

北太平洋西部海域における海底堆積物中の $^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr , ^{137}Cs 及び ^{60}Co の分布について†

柴山信行*, 石井 操*, 鈴木孝志*
小嶋哲哉*, 富井清文*, 野口賢一**

$^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr , ^{137}Cs AND ^{60}Co CONTENTS OF DEEP-SEA SEDIMENTS IN THE WESTERN NORTH PACIFIC†

Nobuyuki Shibayama*, Misao Ishii*, Takashi Suzuki*,
Tetsuya Kojima*, Kiofumi Tomii* and Ken-ich Noguchi**

Abstract

$^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{60}Co concentrations in the surface layer (0–2cm) of the deep-sea sediments, which were collected along 147° E from 29° N to 40° N during 1985 to 1987, were radiochemically determined.

The range of the concentrations of the four artificial radionuclides varies by more than ten times.

These latitudinal distributions have a peak in 36° N–38° N, where the ocean currents Oyashio and Kuroshio contact, and decrease both directions to the north and south.

The contents per unit area increase from 29° N to 37° N and vary by about ten times.

These profiles with latitude are related to those of the mathematical product of the concentrations in the surface sea layer and the biological productivity of the sea.

Each of the coefficients of correlation between these nuclides is as good as more than 0.9.

The ratios of $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$, $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ and $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ are nearly constant and have no remarkable profile with latitude.

The ratios of $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ and $^{60}\text{Co}/^{137}\text{Cs}$ in the marine sediments are much the same as those of the product of the contents in the water column and the concentration factor of the marine living materials, whilst that of $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ is half.

These results suggests that most of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{60}Co existed in the deep-sea sediments first disolved in the surface sea layer, and then sank with the sinking particles produced by the living materials, and reached to the sea bed.

† Received 7th January 1988

* 海洋汚染調査室 Marine pollution research laboratory

** 第三管区海上保安本部水路部 Hydro. Dept. 3rd R.M.S.Hqs.

1. はじめに

大気圏内核爆発に伴い放出された人工放射性物質の環境中における分布等に関しては、1945年以来すでに多くの調査・研究が行なわれている。

海洋においても、これら物質をトレーサーとした海水の移動・混合等の研究並びに被曝線量評価のための調査・研究が継続して実施され、海水中の立体的な分布が明らかにされている。

一方、深海海底堆積物に関しては、海水に比べて試料採取が困難であるために調査例は少なく、実態は未だ明らかになっていない。

しかし近年、深層海水と海底堆積物との間で活発な物質交換が行なわれていること、また海洋表層から深層及び海底表面へ効率的に物質を輸送する沈降粒子の存在が発見されたことにより、人工放射性物質の堆積物中の分布状況について解明の手掛りが得られようとしている。

海上保安庁水路部は、低レベル放射性固体体の海洋処分に関連し、安全評価、モニタリングの必要性から放射能調査研究費による「低レベル放射性固体体の海洋処分のための海洋調査」の一環として外洋における海水・海底堆積物中の人工放射性物質の実態調査を1972年から実施している。

本報告は、1985～1987年の調査成果のうち、東経147°線上の北緯29°～40°で採取した堆積物中の^{239,240}Pu, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs及び⁶⁰Coに関する分を取りまとめたものである。なお1985, 1986年の調査結果は、水路部(1987, 1988)で報告されたものを再掲している。

2. 試料の採取及び分析法

試料の採取は、測量船「昭洋」によりスミスマッキンタイヤ型採泥器を用いて実施した。

試料の採取位置を第1図に示す。採取した海底堆積物の表層約2cmの泥質部分のみを、85℃で乾燥、粉碎して分析に供した。

^{239,240}Puの分析は試料50gを用いた。硝酸浸出の後、陰イオン交換法により精製、ステンレススチール板上に電着し、 α 線スペクトル計測を行った。なお、分析に際して内部標準線源として²⁴²Pu(USA-NBS製)を添加した。

⁹⁰Sr及び⁶⁰Coの分析は、試料300gを用い系統的に行った。塩酸浸出の後、陰イオン交換法によりSrとCoを分離した。Srは炭酸塩として沈殿濃縮の後、⁹⁰Srと放射平衡にある⁹⁰YをHDEHPによる溶媒抽出、陽イオン交換法により精製、シュウ酸塩として沈殿させ、 β 線計測を行った。CoはTHF-塩酸を用いる陽イオン交換法で精製、銅板上に電着し、 β 線計測を行った。

