報告されているが、初期のデータはそれ以後の測定値と一致しない場合が見られる。1980年代では放射化学分析に際してトレーサーが使用されるようになり、分析値は安定していく (Hisamatsu 1990, Kawamura 1983, Takizawa 1987)。トレーサーとしては α -放射体の ^{236}Pu や ^{242}Pu が用いられるが、娘核種の妨害や放出 α 線のエネルギーといった問題から ^{242}Pu が好ましい。 ^{242}Pu の α 線エネルギーは $^{239,240}\text{Pu}$ よりも低いため、過剰に加えても、妨害とならない。一方、 ^{236}Pu の α -線エネルギーは $^{239,240}\text{Pu}$ より高く、低エネルギー側へのテイリングがあるため添加する量を $^{239,240}\text{Pu}$ と同レベルとする必要はある。このようなトレーサーの使用に加え、最近では NIST 標準試料として人体組織試料が入手可能であり、フォールアウトレベルの分析値チェックに使用できる。

また、人体組織中の $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は低レベルであるため、計数誤差が問題となり、検出限界以下の結果となりやすい。検出限界以下のデータの扱いは定まっていない。検出限界以下ならばデータは捨ててしまうのがよからうと思えるのだが、そうすると高濃度のデータだけが使用されることとなる。 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度レベルにはある程度のばらつきがあり、検出限界以下のデータを捨ててしまうと、ばらつきの範囲の中から低い方のデータを捨て、高い方のデータだけで平均を取るような具合になる。このため、実際よりも濃度が高い方へずれてしまう危険性が生じる。従って、検出限界以下とならないように、混合試料を作って分析試料量を増す、あるいは長時間測定を行ってなんとか検出限界以上へ持ってくることを望まれる。

また、どうしても検出限界以下のデータが出てしまった場合の扱いとして、これと言えない方法はないが、便方としては以下のような方法もある。即ち、検出限界以下のデータはメディアン値の位置決めには用いるが、メディアン値の算出には用いない。もし、メディアン算出用のデータに検出限界以下のデータが掛かってしまった場合には次のデータを用いる (McInroy 1979, Takizawa 1987)。

(2) 実測値のまとめ

ここではトレーサーが使用されるようになってからの文献値の中から肺、肝、骨についての値を Table-1A に、それ以外の組織を Table-1B にまとめた。Kawamura の測定は1970年の死亡例について行われているが、他の対象例は1980-84年に死亡しており、単純な比較はできない。また、試料採取地点も異なるが、東京と新潟・秋田では Pu 降下量に 2 倍程度の差があると考えられる。

国外では、ロスアラモス国立研究所で1959年以来1100人からの5000以上の組織を分析している (Fox 1980, McInroy 1979, McInroy 1981)。これを筆頭として、各国において人体中のフォールアウト Pu 分析結果が報告されている。(Bunzl 1980, Fisenne 1980, Mussalo 1980, Popplewell 1985)。これらのデータを Table-2 にまとめた。ロスアラモス研究所の分析試料採取地はロスアラモスの他、ニューメキ

Table – 1A Geometric mean concentrations of $^{239,240}\text{Pu}$ in human tissue samples collected in Japan

Reference	Location	Age at death	Year at death	$^{239,240}\text{Pu}$ (mBq/kg – wet)		
				Lung	Liver	Bone
Kawamura 1983	Tokyo	21-69	1970	7.8/1.4 (10)	17/1.9 (10)	34/2.0 * (5)
Igarashi 1987	Tokyo	-	1980-82	2/2.2 (3)	15/3.0 (16)	7/2.2 ** (6)
Takizawa 1987	Niigata	39-81	1980-84	4.4/2.1 (56)	21/2.5 (56)	3.4/1.5 † (12)
	Akita					12/2.0 †† (4)
Hisamatsu 1990	Niigata	24-81	1981-84	3.6/2.1 (12)	27/2.3 (19)	3.8/1.5 † (11)
	Akita					

Geometric mean/geometric SD (number of samples)

*Vetebrae **rib and femur †sternum ††vertebra

Table – 1B Geometric mean concentrations of $^{239,240}\text{Pu}$ in human tissue samples collected in Japan

Reference	Location	Age at death	Year at death	$^{239,240}\text{Pu}$ (mBq/kg – wet)		
				Spleen	Kidney	Muscle
Igarashi 1987	Tokyo	-	1980-82	1.3 (1)	0.44 (1)	0.07 (1)
Takizawa 1987	Niigata	39-81	1980-84	4.4/2.3 (5)	1.3/1.6 (3)	
	Akita					
Hisamatsu 1990	Niigata	24-81	1981-84	3.2/1.2 (2)	0.75/1.1 (5)	0.4/1.1 (2)
	Akita					

Geometric mean/geometric SD (number of samples)

シコ、コロラド、ジョージア、イリノイ、ペンシルバニアとアメリカの広い範囲をカバーしている。

人体組織中の Pu 濃度は概ね対数正規分布を取ることが各国の測定結果から判明している。このため、代表値としては幾何平均値が適当と考えられ、国内のデータに関しては幾何平均値を用いた。また、ある程度試料数が増えてくると幾何平均値とメデイアン値はほぼ一致する。ただ、肝に関しては 2 峰性と思われる、低い濃度を示す群が認められている。国外のデータではメデイアンでの報告例が多いため、Table-2 ではメデイアン値を用いているが、メデイアンと幾何平均値の差は少ないと考えられる。前述のように各地における Pu 降下量が異なると思われるため、単純な比較はできないのであるが、Table-1, 2 を通して組織中 Pu 濃度は比較的よく一致していると言える。

さらに、超ウラン元素の中で Pu に次いで重要な ^{241}Am について述べる。フォールアウト Pu には放射能比にして $^{239,240}\text{Pu}$ の 10 数倍の ^{241}Pu が含まれている。 ^{241}Pu は β 崩壊を行い、 ^{241}Am となるため、現在の環境中には少なからぬ ^{241}Am が存在する。また、少量ではあるが、核爆弾そのものにも含まれていると見られる。人体中のフォールアウト ^{241}Am 定量の報告は極めて少なく、国内では Hisamatsu(1990)、国外では Bennett(1978) の測定例のみである。Bennett によると、1970-74年に死亡した40-70歳の椎骨を分析した結果、6つの混合試料の平均値で $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比は 0.22 ± 0.04 であった。一方、Hisamatsu のデータを Table-3 にまとめたが、これに見られるように1981-84年死亡例で $^{239,240}\text{Pu}$ に対する放射能比は、腎を除いて、0.11-0.37 である。

Table-2 Median ^{239,240}Pu concentration in human tissue samples collected in oversea countries

Reference	Location	Age at death	Year at death	^{239,240} Pu(mBq/kg-wet)		
				Lung	Liver	Bone
McInroy 1981	U. S. A		1970	14. (32)	38. (31)	10. (28) *
			1971	7.0(73)	30. (72)	13. (29) *
			1972	10. (79)	30. (81)	17. (58) *
			1973	6.3(56)	26. (56)	8.5(36) *
			1974	5.2(141)	27. (139)	7.0(79) *
			1975	4.1(210)	26. (214)	7.0(90) *
			1976	3.3(54)	20. (51)	8.1(37) *
	1977	5.9(27)	13. (28)	4.8(22) *		
Fisenne 1980	New York	15-82	1973-74	2.4(52)	14. (50)	9.3(45) *
Bunzl 1983	Munich	41-79	1980-81	1.0(29)	20. (28)	3.4(30) *
Popplewell 1985	U. K.	>50	1980-84	2.2(30)	26. (29)	5.1(31) *
Mussalo1980 †	South Finland	20-75	1976-77	4.5(25)	14. (41)	17. (26) **

(number of samples)

*Vertebrae **rib †arithmetic mean value

Table-3 Geometric mean concentrations of ²⁴¹Am in human tissue samples collected in Niigata and Akita during 1981-84

Tussue	n	²⁴¹ Am	
		(mBq/kg-wet)	²⁴¹ Am/ ^{239,240} Pu
Lung	9	0.81 / 1.5	0.14 / 1.3
Liver	19	3.4 / 2.7	0.11 / 1.6
Spleen	2	0.49 / 2.7	0.16 / 2.2
Kidney	5	0.52 / 2.2	0.96 / 1.5
Muscle	2	0.12 / 1.4	0.34 /
Sternum	11	1.4 / 1.4	0.37 / 1.7

Geometric mean/geometric SD

3. ICRP モデルの検証

ICRP は ALI を設定するために代表的な放射性核種について代謝モデルを作製してきた。超ウラン元素については ICRP-19、30、48、56、67 で代謝モデルが示されている。また、肺モデルは長く ICRP-30 肺モデルが使用されてきたが、最近、ICRP-66 で示された新モデルに変わっている。これらのモデルをフォールアウト Pu、Am の人体組織データに当てはめ、モデルの検証を試みた。使用したモデルは ICRP-30 代謝モデル、ICRP-66 肺モデル・ICRP-67 代謝モデルである。なお、ICRP-48 代謝モデルは ICRP-30 のモデルのパラメーターに変更を加えただけであり、同様に検討したが、後述するように必ずしも実測値との一致性は良くない。

(1) 摂取量の推定

フォールアウト Pu、Am の摂取経路として、経肺呼吸と経口摂取が考えられる。ここではまず、経肺吸収量の推定について述べ、次に、経口摂取量に進む。

経肺吸収量を求めるためには空気中の Pu 濃度が必要であり、フォールアウト核種降下のピークであった1963-64年のデータが重要である。しかし、残念ながら、日本においては適当なデータが見当たらないため、降下量と空気中濃度の相関が良いことを利用して、降下量から空気中濃度を算出した。降下量のデータは東京でのまとまった測定値があり (Miyake 1979, Katsuragi 1982)、空気中濃度/降下量比は Bennett の値を用いた(1974)。新潟、秋田での Pu 降下量のデータは存在しないため、秋田で測定されていた ^{90}Sr 降下量 (Katsuragi 1965, 1983) より東京での $^{239,240}\text{Pu}/^{90}\text{Sr}$ 比を用いて算出した。空気中 Pu の溶解性は Class S(Y), AMAD は $0.4\ \mu\text{m}$ と仮定した。ICRP-30 モデルの場合は 1 日当たりの呼吸量は 20m^3 とし、ICRP-66 モデルでは通常呼吸者を用い、睡眠、休息、軽労働の時間を 1 日当たり各々 8 時間とした。

Pu の場合、経口摂取は寄与が少ないとして無視される傾向がある。これは、Pu の経口摂取量自体が欧米では少ないためである。しかし、日本では食生活の違いから、降下量当たりの摂取量はアメリカの10数倍となり、その原因は、日本人が陸上の動植物に比較して Pu 濃度が高い海産物を多食するためであることが報告されている (Hisamatsu 1986, 1987)。東京についての経口摂取量は前年の降下量とその年の降下量を説明変数とした重回帰式が得られている。秋田市の経口摂取量は同じ重回帰係数を推定降下量に当てはめて求めた。

^{241}Am の体内被曝量の推定のためには ^{241}Am だけではなく、親核種である ^{241}Pu の摂取量も必要である。 $^{241}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比は1959-70年に HASL が成層圏大気を採取して求めており(1973)、Bennett はこのデータと大気輸送モデルを組み合わせて、大気中の Pu 同位体および ^{241}Am 濃度を求めた(1978)。ここでは、Bennett の $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ および $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比を用いて、大気中の ^{241}Pu 、 ^{241}Am 濃度を算出した。 ^{241}Pu 経口摂取量も Bennett の $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ より計算した。 ^{241}Am 経口摂取量は Bennett によるニューヨークのデータ (Bennett 1978) と著者らによる秋田市でのデータ (Hisamatsu 1990) が存在するが、データが少ないため、降下量との関連も不明である。そこで、 $^{239,240}\text{Pu}$ 経口摂取量に Bennett の $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比を掛けて ^{241}Am 経口摂取量とした。秋田市の実測値とは余り一致せず、推定値は約1桁低い。しかし、他に適当な方法がないこと、および、Am の場合は体内で ^{241}Pu から生長した分が大部分を占めるため、経口摂取の寄与は少ないことを考慮し、そのまま採用した。

(2) 代謝モデル計算

計算には MS-DOS PC を用い、プログラムは全て TURBO Pascal で記述した。ICRP-66 肺モデルではコーカサス人種についてのみ細かいパラメーターまで記述されており、その他の人種についてはパラメーターの補正が必要となる。このため、コーカサス人種の値を身長についての2次式で近似し、標準日本人の身長と組み合わせて、計算用のパラメーターとした。ICRP-66 肺モデルでは身体状況に合わせた呼吸パラメーターを用いるが、前述の様に身体状況としては、睡眠、休息、軽労働が各々8時間として計算した。この仮定では1日当たりの呼吸量は 18.8m^3 となる。

経口摂取された Pu の腸管吸収率 (f_1) は 5×10^{-4} とした。これは ICRP-67 で示された値であるが、ICRP がこの値に落ち着いたのは最近の人体実験結果が大きく寄与している。これまで、超ウラン元素の f_1 値を直接求める試みはほとんどなかった。わずかにフィンランドで Pu 濃度の高いトナカイ肉を多食するラップ人とそうはしないフィン人の臓器中 Pu 濃度を比較し、推定吸入量・ICRP-30 の臓器中半減時間等と組み合わせて f_1 値を求めようとした論文のみであった (Mussalo 1984)。最近の2つの試みの1つは、短寿命の ^{239}Np 、 ^{242}Cm citrare と長寿命の ^{244}Pu を用いた人体実験であり、その結果は、3核種ともほ

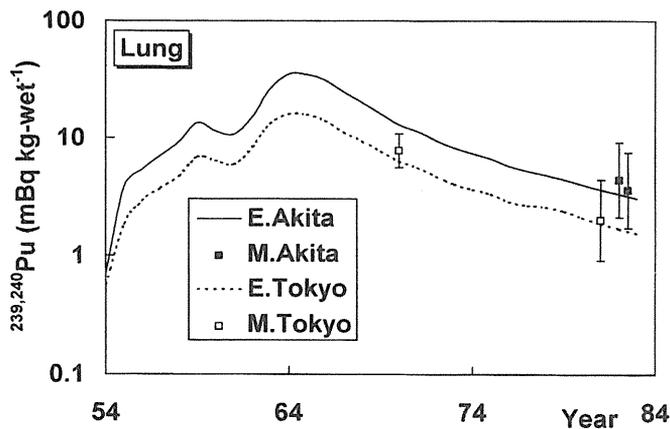


Fig. 1 Lung $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations and those estimated with ICRP-66 lung model and ICRP-67 metabolic model. E., estimated; M., measured

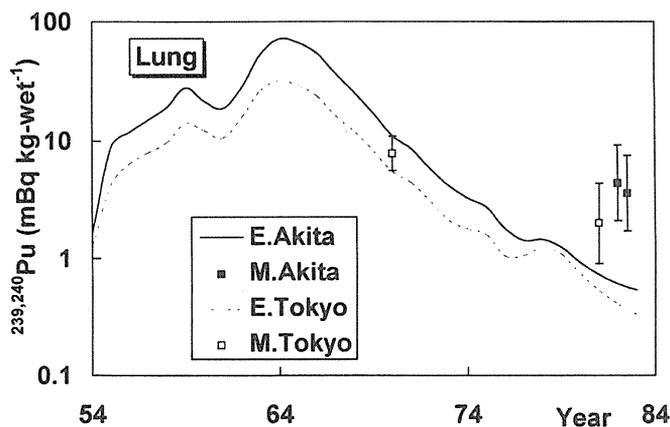


Fig. 2 Lung $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations and those estimated with ICRP-30 metabolic model. E., estimated; M., measured

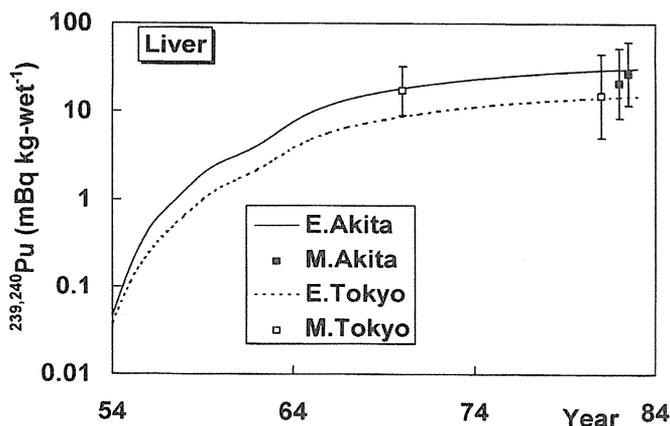


Fig. 3 Liver $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations and those estimated with ICRP-66 lung model and ICRP-67 metabolic model. E., estimated; M., measured

ば 2×10^{-4} となった (Poppelwell 1992)。もう一つはセラフィールドサイトから遠く離れた住民にセラフィールド近くで採取された貝を食べさせ、尿中の Pu、Am を測定したものである (Hunt 1986, 1990)。セラフィールド近隣は再処理工場からの Pu、Am で汚染されていることで有名であるが、それにしても食べられるレベルであるので、尿試料の Pu、Am レベルは低く、1 試料の測定に 2 ケ月間を掛けている。ちなみに、日本の東海村工場周辺での海産物では工場由来の汚染自体がはっきりしないレベルであり、このような実験は考えられない。6 人の男性と 2 人の女性で実験し、Pu については $1.7(0.2-4.9) \times 10^{-4}$ 、Am については $0.9(0.3-2.8) \times 10^{-4}$ の値が得られた。これらの結果を受けて ICRP-67 では f_1 値として 5×10^{-4} を採っている。

(3) モデル計算結果

ICRP-66、67 モデルによる東京と秋田の推定値を実測値とともに湿重量当たりの濃度で Fig. 1-5 に示した。各組織重量は Tanaka らによる標準日本人の値を用いた (1979) が、一部の組織は ICRP 標準人 (ICRP 1975) と標準日本人の体重比を用いて ICRP 標準人の値から求めた。Fig. 1 には肺の結果を示したが、実測値と推定値は驚くほどよく一致している。Fig. 2 には ICRP-30 モデルによる結果を同様に示してあるが、ICRP-30 モデルでは 1980 年代の実測値と 1 桁の差があった。ICRP-66 肺モデルは ICRP-30 に比較して生物学的半減期が長いコンパートメントが含まれているため、一致性が上がっている。

肝は Pu の分布が均一であるため、測定結果と推定値の一致性が良いことが期待でき

る。Fig. 3 に示されるように、1970 年の東京の実測値がやや高いが、全般に測定値とよく一致している。ICRP-30 モデルでは ICRP-66+67 モデルの 79% の濃度となり、実測値とよく合うが、ICRP-48 モデ

ルでは49%となり、一致性が悪くなる。

骨についての推定値は骨格全体の濃度であるが、Table-1Aの実測値は一部の骨についての分析結果である。このため、骨格全体の濃度を推定しなければならない。最近 United States 超ウラン元素・ウラニウム登録 (USTR) への全身献体者の測定結果が相次いで発表されている (McInroy 1985, Kathren 1987, McInroy 1989, McInroy 1991)。USTR は職業被曝を受けた労働者、科学者に献体と呼ばれ、多くの職業被曝者の死後解剖が行われている。全身献体は希であるが、貴重なデータを提供しており、そのデータは ICRP-67 の中に生かされている。これらの中で1例について Pu の各骨部分の濃度を報告しているレポート (Kathren 1987) があるが、残念ながら骨格全体の濃度は記載されておらず、算出に必要なデータもそろっていない。しかし、各骨部分の湿重量当たりの $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度を算出してみると変動係数はわずかに19%である。これならば、各骨の Pu 濃度の算術平均値を骨格全体と見なしても大きな差はない。そこで、算術平均値を骨格全体の濃度と見なし、骨部分と骨格全体の濃度比を用い、日本のデータを骨格全体の濃度に換算した。Fig. 4 にプロットした実測値はこの補正を行ったものであり、一部で不一致が見られるが、データの例数が少ないためと思われる。ICRP-30、48 モデルでは ICRP66+67 モデルに比較して約 60% の濃度となる。

腎と軟組織の推定値は各々 Fig. 5、6 に示した。これらの組織は ICRP-30 では特定されておらず、その他の臓器として一括されていたが、ICRP-67 モデルでは独立した組織として扱われるようになった。特に、軟組織は USTR の解剖組織分析の結果、骨格筋にかなりの負荷量が認められたことにより、新たに設けられた (Filipy 1994, McInroy 1989)。軟組織にはモデルの中で特定されている組織以外が全て含まれるとき

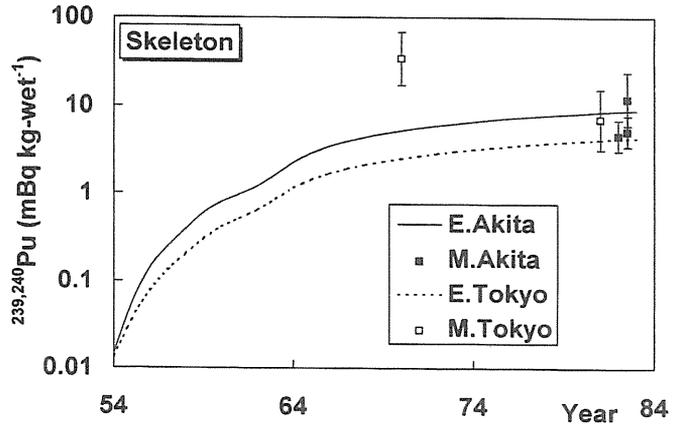


Fig. 4 Skeleton $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations and those estimated with ICRP-66 lung model and ICRP-67 metabolic model. E., estimated; M., measured

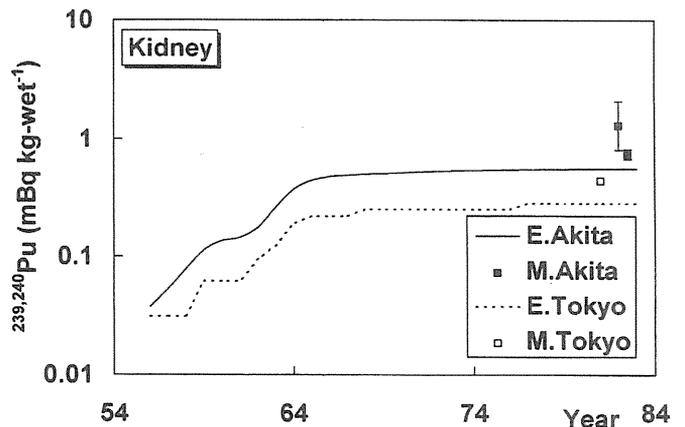


Fig. 5 Kidney $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations and those estimated with ICRP-66 lung model and ICRP-67 metabolic model. E., estimated; M., measured

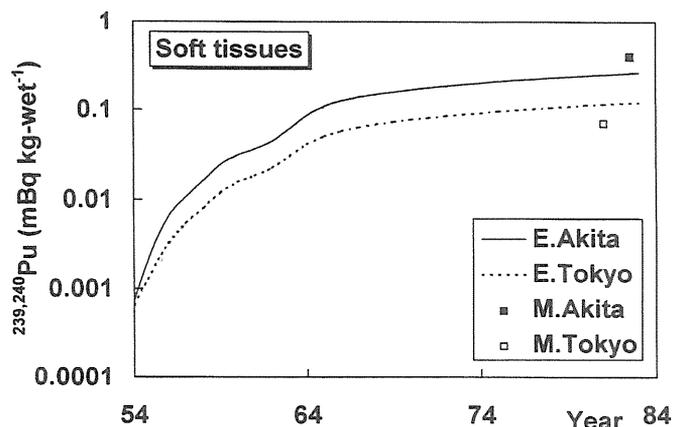


Fig. 6 Soft tissue $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations and those estimated with ICRP-66 lung model and ICRP-67 metabolic model. E., estimated; M., measured

れているが、Fig. 6には実測値として筋肉の値を示した。腎、筋肉ともに濃度は低いため混合試料が用いられている。実測例数が少ないため更に結果を重ねる必要はあるものの、比較的良く一致している。なお、Table-1Bに見られるように脾臓は少なくとも筋肉よりは濃度レベルが高いと思われ、これは、USTRの結果とも濃度の順序は一致する(Filipy 1994)。

これまでに述べてきたようにICRP-66+67モデルからのフォールアウト^{239,240}Pu濃度推定値は国内の実測値とよく一致していると言える。ICRP-30モデルでも肝、骨格で良く一致する。USTRの結果でも肝と骨格ではICRP-48よりICRP-30モデルの一致性が良いことが示されている(Kathren 1988, 1991, McInroy 1989, 1991)。ICRP-66+67モデルはICRP-30モデルでは説明ができなかった肺についても良く一致する推定値を与え、これまでのICRPモデルの中では最良と言える。ICRP-66+67モデルの場合の経肺吸収と経口摂取の寄与をFig.

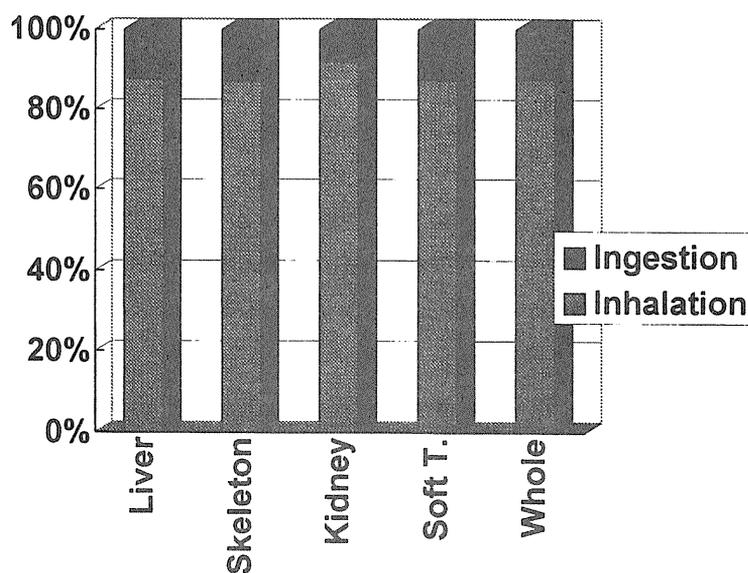


Fig. 7 Estimated contributions to organ burden of ^{239,240}Pu.

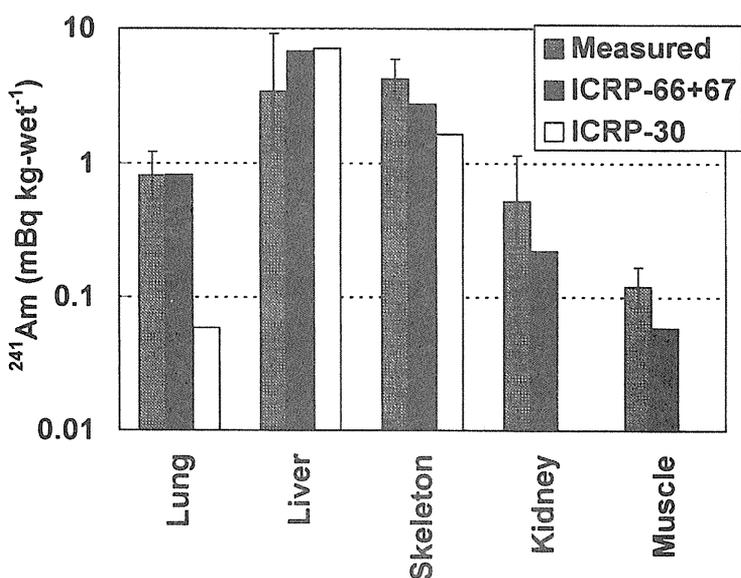


Fig. 8 ²⁴¹Am concentrations and those estimated with ICRP lung models and metabolic models

Fig. 7に示した。組織によってわずかに異なるが全体では12%が経口摂取の寄与である。

²⁴¹Amについての推定結果を実測値とともにFig. 8に示した。肺についての推定値は良く一致し、肺、骨格の推定値はファクター2以内で一致している。骨格の実測値はUSTRの全身献体例のデータ(McInroy 1985)を元に胸骨の値を骨格全体に補正したものである。腎、筋肉についても推定値の桁は一致している。ICRP-30モデルでは全体に一致性が悪くなる。ICRP-66、67モデルによる推定値への各摂取経路の寄与、および²⁴¹Puからの成長の寄与をFig. 9に示した。これに見られるように²⁴¹Amの約90%前後が体内の²⁴¹Puからの成長であり、全身で89%が²⁴¹Puからの成長、9%が経肺吸収、1%が経口摂取の由来である。

4. まとめ

以上のように、フォールアウト起源^{239,240}Pu、²⁴¹Amの経肺経口摂取量を簡単なモデル推定した場合、ICRP-66、67代謝モデルは日本人におけるそれらの核種含有量を良く説明できていると言える。今後の課題としては、まだ代謝モ

デルに入れられていない組織を含めることである。具体的には脾臓が腎臓よりも高い濃度を示すことは明らかであるので、これを独立させるべきと思われる。また、今後、さらに精度の高い実測値を積み重ねていくことが望まれるとともに、年齢依存性パラメーターを考慮した試料の採取も重要である。

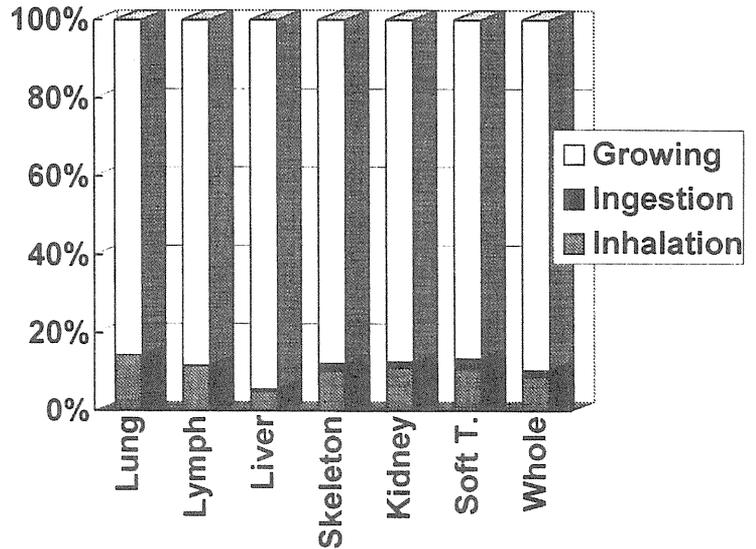


Fig. 9 Estimated contributions to organ burden of ²⁴¹Am

参考文献

- 1) Bennett, B. G. Fallout ^{239,240}Pu dose to man, HASL-278, I-41-63, Department of Energy Technical Information Center, Oak Ridge, TN, 1974.
- 2) Bennett, B. G. Environmental aspect of ²⁴¹Am, EML-348, Department of Energy, New York, 1978.
- 3) Bunzl, K., Kracke, W. Fallout ^{239,240}Pu and ²³⁸Pu in human tissues from the Federal Republic of Germany. Health Phys. 44, Suppl. 1, 441-449, 1983.
- 4) Filipy, R. E., Kathren, R. L., McInroy, J. F. et al. Soft tissue concentrations of plutonium and americium in occupationally-exposed humans. Health Phys. 67, 477-485, 1994.
- 5) Fisenne, I. M., Cohen, N., Neton, J. W. et al. Fallout plutonium in human tissues from New York City. Radiat. Res., 83, 162-168, 1980.
- 6) Fox, T., Tietjen, G. L., McInroy, J. F. Statistical analysis of a Los Alamos Scientific Laboratory study of plutonium in U. S. autopsy tissue. Health Phys. 39, 877-892, 1980.
- 7) Katsuragi, Y., Hirose, K., Sugimura, Y. A Study of plutonium fallout in Japan. Pap. Meteorol. Geophys. 33, 93-98, 1982.
- 8) Katsuragi, Y. A study of ⁹⁰Sr fallout in Japan. Pap. Meteorol. Geophys. 33, 277-291, 1983.
- 9) Katsuragi, Y. Deposition of Cs-137 and Sr-90 in Japan(I), Tenki 12, 323-328, 1965 (in Japanese).
- 10) Kawamura, H., Tanaka, G. Actinides concentrations in human tissues. Health Phys., 44, Suppl. 1, 451-456, 1983.
- 11) Health and Safety Laboratory. Global atmospheric plutonium-239 and plutonium isotopic ratios for 1959-1970. HASL-273, pp. III-2-28, Department of Energy Technical Information Center, Oak Ridge, TN, 1973.
- 12) Hisamatsu, S., Takizawa, Y., Abe, T. Fallout Pu in the Japanese diet. Health Phys. 51, 479-487, 1986.
- 13) Hisamatsu, S., Takizawa, Y., Abe, T. Ingestion intake of fallout Pu in Japan. Health Phys. 52, 193-200, 1987.
- 14) Hisamatsu, S., Takizawa, Y., Abe, T. Fallout ²⁴¹Am concentration in food and human tissue. J. Radioanal., Nucl. Chem., Articles, 138, 303-319, 1990.

- 15) Hunt, G. J., Leon, D. R. P., Lovett, M. B. Transfer of environmental plutonium and americium across the human gut. *Sci. Total Environ.*, 53, 89–109, 1986.
- 16) Hunt, G. J., Leon, D. R. P., Lovett, M. B. Transfer of environmental plutonium and americium across the human gut: A second study. *Sci. Total Environ.*, 90, 273–282, 1990.
- 17) Igarashi, Y., Yamakawa, A., Ikeda, N. Plutonium and uranium in Japanese human tissues. *Radioisotopes*, 36, 433–439, 1987.
- 18) International Commission on Radiological Protection, The metabolism of compounds of plutonium and other actinides. ICRP publication 19, Pergamon Press, Oxford, 1972.
- 19) International Commission on Radiological Protection, Report of the task group on reference man. ICRP publication 23, Pergamon Press, Oxford, 1975.
- 20) International Commission on Radiological Protection, Limits for intakes of radionuclides by workers. ICRP publication 30, *Annals of the ICRP*, 2(3/4), 1979.
- 21) International Commission on Radiological Protection, The metabolism of Plutonium and related elements. ICRP publication 48, *Annals of the ICRP*, 16(2/3), 1986.
- 22) International Commission on Radiological Protection, Age–dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 1. ICRP publication 56, *Annals of the ICRP*, 20(2), 1989.
- 23) International Commission on Radiological Protection, Human respiratory tract model for radiological protection. ICRP publication 66, *Annals of the ICRP*, 24(1/3), 1993.
- 24) International Commission on Radiological Protection, Age–dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2 ingestion dose coefficients. ICRP publication 67, *Annals of the ICRP*, 23(3/4), 1994.
- 25) Kathren, F. L., McInroy, J. F., Swint, M. J. Actinide distribution in the human skeleton, *Health Phys.*, 52, 179–192, 1987.
- 26) McInroy, J. F., Campbell, E. E., Moss, W. D. et al. Plutonium in autopsy tissue: a revision and updating of data reported in LA–4875. *Health Phys.*, 37, 1–136, 1979.
- 27) McInroy, J. F., Boyd, H. A., Eutsler, B. C. Deposition and retention of plutonium in the United States general population. in *Actinide in Man and Animal*, pp. 161–179, RD Press, Radiobiology Division, University of Utah, Utah, 1981.
- 28) McInroy, J. F., Boyd, H. A., Eutsler, B. C. et al. Preparation and analysis of the tissue and bones. *Health Phys.* 49, 587–621, 1985.
- 29) McInroy, J. F., Kathren, R. L., Swint, M. J. Distribution of plutonium and americium in whole bodies donated to the United States transuranium registry. *Radiat. Protec. Dosi.* 26, 151–158, 1989.
- 30) McInroy, J. F., Kathren, R. L., Voelz, G. L. et al. U. S. transuranium registry report on the ²³⁹Pu distribution in a human body. *Health Phys.* 60, 307–331, 1991.
- 31) Miyake, Y., Sugimura, Y., Saruhashi, K. et al., Plutonium and americium in the environment. in *Radiation Research*, pp. 940–948, Toppan, Tokyo, 1979.
- 32) Mussalo, H., Jaakkola, T., Mittinen, J. K. et al. Distribution of fallout plutonium in Southern Finns.

- Health Phys., 39, 245–255, 1980.
- 33) Mussalo, H., Jaakkola, T., Mittinen, J. K. et al. Plutonium in Finnish Lapps—An estimate of the gastrointestinal absorption of plutonium by man based on a comparison of the plutonium content of Lapps and southern Finns. Health Phys., 46, 549–559, 1984.
 - 34) Popplewell, D. S., Ham, G. J., Johnson, T. E. et al. Plutonium in autopsy tissues in Great Britain. Health Phys., 49, 304–309, 1985.
 - 35) Popplewell, D. S., Ham, G. J., Harrison, J. D. Measurements of actinide gut–transfer factors in humans. Appl. Radiat. Isot. 43, 339–347, 1992.
 - 36) Takizawa, Y., Hisamatsu, S., Abe, T. Concentration of fallout plutonium in tissues of Japanese who died during 1980–1984. Radiat. Res., 109, 245–255, 1987.
 - 37) Tanaka, G., Kawamura, H., Nakahara, Y. Reference Japanese man I. Mass of organs and other characteristics of normal Japanese. Health Phys. 36. 333–346, 1979.

2. Pu 等の人体への摂取経路

河村 日佐男

放射線医学総合研究所

Pathway of transfer to the human body of plutonium and
other long-lived radionuclides

Hisao KAWAMURA

Division of Radioecology, National Institute of Radiological Sciences
3609 Isozaki, Hitachinaka, Ibaraki 311-12

Abstract—Direct quantitative information on transfer of man-made long-lived radionuclides of present interest from the environment to man appears available only for Pu that has been demonstrated to be incorporated mainly by inhalation. In this context, a work on fallout Pu in bone of Tokyo area residents is presented as an example, in regard to applicability of ICRP models and parameters for respiratory and metabolism.

For ingestion pathway, gastrointestinal absorption coefficient, f_1 as assumed by ICRP is mentioned, which tends to vary by orders of magnitude between actinides, and ^{129}I and ^{99}Tc . Recent direct information on f_1 in man from U.K. are referred to. A preliminary data on apparent absorption of ^{99}Tc by an adult male from a marine alga (*Hijikia*), popular for Japanese diet, is introduced.

緒言

一般環境における長半減期核種の人体への移行経路についての定量的な情報は、フォールアウト Pu の吸入による被曝の経路などに限られている。ここでは、著者等の大気中 Pu の人骨への移行データを紹介するとともに、Pu 等の長半減期核種が主として経口摂取により人体内へ移行する場合のパラメータに関する ICRP 出版物の値および関連研究の現状につきコメントしたい。

1. フォールアウトによる骨中の $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ 濃度

1978年-1983年の期間に死亡した東京地区の22-45才の成人および16-19才の青少年の脊椎骨における $^{239}, ^{240}\text{Pu}$ の分析値を示す(表1)¹⁾。成人骨の平均 Pu 濃度は $20 \pm 6.3\text{mBq/kg}$ 灰分であり、未成年の平均濃度は $3 \pm 2.5\text{mBq/kg}$ であった。ここに見られる差は、成長に伴うフォールアウト Pu の吸入量の差によるものと解釈される。

この東京データと地球上の他の地域の住民における骨中 Pu 濃度との比較を行った^{2, 3)}。いずれの Pu 分析も、骨中のフォールアウト ⁹⁰Sr の分析のための試料を利用して行われたものと考えられる。表 1 の各々の分析測定

表 1. 日本人中の ^{239,240}Pu 濃度の実測値

地域	期間	年齢	部位	検体数	mBq/kg 灰分	比
東京	1978-83	22-45才	脊椎骨	10	20±6.3	1
		16-19才	脊椎骨	6	3±2.5	0.15
			長骨骨端			
ニューヨーク	1970-74	40-70才	脊椎骨	6	44	2.2
	1976	53-70才	脊椎骨, 肋骨	2	81	4.1
ネパール	1976-78	20-82才	脊椎骨	6	52	2.6

の結果は、いずれも灰分重量あたりの Pu 濃度として報告されており、数値相互の比較の際に曖昧さが残らないという特徴がある。

ニューヨーク市の成人では、1970-1974 年に 44mBq/kg 灰分であり、1976 年には 81mBq/kg 灰分であった²⁾。いずれも東京の値よりも大きい。アジア地域のネパール住民では、52mBq/kg 灰分であった³⁾。東京の骨中 Pu 濃度を 1 とすれば、ニューヨークでは 2.2-4.1 倍、ネパールでは 2.6 倍となる。

いっぽう、吸入の源である地表空気中の ^{239, 240}Pu の濃度から^{4, 5)}、成人がある期間に吸入した放射能を推定した。Pu の年間の吸入量は、東京の 630mBq に対して、ニューヨークでは 1550mBq であり³⁾、その間の比は、1:2.5 となった。これは、それぞれの地区における骨中の Pu 濃度実測値の比 1:2.2-4.1 にほぼ等しいことが示唆された (表 2)。

表 2. フォールアウトからの ^{239,240}Pu 吸入量の推定および吸入からの脊椎骨中濃度推定値 (ICRP Publication 30 による)

地域	期間	吸入量	比	推定骨中濃度 (mBq/kg 灰分)
東京	1957-76	630 mBq	1	16 * (1976 年)
ニューヨーク	1954-74	1550 mBq	2.5	

*) 実測値 20±6.3 mBq/kg 灰分

なお、前講演で 1970 年サンプリングの日本人骨中の ^{239, 240}Pu⁶⁾ が相対的に高いのではないかと、という指摘があった。この問題については、つぎのファクターが考えられる。ひとつは、その試料が数年間にわたって、他の器官組織試料

と同じホルマリン溶液内に保存されていたことである。このため、Pu がホルマリン溶液を介して移動した可能性も否定出来ない。ふたつには、Pu の分析測定値は灰化骨重量で行ったため、分析値は骨の「標準的な」湿重量あたりの濃度に換算する必要があったことである。McInroy らは新鮮な脊椎骨試料について湿重量に対する灰分重量の割合 (百分率) を求めており、その値は 12.4% であった⁷⁾。当該論文では、この値を用いて換算した結果を示した。しかし、われわれの経験ではホルマリン処理した脊椎骨試料の場合、湿重量に対する灰分重量の百分率は約 3% とほぼ一定していた。もしこの値を用いて換算すれば、Pu 濃度は他の類似論文に報告された骨中 ^{239, 240}Pu 濃度と違わないことになる。

2. Publication 30 (および 48) による気中 Pu 濃度からの骨中 Pu 濃度の推定と実測値との比較

ここでは、Publication 30 の呼吸器モデルおよび代謝モデルを用いて⁸⁾、気象研究所の報告した 1957 年から 1976 年までの東京における気中 ²³⁹Pu 濃度に関する報告値から^{4, 5)}、吸入経路のみを考慮して器官負荷量を推定し、標準日本人の骨重量値などを用いて、骨中の Pu 濃度を推定した^{1, 9)}。呼吸量は成人について 1 日あたり 20m³ と仮定して年間の吸入 Pu 量を計算した。肺から血液に吸収された Pu が骨に沈着する割合が 45% (Publication 48 では 70%)^{8, 10)} とし、骨における Pu の生物学的半減期は 100 年

(Publication 48 では 50 年)として計算を行った。また、本研究では骨内における Pu 濃度の相違が認められたので⁶⁾、骨梁骨の Pu 濃度 / 皮質骨の Pu 濃度 = 2 を仮定してそれぞれの型の骨中濃度を計算した。その結果得られた 1976 年における東京の脊椎骨中 ^{239, 240}Pu 濃度の推定値は、16mBq/kg 灰分であって実測値 20 ± 6.3mBq に近い値であった。この結果に関する限り、ICRP Publication 30 の代謝パラメータを一般環境の公衆に当てはめる際に特に問題が生じないことが示唆された¹¹⁾。

3. Pu 等アクチノイドの吸入および経口摂取に伴う 50 年実効線量

作業者における、単位放射能 (1Bq) の Th, U, Np, Pu, Am, Cm を吸入または経口経路により摂取した後、50 年間に受けることになる実効線量が ICRP により与えられている (表 3)¹²⁾。

たとえば、AMAD 1μm のダストに含まれる比較的溶けやすい ²³⁹Pu 化合物で、その放射能 1Bq であれば、吸入後 50 年間の実効線量は 4.7x10⁻⁵Sv となる。同一化学形、同一放射能の ²³⁹Pu が経口摂取された場合の実効線量は 2.5x10⁻⁷Sv であり、経口による線量は吸入による線量に比べ 2 桁低い。他のアクチノイドでも同様に、吸入被曝が経口被曝の 2 桁大きい線量を与える。

アクチノイド元素は他の多くの元素に比べ、胃腸管吸収割合 (f₁) が非常に小さく、他方、生物学的半減期ははるかに長いという性質がある。Publication 30 の f₁ 値および Publication 68 で改訂された f₁ 値を表 4 に掲げる^{8, 12)}。比較的溶けやすい Pu 化合物の場合、改訂された値 5.0x10⁻⁴ は、以前の値 1x10⁻³ に比べてやや小さく低くなっている。これは、後述するように、人体でのデータが得られてきたこと、動物における広範な実験結果が得られたことによると考えられる。

4. アクチノイド核種の人における胃腸管吸収率

ICRP Publication 30 に想定された Pu, Am, Np の胃腸管吸収係数 (f₁) の値は、本質的に実験動物で得られた結果に基づいて設定されたとしている。また、それらの値が暫定的な性格であったため、関連研究が刺激され、実験動物による化学形、摂取条件、動物種間差などについて英米を中心に精力的な研究が行われ、その結果 f₁ 値を始めとする代謝パラメータの再検討が行われた¹⁰⁾。さらに、チェルノブイル事故後の公衆被曝に対する関心が高まり、実際環境における代謝パラメータの必要性が一層重視されることになった。

表 3. 1 Bq 当たりの実効線量 (ICRP Publication 68)、Sv

元素	核種 (半減期、年)	吸入 (1μm AMAD) 化合物の型	e _{inh} (50)	経口 e _{ing} (50)
Th	232(1.40x10 ¹⁰)	M	4.2x10 ⁻⁵	2.2x10 ⁻⁷
		S	2.3x10 ⁻⁵	9.2x10 ⁻⁸
U	238(4.47x10 ⁹)	F	4.9x10 ⁻⁷	4.4x10 ⁻⁸
		M*	2.6x10 ⁻⁶	7.6x10 ⁻⁹
		S	7.3x10 ⁻⁶	
Np	237(2.14x10 ⁶)	M	2.1x10 ⁻⁵	1.1x10 ⁻⁷
Pu	239(2.41x10 ⁴)	M	4.7x10 ⁻⁵	2.5x10 ⁻⁷
		S	1.5x10 ⁻⁵	9.0x10 ⁻⁹
Am	241(4.32x10 ²)	M	3.9x10 ⁻⁵	2.0x10 ⁻⁷
Cm	244(18.1)	M	2.5x10 ⁻⁵	1.2x10 ⁻⁷

*) f₁ 0.020

表 4. アクチノイド元素の胃腸管吸収割合、f₁

元素	化合物	ICRP 30 (48)	ICRP 68	
Th	すべて	2x10 ⁻⁴ (人)	M	5.0x10 ⁻⁴
			S	2.0x10 ⁻⁴
U	6 価、水溶性	0.05(人)	F	0.020
	4 価、不溶性	0.002	M	0.002
Np		1x10 ⁻³	M	5.0x10 ⁻⁴
Pu	以下以外	1x10 ⁻³	M	5.0x10 ⁻⁴
	酸化物	1x10 ⁻⁵	S	1.0x10 ⁻⁵
	硝酸塩	1x10 ⁻⁴		1.0x10 ⁻⁴
Am	すべて	5x10 ⁻⁴	M	5.0x10 ⁻⁴
Cm		5x10 ⁻⁴	M	5.0x10 ⁻⁴

そのためには、人における食品からの摂取と移行の測定が最も有効である。イギリスでは、採取された海産動物などを摂取源として、正常な人における体内摂取の測定が行われた。また、極低レベルの Pu, Am 同位体を用いて摂取率の測定が行われている(表5)。

1980年代から1990年にかけてイギリスの Hunt 等は、貝類を摂取した後、Pu および Am の摂取量、排泄量の測定および一定のモデルを用いて f_1 を求めた¹³⁾。それによると、Pu および Am の f_1 は、それぞれ 1.7×10^{-4} および 0.9×10^{-4} であった。その後、Popplewell らは、さらに詳しく f_1 値を求める実験を行い、Np および Cm のクエン酸溶液と食物を同時に摂取した後の胃腸管吸収率を求めた^{14, 15)}。その結果は、 10^{-4} のレベルであった。これらの値はいずれも Publication 30 で想定された値よりも若干小さかった。

表5. 経口摂取されたアクチノイドの胃腸管からの吸収割合

元素	前駆物質	f_1	測定者
Pu	貝類	1.7×10^{-4}	Hunt ら (1986)
Am	貝類	0.9×10^{-4}	Hunt ら (1990)
Np	溶液	2.0×10^{-4}	Popplewell ら (1992)*
Cm	溶液	1.7×10^{-4}	Popplewell ら (1992)*

*)「最良の推定値」 5×10^{-4}

5. ¹²⁹I および ⁹⁹Tc の吸入および経口摂取に伴う 50 年実効線量

表6に示すように、吸入後の50年実効線量はアクチノイドの線量に較べて2-3桁小さい。いっぽう、経口摂取後の実効線量は、アクチノイドと類似の大きさである¹¹⁾。比較的、経口経路が重要であり、その原因は、ヨウ素およびテクネチウムに対する f_1 がそれぞれ1および0.8とされ、アクチノイドに較べて3-4桁大きいことである^{6, 10)}。テクネチウムは作業者によって過テクネチウム酸イオン(TcO_4^-)の形で摂取されると想定されている。一般公衆の場合、食品から摂取するため、その化学形態はよくわかっていないので、過テクネチウム酸イオンに対する値は直接には適用されないと考えられる。

表6. ヨウ素およびテクネチウムの1Bq当たりの実効線量および胃腸管吸収割合(ICRP Publication 68)、Sv

元素	核種(半減期, 年)	吸入(1 μ m AMAD) 化合物の型	$e_{inh}(50)$	経口 f_1	$e_{ing}(50)$
I	129(1.57×10^7)	F	3.7×10^{-8}	1.0	1.1×10^{-7}
Tc	99(2.13×10^5)	F	2.9×10^{-10}	0.8	7.8×10^{-10}
		M	3.9×10^{-9}		

6. ⁹⁹Tc の人における摂取と排泄

海産食品の一種「ひじき」が、⁹⁹Tc を高度に濃縮する藻類で一般人が消費することに着目し、これが日本における環境中 ⁹⁹Tc の人体への移行経路の代表的なものと想定した。新鮮なひじき 1 kg を購入し、これを通常の製法に倣って、異物を除き、水洗、天日乾燥して、いわゆる「乾燥ひじき」を調製した。健康な成人男子 1 名がひじき食品を摂取し、その後、液体および固体排泄物(尿および糞)の全量を採取した。放射能含有量は低いため、摂取後 11 日間の総量をまとめてそれぞれ合併試料とし、その ⁹⁹Tc 放射能を化学分離の後、低バックグラウンド・ベータ線スペクトロメトリーにより定量した。また、栄養元素(アルカリ、アルカリ土類)の含有量を原子吸光分析により定量し、⁹⁹Tc の摂取と排泄挙動を一般元素のそれと比較検討した。摂取量は 37mBq であり、固体中排泄量は測定可能であったが、液体中排泄量はバックグラウンド・レベルであった。ひじき食品の摂取に先立つ 3 日間の対照期間における排泄量は検出限界以下であった。これらの結果から、みかけの吸収割合は約 0.5 と計算された¹⁶⁾。みかけの吸収率は、 f_1 と同一ではないが、得られた結果は ICRP Publication 30 の f_1 の値 0.8 より若干小さいと考えられた。最近の ICRP 出版物では、一般公衆に対する Tc の f_1 を 0.5 としていることと良く一致している¹⁷⁾。

まとめ

Puをはじめとするアクチノイド元素、 ^{129}I および ^{99}Tc の人体における測定はその濃度水準が低いいため困難が伴う。人体に係わる線量算定パラメータの高精度化が必要と考えられるため、今後、体内量の分析測定法の開発、胃腸管吸収の測定などの研究に力を注いで行きたい。

文献

- 1) H. Kawamura, G. Tanaka and K. Shiraishi: Concentration of $^{239, 240}\text{Pu}$ in human bone, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, 115(2), 309 - 315 (1987).
- 2) B. G. Bennett: IAEA Publication STI/PUB/410 (1976).
- 3) I. M. Fisenne, P. M. Perry and N.Y. Chu: Measured $^{234, 238}\text{U}$ and $^{239, 240}\text{Pu}$ in bone ash from Nepal and Australia: skeletal alpha dose, *Health Phys.*, 44, Supplement 1, 457-467 (1983).
- 4) Y. Miyake, Y. Sugimura, K. Saruhashi, Y. Katsuragi and K. Hirose: Plutonium and americium in the environment, *Proc. 6th Int. Cong. Radiation Research, 13-19 May, 1979* (ed. S. Okada, M. Imamura, T. Terasima and H. Yamaguchi), Japanese Association for Radiation Research (Tokyo), 940.
- 5) K. Hirose and Y. Sugimura: Plutonium in the surface air in Japan, *Health Phys.*, 46, 1281-1285 (1984).
- 6) H. Kawamura, G. Tanaka, J. F. McInroy and B. C. Eutsler: Concentration of $^{239, 240}\text{Pu}$ in human autopsy tissues. Preliminary report of a comparative study on different populations, *J. Radiat. Res.*, 22, 373-380 (1981).
- 7) H. A. Boyd and J. F. McInroy: Personal communication.
- 8) International Commission on Radiological Protection: Limits for intakes of radionuclides for workers, ICRP Publication 30, Part. 1, *Annal. ICRP*, 2(3/4) (1979).
- 9) H. Kawamura and G. Tanaka: Actinides concentrations in human tissues, *Health Phys.*, 44, Supplement 1, 451-456 (1983).
- 10) International Commission on Radiological Protection: The metabolism of plutonium and related elements, ICRP Publication 48, *Annal. ICRP*, 16(2/3) (1986).
- 11) 河村, 白石, 五十嵐; アクチノイド核種等の代謝モデルと線量算定に関する研究, 特別研究「環境放射線の被曝評価に関する調査研究」(昭和58年~62年)最終報告書, NIRS-R-17 (1991), 109-114.
- 12) International Commission on Radiological Protection: Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers, ICRP Publication 68, *Annal. ICRP*, 24(4) (1995).
- 13) G. J. Hunt, D. R. P. Leonard and M. B. Lovett: Transfer of environmental plutonium and americium across the human gut: a second study, *Sci. Total Environ.*, 90, 273-282 (1990).
- 14) D. S. Popplewell, J. D. Harrison and G. J. Ham; Gastrointestinal absorption of neptunium and curium in humans, *Health Phys.*, 60, 797-805 (1991).
- 15) D. S. Popplewell, G. J. Ham and J. D. Harrison: Measurements of actinide gut-transfer factors in humans, *Appl. Radiat. Isot.*, 43, 339-347 (1992).
- 16) 河村, 平野: 食品中テクネチウムの摂取と排泄、第30回理工学における同位元素研究発表会要旨集, (1993), 149.
- 17) International Commission on Radiological Protection: Age-dependent doses to members of the public from intake of radionuclides: Part 2 Ingestion dose coefficients, ICRP Publication 67, *Annal. ICRP*, 23(3/4) (1993).