¹³⁷Csの分析は試料100gを用いた。塩酸浸出の後、AMPに吸着濃縮、Duolite C-3を用いた陽イオン交換法により精製、塩化白金酸塩として沈殿させ、 β 線計測を行った。

また、一部の試料について試料採取直後に堆積物の一定容量を別に取り、その乾燥重量から現場密度(E.S.D. : Existing State Density)を求めた。

3. 結果

分析結果を第1表に示す。表中の放射能濃度は試料採取日現在のものであり、誤差は計数誤差である。(放射能濃度の緯度分布)

緯度分布を第2図に示す。4核種ともほぼ同一の緯度分布パターンをしており、このパターンを、次の二通りに見ることができる。

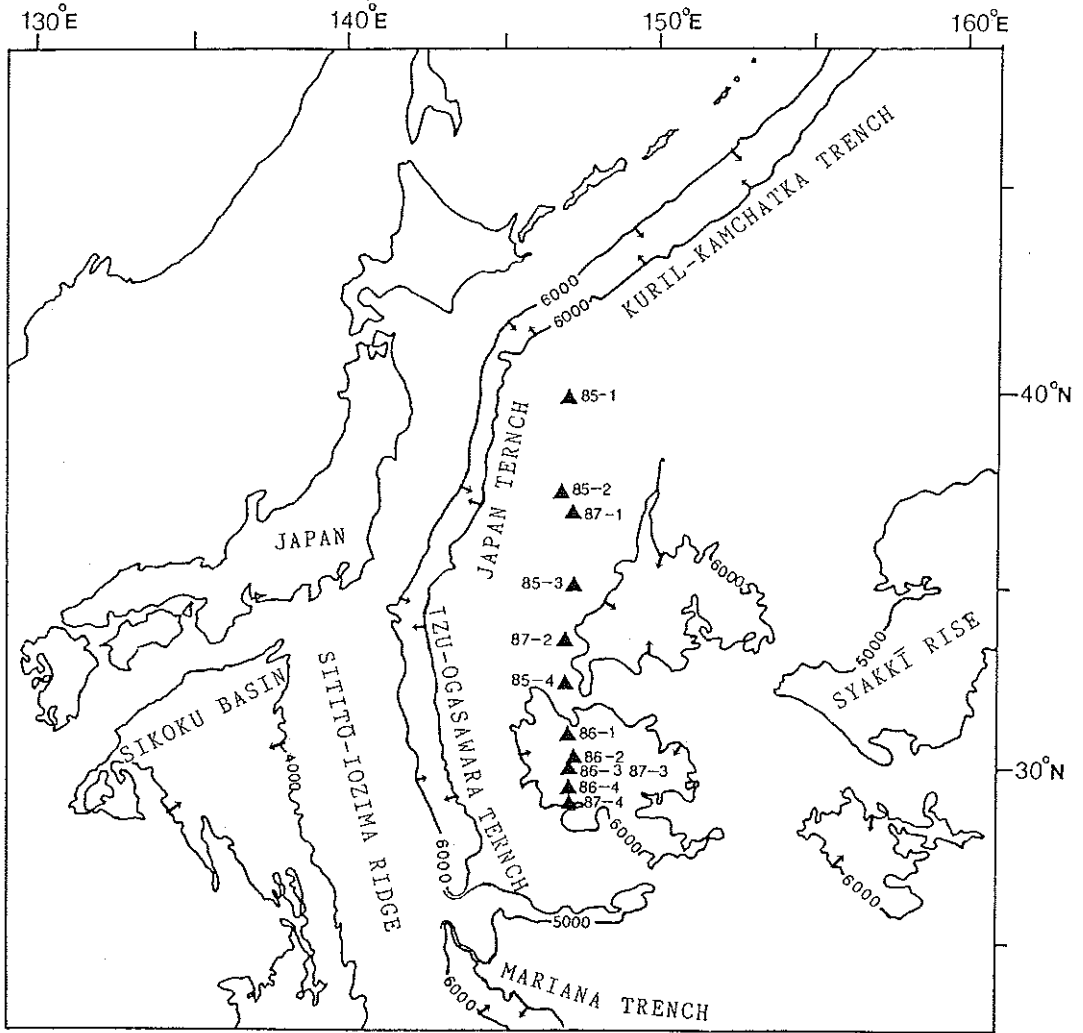


Figure 1. Sampling Points and Sample Numbers

(1) 北緯36°~38°に極大値を持ち、その低緯度及び高緯度の両側で順次減少している。

(2) 高緯度に向うにつれ増加する傾向のうえに、北緯36°~38°間にピークが重なっている。

前者の場合は北緯40°以北で減少し、後者の場合は増加することとなる。ただし、北緯40°以北のデータが無いのでいずれであるかは判別できない。

(放射能存在量の緯度分布)

堆積物表面(深さ2 cmまで)の一定面積中に含まれる放射エネルギーは、現場密度を用いて求めることができる。現場密度を $G \text{ g/cm}^3$ 、放射能濃度を $A \text{ Bq/kg-dry}$ とすると、

1 m ² 当たりの2 cmまでの体積	:	$1 \text{ m} \times 1 \text{ m} \times 2 \text{ cm} = 2 \times 10^4 \text{ cm}^3$
" 質量	:	$(2 \times 10^4 \text{ cm}^3) \times (G \text{ g/cm}^3) = 20 \times G \text{ kg}$
" 放射エネルギー	:	$(20 \times G \text{ kg}) \times (A \text{ Bq/kg-dry}) = 20 \times G \times A \text{ Bq}$

となる。

試料の乾燥処理の過程で現場密度は定性的には高緯度ほど小さくなる傾向が観察されており、放射能存在量の緯度分布は濃度の分布と比べ極大となっている緯度帯より低緯度側で変化が小さく、高緯度側で大きくなる。

Table 1. Results of Analysis

Sample No.	Sampling Position		Sampling Date	Depth (m)	Concentration(Bq/kg-dry± one counting standard deviation)				*E.S.D. (g/cm ³)
	Lat.(N)	Long.(E)			^{239,240} Pu	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co	
85-1	40°00.0'	147°02.5'	1985. 7. 23	5,270	0.54±0.04	0.46±0.01	4.46±0.10	0.13±0.01	
85-2	37°29.7'	146°58.0'	1985. 7. 22	5,680	1.19±0.08	0.89±0.01	6.77±0.12	0.25±0.01	
85-3	35°05.7'	147°09.7'	1985. 7. 21	5,820	0.40±0.03	0.23±0.01	2.41±0.09	0.10±0.01	
85-4	32°30.6'	147°00.3'	1985. 7. 20	6,000	0.38±0.03	0.27±0.01	2.80±0.11	0.13±0.01	
85-5	29°59.8'	146°58.4'	1985. 7. 19	6,250	0.09±0.01	0.07±0.01	0.34±0.06	0.03±0.01	
86-1	30°59.8'	147°00.3'	1986. 12. 2	6,070	0.10±0.01	0.12±0.01	0.69±0.04	0.06±0.01	
86-2	30°19.4'	146°59.8'	1986. 12. 6	6,210	0.23±0.03	0.11±0.01	1.04±0.04	0.08±0.01	
86-3	29°59.0'	146°58.3'	1986. 12. 6	6,220	0.11±0.01	0.07±0.01	0.83±0.05	0.05±0.01	
86-4	29°39.4'	147°05.5'	1986. 12. 5	6,240	0.10±0.01	0.07±0.01	0.80±0.04	0.06±0.01	
87-1	36°59.4'	146°59.4'	1987. 7. 26	5,630	1.12±0.06	1.14±0.05	6.60±0.08	0.20±0.01	0.36
87-2	33°29.6'	146°59.9'	1987. 7. 27	5,680	0.29±0.02	0.22±0.01	1.78±0.05	0.04±0.01	0.61
87-3	30°00.6'	146°57.4'	1987. 7. 31	6,220	0.10±0.01	0.09±0.01	0.97±0.04	0.04±0.01	0.51
87-4	29°02.3'	147°00.3'	1987. 7. 31	6,100	0.04±0.01	0.03±0.01	0.53±0.04	0.01±0.01	0.53

*E.S.D. : The Existing State Density is obtained by dividing the weight of the dry sediments by the volume of the raw sediments.