原子燃料及び放射性廃棄物の輸送

— 現状と将来 —

有 富 正 憲

東京工業大学原子炉工学研究所

I はじめに

我が国における軽水炉は、米国から導入された後、独自の開発と改良・標準化が推進され、その安全性と信頼性は世界のトップ水準となり、順調な運転を続けている。更に、改良型軽水炉(ABWRとAPWR)が開発され、APWRは柏崎原子力発電所に建設されている。また、軽水炉の運転などに必要な原子力燃料サイクル関連施設も六ヶ所村に建設されつつある。このような原子力開発に対応して種々の原子燃料物資や放射性廃棄物が輸送されるようになってきた。放射性物質の輸送は、一般に公衆と接近する公道あるいは公海上を通過するため、原子炉の安全性確保のための離隔という概念が適用できない。そのため、放射性物質の安全輸送を確立するために、独自の規則や技術基準などの機制が策定されている。今日までの原子燃料物質などの輸送は、これらの規則や規制などの他に輸送関係者のたゆまない努力により一度の事故もなく安全に実施されてきた。

本報では、はじめに、今日輸送中あるいは近い将来に輸送が想定される原子燃料物質とその分類について言及し、次に、放射性物質の輸送の安全性を確立するための技術基準と輸送方法について論じ、IAEAの放射性物質安全輸送規則1996年版の改正の要点を紹介する。最後に、将来想定される廃炉に伴う大型として大量の放射性物質の輸送などに関する今後の課題を考察する。

II 輸送される放射性物質

ウラン鉱石を採掘してから新燃料を製造し、再処理して再利用するまでの一巡の流れを原子燃料サイクルと呼んでいる。この原子燃料サイクルでは、燃料、製品、廃棄物などの輸送を必要としている。図1に原子燃料サイクルに関連する放射性物質の輸送の概要を示す。本報ではこれらの物質を総称して原子燃料物質と呼ぶ。

採鉱されたウラン鉱石は精錬されイエローケーキと呼ばれる物質となり、精製された後に天然六フッ化ウラン (UF_6) に転換される。この工程は主として海外で実施されている。核燃料物質である ^{235}U の天然

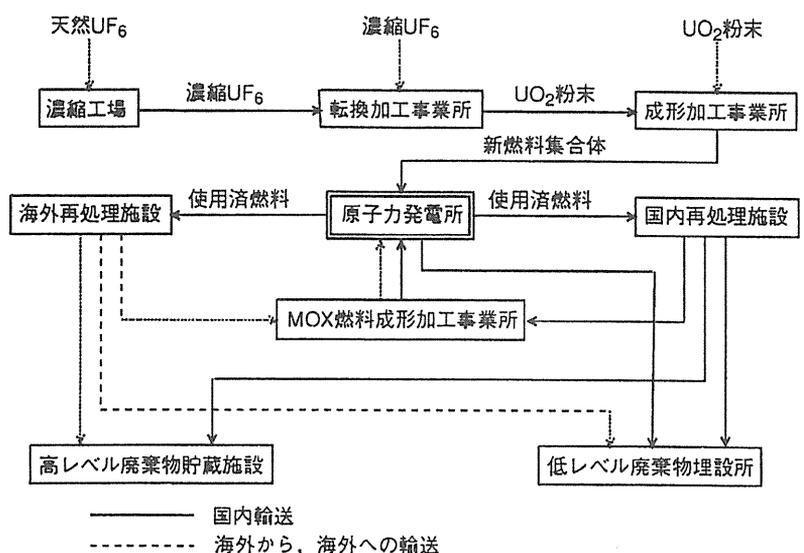


図1 核燃料サイクルにおける放射性物質の流れ

ウランの中の含有量は0.7%であるが、軽水炉の燃料としては²³⁵Uの濃度を2.5~4.5%程度まで高めたものを用いている。そこで、天然UF₆の²³⁵Uを濃縮する必要があるが、我が国では六ヶ所村や人形峠にあるウラン濃縮工場に輸送され、濃縮UF₆を製造している。海外からの天然UF₆は我が国に海上輸送で輸入された後、陸上輸送されている。濃縮UF₆はウラン濃縮工場から成形加工事業所に陸上輸送され、UO₂粉末に再転換され、成形して焼結した後、規定の寸法に研磨し、乾燥させて燃料ペレットが製造される。ウラン濃縮工場と成形加工事業所の処理能力の関係で、一部は濃縮UF₆あるいはUO₂粉末の中間媒体の形で海外から海上輸送により輸入されている。できあがったペレットは被覆管に詰められ燃料棒となり、最終的には燃料棒が束ねられ、燃料集合体となる。新燃料集合体は、原子力発電所に陸上輸送あるいは海上輸送されている。

原子炉で燃焼された燃料は、使用済燃料として取り出される。100万kW級の軽水炉では年間25~30トンの燃料が消費される。使用済燃料には1%弱の未燃の²³⁵Uと1%強のPuが含まれているので、エネルギー資源の乏しい我が国では使用済燃料は再処理し、原子燃料物質を回収して再利用することを原子力政策の一つとしている。また、使用済燃料には不安定な核分裂生成物が含まれているため、これらの核種が崩壊して安定な核種になるまで崩壊熱と呼ばれる熱を発生する。このため、使用済燃料は、原子力発電所内のプールで所定の期間冷却された後、再処理工場に送られる。現在では、使用済燃料の再処理は東海村にある再処理工場、フランスのCOGEMAとイギリスのBNFLの再処理工場で実施されているが、六ヶ所村に再処理工場の建設が計画されており、完成の暁には大部分の使用済燃料が六ヶ所村の再処理工場に輸送されることになっている。使用済燃料は、国内外の輸送を問わず、専用港を持たない一部の原子力発電所では港まで陸上輸送されるが、それ以外の原子力発電所では専用港から海上輸送されている。

再処理して回収された未燃ウランとプルトニウムは、再び原子燃料として用いるためにPuO₂とUO₂の粉末として成形加工事業所に輸送される。また、プルトニウムの核物質防護と輸送上の問題から、海上の再処理工場で回収された原子燃料物質は海外の燃料成形加工事業所でMOX燃料集合体に製品加工された後、我が国の原子力発電所に輸送される計画も立てられている。

使用済燃料には3%程度の核分裂生成物が含まれているため、再処理過程では、放射能が高く発熱量が大きい核種群とそれ以外の核種群に分離される。前者は高レベル放射性廃棄物(高レベル廃棄物、HLW)と呼ばれ、保持機能が優れたガラスを用いて固定化される。これをガラス固化体と呼び、我が国では六ヶ所村に建設されている除熱機能をもつ高レベル放射性廃棄物管理施設に運ばれ貯蔵・管理されている。一方、後者の比放射能が低く、除熱の必要がない残りの廃棄物は低レベル放射性廃棄物(低レベル廃棄物、LLW)と呼ばれ、各原子力発電所において発生する放射性廃棄物と共に、ドラム缶の中にセメントやアスファルトなどで固定化して、六ヶ所村の低レベル放射性廃棄物埋設センターに運ばれ埋設される。原子力発電所で発生する低レベル廃棄物は専用運搬船で海上輸送されている。

Ⅲ 放射性輸送物の分類

1. 収納限度

放射性物質の輸送においては、比放射能が74Bq/g(2×10^{-9} Ci/g)より大きい物質を放射性物質として取り扱っている。そして、輸送物は収納放射エネルギーによる分類(L型輸送物、A型輸送物、B型輸送物)と比放射能と表面汚染密度による分類(IP型輸送物)がなされている。更に、臨界安全性を確保する必要がある輸送物(核分裂性輸送物)は特別に区別している。IAEA輸送規則1985年版では、ICRPの新勧告(Pub.

26) 及び改訂された年間摂取限度 (Pub.30) と整合させるため、Qシステムと呼ばれる収納限度に関する新しい誘導システムが採用されており、個々の放射性核種に対して収納放射能量の限度に関する基準値 (A_1 値、 A_2 値) が与えられている。 A_1 値は特別形放射性物質に対して γ 線と中性子線による外部被爆の許容値 Q_A 、 β 線による外部被爆の許容値 Q_C 、 β 線の外部付着被爆及び内部被爆の許容値 Q_D 、希ガスのサブマージョン状態での被爆許容値 Q_B を評価し、それらの値と A_1 値の内の最小値を定義したものである。

2. 収納放射能量による分類

収納される放射能量の少ない順に、L型輸送物、A型輸送物、B型輸送物に分類される。

(1) L型輸送物

L型輸送物とは、危険性が極めて少ない放射性物質として勧告で定められているもので、固体及び気体に関しては、特別形放射性物質では A_1 値の1/1,000を越えない放射能を有するもの、特別形放射性物質以外のものでは A_2 値の1/1,000を越えない放射能を有するものを云う。一方、液体についてはおもに A_2 値の1/10,000を越えない放射能を有するものを云う。また、トリチウムは 0.8TBq を越えないものとしている。尚、IAEA の輸送規則では適用外輸送物に区分されている。我が国で現在輸送されている放射性物質の件数では約 80 %がL型輸送物であり、年間十数万件に達する。原子燃料物質では、 A_1 値または A_2 値に制限がない物質である未照射の天然ウラン、劣化ウランもしくは天然トリチウム、または、これらの化合物もしくは混合物が該当し、表面が容易に腐食しない金属容器などに収納されているもの、及び、原子燃料物質が収納されたことのある空の輸送容器で内表面に付着している原子燃料物質などが一定密度以下のものが該当する。

(2) A型輸送物

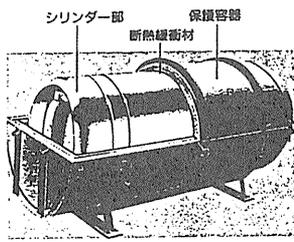
A型輸送物とは、放射性輸送物当たり A_1 値または A_2 値未満の物質を輸送容器に収納した輸送物である。我が国で、現在輸送されている放射性物質の件数では約20%がA型輸送物である。原子燃料物質では、30B シリンダーに収納される濃縮優 UF_6 、原子燃料の中間媒体である UO_2 粉末、新燃料集合体などがA型輸送物に分類される。天然ウランは現行の輸送原則上ではL型もしくはIP型輸送物に分類されるが、海外からの輸入される 48Y シリンダーに収納される天然 UF_6 は発送国でA型輸送物として送り出すため、慣例上A型輸送物として取り扱っている。A型輸送物の代表例を図2に示す。

(3) B型輸送物

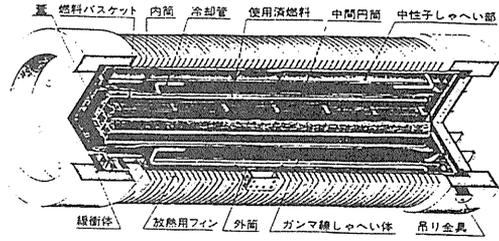
B型輸送物とは、輸送容器、タンクまたはコンテナ内に、 A_1 値または A_2 値を越える放射能を有する放射性物質が収納されている輸送物が該当する。そして、B輸送物には、国際輸送に対して通過するすべての国の機軸当局から輸送物と輸送方法の安全性などに関する許可を受けなければならないBM型輸送物と、設計国の許可を受ければ、通過国では自動的に安全性などに関する許可が与えられるBU型輸送物がある。即ち、BU型輸送物はBM型輸送物及びよりも一段と厳しい技術基準が要求されている。使用済燃料、MOX燃料集合体、高濃度ウラン、プルトニウム、高レベル放射性廃棄物がB型輸送物に該当する。これらに輸送物の代表例を図3に示す。

3. 比放射能と表面汚染密度による分類

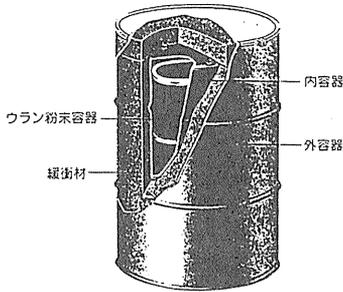
IAEA 輸送規則1985年版で新しく導入されたのがIP型輸送物である。L型、A型とB型輸送物のよう



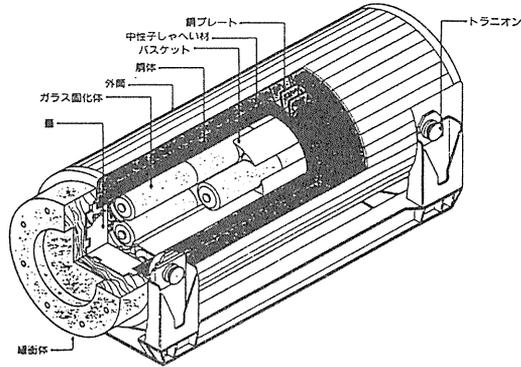
(b) 濃縮UF₆ (30Bシリンダー) ⑥



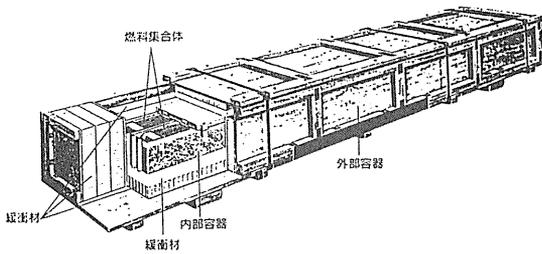
(a) 使用済燃料集合体 ⑥



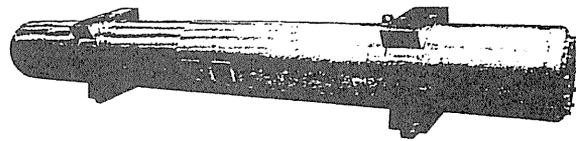
(c) 二酸化ウラン粉末 ⑥



(b) 高レベル放射性廃棄物 ⑥



(d) 新燃料集合体 (BWR) ⑥



(c) MOX新燃料集合体 ⑥

図3 B型輸送物の代表例

に輸送物当たり収納される放射エネルギーで区分するのではなく、比放射能で収納物を分類する低比放射性物質 (LSA) と、表面汚染密度で収納物を分類する表面汚染物質 (SCO) があり、主として、原子力発電所などで発生する大量の放射性廃棄物の輸送のために定められた分類である。

3-1 低比放射性物質

表面から 3 m 離れた位置における最大線量当量率が 10mSv/h を越えないもので、下記に示す物質の適合条件により LSA-I、LSA-II と LSA-III に分類される。

(1) LSA-I

(a) ウラン、トリウム等を含有する鉱石。

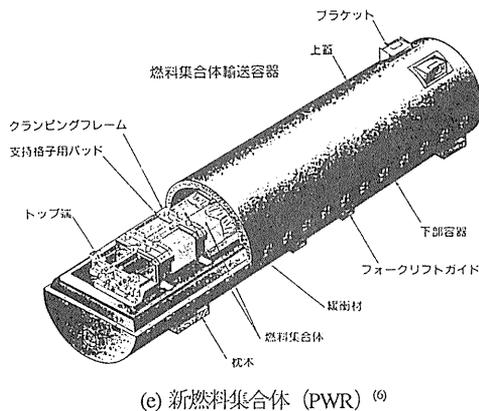
(b) 固体の未照射天然ウラン、劣化ウラン等、またこれらの固体の化合物等。

(c) 核分裂性物質以外の物質であって A₂ 値に制限がないもの。

(2) LSA-II 放射性物質が当該核燃料物質等の全体に分布しているもので、かつ次の条件に適合するもの。

(a) 可燃性の固体

図2 A型輸送物代表例



(c) 新燃料集合体 (PWR) ⑥

放射エネルギーが $100A_2$ 値を越えず、かつ全体に分布している平均比放射能が $10^{-4}A_2/g$ を越えないもの。

(b) 可燃性以外の固体

平均比放射能が $10^{-4}A_2/g$ を越えないもの。

(c) 液体

放射エネルギーが $100A_2$ 値を越えず、かつ平均比放射能が $10^{-5}A_2/g$ を越えないもの。但し、トリチウム水は平均放射能濃度が 1 TBq/l を越えないもの。

(d) 気体

放射エネルギーが $100A_2$ 値を越えず、かつ平均比放射能が $10^{-4}A_2/g$ を越えないもの。

(3) LSA-III

LSA-I、LSA-IIの要件に適合する物質以外の固体状（粉末を除く）の放射性物質であって次の要件に適合するもの。

(a) 放射性物質が当該物質の全体に均一に分布しているもの。

(b) 比放射能が $2 \times 10^{-3}A_2/g$ を越えないもの。

(c) 輸送容器がない状態での放射性物質の漏洩率が1週間当たり $0.1 \times A_2$ の値を越えないこと。

(d) 可燃性のものにあっては放射エネルギーが $100A_2$ 値を越えないもの。

3-2 表面汚染物質

それ自体は放射性物質でないが、その表面に放射性物質が分布しているものであり、放射エネルギーが $100A_2$ 値を越えず、かつ当該汚染の表面から 3 m の位置における線量当量率が 10 mSv/h を越えないものが該当し、収納物は下記に述べる SCO-I と SCO-II に分類される。

(1) SCO-I

(a) α 線を放出する汚染物に対しては、近接できる表面の場合は非固定性汚染物では 0.4 Bq/cm^2 以下、固定性汚染物並びに隣接できない汚染物の場合は $4 \times 10^3\text{ Bq/cm}^2$ 以下の収納物が該当する。

(b) β 線及び γ 線を放出する汚染物に対しては、近接できる表面の場合は非固定性汚染物では表面において 4 Bq/cm^2 以下、固定性汚染物並びに隣接できない汚染物の場合は $4 \times 10^4\text{ Bq/cm}^2$ 以下の収納物が該当する。

(1) SCO-II

(a) α 線を放出する汚染物に対しては、近接できる表面の場合は非固定性汚染物では 40 Bq/cm^2 以下、固定性汚染物と隣接できない汚染物の場合は $8 \times 10^4\text{ Bq/cm}^2$ 以下の収納物が該当する。

(b) β 線及び γ 線を放出する汚染物に対しては、隣接できる表面の場合は非固定性汚染物では 400 Bq/cm^2 以下、固定性汚染物と隣接できない汚染物の場合は $8 \times 10^5\text{ Bq/cm}^2$ 以下の収納物が該当する。

3-3 IP型輸送物

低比放射性物質と表面汚染物質を収納する輸送物は表1に示すように収納物の区分、性状及び輸送方法によりIP-1型輸送物、IP-2型輸送物、IP-3型輸送物に分類される。現在IP型輸送物として輸送されている原子燃料物質としては、各原子力発電所で発生した低レベル放射性廃棄物をセメントなどで均質固化体して鋼製ドラム缶に充填し、図4に示す輸送容器に収納してIP-2型輸送物として六ヶ所村の埋設施設に輸送されている。

通常の輸送状態において放射性物質が容易に飛散、または漏洩しないような措置が講じられ、専用積載として運搬される場合のLSA-IとSCO-Iは放射性物質としないで輸送できる。但し、表面の放射性

表1 IP型輸送物と収納できる放射性物質との関係

輸送物の区分	低比放射性物質					表面汚染物		積載区分	
	LSA-I		LSA-II		LSA-III	SCO-I	SCO-II	専用積載	非専用積載
	固体	液体気体	固体	液体気体					
IP-1型輸送物	○							○	○
		○				○		○	○
IP-2型輸送物		○	○					○	○
				○				○	○
					○			○	○
IP-3型輸送物				○					○
					○				○

物質密度が α 線を放出する場合には $0.4\text{Bq}/\text{cm}^2$ 、 α 線を放出しない場合は $4\text{Bq}/\text{cm}^2$ を越えないSCO-Iの専用積載条件は緩和される。

3-4 核分裂性輸送物

^{233}U 、 ^{235}U 、 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu 及び ^{241}Pu などのあるエネルギーを持つ中性子などの粒子が衝突することにより核分裂が誘発される物質と呼び、輸送中の臨界安全性を確保する手段を講じなければならない。即ち、IP型核分裂性輸送物、A型核分裂輸送物、B型核分裂輸送物があり、代表的な核分裂輸送物を表2に示す。

IV 放射性物質の安全輸送のための技術基準

1. 安全輸送を確保するための基本概念

安全輸送規則は、一般公衆と輸送従事者及び財産を、輸送される放射性物質から防護することを目的としている。このため、輸送容器は収納できる放射性物質の種類と数量が制限され、輸送物の型式に応じた設計基準や輸送方法についての規則が定められている。安全輸送確保の正常な輸送時と事故時に対する基本概念は以下の通りである。

- (1) 輸送物から放射性物資の漏洩・拡散による周辺住民及び輸送従事者への被爆を防止できること。
- (2) 輸送物からの放射性による周辺住民と輸送従事者への被爆を防止できること。
- (3) 収納物が核分裂物質の場合には核分裂連鎖反応の発生を回避できること。

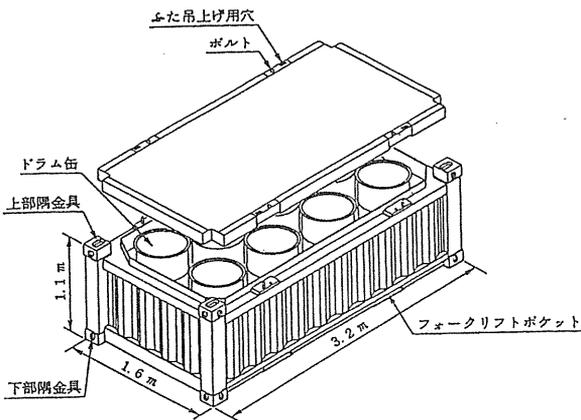


図4 IP型輸送物（低レベル放射性廃棄物）

表2 核分裂性輸送物の代表例

核分裂性輸送物の区分	核分裂性輸送物の代表例
IP型核分裂性輸送物	・回収ウラン(UO_3)
A型核分裂性輸送物	・濃縮 UF_6 ・二酸化ウラン粉末 ・濃縮ウラン新燃料集合体
B型核分裂性輸送物	・MOX燃料集合体 ・使用済燃料 ・二酸化プルトニウム粉末 ・高レベル放射性廃棄物

以上の基本概念を満足させるための技術基準の考え方は以下のとおりである。

- (4) 収納物の性質と放射線を考慮し、人体や環境に影響を与える量の放射能が拡散しないことを保障できる輸送容器の構造強度と格納機能を有すること。
- (5) 輸送物は外部における放射線レベルを適切なレベルに維持できる構造を有すること。
- (6) 輸送物は、収納物と輸送容器が熱的な損傷を被らないような構造を有すること。
- (7) 輸送容器と収納物の状態を保守的に評価しても臨界状態を回避できる構造を有すること。

2. 輸送物の種類と技術基準

上記の安全輸送を確保するための基準概念は収納物の性質と放射エネルギーを考慮して、輸送物の型式ごとに構造物としての技術基準が定められており、その技術基準を適合性を評価するために試験条件が輸送物の型式ごとに定められている。そして、該当する輸送物はその技術基準に適合していることを試験あるいは解析により確認することが課されている。また、原子燃料物質などは国際的に輸送されるため、IAEAにおいて放射性物質安全輸送規則が制定され、我が国における放射性物質の安全輸送に関する規則はその規則を取り入れている。