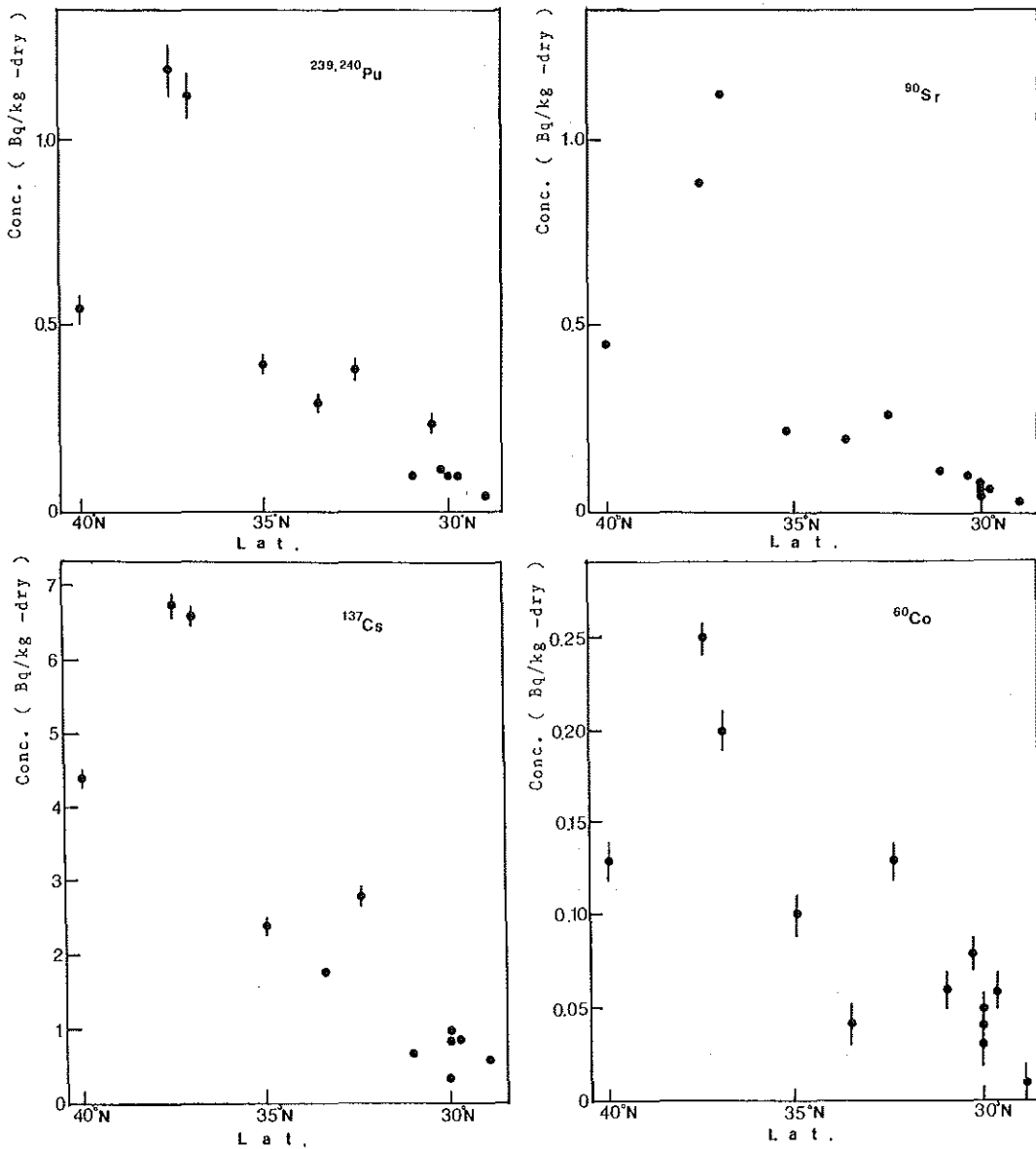


Figure 2. Latitudinal Distributions of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{60}Co Concentrations

1987年の採取試料について測定した現場密度から求めた存在量の緯度分布を第3図に示す。北緯29°~37°で高緯度ほど高くなっており緯度1°で、

$^{239,240}\text{Pu}$: $1.03 \pm 0.11 \text{ Bq/m}^2$

^{90}Sr : 0.97 ± 0.20 "

^{137}Cs : 5.8 ± 1.4 "

^{60}Co : 0.15 ± 0.04 "

変化している。

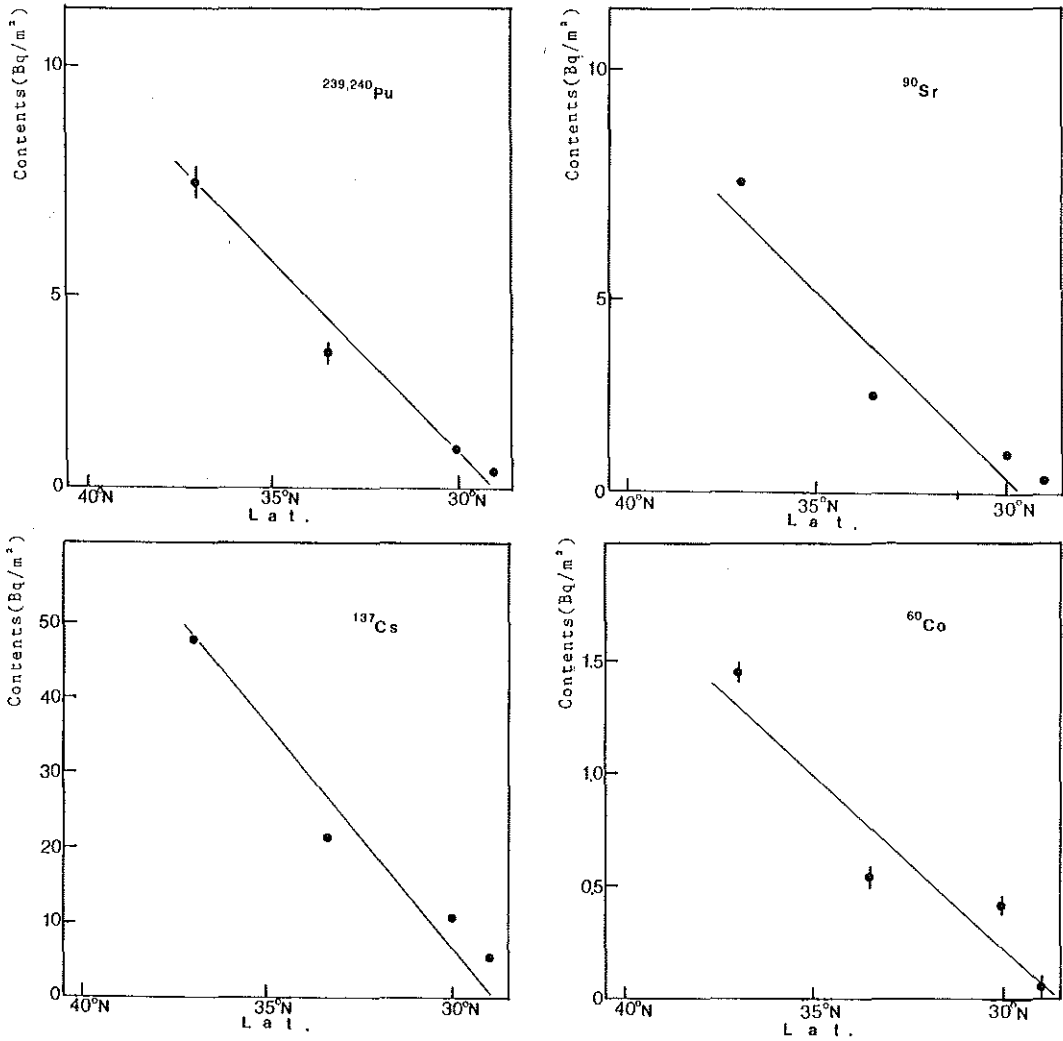


Figure 3. Latitudinal Distributions of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{90}Sr , ^{137}Cs and ^{60}Co Contents

(核種間の相関)

第1表に掲げる全データについて求めた核種間の相関係数を第2表に示す。第2図から想像される通り、いずれも0.9を超える高い相関がある。

^{137}Cs に対する濃度比の平均値は、

$$^{239,240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs} : 0.15 \pm 0.04$$

$$^{90}\text{Sr} / ^{137}\text{Cs} : 0.12 \pm 0.04$$

$$^{60}\text{Co} / ^{137}\text{Cs} : 0.048 \pm 0.021$$

である。

各核種濃度の比の緯度分布を第4図に示す。各核種濃度の比はばらつきが大きく一定の傾向は明確でないが、 $^{239,240}\text{Pu} / ^{137}\text{Cs}$ 比は高緯度で高く、 $^{60}\text{Co} / ^{137}\text{Cs}$ 比は低緯度で高いよう

Table 2. Coefficients of Correlation between ^{239,240}Pu, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs and ⁶⁰Co

	^{239,240} Pu	⁹⁰ Sr	¹³⁷ Cs	⁶⁰ Co
^{239,240} Pu	1.	0.975	0.983	0.957
⁹⁰ Sr	0.975	1.	0.966	0.906
¹³⁷ Cs	0.983	0.966	1.	0.951
⁶⁰ Co	0.957	0.906	0.951	1.