2-1 輸送物の型式と技術基準

放射性物質の輸送物は形式に対応した構造上の技術基準が定められている。

L型輸送物は放射性物質の危険性を極めて小さいものとするように収容量が制限されているため、万一、事故に遭遇し収納ものが輸送物外に漏出しても放射線障害が生じることがないので最低限の構造基準が適用される。

IP型輸送物は、収納物の比放射能または表面汚染密度が一定限度以下の危険性が少ないものに限定されており、万一、事故に遭遇しても放射線障害が発生しないように収納物と輸送容器の両方に基準が設けられている。

A型輸送物は、収納物の放射エネルギーが規定値以下に限定されているが、万一、事故に遭遇しても、放射線障害が発生しないように構造基準が規定されている。

B型輸送物は、大量の放射性物質を収納するものなので、万一、事故に遭遇した場合の放射性物質の格納機能は輸送容器で担保されている。

上述の輸送物の型式ごとに課されている技術基準を表3にまとめる。また、核分裂性物質に対しては臨界安全を担保するために表4に示す条件が別途に課されている。

2-2 試験条件

放射性物質の安全輸送を確立するための上述の技術基準に対する適合性を評価するために、輸送中に遭遇する可能性のある条件を想定した一般試験条件と確率は低いものの遭遇する可能性が想定される特別試験条件が定められている。これらの試験条件の概要を表5にまとめる。

一般試験条件に対する適合基準は以下の通りである。

- (1) 輸送物の表面の線量当量率が著しく増加しないこととし、最大線量当量率は2mSv/h以下であること。
- (2) IP-2型、IP-3型輸送物とA型輸送物に対しては漏洩がないことであり、B型輸送物に対しては許容漏洩率は $A_2 10^{-6}/h$ であること。

許容漏洩率の適合基準は大量の放射エネルギーを有するB型輸送物に比べて、IP-2型、IP-3型、A型輸送物の方が厳しいように受け取れるが、IP-2型、IP-3型、A型輸送物は著しい漏洩がないこと、即ち、輸送物の損傷がないことを意味していると解釈できる。一方、B型輸送物の場合は試験あるいは解析からこの許容漏洩率以下であることを立証する必要がある。

特別試験条件に対する適合基準は以下の通りである。

- (1) 表面から1mにおける線量当量率が10mSv/h以下であること。
- (2) 許容漏洩率は1週間当たり A_2 である。
- (3) BU型輸送物に対しては密封装置の破壊がないこと。

表3 放射性輸送物の技術基準

基準	輸送物の種類 L型	IP型			A型	B型	
		IP-1	IP-2	IP-3		B(M)	B(U)
1. 取扱いが容易かつ安全	○	○	○	○	○	○	○
2. 運搬中に亀裂、破損等の恐れがない	○	○	○	○	○	○	○
3. 不要な突起物がなく、除染が容易	○	○	○	○	○	○	○
4. 材料相互間及び材料と収納物間で物理・化学的作用がない	○	○	○	○	○	○	○
5. 弁が誤操作されない表示	○	○	○	○	○	○	○
6. 開封されたときに見やすい位置に「放射性」の表示	○						
7. 表面汚染が表面密度限度以下 ¹⁾	○	○	○	○	○	○	○
8. どの辺の大きさも10cm以上		○	○	○	○	○	○
9. シールの張り付け等の封印				○			
10. 構成部品が-40℃から70℃で運搬中に亀裂、破損等の恐れがない				○			
11. 周辺圧力 25kPa の下で漏洩がない				○	○	○	○
12. 液体を収納する場合、2倍の吸収材又は二重の密封装置				○	○	○	○
13. 液体を収納する場合、空間を考慮			○	○	○	○	○
14. 線量当量率が基準値以下							
(1)表面 (mSv/h)	0.005	2	同左	同左	同左	同左	同左
(2)表面から 1m ² (mSv/h)		0.1	同左	同左	同左	同左	同左
15. 不要な物品の収納不可					○	○	○
16. 一般試験条件下							
(1)表面の線量当量率の著しい増加がない			○	○	○	○	○
(2)表面の最大等量率 (mSv/h)			2	同左	同左	同左	同左
(3)放射性物質の許容漏洩率 (一時間当たり)			0	同左	同左	A ₂ x 10 ⁻⁶	A ₂ x 10 ⁻⁶
(4)表面の温度が50℃以下 (専用搭載の場合は85℃以下)						○	○
(5)表面汚染が表面汚染密度以下 ¹⁾						○	○
17. 特別試験条件下							
(1)表面から 1 mでの最大線量等量率 (mSv/h)						10	10
(2)放射性物質の許容漏洩率 ³⁾ (一週間当たり)						A ₂	A ₂
18. 37PBq を超える使用済燃料を収納する場合の200m浸漬試験						○	○
19. 運搬中に想定される最低温度から38℃までの温度で性能維持						○	
20. -40℃から38℃までの温度で性能維持							○
21. フィルタ、機械的冷却装置の使用不可							○
22. 最高使用圧力が 700kPa 以下							○
23. 航空輸送の場合の追加基準							
(1)周囲温度38℃の下で輸送物の表面温度50℃以下		○	○	○	○	○	○
(2)-40℃から55℃の温度で密封性能維持		○	○	○	○	○	○
(3)液体を収納する場合、95kPa の圧力差で漏洩がない		○	○	○	○	○	○

- 1) 表面密度限度は IP 型、A 型及び B 型輸送物については、非固定性の表面汚染密度が α 線を放出する放射性物質については 0.4Bq/cm² α 線を放出しない放射性物質については 4Bq/cm² を超えないこと。L 型輸送物については更にこれらの10分の1以下とすること。
- 2) コンテナ、タンクについては規定の係数をかけた値が0.1を超えないこと。
- 3) クリプトン85は 100TBq

表4 核分裂性輸送物の技術基準

核分裂性輸送物の置かれた条件		合格基準
一般試験条件 ¹⁾		<ul style="list-style-type: none"> ・空間又は容積の減少が5%以下 ・1辺が10cmの立方体を包含するくぼみがない ・放射性輸送物内部への水の出入りがない ・中性子増倍率が増加しない
孤立系 ・水の出入りがあること ・中性子増倍率が最大となるような収納物の配列とすること ・周囲に20cm厚の水による反射があること	非損傷状態	・臨界に達しない
	損傷状態	・臨界に達しない
配列系 ・周囲に20cm厚の水による反射があること	非損傷状態	・輸送制限個数の5倍の個数を集積して臨界に達しないこと
	損傷状態 ¹⁾	・輸送制限の2倍の個数を集積して臨界に達しないこと

1) 放射性輸送物相互間には中性子増倍率が最大となる状態とする。

表5 放射性輸送物の試験条件

試験条件	試験内容	IP型		A型	B型		核分裂性
		IP-2	IP-3		B(M)	B(U)	
1. 一般試験条件							
(1) 水の吹き付け試験	50mm/hの雨量に相当する水を吹きかける	○	○	○	○	○	○
(2) 落下試験	水の吹き付け試験後に、輸送物の重量により次の高さから最大の損傷を及ぼすように落下する 5トン未満 1.2m 5トン～10トン 0.9m 10トン～15トン 0.6m 15トン以上 0.3m	○	○	○	○	○	○
(3) 積み重ね試験	軽量の放射性輸送物は、0.3mコーナー落下試験を追加重量の5倍の荷重又は鉛直投影面に13kPaを乗じた荷重のうち大きい荷重を24時間加える	○	○	○	○	○	○
(4) 貫通試験	軟鋼棒(重量6kg、直径3.2cm、先端が半球形)を1mの高さから落下する		○	○	○	○	○
(5) 落下試験	9mの高さから最大の破損を及ぼすように落下する			気体			
(6) 貫通試験	軟鋼棒(重量6kg、直径3.2cm、先端が半球形)を1.7mの高さから落下する			気体			
(7) 環境試験	38℃の環境に一週間おく			液体	○	○	
2. 特別試験条件							
(1) 落下試験Ⅰ	9mの高さから最大の破損を及ぼすように落下する				○	○	○ ¹⁾
(2) 落下試験Ⅱ	垂直に固定した軟鋼棒(直径15cm、長さ20cm)に1mの高さから落下する				○	○	○ ¹⁾
(3) 落下試験Ⅲ	軽量の放射性輸送物に500kgの軟鋼板を落下する				○	○	○ ¹⁾
(4) 耐火試験	800℃の環境に30分おく				○	○	○ ¹⁾
(5) 浸漬試験	深さ15mの水中に8時間浸漬する				○	○	○ ²⁾
(6) 浸漬試験	深さ200mの水中に1時間浸漬する				○ ³⁾	○ ³⁾	○
(7) 浸漬試験	深さ0.9mの水中に8時間浸漬する						○ ¹⁾

註 コンテナ、タンクを輸送物とするIP型輸送物については、長官が同等と認める基準によることができる。

1)と2) 核分裂性輸送物に係る特別試験条件については、一般試験条件後に1)の試験条件を行うものと、2)の試験条件を行うものの内蔵しいものを行う。

3) 37PBq以上の使用済燃料輸送物に適用する。

また、核分裂物質に対しては未臨界性が確保できることは言うまでもない。

V 安全輸送のための輸送方法

前述のように IAEA の放射性物質安全輸送規則では、輸送モード（トラック輸送、鉄道輸送、船舶輸送、航空輸送など）によらず、収納物の性状と収納限度あるいは輸送容器に技術基準を課すことにより、安全輸送を達成することを基本的な概念としている。しかし、放射性物質の輸送の安全性としてはⅢで述べた技術基準を満足することにより設計上確保されるが、その他、輸送容器の定期点検、輸送物の発送前検査、輸送方法、輸送中の安全運転などあらゆる段階でのたゆまない努力により確保されている。

特別試験条件は輸送中の考えられる最苛酷事象、即ち、仮想的な事故を想定して策定されている。例えば、800℃、30分の火災試験用件は、タンクローリーと輸送中のトラックが測溝のない窪地の交差点で衝突し、積んでいるガソリンが溢れ、燃える状態を想定しており、火災の平均温度が800℃以下で、燃焼時間が30分以下であることに基づいている、しかし、日本坂トンネル火災を想定すれば、火災の温度は800℃を上回り、燃焼時間も30分を上回ることが想定される。これらの事故に対処できる技術基準を定めるべきであるという安全性に対する考え方もあるが、発生確率が非常に低い事象を設計ですべて対処することは合理的とは云えない。我が国では、安全輸送を設計段階のみで達成するのではなく、輸送手段対策が施されているかについて論じる。

1. 陸上輸送

燃料加工施設から原子力発電所までの新燃料集合体の輸送、専用港を持たない原子力発電所において港までの使用済燃料の輸送などはトラックを用いた陸上輸送が行われている。陸上輸送の場合は、一般の公道を通過してトラックで輸送される。そこで、種々の交通事故を回避することを目指して、図5に示すように前後に警備車と先導者を配列し、数台のトラックで隊列を組む隊列輸送を実施している。更に、20～25km/h程度に速度制限することにより更に交通事故の発生を回避している。

2. 海上輸送

原子力発電所から国内外の最処理施設への使用済燃料の輸送、原子力発電所から六ヶ所村の低レベル放射性廃棄物埋設センターへの LLW の輸送、燃料加工施設から原子力発電所までの新燃料集合体の輸送の一部などは海上輸送されている。IAEA の安全輸送規則に定められている特別試験条件は陸上輸送を想定して策定されており、我が国では、使用済燃料の海上輸送の安全性確保のために、運搬船の構造・設備に安全機能をもたせるため、専用運搬船の構造・設備要件、例えば、船舶はダブルハル構造とし、衝突時の耐沈没構造、非常用電源設備、

タンカーなどとの衝突、火災事故を想定し、輸送物の健全性を確保するための貨物倉への漲水設備などを課した舶査610号が昭和49年10月に制定された。その後、低レベル放射性廃棄物運搬船、プルトニウム運搬船、高レベル放射性廃棄物運搬船など



(a) 新燃料集合体の隊列輸送

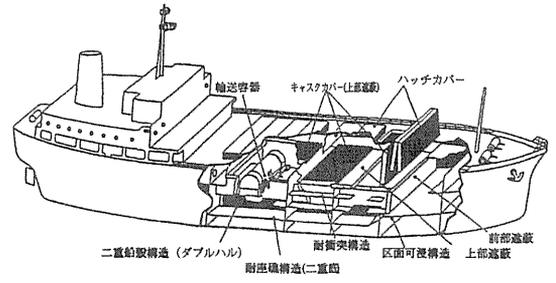


(b) 使用済燃料の隊列輸送

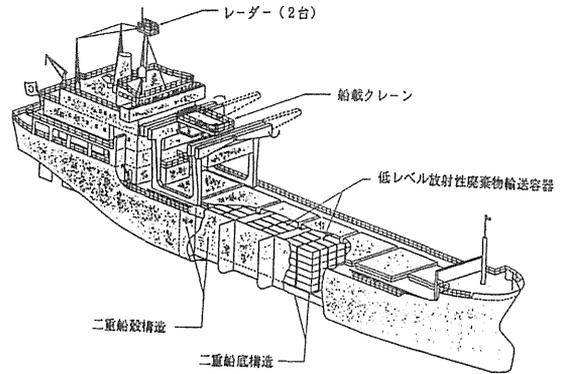
図5 隊列輸送の編成例

の構造・設備要件を個別に輸送物の潜在的に有する危険性の即した構造・設備要件を策定し、安全輸送の実績を積み重ねてきた。代表的な船舶の構造として、使用済燃料と低レベル放射性廃棄物の専用運搬船の例を図6に示す。

国際的にも海上輸送が行われるようになり、1994年に国際海事機関(IMO)では、使用済燃料、MOX燃料を含むプルトニウム、高レベル放射性廃棄物に対する安全輸送を確保するため、照射済核燃料など安全輸送コード(INFコード)を策定した。その規定の基準は主として我が国の実績が基盤となっている。我が国では、INFコードを国内に取り入れ、使用済燃料、MOX燃料を含むプルトニウム、高レベル放射性廃棄物の専用運搬船に対する構造・設備要件の統合化が図られ、1995年9月に海査520号の通達が発された。



(a) 使用済燃料専用運搬船の



(b) 低レベル放射性廃棄物専用運搬船の

図6 専用運搬船

3. 航空輸送

我が国では、原子燃料物質の航空輸送は殆ど行われていない。放射性物質の航空輸送の大部分は医療薬の体内診断薬、体外診断薬、放射線治療用、放射性同位元素トレーサー、遺伝子工学、農業、工業分野での放射性同位体元素である。航空輸送は、陸上輸送及び海上輸送に比べて、機内のスペースに制限があること、空港の気象条件が大幅に異なること、上空における気圧が低いことなどの条件の差異があるため、IAEAの安全輸送規則1985年版ではIP型輸送物、A型輸送物、B型輸送物に対して以下の構造基準を追加している。

- (1) 周囲温度(日陰) 38℃の下で放射性輸送物の表面温度が50℃以下であること。
- (2) 周囲温度が40℃から55℃において輸送物は密封機能を維持できること。
- (3) 液体を収納する場合には 95kPaの差圧で漏洩がないこと。

しかし、上記の要件は正常の輸送状態に課される技術基準であり、航空機の墜落事故などを想定した安全性確保のための要件ではない。上記のように我が国では、今日では原子燃料物質を航空輸送する計画はないが、将来、核物質防護の観点からプルトニウムを航空輸送することが全く考えられないわけではない。

Ⅵ IAEA 放射性物質安全輸送規則1996年版の改訂の要点

IAEAでは、10年毎に放射性物質安全輸送の改訂を実施してきた。前回の改訂が1985年であったが、2、3の項目の議論が合意されていないため、実質的には1996年の改訂となることが想定される。ここでは、今日、IAEAで議論されている主要な改訂項目を紹介する。

1. 放射線防護

ICRPの新勧告(Pnb.60)を受け、輸送従事者の被爆に対する措置として、個人記録などが不必要で

あった年間 5 mSv 以下という基準を年間 1 mSv 以下に、作業場所もしくは個人モニタリングに基づく線量評価が必要であった年間 5～15mSv の基準を 1～6 mSv/h にすることが議論されている。更に、Q システムの見直しにより、一部の核種で A_1 、 A_2 値の改訂が検討されている。

放射性物質として扱わなくてもよい規制免除基準値は、現行では 74Bq/g の比放射能で与えられているが、改訂では規制免除に関する一般原則との整合性を図るため、核種ごとに規制免除基準値を設定する方向で議論が進められている。しかし、放射性廃棄物など核種が完全に同定できないものを想定すると規制免除基準値として比放射能も残すべきであろう。

L 型輸送物の表面汚染基準値は、他の IP 型、A 型、B 型輸送物の 1/10 とされているが、この限度値以下であることを確認するためには非現実的な計測時間を要すること、並びに、他の輸送物の表面汚染基準を基にして行った被曝評価から安全性が十分に保障できることの原因から L 型輸送物の表面汚染基準値を他の輸送物と同等の値に改訂する作業が進められている。

2. C 型輸送物

IAEA の放射性物質の安全輸送規則は、漏洩しても放射線障害が生じない量として収納物を規制したり、輸送容器で収納物を担保させるなど、輸送方法に依存せずに安全性を確保することを基本としてきた。鉄道、車両などによる陸上輸送に対してはこの考え方が有効であった。また、海上輸送の場合は特別試験条件を越える事故事象が想定されるが、輸送手段である船舶の構造・設備要件を設定し、安全機能の一部を担わせることにより、輸送物の技術基準を変えることなく安全性を確立することが可能であった。しかし、航空機輸送が行われるようになると、航空機の構造・設備に安全機能の一部を担わせることは困難であり、輸送方法に依存する特別技術基準が必要となった。1985年版の改訂では V-3 で論じた正常な航空輸送に対する追加基準が設けられた。しかし、航空機の墜落時には特別試験条件を越える事故事象が想定されることから、B 型輸送物に相当する輸送物の内、特別形放射性物質の場合に $3,000A_1$ か $100,000A_2$ のいずれかの少ない値を超えるか、特別形以外の場合に $3,000A_2$ を超える放射性物質に対して C 型輸送物の分類を新しく設ける構想が検討されている。C 型輸送物に対する特別試験条件は以下の通りである。

(1) 衝撃試験

航空機の墜落事故時の衝撃を調べた結果、90m/s の速度で最大の損傷を与えるように非降伏面に衝突させる衝撃試験が課される。

(2) 圧潰試験

航空機の墜落事故時に周囲の物体等との相互作用として、500kg の質量の鋼板を 9 m の高さから落下させる圧潰試験が課される。

(3) 引裂試験

その後の火災試験で輸送物に対して最大の損傷が生じるように軟鋼製で長さ 30 cm、底部の直径 20 cm、先端の直径 2.5kg の質量を有する正円錐台の形状のプロープで輸送物に損傷させねばならない。

(4) 火災試験

航空機の墜落後の火災炎上を模擬した 800℃、60 分の火災試験が課される。

(5) 浸漬試験

10^5A_2 値を超える放射能を収納する B 型輸送物に課される水深 200 m、1 時間浸漬試験が課される。

(6) 土中埋没条件

墜落後に起こりうる環境の一つとして土中埋没が選定され、定常状態で 0.33W/mK の熱伝導度の土中埋没を考慮した上で、各々の適用される試験条件に合致するように設計することとされた。

試験シーケンスは以下の 3 種類が課される。

- (1) 9 m 落下試験→圧潰試験→引裂試験→800℃、1 時間火災試験
- (2) 15 m、8 時間浸漬試験、及び、200 m、1 時間浸漬試験
- (3) 90m/s 衝撃試験

C 型輸送物の試験後の合格基準は B 型輸送物の特別試験条件の合格基準と同様であり、1 週間の許容漏洩率は A_2 値で、表面から 1 m における線量当量率が 10mSv/h であり、また、200m、1 時間の浸漬試験では密閉装置の破断のないことである。

C 型輸送物としないで、B 型輸送物として航空輸送を可能とする超低散逸性物質の導入も検討されている。超低散逸性物質とは固体放射性物質または放射性物質を密封したカプセルを意味する。しかし、議論の中では、付加試験項目も検討されており、それ自体を 90m/s の衝突試験と 800℃、1 時間の火災試験を個別に課し、直径 100 μm までの粉末形状での総放出量が $100A_2$ 値以下を合格基準とする考え方が提示されている。

3. 天然六フッ化ウランに係わる火災要件

天然ウランは現行の輸送規則上では L 型もしくは IP 型輸送物に分類される。天然 UF_6 に放射性物質としてではなく、化学的毒性を理由に火災試験要件を課す提案がなされている。我が国では、事業者が現在輸送に利用されている 48 Y シリンダーを 800℃、30 分の火災要件を満足するように自主的な対策を講じているため安全性に関しては問題はないが、このような行政指導による自主努力は我が国独自のものであり、国際的には通用しない。一方、火災要件を規制化されると、種々の許認可を始めとして、発送前検査、積み付け検査などと、事業者と規制当局に運営上の負担と経済的な負担が大きくなる可能性がある。

4. LSA と SCO の物質の定義の見直し

IAEA 安全輸送規則 1985 年版では、L 型、A 型、B 型輸送物のように輸送物当たり収納される放射エネルギーでの区分と放射能濃度と表面汚染密度による区分がある。このため、収納される放射能が A 型輸送物を超える IP 型輸送物が存在するが、技術基準は A 型輸送物より緩和されている。この矛盾の解決のために輸送物を収納放射エネルギーで統一的に区分することが議論された。しかし、この区分方法に従えば、IP 型輸送物の一部、例えば、原子力発電所から六ヶ所村の低レベル放射性廃棄物埋設センターに運ばれている LLW は A 型輸送物に分類され、結果的に技術基準が強化され、輸送容器を大幅に変更しなければ輸送できない問題が生じる。しかし、IAEA 安全輸送規則 1985 年版に基づき IP 型輸送物を安全に輸送している実績を勘案とすると、改訂した規則を短期間で変更することは今後の IAEA の安全輸送規則の運用上好ましくない。

Ⅶ 今後の課題

輸送はそれ自体で完結するのではなく、輸送物を荷出し側と荷受け側が存在して始めて成立する分野である。原子力発電所の建設から運転、廃炉までの工程を考えると、燃料製造、原子力発電所を運転することにより発生する使用済燃料と廃棄物、使用済燃料の再処理により回収・発生する原子燃料物質と放射性

廃棄物などの安全輸送に関する機制と技術基準、輸送方法などは確立された。しかし、埋設あるいは貯蔵方法が確立していない放射能レベルの高い原子炉の構造物(例えば、フィルタ、制御棒、蒸気発生器など)、並びに、2010年以降の実施が想定される廃炉に伴う大量の放射性廃棄物などの輸送に関しては今後の課題として残されている。これらの物質の輸送に関しては、再利用方法と解体技術の開発と埋設方法の確立と深く関連がある。言い替えば、合理的な輸送を勘案した輸送方法とその安全性を確立するためには、解体技術・埋設方法と整合性を保ちつつ確立すべきである。即ち、輸送可能な大型な輸送容器に収納できる形状・容積で大型機器と建屋などの構造物を解体し、輸送してそのまま貯蔵・埋設できれば経済性と従事者の被曝低減という観点から望ましい。一つの案としては今日発電所で発生する LLW を収納するドラム缶を 8 本収納する輸送容器の形状・寸法が挙げられる。また、我が国では、放射性廃棄物の貯蔵・処分管理上、低レベル放射性廃棄物埋設センターに埋設できる LLW と高レベル放射性廃棄物管理施設で貯蔵する HLW の 2 種類のみが確立しているが、これらに該当しない中間に放射性廃棄物が存在する。諸外国に例をとれば、自然界の比放射能以下であり一般の産業廃棄物として処理できる極低レベル廃棄物、人工的なバリアを設けなくても埋設可能な LLW、除熱機能は必要としないが埋設に関しては人工的なバリアを必要とする中レベル廃棄物 (MLW)、及び、除熱機能を必要とする HLW に体系的に分類されている。特に、廃炉の解体方法を検討する上では、一日も早く放射性廃棄物の分類と各分類に対する処理・処分方法の確立が放射性物質の安全輸送を体系的に確立する上からも重要な課題であり、廃炉に伴い発生する廃棄物を現行の放射性輸送物の型式分類に当てはめるのか、あるいは、効率的な輸送を実施するためには別の分類を検討すべきかは、埋設問題を解決すると同時に解体技術の開発と密接に関連するので、これら廃炉と関連のある分野が系統的に議論を進めて、技術開発すべきであると考え。これは、米国のように圧力容器や蒸気発生器をそのまま埋設できる土地を有する国や LLW を何の養生もせず埋設できる国があるが、我が国では、環境問題を重視して LLW ですら人工的なバリアを設けて埋設している。この実績を勘案すれば、原子力発電所の廃炉に伴う廃棄物の埋設問題に対してはこれらの国々の経験を参考にできないであろうと考えるからである。

VIII おわりに

本報では、原子力発電所の運転に関連する放射性物質、即ち、原子燃料物質と放射性廃棄物の輸送に関して、輸送されている物質、輸送物の型式を紹介し、それらの輸送の安全性を確立するために策定されている技術基準と実施している輸送方法を議論し、現在検討されている IAEA の安全輸送規則の改訂について概観した。最後に、将来、発電炉の廃炉に伴う大型で大量の廃棄物の輸送に関する問題点を摘出した。廃炉の問題は輸送の分野のみで検討するのではなく、廃炉技術、廃棄物の埋設や貯蔵とそれに関連する環境評価の総合的な分野において積極的な情報交換を行い、廃炉技術全体の確立を目指した研究開発と規制の策定が望まれる。

放射性物質の輸送という分野は、原子力発電所をはじめ各種の原子力関連施設の円滑な運転に不可欠な分野であると同時に、安全輸送を確立するためには幅広い学問分野を基盤とした統合的な検討が不可欠である。

参考文献

- 1) 青木成文、放射性物質の輸送のすべて、日刊工業新聞社 (1990)。

- 2) 放射性物質の安全輸送に関する調査報告書、(財)運輸経済研究センター (1995)。
- 3) IAEA Safety Standards, Safety Series No.6, Regulations for the Safe Transport of Radioactive Material, 1985 Edition.
- 4) 運輸省、危険物船舶運送及び貯蔵規則
- 5) 「核燃料輸送容器—その構造と安全性—」、科学技術庁パンフレット (1995. 1.)。
- 6) 「核燃料サイクルと輸送—安全輸送をめざして—」、科学技術庁パンフレット。
- 7) 「低レベル放射性廃棄物運搬船—清栄丸—」、原燃輸送 (株) パンフレット (1993. 6.)。

長半減期核種の地球化学

松 鶴 秀 夫

日本原子力研究所

Geochemistry of Long-lived Radionuclides

Hideo Matsuzuru

Japan Atomic Energy Research Institute

2-4 Sirakatashirane, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, 319-11, Japan

ABSTRACT-Dynamics of radionuclides in environmental media has long been studied to construct a scientific foundation of environmental consequence assessment of a nuclear installation. In addition to the effort mentioned above, the current interest in a nuclear environmental science focuses on geochemical behavior of long-lived radionuclides, reflecting from the current progress in the development of geologic disposal system for a high-level radioactive waste (HLW). The geologic disposal system has particular features compared with other nuclear installations such as a power plant and a reprocessing plant, i. e.,

- HLW contains significant amounts of long-lived radionuclides,
- the geologic disposal system based on a multi-barrier concept holds a high containment capability of radionuclides,
- radionuclides released from a repository first enters into the geosphere, and
- radiological consequences are potentially expected to appear only after a long period of time and may be associated with time-dependent degradation of an engineered barrier and with the migration of radionuclides in a natural barrier to the human environment.

These features inevitably require the information on long-term behavior of long-lived radionuclides in geologic media, environmental media concerned, and a terrestrial and aquatic ecosystem, as scientific basis of long-term safety assessment of the geologic disposal system. The geochemical study has therefore been extensively conducted, in particular since the past decade, on long-lived radionuclides and also on the geologic disposal system. This paper summarizes achievements of the current topics on;

- solubility and speciation,
- retention mechanism, and
- complexation.

I. 緒言

放射性核種の環境動態に関する研究及び環境影響に関する研究は原子力開発の初期段階から広範に実施されてきているが、近年特に長半減期核種による長期的な環境影響が注目されるようになった。原子炉のように、炉の設計寿命との関連で環境影響評価が数十年程度の期間を対象とする場合、

- ・環境中での長半減期核種の蓄積は相対的に有意でない、
- ・長半減期核種の環境への放出量は短半減期核種に比べて有意に少ない、

などの理由から、長寿命核種の環境中での蓄積に起因する個人線量は、短半減期核種の場合に比べて相対的に重要性が低いと考えられている¹⁾。原子炉事故時についても、放出源情報の評価研究²⁾、チェルノブイリ事故の経験³⁾、及び原子炉の確率論的安全評価のレベル3（環境影響評価）の解析経験⁴⁾から、希ガス、¹³¹I、比較的半減期の短いFP（¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr）などの高い相対的重要性が明らかにされている。一方、使用済核燃料を化学的に溶解し、有用核種を分離抽出する再処理施設では、環境への放出物（大気放出物及び海洋放出物）中に照射された核燃料に生成される長半減期核種が有意に含まれる。したがって、施設の稼働に起因する線量に対しては、短半減期核分裂生成物（例えば、³H, ⁸⁵Kr, ⁹⁰Sr, ¹⁰⁶Ru, ¹³⁷Cs など）に加えて、比較的半減期の長い¹⁴C、及び長半減期核種（例えば、¹²⁹I, Pu など）の寄与が相対的に大きくなる⁵⁾。しかし、再処理施設の場合も、原子炉と同様に、プラントの最終的な運転停止直後に個人線量が概ね最大となるので、環境影響評価において、長半減期核種の長期的な地球化学的挙動が本格的に解析されることはなかった。

原子力施設の内では特殊な性格を有する放射性廃棄物処分施設（表1参照）では、

- 放射性廃棄物によっては長半減期核種を有意に含む（例えば、高レベル放射性廃棄物、TRU 廃棄物、ウラン廃棄物）
- 深地層に設けられる処分施設から漏洩する放射性核種が人間の生活環境に達するのに10⁴年以上を要すると推定されている⁶⁾⁻⁸⁾

などの理由から処分に起因する環境影響が長期（地球化学的年代）に亘る可能性がある。このような

表1 放射性廃棄物処分施設の特徴

項目	原子炉	処分施設
供用期間	数十年	概念なし
施設の健全性	少なくとも、供用期間中は維持される。	ある一定期間後、時間依存性の劣化により健全性が徐々に失われ、最終的には物理的機能は失われるが、化学的機能は一部維持される。
核種の放出モード	計画放出：定常放出 事故放出：パルス放出	時間依存性の連続放出（通常シナリオと確率的シナリオでは放出速度が異なる。）
核種の放出先	液体放出物：海洋 気体放出物：大気	地層の地下水
核種移行の環境媒体	気圏、水圏、陸圏	地層、水圏、陸圏、気圏
評価期間	少なくともライセンスが継続する期間	評価期間の設定は今後の課題ではあるが、処分廃棄物に起因する放射線影響が最大となる時点まで評価することが望ましい。

事情から、放射性廃棄物処分施設の環境影響評価では、評価のための科学的基盤を形成するため、長半減期核種（例えば、⁹⁹Tc, ¹²⁹I, ¹³⁷Np, ²³⁹Pu, ウランなど）の長期的な地球化学的挙動の解明が焦眉の課題となっている⁹⁾。

II. 研究の動向

長半減期核種の地球科学的研究は、対応する元素に関する研究を含めて、種々の分野で極めて広範囲に亘って実施されている。原子力の分野では、地球化学（より一般的には地球科学）の分野で蓄積されてきた研究成果に基づいて、原子力に固有な課題の究明に努めている。原子力の環境科学の分野における本格的な地球化学的研究は、世界的にも1980年代の初頭から開始されたに過ぎない。フロリダ工科大学のChoppin教授、ミュンヘン工科大学のKim教授、パリ大学（IV）のde Marsily教授らの先駆的研究が注目を集めたことも記憶に新しい。筆者は、地球化学の全ての分野における研究動向を紹介する能力を持たないので、ここでは、長半減期核種を含む放射性廃棄物の処分に係る環境影響評価の分野で実施されている研究の動向を概観するに止める。環境影響評価の構成と地球化学的研究の関係を図1に示す。

地層処分システムは多重バリアの概念に基づいて構築される。この概念は、あるバリア（放射性核種の漏洩・移行を阻止または遅延する機能を有する要素）の機能が部分的にまたは完全に失われたとしても、他のバリアが有効に機能し、システム全体として処分に起因する公衆への放射線影響を許容されるレベルに維持することを意図している。処分システムは、図1に示すように基本的には、

- 処分施設内部の工学バリア（例えば、固化体、容器、緩衝材）
- 処分施設が設置される地層から生態圏に至るまでの天然バリア
- 人間の生活環境に直結した生態圏

から構成される。処分システムの環境影響評価（安全評価）において、上記の構成要素をどのように概念化（またはモデル化）するかは評価手法によって異なる。これは、処分システムのように、工学的要素以外に自然を解析対象にする場合、絶対的な概念化は存在し得ないことを反映している。しかし、処分システムに関する研究開発の進展に伴い物理的・化学的理解は深まり、概念化の多様性は狭い範囲に収束しつつある。

工学バリアの性能を示す指標は放射性核種の漏洩フラックス（例えば、Bq/y）であり、この量を支配する重要な物理量として、

- 容器の腐食速度（廃棄物固化体が地下水と接触する時期を評価する）
- 廃棄物固化体マトリックスの溶解速度
- 放射性核種の溶解度
- 緩衝材中の放射性核種の拡散速度

などがあげられる。これらのなかで、以下の項目について地球化学的研究が積極的に行われている。

— 元素の溶解度と化学形（地下水組成、岩石組成、電気化学的条件）

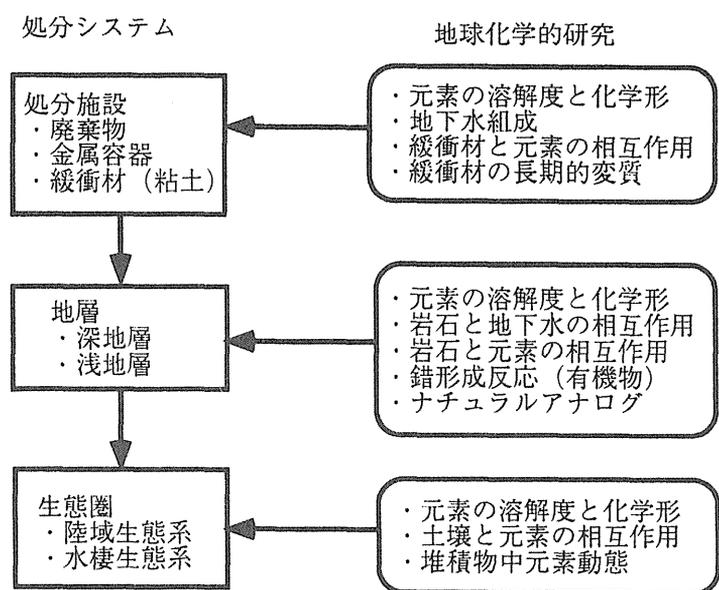


図1 処分システムにおける放射性核種の流れと地球化学的研究

— 緩衝材と元素の相互作用、及び拡散挙動

— 緩衝材の長期的変質

天然バリア（地層）の性能を示す指標は、生態圏への放射性核種の移行フラックス（Bq/y）であり、この量を支配する因子の1つは放射性核種の輸送速度と地下水速度の比で定義される遅延係数（地下水の流速に比べて放射性核種の輸送速度がどの程度遅延するかを示す）である。放射性核種の地層中での輸送は、

- 移流（地下水の平均的な流れによる核種の輸送）
- 分散（機械的拡散と分子拡散による核種の輸送）
- 保持（地層構成物質と核種の相互作用）
- 核種の崩壊

に支配されるとして、次式で示される物質輸送方程式（ここでは、単純化のため1次元体系について式を示す）を用いて解析される。

$$\frac{\partial C_i}{\partial t} - \frac{1}{n} \frac{\partial C(s)_i}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} v C_i - D_L \frac{\partial^2 C_i}{\partial x^2} - \lambda_i C_i \quad (1)$$

ここで、

C_i : 液相の核種 i の濃度 (Bq/m³)、

$C(s)_i$: 固相の核種 i の濃度 (Bq/m³)、

n : 地層の空隙率、

v : 地下水流速 (m/s)、

D_L : 分散係数 (m²/s)、

λ_i : 崩壊定数 (s⁻¹)。

式(1)の左辺第1項は液相の濃度変化、及び第2項は固相の濃度変化（したがって、保持現象）をそれぞれ示している。右辺第1項は移流、第2項は分散及び第3項は崩壊による濃度変化を表している。天然バリアに関しては、保持現象に関する以下の項目に地球化学的研究の多くが集中している。

— 地層構成物質と地下水の相互作用（岩石、粘土などの変質）

— 液相中における元素の溶解度と化学形

— 地層構成物質と元素の相互作用

— 液相中における元素と共存物質（錯形成物質、コロイド）との相互作用

— ナチュラルアナログ

生態圏の学問的定義は別として、原子力施設に関する環境影響評価の分野では、生態圏モデルは、人間が直接・間接的に接触、吸入または摂取する環境媒体（例えば、地表面、地表面近傍の空気、表面水系など）及び生物（食物連鎖を含む）を取り扱う。環境媒体の中で、放射性核種の長期的な蓄積を考慮するのは地表面及び表面水系である。表面水系（河川上流、湖沼、河川下流、沿岸及び海洋）に表層地下水が流入し、淡水が灌漑水として利用される場合の核種移行経路の一例を図2に示す。

このような系に関する地球化学的研究として、

— 元素の溶解度と化学形

— 土壌と元素の相互作用

— 堆積物中での元素の動態

などがあげられる。

本稿では、地球化学的研究として、

○元素の溶解度と化学形

○岩石・土壌と元素の相互作用 (Retention)

○錯形成反応

を取り上げ、最近の論点を述べる。

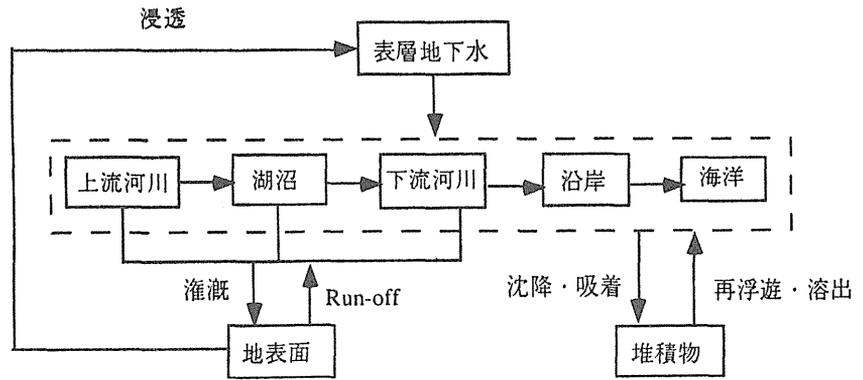


図2 表面水系における放射性核種の移行経路

Ⅲ. 地球化学的研究の概要

1. 元素の溶解度と化学形

物理化学の分野では、古くから比較的単純な反応系における金属化合物などの溶解に関する平衡論的、速度論的及び熱力学的諸量が測定されてきた。このような研究によって定義される溶解度は、放射性廃棄物が処分される地層環境に対して用いられるものとは若干性質を異にする。無論、溶解度の物理的定義は普遍的なものであるが、天然の地下水（浅地層及び深地層の地下水）には種々の陽イオン、陰イオン、コロイドなどが存在するため、溶解過程には複雑な複合反応系が含まれる。金属化合物の溶解に付随する最も基本的な化学反応は加水分解であり、逐次加水分解生成物、中性加水分解生成物（または、水和された酸化物：例えば、 $\text{Fe}(\text{OH})_3 \rightarrow \text{Fe}_2\text{O}_3 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ）、多量体、コロイドなどを生成する。溶解反応の結果生成する化学種は、加水分解反応以外に地下水に溶存する化学種（最も重要な化学種は、炭酸イオン、腐植酸などである）との錯形成反応にもあずかる（注：加水分解反応も金属イオンと水酸基との錯形成反応と解釈できるが、ここでは別の概念として取り扱う）。このように、加水分解反応と競争する反応が起こる結果、地下水中に錯形成反応にあずかる化学種が溶存する場合は、元素の溶解度が増加することになる。

溶解度は、着目する地下水環境中における安定な固相化合物と液相に存在し得る溶存化学種の溶液化学的平衡によって定義される。しかし、

— 安定な固相化合物及び溶存化学種は地下水の化学的組成と電気化学的条件の双方に依存する

— 地下水中において真コロイド（着目する元素の化学種から生成）及び擬コロイド（着目する元素以外の化学種から成るコロイドに、着目する元素の化学種が収着している）が形成される

ことが、溶解度の決定をより複雑なものとする。したがって、着目する処分地層環境における元素の溶解度を測定するためには、少なくともその環境を実現できる実験系を用いる必要があり、測定された溶解度の物理化学的意味を明確にするためには、測定条件（用いた溶液の化学組成及び電気化学的条件、ならびに溶液試料を採取する際に用いた固液分離の方法）を明記する必要がある。

地層から採取した地下水を用いて Am (III) 水酸化物の溶解度を測定した例¹⁰⁾を以下に紹介する。地下水中に溶解した Am 濃度を測定するため、上澄み液は種々の孔径のフィルターで濾過された。限外濾過の孔径と試料中の Am 濃度との関係を図3に示す。測定された見かけの溶解度は限外濾過の孔径が大きいほど高い値となっている。この実験条件と同様な条件（pH 及びイオン強度）では Am の60%程度が真コロイドとして存在する可能性が指摘されているので、見かけの溶解度の増加は擬コロイドの生成に起因

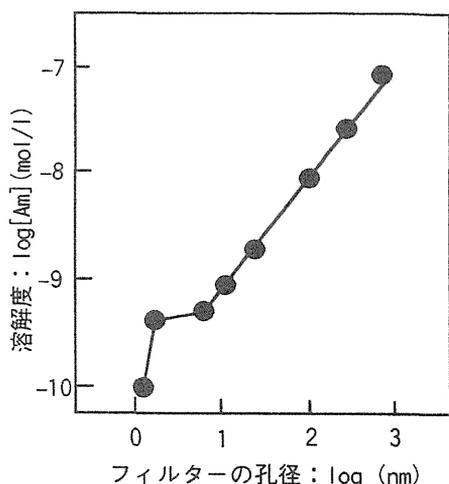


図3 Amの溶解度

するものと考えられる。Am(III)水酸化物の溶解度は $\text{pH} = 8.2$ 、イオン強度0.1の溶液において $5 \times 10^{-10} \text{ mol/l}$ 程度の値が報告されているので、1 nmの限外濾過の場合が概ね真の値と推定される。この実験結果は溶解度測定に係る重要な問題のいくつかを提起している。すなわち、

○厳密な溶解度の定義と実験で測定される見かけの溶解度との相関を明確にする必要がある、

○実験方法(特に、固液分離)によって結果が異なる、などについて十分な配慮が望まれる。

Np(IV)の加水分解に関する研究に基づいて、溶解度積(この場合、溶解度積は $K_{sp} = [\text{Np(IV)}][\text{OH}^-]^4$ で定義される)が算出された結果を表2⁹⁾に示す。この表に見られるように、測定結果

に比較的良好な一致が見られる場合もある。

このように、溶解度を測定によって求める研究が広範に進められているが、地下水の化学的組成及び電気化学的条件は極めて複雑であり、かつサイト及び地層の深度によって大きく異なることから、測定によって求めることには限界がある。このため、実験的研究に加えて、地球化学コード(地

表2 NpO₂ · xH₂Oの溶解度積

溶 液	イオン強度	log K _{sp}	測 定 者
Na ₂ S ₂ O ₃	0.15	-8.41	中山
Na ₂ S ₂ O ₃	0.05	-8.3	Ray&Ryan
Na ₂ S ₂ O ₃	0.15	-8.5	Pratopo
NaClO ₄	0.5	-8.23	Eriksen 他
コンクリート水	0.03	-8.1	Ewart 他

下水及び地層鉱物の化学組成並びに地下水の電気化学的条件、想定される反応スキームに対応した熱力学的な平衡論的・速度論的データなどを入力として、溶解度などを算出する計算コードで、EQ3/6¹¹⁾、FHREE^{Q¹²⁾}などが知られている。)を用いて、地下水中の着目元素の存在形態及び溶解度の解析も進められている。還元性の地下水に対して解析で算出された溶解度、固相及び液相におけるネプツニウムの存在形態を表3¹³⁾に示す。

この表に見られるように、一部の解析結果、すなわち YJT の固相を $\text{NpO}_2(\text{c}) \rightarrow \text{Np(OH)}_4(\text{s})$

表3 還元性雰囲気におけるネプツニウムの溶解度

解析機関	溶解度 (mol/l) の対数	固相	液相
SKI ⁸⁾	-11.5	Np(OH) ₄ (s)	Np(OH) ₄ (aq)
SKB ¹⁴⁾	-9.5	Np(OH) ₄ (s)	Np(OH) ₄ (aq)
YJT ¹⁵⁾	-9.5	Np(OH) ₄ (s)	Np(OH) ₄ (aq)
PNC ¹⁶⁾	-17.5	NpO ₂ (c)	Np(OH) ₄ (aq)
		Np(OH) ₄ (s)	Np(OH) ₄ (aq)
AERE ¹⁷⁾	-12.5	Np(OH) ₄ (s)	Np(OH) ₄ (aq)
		NpO ₂ (c)	Np(OH) ₄ (aq)
JAERI ¹³⁾	-12.5	Np(OH) ₄ (s)	Np(OH) ₄ (aq)
		NpO ₂ (c)	Np(OH) ₄ (aq)

2H₂O(c)) と仮定した場合の溶解度の値を除いて、各機関とも概ね一致した解析結果を与えていることから、解析結果は概ね信頼できるものと推測できる。地球化学コードは、前述のように、地下水組成と電気化学的条件の関数として、着目する元素の溶存状態の存在比を与えることができる。その一例として、炭酸イオン(炭酸イオン濃度:0.01mol/l)が共存する場合と、炭酸イオンが存在しない場合について、水溶液中における Np の存在状態を EQ3/6 で解析した結果を図 4 に示す¹³⁾。還元性雰囲気では、弱酸性からアルカリ性領域にかけてネプツニウムは加水分解生成物となり、炭酸イオンの有無はネプツニウムの存在形態に大きな影響はないが、酸化性雰囲気では、NpO₂⁺ は炭酸イオンとの錯形成によって安定化され、加水分解しないことがわかる。このように、地球化学コードは極めて複雑な反応系における溶解度の算出及び化学種の同定に極めて有用であるが、解析結果は当然のことながら入力データの質に依存することに留意する必要がある。

2. 岩石・土壌と元素の相互作用

地層(浅地層及び深地層)が有する放射性核種の遅延機能は、地層を構成する主要物質(土壌及び岩石)と放射性核種の相互作用に由来すると考えられている。従来の物理化学的知見によれば、相互作用の機構(図5)として、

- 化学的吸着(イオン交換反応、錯形成反応)
- 物理的吸着(静電引力、van der Waals 力)
- 拡散(細孔構造への拡散、水和層への拡散)
- 沈殿、共沈、凝集、結晶化、鉱物化

などが考えられている。これらの相互作用に加えて、放射性核種は、

- 地下水中の陰イオンとの錯形成反応
 - コロイド生成反応(擬コロイドとの相互作用を含む)
 - 酸化・還元反応
- などにもあずかる。

岩石・土壌と放射性核種の相互作用に関する機構的研究が積極的に進められているが¹⁰⁾、

- 相互作用に参与する主要な機構を同定し、
- 同定された機構とその時系列(競争反応、逐次反応)をモデル化し、
- 全てのモデルパラメータを取得し、

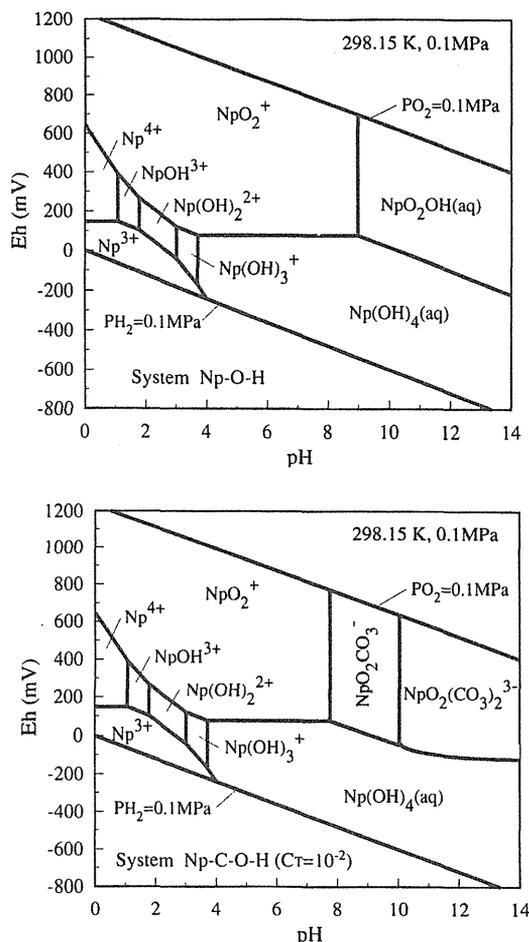


図4 ネプツニウムの存在形態
 上図: 炭酸イオンを含まない
 下図: 炭酸イオン濃度 10⁻²mol/l

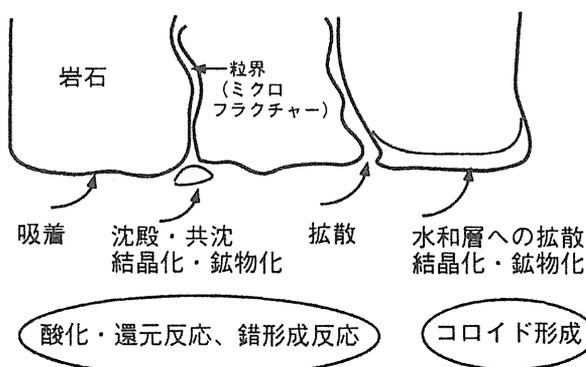


図5 岩石・土壌と放射性核種の相互作用の概念図

相互作用を機構モデルにより解析できる段階には至っていない。このような事情から、現段階では環境影響評価の多くで、相互作用の諸機構（拡散を除く）を近似的に記述するものとして等温吸着式が採用されている¹⁸⁾。この場合、相互作用に関する項は次式で示され、

$$\frac{1}{n} \frac{\partial C_i}{\partial t} = \frac{\rho(1-n)Kd}{n} \frac{\partial C_i}{\partial t} \quad (2)$$

(1)式は次のように書換えられる。

$$(Rd) \frac{\partial C_i^*}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left[vC_i - D_L \frac{\partial C_i}{\partial x} \right] - (Rd)\lambda_i C_i \quad (3)$$

$$Rd = 1 + \frac{\rho(1-n)Kd}{n}$$

ここで [(1)式で用いた記号の説明は省略する]、

ρ : 固相の密度 (Kg / m³)

Kd : 分配係数 (放射性核種の固相と液相への分配比 : m³ / Kg)、

Rd : 遅延係数。

(3)式では相互作用の項は遅延係数で経験的に表され、されに遅延係数は分配係数で表現されている。分配係数は、地層中における放射性核種の移行を解析するために必須のパラメータであるばかりでなく、固相と液相との間の放射性核種の分配を表現するパラメータとして多くの環境影響評価モデルで用いられている。このような事情を反映して、世界的にも種々の反応系において分配係数が測定され、OECD/NEA において SDB(Sorption Data Base: OECD/NEA のデータバンクから入手可能) として取りまとめられている。分配係数の値は、固相と液相に関する多くの物理的・化学的因子の影響を受けるので、SDB に登録されているネプツニウムの値は約 5 桁の範囲に分布している。したがって、SDB の中から解析に用いるべき分配係数の値を、解析対象系の特徴(岩石・土壌の特性、地下水の化学的・電気化学的的特性)に合わせて適切に選択するためには、分配係数に関する統計解析を行い、変動要因を抽出する必要がある。SDB に登録されたネプツニウムの分配係数を鉱物種・岩石種別に整理した結果を図 6 に示す。この図に見られるように、分配係数の分布幅は、一部の鉱物種及び岩石種では比較的狭い範囲となっている