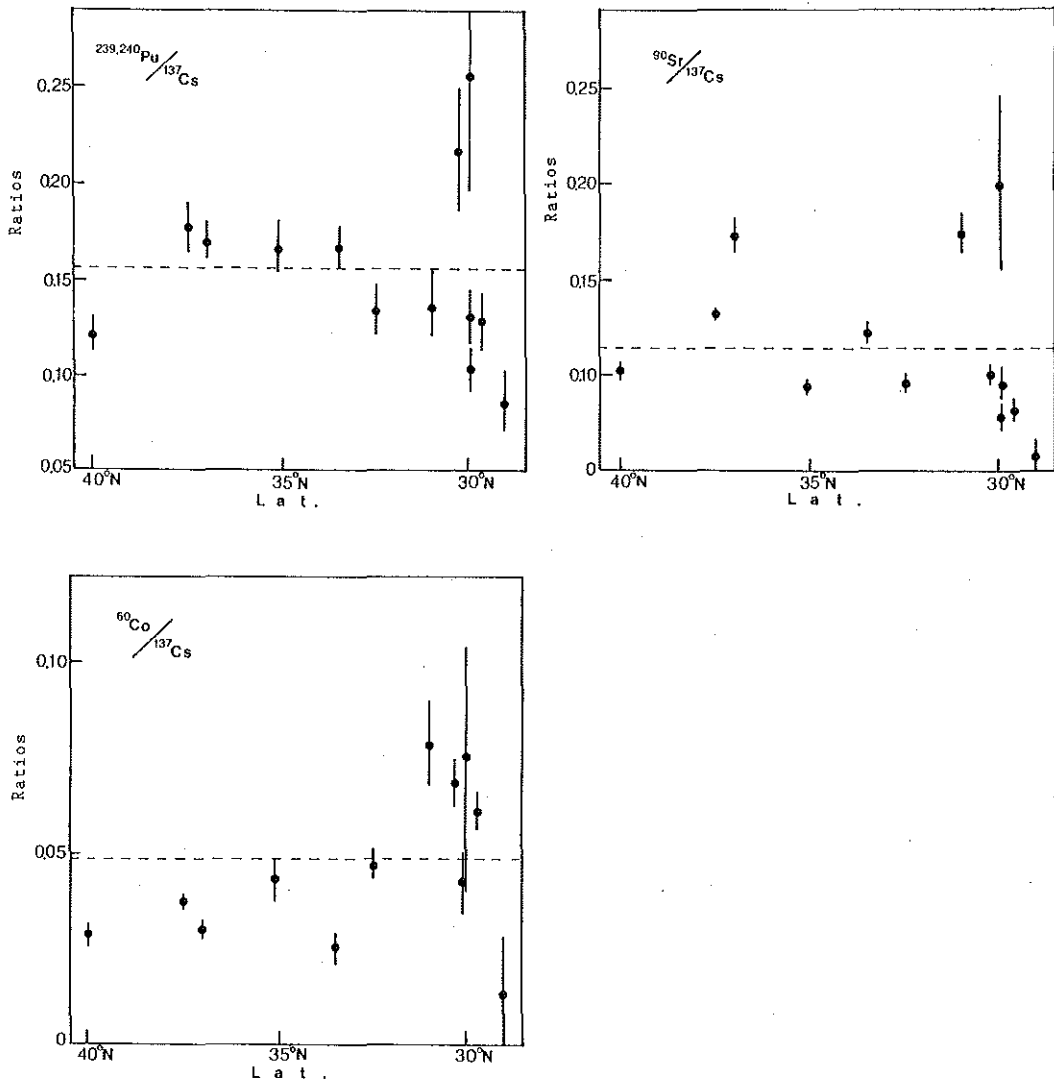


Figure 4. Latitudinal Distributions of ^{239,240}Pu/¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr/¹³⁷Cs and ⁶⁰Co/¹³⁷Cs Ratios

4. 考 察

外洋の海底堆積物中に存在している、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 及び ^{60}Co は、大気からの降下物として、あるいは直接的に海洋表層に入ったものが海洋中を降下し海底に沈積したもので、降下する機構として次のような二つが考えられている（長屋 1984）。

- (1) 1960年代初期の大規模核実験に際して一時期に海底に堆積した。
- (2) 連続的に海底に堆積している。

前者によると、堆積物中に存在する人工放射性物質は核爆発に伴い生成した難溶性の粒子に含まれた放射性物質が海水に溶出することなく海底に沈積したもので、核爆発の後速やかに海底に達したものである。この場合、核種間の濃度比は粒子生成時の組成で決まるので、その比は限られた海域内では一定となり、調査結果と矛盾しない。 $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比が北太平洋中部で0.55~0.75（長屋 1986）、北大西洋で0.07~0.16（Bowen et al. 1981）と比べると本調査結果はいく分か高い。核爆発ごとに濃度比は異なると考えられるので、必ずしも全海洋について一定になるとは限らないこと及び堆積物中のこれらの放射能濃度は経年的に僅かではあるが変化していること（水路部 1987）から海域及び時期の大きく異なるものだけの比較から一概に結論することはできない。

また、堆積物の緯度分布は、海洋中での水平移動を考えなければ粒子が主としてジェット気流によって運ばれたと仮定すれば説明が可能である。海洋中での水平移動を考えれば北緯 $36^{\circ}\sim 38^{\circ}$ は黒潮の北縁に当たり（海洋資料センター 1979）南方からの移動を想像させるが、黒潮の流れる他の海域で、流路近くで濃度が高いとする報告はない。

後者によると、堆積物中に存在する人工放射性物質は、海洋表層に溶解した放射性物質が、下方拡散あるいは沈降粒子に吸着・取込まれて降下し海底に達したものである。沈降粒子については、最近のセジメントトラップによる沈降粒子の研究からその実態が明らかになってきている（角皆他 1985, 半田他 1985）。

これらの研究によると、沈降粒子は生物起源の有機物、ケイ酸、炭酸塩を主成分とし、粒子の径により異なる沈降速度を持ち、一日で数百メートルも沈降するものがあることが知られている。また、沈降粒子束はその海域の生物生産量を反映し海域ごとに大きく異なり、その変動幅は100倍以上にも及んでいる。粒子は沈降中に溶解し、粒子束は深度とともに減少している。沈降粒子には重金属が濃縮されて存在し、沈降中に重金属の吸着・再溶出が起こっており、沈降粒子が重金属の海水中の鉛直分布を決定する主要因であると考えられている。

この沈降粒子が、重金属を底層に運ぶと同様に表層に溶解した放射性物質を海底に運んでいると考えると、海底中の濃度は表層海水中の濃度、粒子束及び沈降中の吸着・再溶出率から推定することができる。表層海水中の ^{90}Sr 及び ^{137}Cs 濃度は、北緯 $25^{\circ}\sim 37^{\circ}$ 間はほぼ一定であり、 $37^{\circ}\sim 40^{\circ}$ 間では高緯度で40%程度減少している（水路部 1987, 1988）。生物生産量は全世界分布図(Koblentz-Mishi et al. 1970)によると同海域で変化は数倍であり高緯度ほど高くなっている。また、沈降中の吸着・再溶出率については有機炭素の減衰定数 $0.0003/\text{m}$ （半田他 1985）をとると北緯 $30^{\circ}\sim 40^{\circ}$ では高緯度側で、1,000m程度浅くなっていることから残存量は高緯度側で指数関数的に35%程度高くなる。これら三者の値は互いに十分な精度を持つものではないので、定量的な取扱いは出来ないが、定性的には三者の関係から堆積物の濃度分布を説明することが可能である。

核種間の濃度比は、沈降中の吸着・再溶出率が核種間で一定とすれば、表層海水中の濃度比と粒子の濃縮係数比との積から推定できる。1945年以降の平均的表層海水中の濃度として、 $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 及び $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$

についてはウォータカラムの存在量の比(Nagaya et al. 1984), ⁶⁰Co / ¹³⁷Csについては海産生物中の安定核種との同位体比から求めた海水中濃度の比(Umezu et al. 1986)をとり、沈降粒子の濃度係数として無脊椎海産生物の濃縮係数(C.F.)の比(Thompson et al. 1972)をとり核種間の濃度比を求めた結果が第3表である。²³⁹Pu / ¹³⁷Cs及び⁶⁰Co / ¹³⁷Csでは堆積物中の濃度比はそれらの積とは良く一致しているが、⁹⁰Sr / ¹³⁷Csでは半分程度である。これらの算定値は粒子の濃縮係数の推定に多くの問題があり、単なる偶然の可能性もある。より精度の高い算定のためには核種ごとに異なる沈降中及び沈降後の溶解特性を知らなければならないが、その特性は⁹⁰Srを除く^{239,240}Pu, ¹³⁷Cs及び⁶⁰Coでは同程度であり、濃度比に溶解の効果が現れていないと考えることができる。一方、⁹⁰Srは他の核種に比べ溶解し易いため、堆積物の⁹⁰Sr / ¹³⁷Csが低くなっているものと思われる。