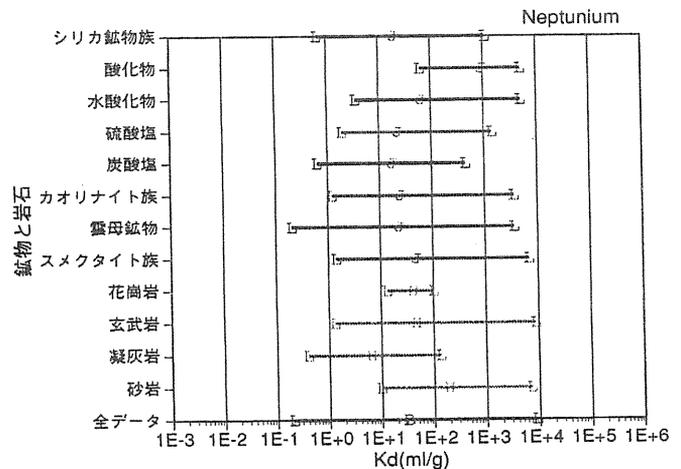


図 6 鉱物種・岩石種に着目したネプツニウムの分配係数値の分布

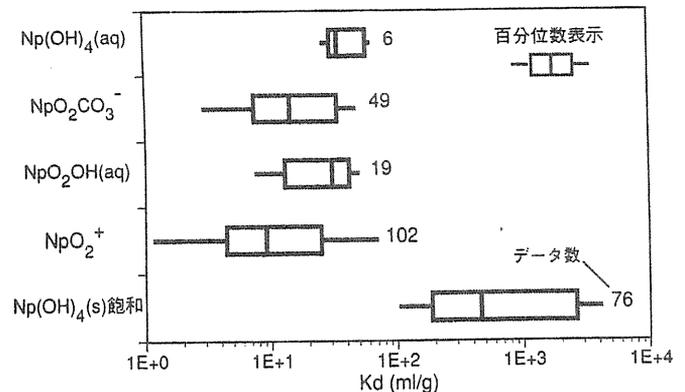


図 7 溶存状態に着目したネプツニウムの分配係数値の分布

が、多くは3-4桁の広い範囲となっている。一方、ネプツニウムの溶存状態（SDBには核種の溶存状態は記載されていないが、記載されている実験条件に基づいて、地球化学コードEQ3/6を用いて推定した溶存状態）のみに着目した分配係数の分布幅を図7に示す。この場合、分配係数の分布幅は0.5-2桁の範囲に収まっており、放射性核種の溶存状態は分配係数の値を支配する重要な要因であることが示唆された。

3. 錯形成反応

地下水や表面水には金属イオンと錯イオン（または錯体）を形成する無機陰イオン（これを配位子：Ligandと称する）、例えば、炭酸イオン/重炭酸イオン、硫酸イオン、磷酸イオンなどが存在する。錯形成反応に関する安定度定数（Stability Constant、錯イオンまたは錯体の生成を記述する熱力学的平衡定数で、解離を示す場合は不安定度定数と称する。）は、金属イオンによっても異なるが、超ウラン元素に関しては、

炭酸イオン>硫酸イオン>磷酸イオン>塩素イオン

の順である¹⁹⁾。

地下水及び河川・湖沼水中には有機物も含まれ、錯形成において重要と考えられているものは腐植酸である。微量の金属イオンの動態を理解する上で、腐植酸との錯形成の重要性は、古くから農学、表面水化学及び地球化学の分野で認識されてきた。腐植酸（芳香族系のカルボキシル基、フェノール基などの官能基を有し、超ウラン元素とは内圏型錯体を生成することが知られている。）は有機物質、特に植物の分解によって生成する多様な分子量分布（数百から数万の範囲に及ぶ）を有する高分子状物質の総称であり、特定の純粋物質を示していない。このことが、腐植酸に関して、熱力学的に厳密に定義された平衡論的・速度論的諸量を測定する物理化学的研究を阻害している要因である。OECD/NEAのTDB（Thermodynamic Data Base、廃棄物処分に関する安全評価を支援するために構築されている熱力学的データベース）では、腐植酸を熱力学的に定義できないため、腐植酸に関する研究成果は取り上げられていない。超ウラン元素を対象とした腐植酸との錯体生成の研究は今までに僅かに行われてきたが²⁰⁾、殆どの研究は遷移金属元素を対象としたもので、超ウラン元素の研究は今後の課題となっている。

一般に、遷移元素、希土類元素、超ウラン元素などの加水分解定数に比べて、炭酸イオンや腐植酸の錯形成に係る安定度定数はあまり大きな値とはならない。すなわち、多くの場合、地下水などの天然水中での放射性核種の挙動を支配するものは加水分解反応である。しかし、図4に示したように、酸化性雰囲気ではオキソ酸（ NpO_2^+ ）を生成するような場合、オキソ酸の加水分解定数は一般に低いので、炭酸イオンが有意に存在する水溶液中では、金属イオンは炭酸イオンとの錯形成によって安定化され、殆ど加水分解しない。このように、酸化性雰囲気の天然水では、特に、超ウラン元素の化学的挙動を支配する因子として、加水分解反応に加えて、炭酸イオンや腐植酸との錯形成反応を考慮する必要があると考えられる。

錯体を生成することによる放射性核種の挙動の変化は、金属イオンと配位子の種類によって異なり、一般論としては論じることができない。例えば、金属イオンと炭酸イオンとの錯体を考えると、

- 難溶性炭酸化合物を生成する金属イオンの場合、錯形成により溶解度が減少する、
- 可溶性の炭酸化合物を生成する金属イオンの場合、錯形成により溶解度が増加する、

の2つのケースが考えられる。前者の例としてアルカリ土類元素が、後者の典型的な例としてはウラン、超ウラン元素などが挙げられる。

一方、腐植酸の場合、錯形成により溶解度は増加するが、地層媒体中の挙動は複雑なものとなる。これは、前述のように、腐植酸が広範な分子量分布を有することに起因している。すなわち、腐植酸は地下水中において、その分子量に依存して、

- 溶解した状態、
- コロイド、
- 固体（粒子状）

などの存在形態を取りうる。溶解した状態やコロイドとして存在する腐植酸と錯形成した放射性核種は、地層中では岩石・土壌との相互作用が弱く、結果として地層中を地下水と殆ど変わらない速度で移行することになる。一方、粒子状の場合は、地層を移行中に濾過され特定の部位に沈殿として固定される可能性がある。このような錯形成と地層中の核種移行の関係については、今後の定量的な研究に待たれるところである。

IV. 結言

本稿では、放射性廃棄物処分の長期的な安全評価の観点から長半減期核種の地球化学に関する研究の一端を概観してきた。原子力の環境安全研究の分野では、地層を含めた種々の環境媒体における放射性核種の地球化学的年代にわたる長期的な動態を解明する地球化学的研究の歴史は浅く、研究の方法論の確立を含めて多くの研究課題が残されている。筆者は環境影響評価手法の研究において、事象を記述するモデルを構築する際に、

- 科学的に定義された実験系から得られたデータ
- 熱力学的に定義されたデータ
- 一般化するに十分な量のデータ

の不足に悩まされている。特に、地球化学研究を実施する際には上記の諸条件を満足することに留意する必要があると考えている。我々の分野では、地球化学的研究は新たな展開の1つであり、放射性廃棄物の地層処分の安全評価手法の確立のためのみならず、生態圏における放射性核種の長期的な動態を解明するためにも、衆知を集めて定量的な研究を進めていきたい。

参考文献

- 1) IAEA/UNSCEAR: Sources, Effects and Risks of Ionization Radiation, 1988 Report (1988).
- 2) USNRC: Reassessment of the Technical Bases for Estimating Source Terms, NUREG-0956 (1985).
- 3) IAEA: Assessing the Radiological Impact of Past Nuclear Activities and Events, IAEA-TECDOC-755 (1994).
- 4) USNRC: Severe Accident Risks, NUREG-1150 (1991).
- 5) Togawa, O. and Homma, T.: Proc. of Third International Conference on Nuclear Fuel Reprocessing and Waste Management (RECORD'91)(1991).
- 6) Kimura, H., Takahashi, T. et al.: Safety and Sensitivity Analysis of a Generic Geologic Disposal System for High-level Radioactive Waste, JAERI-Research 94-028 (1994).
- 7) SKI: SKI Project-90, SKI Technical Report 91: 23 (1991).
- 8) CEC: PAGIS (Performance Assessment of Geological Isolation System for Radioactive Waste)(1988).

- 9) 中山真一、佐藤 努、他：高レベル放射性廃棄物地層処分と地球化学的研究、JAERI-Review 95-011 (1995).
- 10) IAEA: Geochemistry of Long-lived Transuranic Actinides and Fission Products, IAEA-TECDOC-637 (1992).
- 11) Wolwry, T. J.: Calculation of Chemical Equilibrium between Aqueous Solution and Minerals: The EQ3/6 Software Package, UCRL-52658 (1979).
- 12) Parkhurst, D. L. et al.: PHREEQE-A Computer Program for Geochemical Calculations, U. S. Geological Surv. Water-Resour. Invest., 80-96 (1980).
- 13) Takeda, S., Shima, S. et al.: The Aqueous Solubility and Speciation Analysis for Uranium, Neptunium and Selenium by the Geochemical Code (EQ3/6), JAERI-Research 95-069 (1995).
- 14) Bruno, J. et al.: Radionuclide solubilities to be used in SKB 91, SKB-TR-92-13 (1992).
- 15) Vuorinen, U. et al.: Solubility and Speciation Calculations (EQ3/6) for the Elements of Importance in TVO-92, YJT-92-11 (1992).
- 16) 動力炉・核燃料開発事業団：高レベル放射性廃棄物地層処分研究開発の技術報告書、PNC TN 1410 92-081 (1992).
- 17) Thomason, H. P.: The Study of Actinide Solubility Limiting Solid Phase-A Literature Survey, DOE/RW/88.094, AERE-R 12995 (1988).
- 18) 内田滋夫、保伝浩志、他：分配係数の測定法及び利用法、JAERI-Review 95-009, (1995).
- 19) Martell, A. E. and Smith, R. M.: Critical Stability Constants, Pergamon Press, New York (1976).
- 20) Kim, J. I.: Chemical Behaviour of Transuranic Elements in Natural Aquatic Systems, in Handbook on the Physics and Chemistry of Actinides (A. J. Freeman and C. Keller, eds), Elsevier Science Publications, Amsterdam (1986).

超ウラン元素の消滅処理技術の開発

向山 武彦

日本原子力研究所

Development of nuclear transmutation technology for transuranic elements

Takehiko Mukaiyama

Japan Atomic Energy Research Institute

Tokai-mura, Ibaraki-ken, 319-11 Japan

ABSTRACT—Partitioning and Transmutation (P-T) of long-lived radioactive nuclides is conceived as the technology to improve the high-level radioactive waste management. This report discusses the incentives of P-T, generation of long-lived nuclids in fission reactors, nuclear transmutation technologies, R & D activities of the partitioning and transmutation technology development programs at JAERI and in the world.

1. はじめに

開発途上国においては人口が増加し生活レベルも急速に向上しており、相乗効果によるエネルギー需要の増大は著しい。この事態に地球規模で対処出来るエネルギー源としては資源論的にも地球環境保全の観点からも核分裂エネルギーに頼らざるを得ない。このような状況に於いて、原子力が世界的規模で受け入れられていくための課題は安全性、経済性のさらなる向上と共に、より効率的でかつ多くの人々が受け入れ易い放射性廃棄物管理技術、特に、高レベル放射性廃棄物 (HLW) 処理処分技術の開発であろう。

昨年2月26日にフランスから返還ガラス固化体を載せたパシフィック・ピンテール号がむつ小川原港に到着し、テレビや新聞を賑わせた。これは HLW に関する国民の意識の高まりを示す一つの現れである。HLW 管理に関するわが国の基本方針は地層処分であるが、廃棄物管理に関する関心の高まりや必要な技術の発達と相俟って、最近、“群分離・消滅処理”への関心も高まってきた。

消滅処理により HLW に含まれている長半減期核種を核変換により短半減期核種あるいは安定核種に変えることが出来る。消滅処理を行うためにはその前段階として、HLW から目的とする元素あるいは核種を分離する群分離が必要となる。群分離・消滅処理した後にも短半減期の放射性物質は残り、これらの最終処分は必要となる。

本稿においては、長半減期核種の生成、消滅処理技術の概要、群分離・消滅処理研究開発の内外動向等について述べる。

2. 原子炉における長半減期核種の生成

原子炉において生成される長半減期核種は核分裂生成物 (FP) やマイナーアクチノイド (MA: Np, Am, Cm 等) 核種として存在する。軽水炉使用済み燃料中の FP 核種を半減期の値で区分けした生成割合を Table-1 に示す。参考のために、同表には ^{235}U と ^{239}Pu の核分裂による FP 生成割合も示した。 ^{238}U の半

Table-1 核分裂生成物生成量の半減期による区分け

(数値：重量%)

半減期区分	主要核種	核分裂生成物発生源		
		使用済燃料 ¹⁾	U-235 ²⁾	Pu-239 ³⁾
1年未満	多数	1.0	4.4	3.0
1年～10年	Ru-106 Cs-134 Pm-147 Eu-155	1.3	1.5	3.0
10年～30年	Kr-85(10.7年)* Sr-90(28.5年) Cr-137(30.0年)	5.3	6.3	4.8
30年～100年	Sm-151(90年)	0.03	0.3	0.5
100年～1万年	なし	0.0	0.0	0.0
1万年～50億年	Zr-93(150万年) Tc-99(21万年) Pd-107(650万年) Sn-126(約10万年) I-129(1570万年) Cs-135(300万年)	6.6	9.8	11.2
50億年以上	Rb-87(480億年) Ce-142(>5x10 ¹⁶ 年) Nd-144(2.1x10 ¹⁵ 年) -150(>5x10 ¹⁸ 年) Sm-147(1060億年) -148(7x10 ¹⁵ 年) -149(>1x10 ¹⁶ 年)	9.5	7.9	7.4
安定	多数	76.3	69.8	70.1

*) かつこ内数値：半減期

- 1) 3, 410MWtPWR 使用済燃料 (燃焼率：33GWd/MT, 150日冷却)
燃焼計算コード：SRAC-FPGS, 核データ：JENDL-2
- 2) U-235 の熱中性子による核分裂 150日冷却
- 3) Pu-239 の高速中性子による核分裂 150日冷却

減期 (45億年) は地球の年齢とほぼ同じであり、これより長い半減期の核種は準安定な核種と見なすことができ、一方、半減期が10年より短いものは自然崩壊により急速に準安定及び安定核種になるので、消滅処理が必要な場合には全 FP 生成量の約12%にあたる半減期が10年から50億年未満の FP 核種を対象とすればよい。

100万 KW 級軽水炉では1年間に20数kgの MA が生成される。この組成や生成量は燃料の燃焼率や使用済み燃料の再処理までの冷却期間により変わる (Table-2 参照)。燃焼率が大きく、冷却期間が長いと Np より Am が多くなり、MA 全体の生成量も多くなる。

3. 消滅処理のねらい

消滅処理の効果を見るために、HLW の潜在的放射性毒性指数の経年変化を Fig. 1 に示す。ここで潜在的放射能毒性指数の定義は、使用済み燃料中の放射性核種の存在量 (新燃料1トン当たり) を経口年摂取限度 (ALI) を単位として表した量である。この指数は、何等の隔

Table-2 年間あたりマイナーアクチノイド生成量

核種	3410MWt-PWR		2500MWt-FBR
	3年	10年	3年
²³⁷ Np	57.9%	41.3%	9.45%
²⁴¹ Am	27.4	48.8	54.9
^{242m} Am	0.06	0.04	1.38
²⁴³ Am	11.9	8.33	25.4
²⁴³ Cm	0.03	0.02	0.29
²⁴⁴ Cm	2.67	1.44	7.73
²⁴⁵ Cm	0.15	0.10	0.89
全重量	23.8kg	33.9kg	24.0kg

計算：データ JENDL-2、計算コード SRAC-HPGS
燃焼度：33GWd/MT(PWR) 150GWd/MT(FBR)
再処理から群分離までの冷却期間：5年
U, Pu の回収率：100%

離も無く人間環境に置かれることを想定した場合の、HLW の人間に対する仮想的な危険性を示す尺度として用いられている。なお、ここに示す HLW には FP と MA の他に再処理工程での回収漏れ U と Pu も含まれている。毒性指数の尺度の目安として、典型的なウラン鉱石の毒性指数についても示した。Fig. 1 において、最初の 100 年間は FP (主なものは ^{90}Sr 、 ^{137}Cs) の毒性が HLW の全毒性のほとんどを占めているが、約300年以降では半減期が ^{237}Np の214万年をはじめとして数100年以上の核種が多い MA が放射能毒性の大部分を占めるようになり、100万年経っても HLW の毒性は当初のわずか9,000分の1にしかない。消滅処理の効果も潜在的毒性の減少として Fig. 2 に示した。

Fig. 2 に消滅処理による放射能毒性指数低減の効果を示した。図中で消滅処理を90、99.5%等としたのは、消滅処理サイクルにおける MA 及び長半減期 FP の回収率がこれらの値であることを示している。長半減期の定義を30年以上としたのは、現在考えられている方法では半減期30年の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の消滅処理は非常に困難であるため、消滅処理の対象を半減期がこれ以上のものにしなければならないからである。MA の99.5%を消滅処理すれば1000年以降で毒性指数は約200分の1になる。MA および長半減期 FP を99.9%消滅処理すると1000年以降で毒性指数は約1000分の1になる。

このように、消滅処理により長半減期核種は安定あるいは短半減期核種へ変換され、HLW の潜在的な危険性は急速に減少するので、地層処分に要求される放射能隔離期間はかなり短くても良いことになる。ここで注意しなければならない点は、MA の場合には通常 MA をひとまとめにして消滅処理する事を考えるので群分離は化学的処理だけでよいが、FP の場合には特定の同位体を対象にするため同位体分離が必要になる場合もあることである。

4. 消滅処理の方法

消滅処理の対象となる核種は、長期にわたる潜在

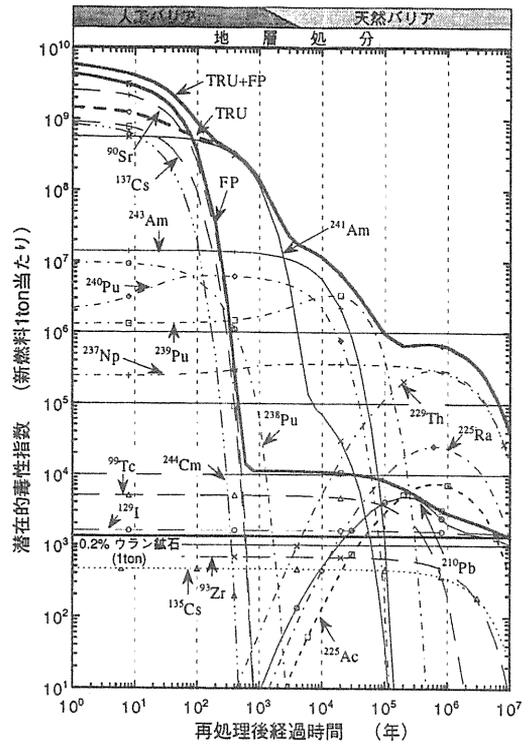


Fig. 1 高レベル放射性廃棄物の潜在的毒性指数の経年変化

$$\text{潜在的毒性指数} = \frac{\text{HLW 中の核種量 (Bq)}}{\text{核種の経口年摂取限度 (Bq)}}$$

使用済燃料：燃焼度 33GWD/MT、3年冷却
再処理効率：99.5% U, Pu 回収

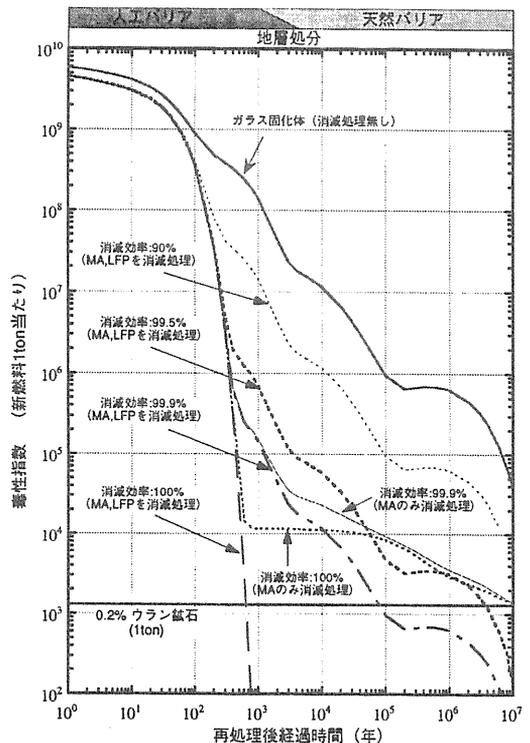


Fig. 2 消滅処理による高レベル廃棄物の毒性減少 (LFP：半減期が30年以上の核分裂生成物)

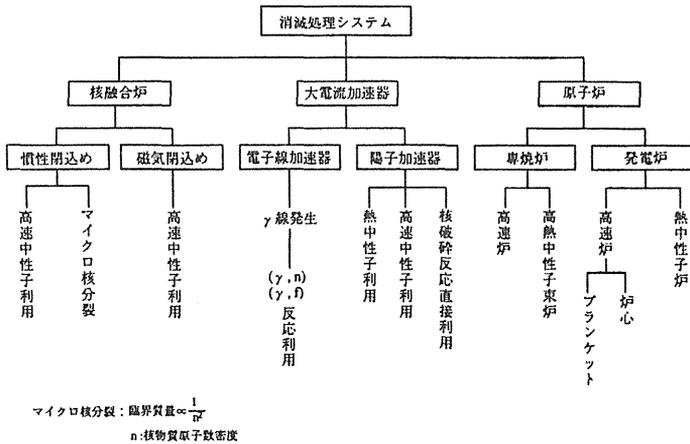


Fig. 3 消滅処理システム

理専用システムを用いるシナリオがある。Fig. 3 に消滅処理のための提案されている種々のシステムの一覧を示す。種々の消滅処理方式から一つの方式を選択するには、エネルギー収支、安全性、経済性、技術の容易さや二次廃棄物等の観点からの考慮が必要となる。

5. 原子炉による消滅処理

原子炉内の中性子のエネルギーは小さいため、中性子捕獲および核分裂を利用することになる。原子炉内で生成される MA は ^{237}Np 、 ^{241}Am 、 ^{243}Am 、 ^{244}Cm が主なものであり、これらは偶中性子数核種であり、核分裂反応に対し中性子エネルギー 700keV 近傍に閾値を有す。一方、中性子捕獲反応は中性子エネルギーの増加と共に減少する。この様な核断面積の中性子エネルギー依存性により、MA の消滅処理は軽水炉と高速炉においてはやや異なったものとなる。

これまでに提案されている原子炉による方法をいくつか挙げ、その特徴を比べてみる。

(1) 軽水炉による消滅処理

軽水炉へ MA をリサイクルすると、MA は中性子捕獲と β 崩壊を経て、核分裂断面積の大きな核種、例えば ^{239}Pu や ^{242}mAm などに変換してから核分裂する。軽水炉に MA をリサイクルした場合の問題点は、MA の中性子捕獲により、より重い自発核分裂核種が生成され、燃料取り扱いの際の中性子線量率が高くなることである。

(2) 高速炉による消滅処理

高速炉に MA をリサイクルすると、中性子エネルギーが比較的大きいため核分裂の割合も多く、軽水炉よりも効率良く消滅処理が行える。燃料中の MA の割合が大きくなるとナトリウムボイド係数やドップラー効果等の安全性に関係する効果に悪影響を与えることになる。そのため、現在の設計例では MA の燃料への混合割合は 2～5% となっている。

(3) 専焼高速炉による消滅処理

1 MeV 以上のエネルギーの中性子の割合が大きい炉心では、MA のみで臨界体系を形成することができるようになる。このような場合には MA を燃料の主成分とし、消滅処理を目的とする専焼高速炉が成立する。

専焼炉は原研が提案している消滅処理システムの一つである。専焼炉においては、MA は直接核分裂し易く、中性子捕獲反応は起こりにくく、従って、新たな MA を生成せずに大量の MA を効率よく消滅

的危険性の低減化の観点からは、1) MA、および、2) ^{99}Tc 、 ^{129}I 、 ^{135}Cs 等であり、HLW 中の発熱源の低減化の観点からは、3) ^{90}Sr と ^{137}Cs も対象になる。

消滅処理の装置としては原子炉、大電流加速器や核融合炉が検討されている。核分裂による消滅処理には熱中性子あるいは高速中性子を利用する方式、この両者を併用する方式が考えられている。さらに、消滅処理シナリオとしては軽水炉や高速炉といった発電炉を利用するものと専焼炉や加速器炉等の消滅処

処理する事が出来る。

6. 加速器を用いた消滅処理

加速器を用いる消滅処理では、大電流加速器からの高エネルギー陽子を重い核種のターゲットにぶつけて大量の中性子を発生させ、これを消滅処理に用いる。

高エネルギー陽子を重い原子核にぶつくと、ハンマーで石を激しく砕くときのように、原子核は核破砕反応でバラバラに壊され同時に中性子や陽子、中間子などを多数放出する。1960年代には核破砕反応を強力中性子源として核燃料の増殖に用いる研究が米国などで行われた。最近の加速器技術の著しい進歩のもとに、加速器駆動型消滅処理ハイブリッド・システム(加速器炉)の研究、及び、これに用いる大電流・高エネルギー陽子加速器開発が行われている。