以上の考察の結論として、1960年代の一時期に海底に堆積したとする説を否定することは出来ないが、1985年において堆積物中に存在する^{239,240}Pu, ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs及び⁶⁰Coの大部分は、表層海水中に溶解していたものが生物の生産する沈降粒子に取り込まれて海底まで運ばれたものと考えられる。

Table 3. Evaluated Ratios of ^{239,240}Pu/¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr/¹³⁷Cs and ⁶⁰Co/¹³⁷Cs

	Ratio in Sea Water	*C.F. Ratio	Ratio in Sea Water × C.F. Ratio
^{239,240} Pu/ ¹³⁷ Cs	**0.028~0.034	100/20	0.14~0.17
⁹⁰ Sr/ ¹³⁷ Cs	**0.71 ~0.97	6.2/20	0.22~0.30
⁶⁰ Co/ ¹³⁷ Cs	***0.57~1.6×10 ⁻³	1000/20	0.03~0.08

* Thompson S.E., et al.1972

** Nagaya Y., et al.1984

*** Umezu T., et al.1986

謝 辞

これらの成果は6,000mに及ぶ深海で海底堆積物採取を行なった測量船「昭洋」船長はじめ乗組員の尽力なくしては到底有り得ないものである。心から感謝の意を表したい。また、本稿を草するにあたり御指導下さった塩崎 愈沿岸調査課長、山田 修海洋調査課長、児玉徹雄海洋汚染調査室長、宮本哲司水路企画官に心からお礼を申し上げます。

参 考 文 献

- Bowen, V.T. and, Livingston, H.D. : "Radionuclide distributions in sediment cores retrieved from marine radioactive waste dumpsites". Impacts of Radionuclide Releases into the Marine Environment. International Atomic Energy Agency, Vienna, p.33-63 (1981)
- 半田暢彦・松枝秀和：海洋における有機物の鉛直輸送，海洋の動態，梶浦欣二郎編，東京，厚生社厚生閣，p.310-355 (1985)
- 海上保安庁水路部：放射性固化体の試験的海洋処分に伴う放射能調査，昭和60年放射能調査報告書，p.39-48 (1987)
- 海上保安庁水路部：放射性固化体の試験的海洋処分に伴う放射能調査，昭和61年放射能調査報告書，p.31-42 (1988)
- 海洋資料センター：海洋環境図 海流編-日本近海，p.8, 14 (1979)
- Koblentz-Mishke, J., V.Volkovinsky and G. Kabanova : Scientific Exploration of the South Pacific. Washington, D.C., National Academy of Sciences, p.185 (1970)
- Nagaya, Y. and Nakamura, K. : $^{239,240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr in the central north Pacific, J. Oceanogr. Japan, **40**, p.416-424 (1984)
- 長屋 裕：海洋における放射性物質の鉛直分布，環境放射能，佐伯誠道編，東京，ソフトサイエンス社，p.231-237 (1984)
- 長屋 裕・中村 清：外洋の解析調査，第28回環境放射能調査研究成果論文抄録集，科学技術庁，p.74-77 (1986)
- Thompson, S.E., Burton, C.A., Quinn, D.J. and Ng, Y.C. : Concentration factors of chemical elements in edible aquatic organisms. UCRL-50564, Rev.1. (1972)
- 角皆静男・竹松 伸・乗木新一郎・原田 晃・増沢敏行：海水から化学成分が除かれる過程，海洋の動態，梶浦欣二郎編，東京厚生社厚生閣，p.264-309 (1985)
- Umezu, T. and Minamisako, Y., Tabata, K. : Dissimilarity of $^{60}\text{Co}/\text{Co}$, $^{137}\text{Cs}/\text{Cs}$ and $^{90}\text{Sr}/\text{Sr}$ ratios in *beryx splendens* from the Pacific and Atlantic Ocean, Bull. Japan Soc. Sci. Fish., **52**, p.1985-1993 (1986)