その他の装置として、核融合炉を用いる方法も考えられるが、そのためには、まず核融合炉自体の開発が先決となる。

Fig. 4 に消滅処理システムの特徴と開発課題の概要を示す。

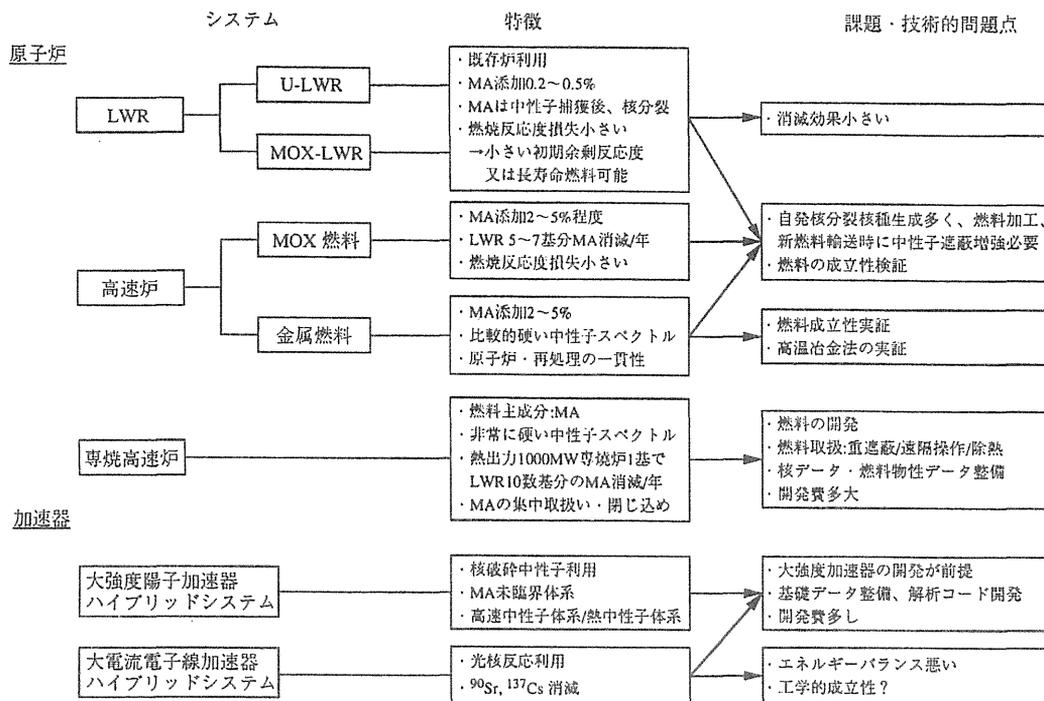


Fig. 4 消滅処理システムの特徴、開発課題の比較

7. 原研における消滅処理研究の現状

原研における研究開発は、群分離・消滅処理システムの評価、群分離・消滅処理に必要な技術の開発、核データや燃料物性データ整備などの基礎研究、の3つに大別される。群分離・消滅処理導入の基本的な考え方として、「階層型核燃料サイクル」(Fig. 5)を提案している。これは、2つの階層型燃料サイクルから構成されており、第1サイクルは通常の発電炉燃料サイクルで、第2サイクルが群分離・消滅処理燃料サイクルになっており、ここでMAおよび長寿命FPを集中的に群分離・消滅処理するというものである。原研では、この専用消滅処理システムとして「専焼炉」と「加速器炉」の設計評価研究、加速器炉

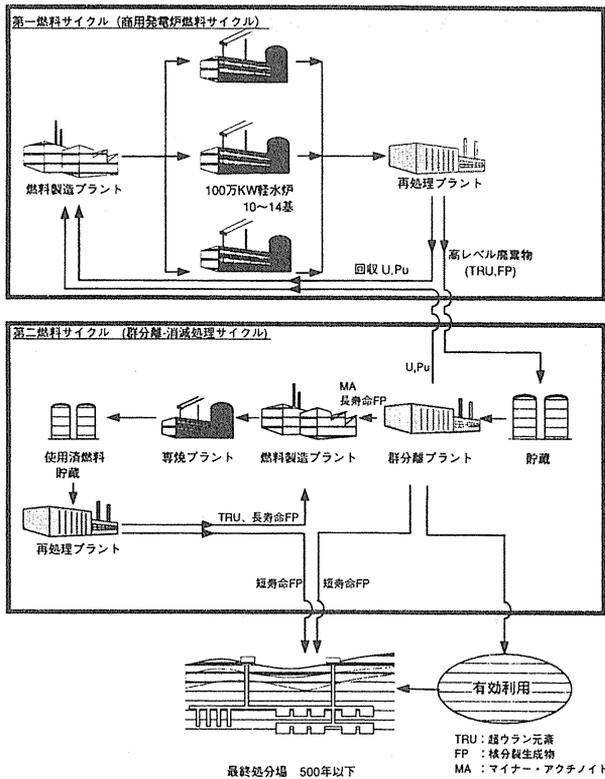


Fig. 5 階層核燃料サイクル (群分離・消滅処理導入)
 第一サイクルは通常の燃料サイクルであり、このサイクルで発生する高レベル放射性廃棄物を第二サイクルにおいて群分離・消滅処理する。この結果、階層燃料サイクルを経て出てくる高レベル放射性廃棄物は長半減期のマイナーアクチノイドを含まない核分裂生成物のみとなる。

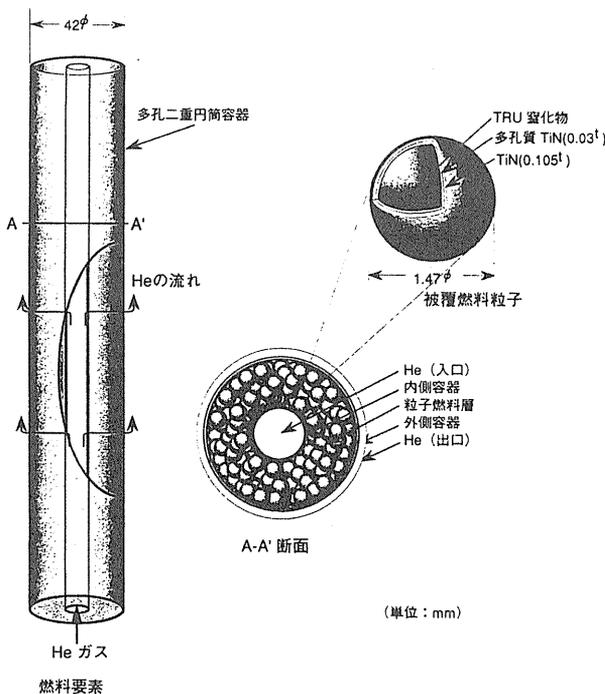


Fig. 6 粒子燃料専焼炉の燃料概念

に必要な大電流陽子加速器の開発、消滅処理サイクル燃料技術の開発、これら開発に必要な基礎技術の研究開発を進めている。

(1) 専焼炉及び加速器炉の研究

専焼炉と加速器炉では窒化物燃料を用いることを考えている。窒化物燃料は熱伝導率が大きく、融点が高いという金属燃料と酸化物燃料の両方の長所を合わせ持つ優れた新型燃料である。この再処理には高温冶金法を用いることが出来るため、再処理施設の小型化が可能となり、PUREX 再処理施設より経済的に有利になる可能性がある。

専焼炉の型式は粒子燃料をヘリウムで直接冷却するもの (Fig. 6) について検討している。粒子燃料の場合には除熱性能に優れており、消滅処理を迅速に行うことが可能になる。

原研が提案している加速器炉システムは、陽子エネルギー 1.5GeV、電流 40mA の大電流陽子加速器からのビームをタングステンのターゲットに照射し、核破砕反応中性子によりターゲットの周りに配置された MA を核分裂させるというものである (Fig. 7)。核破砕反応と MA の核分裂により 820MW の熱エネルギーが生成し、これにより 250MW 発電され、このうち 150MW は加速器の運転に消費され、残り 100MW は電力網に供給できる。

専焼炉、加速器炉では100万 kw 級の軽水炉10数基において生成される MA 約 250Kg を処理することが出来る。

(2) 大強度陽子加速器の開発

加速器炉にとって不可欠な大電流・高エネルギー陽子加速器炉の開発を行っている。加速器炉による消滅処理を実証するために、陽子エネルギー 1.5GeV、電流 10mA の大強度陽子加速器 (Fig. 8) の建設を検討している。このような大型加速器を開発するに当たって、まず、大電流用イオン源等の要素技術を開発し、陽子エネルギー 1.5GeV、電流 1mA の加速器を開発し、次いで 10mA まで増力する予定で開発を進めている。現在、陽子エネルギー 2

MeV までのビーム加速試験や加速管の高出力試験を成功裏に終了し、大電流ビーム加速の見通しを得たところである。

(3) 燃料及び燃料サイクル技術の開発

専焼炉が技術的に成り立つかどうかは燃料の成立性にかかっている。消滅処理の対象は MA 及び長半減期核分裂生成物であるが、これらについての取扱経験は乏しい。そこで、これら核種を含有する燃料の調製技術開発と特性研究を行うとともに、リサイクル技術の検討を行っている。

これまでに、炭素熱還元法による窒化ネプツニウム調製法を開発し、高速誘電加熱ゲル化法によりアクチノイド固体微小球製造法開発や、高温化学再処理を目指した窒化ウランの溶解塩電解試験を行

い、金属ウランの回収に成功した。今後は、窒化物燃料を製作し、照射実験により照射挙動を調べる予定である。

(4) MA 核種核データや燃料物性データ・ベースの整備

専焼炉や加速器炉では燃料の大部分が MA であり、その核データには現在のウランやプルトニウムの核データ程度の精度が必要となる。燃料に関しては、数%程度の不純物の混入でもその物性は大きく変わることがある。ましてや、MA が成分の大部分を占める専焼炉や加速器炉燃料に関しては未知の分野と言ってもよい。

そこで、米国やロシアの研究所の協力を得てこれらのデータの測定・整備を行っている。また、核データセンターでは、専焼炉や加速器炉設計のためのデータファイルや加速器遮蔽設計のためのデータファイルの作成作業を行っている。

8. 群分離・消滅処理研究の内外の動向

群分離・消滅処理の研究開発は1970年代から80年代初めにかけて活発に行われたが、その後、低調となった。しかし、わが国よりオメガ計画（群分離・消滅処理技術研究開発長期計画）が提案されたのを契

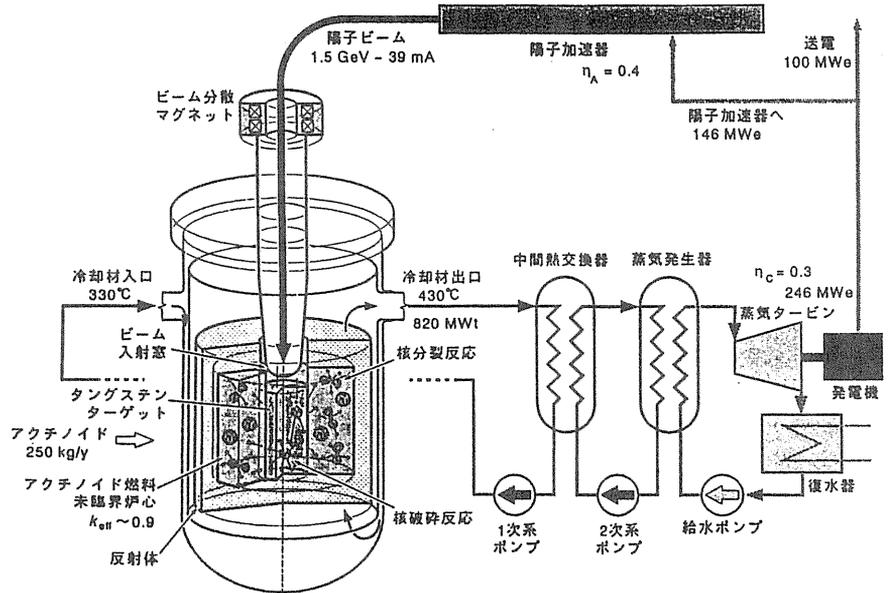


Fig. 7 加速器消滅処理システムの概念図

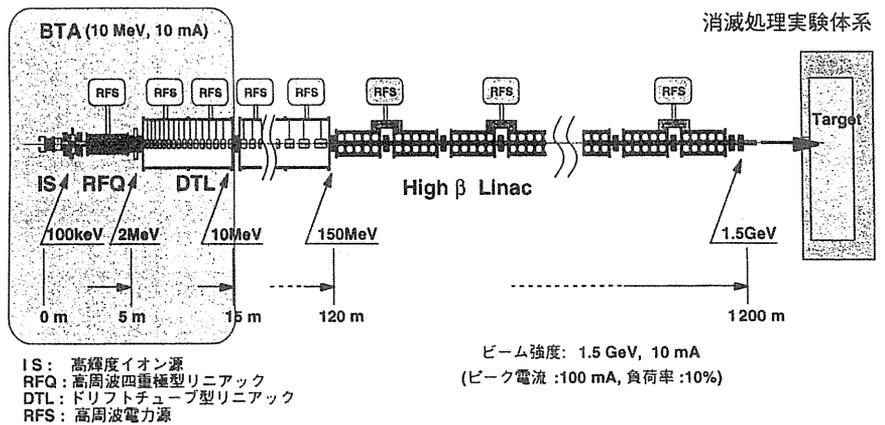


Fig. 8 ETA 概念図 (Engineering Test Accelerator)

機として再び本技術に関する関心が高まってきた。

国内では、動燃や電中研において活発な研究活動が行われている。動燃では、PUREX 法再処理を高度化してウランやプルトニウムと共に MA も抽出し、酸化物燃料として高速増殖炉で燃焼させる技術の開発を行っている。最近では、プルトニウムのリサイクルのついでに MA を一緒に燃焼させて、環境への負荷の低減と、核不拡散性向上をねらったアクチニドリサイクル技術としての展開を図っている。電中研は金属燃料高速炉と高温冶金再処理を組み合わせて、プルトニウムと共に MA を燃焼させてしまう方式の研究を行っている。大学や産業界においてもこの分野の研究が盛んになってきた。

日本のオメガ計画に触発されて多くの国においてこの分野の研究開発が行われるようになった。とくに、フランスが大変精力的に群分離・消滅処理研究開発を行っている。1991年末に成立した「放射性廃棄物管理法」の下で、SPIN (Separation & Incineration) 計画として15年間、地層処分研究と共に群分離・消滅処理研究開発を行うことが要求されている。HLW の最終処分法は15年後に決定することになっている。SPIN 計画にはヨーロッパの英国を除く主要原子力国が協力しており、最近の研究の進展ぶりは著しいものがある。

ロシアではチェルノブイリ事故や放射性廃棄物の問題に頭を悩ましていた旧ソ連時代の原子力関係政府高官が日本のオメガ計画の事を知り、「長半減期核種が存在しない原子力システムを開発すべし」と号令して、群分離・消滅処理研究が始まったそうであり、多くの研究所で群分離・消滅処理関連の研究が行われている。

わが国の呼びかけで、経済開発協力機構原子力機関 (OECD/NEA) の下で、群分離・消滅処理に関する情報交換計画が1988年に発足し、幅広い視点からの議論が研究の方向を決める上で大変有意義なものとなっている。さらに、群分離・消滅処理技術を基調テーマとする米国原子力学会主催将来型核燃料サイクル国際会議 GLOBAL '93や'95が開催され大成功を納めた。

9. おわりに

群分離・消滅処理は難しい技術ではあるが、一方で、原子力の技術にブレークスルーをもたらす可能性を秘めている。わが国の提案で、この分野の研究開発が特にヨーロッパやロシアにおいて盛んになった。今後もこの分野におけるリーダーシップをとり続ける覚悟が必要と思われる。

参考文献

本稿をまとめるに当たり、以下の文献を参考にした。

- 1) 向山武彦編著：原子力誌、37[3]、159-193 (1995)。
- 2) 向山武彦編著：原子力学会：報告書「消滅処理研究の現状」(1994)。

超ウラン元素の体内動態と線量評価モデル

稲葉次郎

放射線医学総合研究所

Dosimetric and Biokinetic Model for Transuranic Radionuclides

Jiro Inaba

Division of Radiotoxicology, National Institute of Radiological Sciences

Anagawa 4-9-1, Inage-ku, Chiba-shi, 263 Japan

Abstract—Transuranic elements are members of the actinide series beyond uranium, all are artificially produced in nuclear reactors and several include alpha-emitting radioisotopes with very long half-lives. Among them neptunium, plutonium, americium and curium are the most abundant and the most important from the health physics view point.

The International Commission on Radiological Protection developed a comprehensive dosimetric system with biokinetic models and parameters for the internal exposure to workers in its Publication 30. Since then the ICRP published a new recommendation in 1990 and published several reports related to the internal dosimetry as Publication 66 in 1994, Publication 67 and Publication 68 in 1995, Publication 69 and Publication 71 in 1996. The new dosimetric and biokinetic model for transuranic elements described in Publication 67 is a recycling compartment model composed of 19 compartments and 28 transfer rates, which are a product of many efforts devoted to the improvement of internal dosimetry. The new model is related to the human physiology and is based on the information obtained from studies on human tissue samples and animal experiments. Dose coefficients derived from these models should be used in the dose calculation for the radiation protection for members of the public.

1. はじめに

超ウラン元素としてネプツニウム (Np)、プルトニウム (Pu)、アメリシウム (Am)、キュリウム (Cm)、カリホニウム (Cf)、アインスタニウム (Es)、フェルミウム (Fm)、メンデレビウム (Md) などが知られており、それらは全て放射性である。これらの中で、原子力利用の観点から関心が持たれているのは Np、Pu、Am、Cm の4元素である。すなわち、これら4元素はいずれも原子炉の中でウランの中性子放射化産物として生成され、比較的長い半減期の放射性核種を持ち、そのため放射性廃棄物との関連で関心が持たれ

るわけである。さらに、これら4元素は多くのアルファ線放出核種を持ち、体内移行性が低いという重金属としての類似した体内代謝特性を持つ。ここではICRPで採用されているものを中心に4元素の代謝特性を概観し、それぞれでの放射線防護上代表的な核種であるPu-239、Am-241、Np-237およびCm-244の内部被ばく線量評価について検討を加える。

2. 線量評価の基本的方式

放射性核種を体内に摂取したときの被ばく線量の算定には種々の方式が考えられる。一般的には預託線量すなわち摂取後の線量率の時間積分値を計算することになり、きわめて基本的なことを言えば放射性核種の摂取に起因する線量は、単位量の放射性核種の摂取があるときその放射性核種が体内で難解崩壊するかということと、放射性核種の体内での一回の崩壊当りどの程度のエネルギーを標的となる生体に与えるかの2つの要因に依存する。現在、世界的に広く受け入れられている国際放射線防護委員会(ICRP)は以下のような計算式を採用している⁽¹⁾。

t_0 歳で放射性核種を体内に取り入れたとき、 t_1 歳までに標的臓器Tが受ける等価線量 $H_T(t_0)$ は比実行エネルギー(SEE)と線源臓器Sでの放射性核種の量 $q_{sj}(t)$ の積を標的臓器Tとの可能な組合せについて足し合わせたものを t_0 から t_1 まで時間積分したもので表される。

$$H_T(t_0) = c \int_{t_0}^{t_1} \sum_s \sum_j q_{sj}(t) SEE(T \leftarrow S; t)_j dt$$

ここで、 c は単位を合わせるための定数、 s は線源となる臓器、 j は線源の種類、 $q_{sj}(t)$ は j の線源となる放射性核種ま崩壊の総数で体内代謝を反映する、SEEは線源臓器への比実行エネルギーである。

SEEはある時刻 t においてある線源臓器Sに単位量の放射性核種がある時に考える放射線が標的臓器Tに与えるエネルギーであり、次の2つの因子に依存する。

(1) 線源臓器と標的臓器の幾何学的位置関係に基づく比吸収割合SAF、標準人からファントムを作り、それから求められている⁽²⁾。

(2) 線源である分布している放射性核種の性質、放出する放射線の種類、エネルギー、崩壊形式等。SEEは下記のように放出されるエネルギーとSAFの積で表される。

$$SEE(T \leftarrow S; t)_j = \frac{\sum_i Q_i Y_i E_i A F_i(T \leftarrow S; t)}{M_T(t)} = \sum_i P h y_i S A F_i(T \leftarrow S; t)$$

ここで、 Q_i は放射線 i の放射線荷重係数、 Y_i は1崩壊あたりに生ずる放射線の数、 E_i はエネルギー、 $A F_i$ はSを出てTに到達する割合で M_T は標的臓器の質量である。SAFは過程で計算され、アルファ線やベータ線など飛躍の短い放射線に対しては線源臓器のみが影響を受けるとし、また光子に関しては数学ファントムから米国オークリッジ国立研究所のEckermanらによりモンテカルロ計算で求められている。この計算は3ヶ月、1歳、5才、10歳、15歳および成人の両性につきなされている⁽³⁾。

核種のデータについては、いくつかのデータ集が存在し、各研究機関で得られたものがまとめられているが、ICRPではICRP Publication 38⁽⁴⁾に記載されているデータを用いている。

預託線量計算のための積分時間に関連して、ICRPでは t_1 として70歳が用いられ⁽⁵⁾、従って例えば新生児では積分時間が70年間となるが、 t_0 が20歳以上のばあいには摂取時の年齢にかかわらず20歳と考

え、積分時間は 50 年間となる。ここで求められた H_T に臓器別に放射線感受性を表した組織荷重係数を掛け、全ての標的臓器について足し合わせると放射線被ばくによるデトリメントを表した実効線量となる。ここで、 W_T は T に対する組織荷重係数、 W_{rem} は残りの組織に対する組織荷重係数であり、いずれも ICRP によって与えられている。

3. 超ウラン元素の体内動態モデル

ICRP では内部被ばくに関して包括的に記述した Publication 30 において個々の体内代謝モデルを提示すると共に代謝パラメータを与え、それらに基づいて年摂取限度を表示した。また、Publication 48⁽⁷⁾ でアクチニドに関し代謝パラメータの見直しを行った。公衆被ばくを念頭に置いた内部被ばくに関する報告書 Publication 67⁽⁸⁾ では新しくアクチニド元素共通の代謝モデルを提示しながら代謝パラメータについては元素別に与えるという方式を取り、それらに基づいて線量係数(S_V/Bq)を表示した。ここでは、Publication 67 のモデルを中心に超ウラン元素の体内動態モデルを紹介する。

従来、プルトニウムの代謝は比較的簡単なモデルによって記述されていた。図 1 は Publication 30 に示されている血流中に入ったプルトニウムの動きを表すモデルで、コンパートメント間の動きは一方方向であり、コンパートメントの数が少なく、当然にパラメータの数も少ない。

図 2 は新しい Publication 67 のアクチニド元素(実際にはプルトニウム、アメリシウムおよびネプツニウム)用モデルである。事故的にプルトニウム等を摂取した人を対象にした米国のウラン・超ウラン元素登録に登録してあった方が亡くなりその化学分析の結果からのデータ⁽⁹⁾、フォールアウト起源のプルトニウムの人体分析結果⁽¹⁰⁾、動物実験の結果⁽¹¹⁾等参考になる情報を取りまとめた上で全体情報を総合的に考えて作ったモデルである。ICRP 第 2 専門委員会のコメントを入れながら、実際には米国オークリッジ国立研究所の Eckerman のグループ

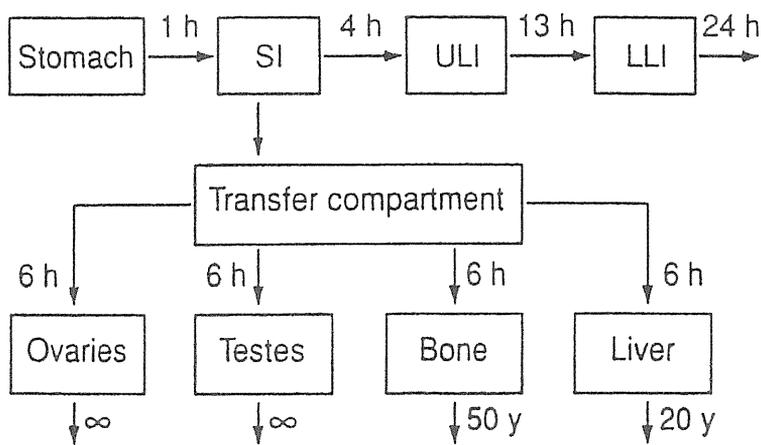


Fig.1 ICRP Publication 48 model for ingested plutonium

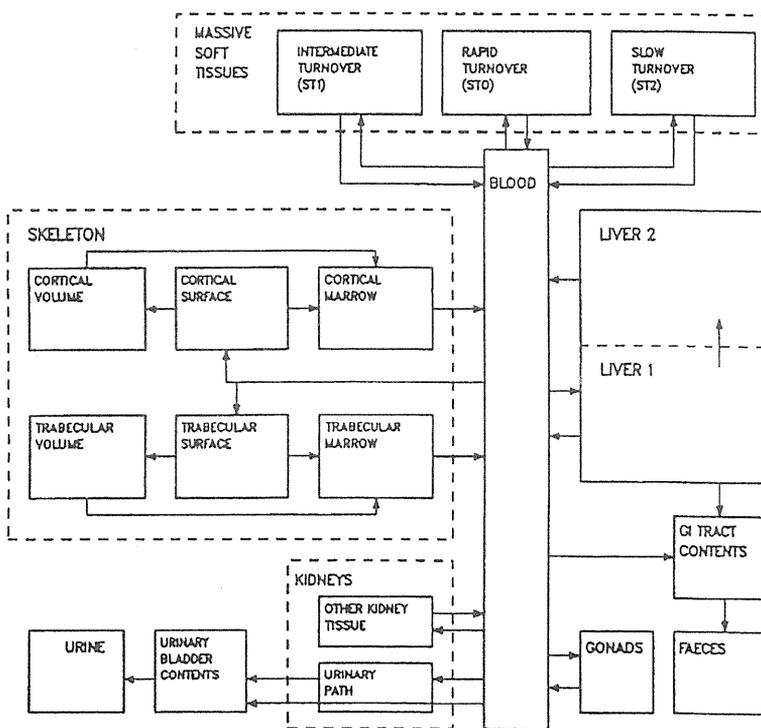


Fig.2 Diagram of the biokinetic model for plutonium, americium and neptunium.

の Leggett が作製した。特徴的なことに以下がある。

全身は骨格、肝臓、生殖腺、胃腸管内容物、腎臓および膀胱内容物、並びにその他の軟組織に分けられる。

血液は均一混合プールと考える。骨格に関しては精密なモデルを構築した。すなわち、骨を皮質骨と梁骨に分けそれぞれ表層、実質部および骨髄に分け、骨格に入った放射性核種はまず表層部に沈着し、そこから骨吸収により骨髄へまた骨形成により実質部へと移行し、骨髄から血中へ少しずつ戻る。

肝臓は Pu と Np に対しては 2 コンパートメントからなる、Am に対しては 1 コンパートメントで出来ている臓器と考える。腎臓も 2 つのコンパートメントからなると考え、さらにそれらとは別に膀胱内容物も考える。これら以外の軟組織については 3 つに区分けし、ST0 コンパートメントは細胞外液を含む血液と数時間から数日で物質交換を行う軟組織であり、ST1 と ST2 はそれぞれ放射性核種が中期（2 年以内）あるいは長期（数年以上）にわたり残留するコンパートメントであり、実際には筋肉、皮膚、皮下脂肪その他の実質組織をさす。

コンパートメント間の放射性核種の移行は 1 次過程のシステムで記述し、パラメータは移行速度（単位時間での移行割合）で表す。また、モデルは再循環があるモデルであり、このことは従来のモデルとは異なる大きな特徴である。

なお、摂取方法と関連して、胃腸管モデルは従来の Publication 30 のモデルを使用しており、従って胃腸管での吸収率は時間因子のない割合 (f_1) で示してある。食品中の未知の化学形のプルトニウム等に関し f_1 の値は Publication 48 と Publication 56 では 10^{-3} としていたが、その後の新しい知見と以前のデータの見直しの結果 5×10^{-4} が合理的であると、その値を採用している。年齢依存に関連して、3 ヶ月令の乳児に関しては 5×10^{-3} とし、1 歳以上は成人と同じ値を適用している。これらの数値はプルトニウム、アメリシウム及びネプツニウムの 3 元素共通である。

4. 元素別代謝特性

(1) プルトニウム：体内動態パラメータを表 1 に示した。血中への移行したものは主として骨と肝臓に移行し、血中からの移行半減期 0.75 日で、この値は年齢に依存しない。血中から出るプルトニウムの 80 % が骨格と肝臓に移行するが、両者の分配は年齢依存で、成人では骨格と肝臓の分布比が 5 : 3 であるのに対し、5 歳から 15 歳までは 6 : 2、3 ヶ月令と 1 歳では 7 : 1 である。骨格内での分布は成人で骨梁部表層が 60 %、皮質部表層が 40 % であるが、それ以外の年齢群では両者に 50 % ずつである。肝臓ではまず 1 年の半減期のコンパートメントに入り、続いてそこからおよそ 9 年の半減期の第 2 コンパートメントに移行する。両者を合わせると実効的に約 10 年の半減期と言うことになる。軟組織については血液からの 30 % を受ける ST0、2 % を受ける ST1、12.5 % を受ける ST2 の半減期はそれぞれ 1 日、2 年、100 年であり、この値は年齢に依存しない。生殖腺については生殖腺 1 g 当り血中から移行する放射能の 0.001 % が移行するとし、このことは標準人男性の 35 % の睾丸には 0.035 % が、また標準人女性の 11g の卵巣には 0.011 % が移行することを意味している。なお、成人以外の年齢群では慎重のため生殖腺 1 g 当り 0.002 % を採用している。また生殖腺から出ていくときの半減期は全ての年齢群ともに 10 年である。いずれのパラメータも、モデルが循環形であることにより、従来のものと単純には比較できない点に注意が必要である。このようにパラメータを定めたことにより、最近の米国での超ウラン登録で得られたデータとも整合が取れている。骨格と肝臓での年齢残留曲線を図 3 と図 4 に示した。成人についてみれば、肝

Table – 1 Age – specific transfer rates(d^{-1}) for plutonium model.

	Age					
	3 mo	1 y	5 y	10y	15y	Adult
blood to Liver 1	0.0647	0.0647	0.1294	0.1294	0.1294	0.1941
blood to cortical surface	0.2264	0.2264	0.1941	0.1941	0.1941	0.1294
blood to trabecular surface	0.2264	0.2264	0.1941	0.1941	0.1941	0.1941
blood to urinary bladder content	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129
blood to kidney (urinary path)	0.00647	0.00647	0.00647	0.00647	0.00647	0.00647
blood to other kidney tissue	0.00323	0.00323	0.00323	0.00323	0.00323	0.00323
blood to ULI contents	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129
blood to testes	0.000013	0.000019	0.000022	0.000026	0.000021	0.000023
blood to ovaries	0.000008	0.000010	0.000026	0.000045	0.000078	0.000071
blood to SY0	0.2773	0.2773	0.2773	0.2773	0.2773	0.2773
blood to ST1	0.0806	0.0806	0.0806	0.0806	0.0806	0.0806
blood to ST2	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129	0.0129
ST0 to blood	0.693	0.693	0.693	0.693	0.693	0.693
kidneys (urinary path) to bladder	0.01386	0.01386	0.01386	0.01386	0.01386	0.01386
other kidneytissue to blood	0.00139	0.00139	0.00139	0.00139	0.00139	0.00139
ST1 to blood	0.000475	0.000475	0.000475	0.000475	0.000475	0.000475
ST1 to urinary bladder contents	0.000475	0.000475	0.000475	0.000475	0.000475	0.000475
ST2 to blood	0.000019	0.000019	0.000019	0.000019	0.000019	0.000019
trabeclar surface to volune	0.00822	0.00288	0.00181	0.00132	0.000959	0.000247
trabeclar surface to marrow	0.00822	0.00288	0.00181	0.00132	0.000959	0.000493
cortical surface to volume	0.00822	0.00288	0.00153	0.000904	0.000521	0.0000411
cortical surface to marrow	0.00822	0.00288	0.00153	0.000904	0.000521	0.0000821
trabecular volume to marrow	0.00822	0.00288	0.00181	0.00132	0.000959	0.000493
cortical volume to marrow	0.00822	0.00288	0.00153	0.000904	0.000521	0.0000821
cort/trab bone marrow to blood	0.0076	0.0076	0.0076	0.0076	0.0076	0.0076
Liver 1 to Liver 2	0.00177	0.00177	0.00177	0.00177	0.00177	0.00177
Liver 1 to small intestine	0.000133	0.000133	0.000133	0.000133	0.000133	0.000133
Liver 2 to blood	0.000211	0.000211	0.000211	0.000211	0.000211	0.000211
gonads to blood	0.00019	0.00019	0.00019	0.00019	0.00019	0.00019
f_1	0.005	0.0005	0.0005	0.0005	0.0005	0.0005

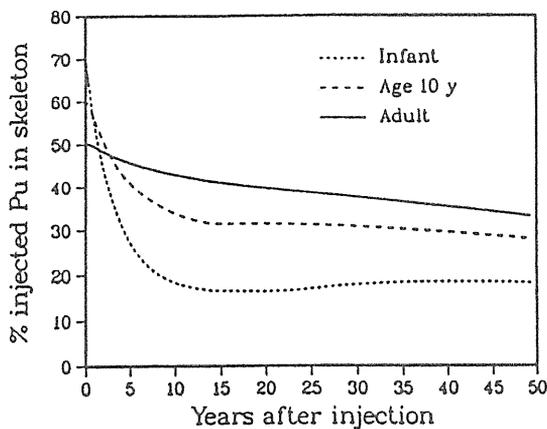


Fig.3 Model predictions of the plutonium contents of skeleton as a function of age at injection and time after injection.

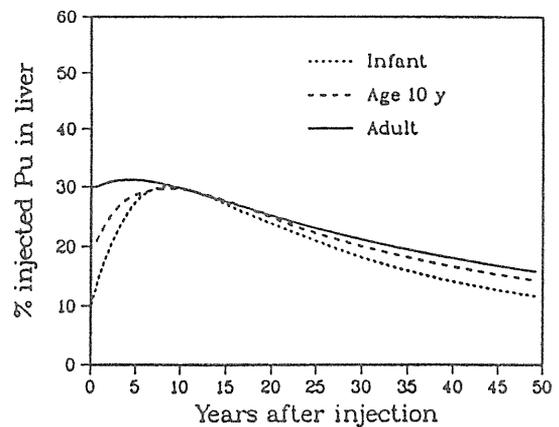


Fig.4 Model predictions of the plutonium contents of liver as a function of age at injection and time after injection.

臓からの移行速度は骨のそれより若干大きく、投与後 50 年で骨格中沈着量は投与量の 34 % であるのに対して肝臓中のそれは約 16 % である。

(2) アメリシウム：血中への移行後は骨と肝臓にほぼ均等に分布するが、その後のそれぞれからの移行速度は大きく異なり、投与後 50 年で骨格中沈着量が投与量の約 32 % であるのに対し、肝臓からの移行速度は相対的に大きくそこでの沈着量は投与量の約 3 % となる。プルトニウムの場合と異なりアメリシウムに対し肝臓は半減期 1 年のコンパートメントしかないからである。骨格と肝臓での年齢別残留曲線を図 5 と図 6 に示した。

(3) ネプツニウム：血中への移行後の初期分布は骨格に 50 % 弱、肝臓に 10 % 強であるが、それぞれからの移行速度はプルトニウムやアメリシウムに比べ大きく、投与後 50 年で骨格中沈着量が投与量の約 17 %、肝臓中のそれは約 3 % である。骨格と肝臓での年齢別残留曲線を図 7 と図 8 に示した。

(4) キュリウム：前述のようにキュリウムに関しては Publication 56 あるいは Publication 67 では言及していないが、文献によればアメリシウムときわめて類似した体内挙動を取り、モデルのみならずパラメータについてもアメリシウムのそれを用いて実効上特段の問題がないと考えられている⁽¹²⁾。

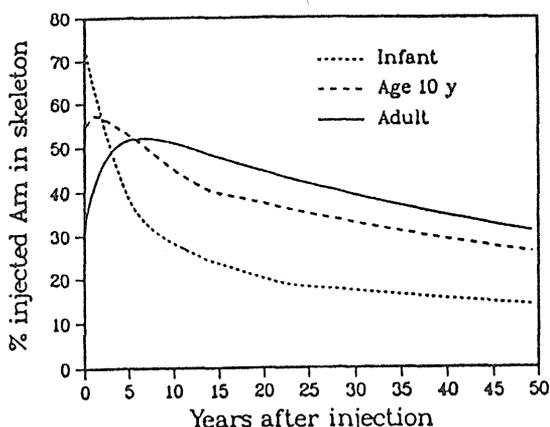


Fig.5 Model predictions of the americium contents of skeleton as a function of age at injection and time after injection.

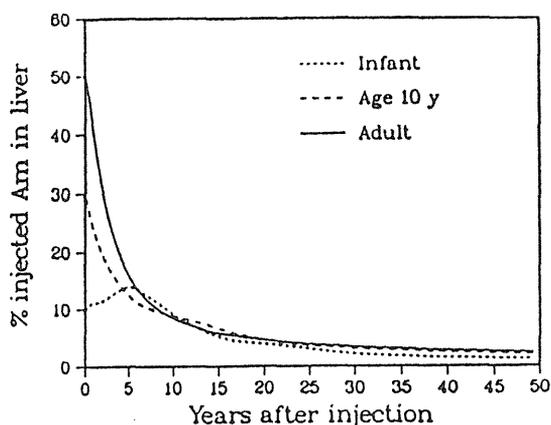


Fig.6 Model predictions of the americium contents of liver as a function of age at injection and time after injection.

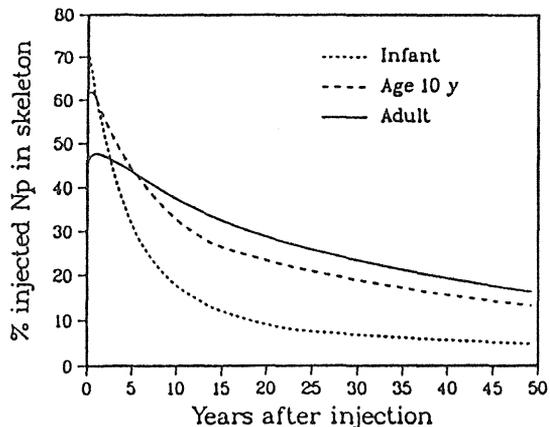


Fig.7 Model predictions of the neptunium contents of skeleton as a function of age at injection and time after injection.

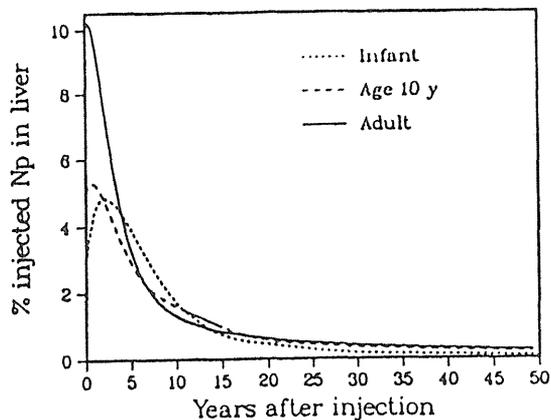


Fig.8 Model predictions of the neptunium contents of liver as a function of age at injection and time after injection.

5. 超ウラン元素の内部被ばく線量係数

Publication 66 に示された新しいヒト呼吸気道モデルと上記で紹介した体内動態に基づいて計算され、Publication 67 と Publication 71 に表示された単位放射能当たりの実効線量（線量係数 Sv/Bq）を表2に示す。

Table-2 Inhalation dose coefficients : Committed effective doses per unit intake (Sv/Bq)
Age at intake

Nuclide	Type	f_1	3 m	1 y	5 y	10y	15y	Adult
Pu-239	M	5E-4	8.0E-5	7.7E-5	6.0E-5	4.8E-5	4.7E-5	5.0E-5
Pu-239	S	1E-5	4.3E-5	3.9E-5	2.7E-5	1.9E-5	1.7E-5	1.6E-5
Am-241	M	5E-4	7.3E-5	6.9E-5	5.1E-5	4.0E-5	4.0E-5	4.2E-5
Np-237	M	4E-4	4.4E-5	4.0E-5	2.8E-5	2.2E-5	2.2E-5	2.3E-5
Cm-244	M	5E-4	6.2E-5	5.7E-5	3.7E-5	2.7E-5	2.6E-5	2.7E-5

Ingestion dose coefficients: Committed effective doses per unit intake(Sv/Bq)

Nuclide	3 m	1 y	5 y	10y	15y	Adult
Pu-239	4.2E-6	4.2E-7	3.3E-7	2.7E-7	2.5E-7	2.5E-7
Am-241	3.7E-6	3.8E-7	2.8E-7	2.2E-7	2.1E-7	2.1E-7
Np-237	8.9E-9	8.9E-9	2.9E-9	1.7E-9	1.0E-9	8.0E-10
Cm-244						

6. まとめと考察

ICRP Publication 67 を中心とする新しい体内動態モデルと新しいパラメータによる4つの超ウラン元素核種の線量係数を紹介した。これらの特徴について考察してみたい。

まず、Publication 30 で見られるように、従来、ICRP では内部被ばく線量計算にあたり職業人を主たる対象とし、職業人を対象とした年摂取限度を導き、そこから導かれるものを公衆にも適用していたが、近年、公衆のためには公衆の特性を反映した線量限度を導くこととした。具体的には、公衆公衆は新生児から老人まで広い範囲の年齢に人々によって構成されていることが特徴的であり、それらに留意しての年齢依存線量シリーズの刊行となった。公衆の放射線防護を考えるに当たっては公衆の中のクリティカルグループを対象とすることが求められており、今後、当然に年齢依存の線量係数の使用が望まれる。

放射線防護に関するICRPの基本的な考え方もパラメータ選定に関連している。すなわち、従来、保守主義が強く、線量を過小評価することのないような配慮が強く、結果的に過大評価するパラメータを安易に選んでいたが、放射線防護の最適化を重視する線量制限体系さらには放射線防護体系の導入によりできるだけ現実的な実際のを反映した線量評価が出来るようなパラメータを選ぶようになっているのも最近の動向と言えよう。

評価モデルについては精密化が進んでいる。モデルを考えるに当たって従来ともすれば保守的であることに重点が置かれ、また計算の簡単なため詳細なモデルは避けられ単純化かせなされ、結果的に生理的に

意味のないモデルを構築することもあった。この事実に対する批判が生じ、全体として生理学的な意味のあるモデルに重点が置かれ、かつプルトニウムなど超ウラン元素のいくつかに関しては米国のウラン超ウラン登録での人体でのデータの蓄積が進み、さらに動物実験でのデータが増大した。コンピュータの普及も影響しているように思われる。すなわち、詳細なモデルを構築しても、また多数のパラメータを使用しても、パソコンの使用により簡単に線量計算を行うことが可能となり、モデル構築に当たり計算の簡便さに従来ほどの配慮が必要なくなったものと考えられる。結果的に、新しいモデルでは多くの因子について考慮が可能となり、例えば特定サイトで特有データが得られれば、また特定の個人のデータが得られていれば、それらを用いての線量計算も可能となる場合が多く、そのためのパソコンソフトなども NRPB など信頼性のある機関から市販されるようになってきている。ただし、放射線防護のための線量計算の観点からすればプルトニウム等のための新しいモデルの複雑さの程度は如何なものであろうか。筆者は、プルトニウム等については、目的と得られているデータ等から新しいモデルの複雑さが最適であり、これより簡単なものでもまたこれより複雑なもので最適であることから外れると考えている。

最後に内部被ばく線量係数について ICRP の補助限度としての安定性の観点から考察してみたい。Publication 30 でプルトニウム等の年摂取限度（およびその基礎としての線量係数）を計算したが、それ以降、Publication 48 での体内動態の見直し、Publication 60 での組織荷重係数等の見直し、Publication 66⁽¹³⁾ での呼吸気道モデルの見直し、Publication 67 での体内動態の見直し、Publication 71 での年齢依存吸入線量係数の設定⁽¹⁴⁾などが行われ、そのつど線量係数の変更がなされた。これら全ての見直しは時々の最新の科学的知見に基づいたものであり、合理的であるというえ、そこから得られた線量係数は当然のことに一層合理的なものとなっているといえるが、結果として線量係数が頻繁に改訂され、放射線防護への適用上問題となったことも事実である。線量係数が時々の新しい知見に基づき改訂されるべきであることと、線量係数が社会的存在であり放射線防護の規制に直接関連することから安定であるべきであるということ、この両者はバランスが取れていることが望ましいことは言うを待たない。

参考文献

- 1) ICRP:ICRP Publication 30 Part 1:Limits for Intakes of Radionuclides by Workers, Ann. ICRP. 2(3/4), 1979.
- 2) ICRP:ICRP Publication 23 : Reference Man: Anatomical, Physiological and Metabolic Characteristics, Pergamon Press, Oxford, 1975.
- 3) Cristy, M. and Eckerman. K. F.:Specific Absorbed Fractions of Energy at Various Ages from Internal Photon Sources, ORNL/TM-8381/V1-V7, 1987.
- 4) ICRP : ICRP Publication 38 : Radionuclide Transformations : Energy and Intensity of Emissions, Ann. ICRP, 11-13, 1983.
- 5) ICRP : ICRP Publication 56 : Age-Dependent Dose to Members of the Public from Intake of Radionuclides Part 1, Ann. ICRP 20(2), 1989.
- 6) ICRP:ICRP Publication 60 : 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, Ann. ICRP, 21(1-3), 1991.
- 7) ICRP:ICRP Publication 48 : The Metabolism of Plutonium and Related Elements, Ann. ICRP, 16(2/3), 1986.

- 8) ICRP : ICRP Publication 67 : Age-Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides : Part 2 Ingestion Dose Coefficients, Ann. ICRP, 23(3/4), 1993.
- 9) 例えば Kathren, R. L., The United States Transuranium and Uranium Registries : Overview and Recent Progress, Radiat. Prot. Dosim. 26, 323-330, 1989.
- 10) 例えば Popplewell, D. S. and Ham, G. J., Distribution of plutonium and americium in tissues from a human autopsy case, J. Radiol. Prot., 9, 159-164, 1989.
- 11) 例えば Lloyd, R. D., et al., Retention and dosimetry of injected Am-241 in beagles, Radiat. Res., 110, 564-575, 1984.
- 12) 例えば La Soso, T., Cohen, N., Wrenn, M. E., Distribution and retention ^{244}Cm in the adult baboon, Radiat. Res. 85, 173-183, 1981.
- 13) ICRP : ICRP Publication 66 : Human Respiratory Tract Model for Radiation Protection, Ann. ICRP, 24(1-3), 1994.
- 14) ICRP : ICRP Publication 71 : Age-Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides : Part 4 Inhalation Dose Coefficients, Ann. ICRP, 23(3/4), 1993.

閉会の挨拶

2日間にわたりました、第23回放医研環境セミナーを終わるに当たりまして一言ご挨拶申し上げます。

本セミナーは、「長半減期核種の環境動態と線量評価」という題でございまして、2つの特別講演、3つのトピックスおよび6つのセッションから構成されました。原子力開発における我が国と外国との相違、核燃料および廃棄物の輸送、再処理施設設備、放射性廃棄物の消滅処理など社会的に関心の非常に高いものを取り上げ、また、最新の技術も紹介されました。さらには、沿岸、外洋の長半減期核種の分布と挙動、地球科学さらにはICRPの最新情報などにつきましては、すばらしい内容をご報告され、さらに盛んな討論がありました。この成果は必ずや今後の皆様方のご研究に生かされることを信じております。

座長、演者の方々さらには聴者の方々に厚く御礼申し上げます。また、共催頂きました日本保健物理学会に感謝するとともに、皆様方には昨日、本日で非常に熱心にご討論、ご参加頂きまして誠に有り難うございます。お陰様で盛況に本セミナーを終了することが出来たと感謝しております。

これにて閉会と致します。有り難うございました。

放射線医学総合研究所
科学研究官 佐藤 弘毅

第23回放医研環境セミナープログラム

「長半減期核種の環境動態と線量評価—超ウラン元素、¹²⁹Iおよび⁹⁹Tcを中心に—」

主 催：放射線医学総合研究所

共 催：日本保健物理学会

開催日：平成7年11月30日(木)・12月1日(金)

場 所：放射線医学総合研究所 講堂

時 間	セッション・講演タイトル	演 者	座 長
第1日目	-11月30日(木)-		
10:00~10:15	開会の辞	平尾 泰男(放医研所長)	
	共催学会長挨拶	草間 朋子(保健学会長)	
10:15~11:15	特別講演Ⅰ 我が国の原子力開発利用長期計画と 国際環境安全基準	鈴木 篤之(東 大)	鈴木 譲(放 医 研)
	トピックス(1)		鈴木 譲(放 医 研)
11:15~12:00	六ヶ所再処理施設と放射線安全	瀧田 昭久(日本原燃)	
12:00~13:30	昼食		
	セッション1.		長屋 裕(海 生 研)
13:30~14:15	沿岸における ^{239,240} Pu及び ²⁴¹ Amの分布と挙動	住谷 秀一(動 燃)	
14:15~15:00	外洋における超ウラン元素の分布と挙動	中村 清(放 医 研)	
15:00~15:15	コーヒーブレイク		中村 清(放 医 研)
	トピックス(2)		
15:15~15:50	アイリッシュ海沿岸堆積物中の長半減期核種	山本 政儀(金 沢 大)	
15:50~16:25	環境中での ²³⁹⁺²⁴⁰ Puの移動性について	馬原 保典(電 中 研)	
	セッション2.		内山 正史(放 医 研)
16:25~17:05	環境中における ¹²⁹ Iの分布と挙動	村松 康行(放 医 研)	
17:05~17:20	土壌中 ¹²⁹ Iの分布及び家畜甲状腺中濃度について	関 李紀(筑 波 大)	
17:30~19:00	懇親会		
第2日目	-12月1日(金)-		
	セッション3.		山本 政儀(金 沢 大)
9:30~10:10	日本沿岸の海洋生態系における ⁹⁹ Tcの分布と挙動	平野 茂樹(放 医 研)	
10:10~10:45	環境における ⁹⁹ Tcの移動と被ばく評価	渡部 輝久(放 医 研)	
10:45~11:00	作物による土壌中 ⁹⁹ Tcの吸収挙動について	柳澤 啓(放 医 研)	
	セッション4.		高橋千太郎(放 医 研)
11:00~11:45	日本人における ^{239,240} Puの体内分布	久松 俊一(秋 田 大)	
11:45~12:00	Pu等の人体への摂取経路	河村日佐男(放 医 研)	
12:00~13:15	昼食		
	特別講演Ⅱ		藤元 憲三(放 医 研)
13:15~14:05	原子燃料及び放射性廃棄物の輸送—現状と将来—	有富 正憲(東 工 大)	
	セッション5.		河村日佐男(放 医 研)
14:05~14:50	長半減期核種の地球化学	松鶴 秀夫(原 研)	
14:50~15:00	コーヒーブレイク		
	トピックス(3)		平野 茂樹(放 医 研)
15:00~15:40	超ウラン元素の消滅処理技術の開発	向山 武彦(原 研)	
	セッション6.		阿部 道子(放 医 研)
15:40~16:20	超ウラン元素の体内動態と線量評価モデル	稲葉 次郎(放 医 研)	
16:20~16:30	閉会の辞	佐藤 弘毅(放 医 研)	

第23回放医研環境セミナー実行委員会委員一覧

		(所属は平成7年12月現在)
委員長	鈴木 讓	(那珂湊支所長)
副委員長	河村 日佐男	(環境放射生態学研究部)
委員	高橋 千太郎	(内部被ばく研究部)
〃	西村 義一	(環境衛生研究部)
〃	藤元 憲三	(総括安全解析研究官付)
〃	平野 茂樹	(海洋放射生態学研究部)

放医研環境セミナーシリーズ No.23

長半減期核種の環境動態と線量評価

—超ウラン元素、¹²⁹I および ⁹⁹Tc を中心に—

平成8年12月発行

編集 鈴木 譲

編集協力 小川 清一／川上 利彦

放射線医学総合研究所

〒263 千葉市稲毛区穴川4-9-1

電話 043-251-1111