

長崎原爆による Pu フォールアウトの環境中での分布と挙動

長崎でのローカル・フォールアウト調査と

アガシ・アイス・キャップでのグローバル・フォールアウト調査

馬原 保典* (京都大学原子炉実験所)

工藤 章 (京都大学名誉教授)

1. はじめに

1945年8月9日長崎にPu原爆が投下されて59年が経つ、この原爆によって多くの人命が奪われたと同時にPuによる人間環境の汚染も始まった。59年という歳月は、人にとっては非常に長い、しかしながら、フォールアウトPuにとってはどうであったのだろうか？焼結Puは、非常に不溶性であることは周知の事である。しかし、地上に降下し土壌と接触したフォールアウトPuは、各種の風化(化学的、物理的、微生物学的)現象に遭遇しても非常に安定だったのだろうか？この質問に対しては、現在の研究レベルでは、十分に満足のいく答えを与えることはできない。長崎における土壌中のPuの分布調査結果は、現存するデータの中では最も長い間土壌環境に存在し、土壌と相互反応して得られたデータである。この点から、先ほどの困難な答えに対して何か示唆できる可能性を含んでいるのではないだろうか？また、このように長崎のデータは、土壌と人工放射性核種が相互反応して得られた最も古いものの一つであることを考慮すると、1986年4月26日に起きたチェルノヴィリ原発事故によって環境に放出された人工放射能の環境中での挙動とその後の影響評価にも活用できるであろう。

この報告では、 $^{239+240}\text{Pu}$ を中心に長崎原爆で放出されたフォールアウト核種($^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr)の内で局所フォールアウト(Local Fallout)の降下範囲とその環境媒体(土壌、底質、樹木)中での濃度・分布と土壌中での移動速度、とグローバル・フォールアウトの痕跡について述べる。

2. 長崎原爆フォールアウトPu調査の概要

本研究のために、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・バランスを取るために土壌¹⁻³⁾、底質(貯水池、海底土)⁴⁾、地下水⁵⁾、生物(農作物、樹木、魚類)⁶⁾、と北極氷床の氷柱^{7,8)}、を対象に国際共同研究として実施した。、との一部樹木についての調査は、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長崎市西山を中心に実施した。局地フォールアウトPuの降下範囲を調べるために1945年8月9日の午前11時に爆心地周辺で吹いていた南西の風下方向に爆心から20kmまで1kmごとに同心円状で、また80km~120kmの範囲で未攪乱表層土壌(~5cm)を採取した。さらに、茸雲が通過したと考えられている近傍の橋湾においても海底土を採取し調査した。Fig.1に局地フォールアウト降下調査領域を示す。局地フォールアウト降下量の多い西山水源地周辺において土壌、底質、地下水と樹木を含めた生物試料の採取を行った。貯水池底質試料は、西山貯水池と比較のために爆心地から南南東7kmにある小ヶ倉貯水池においても採取した。調査対象と調査範囲をFig.2に示す。これらのうちで、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

* MAHARA Yasunori, Kyoto University; mahara@HL.rri.kyoto-u.ac.jp

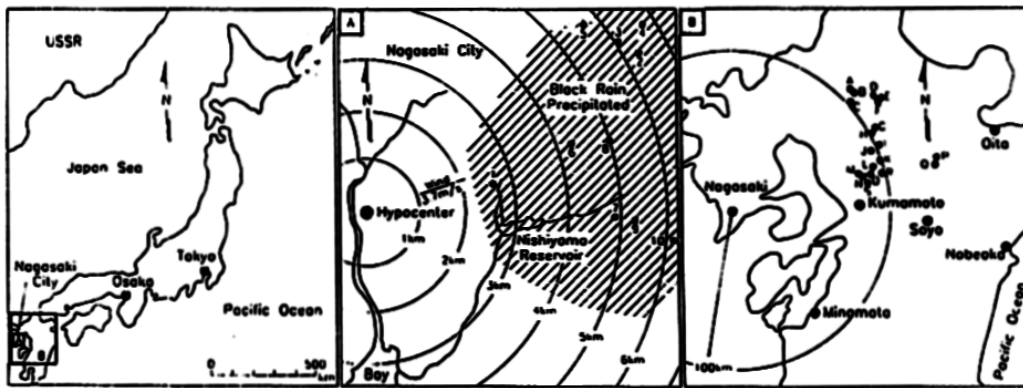


Fig. 1. Location of Nagasaki city and sampling sites for surveying the deposited

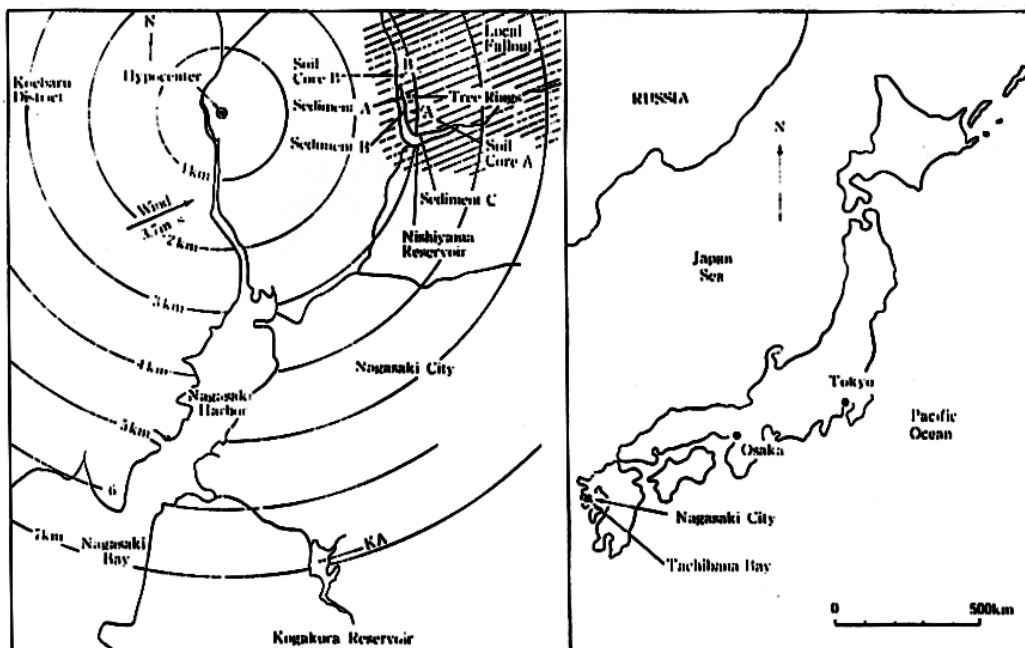


Fig. 2. Location of the local fallout deposited area in Nagasaki and the sampling sites for soil cores, sediments cores and the tree rings of Sugi.

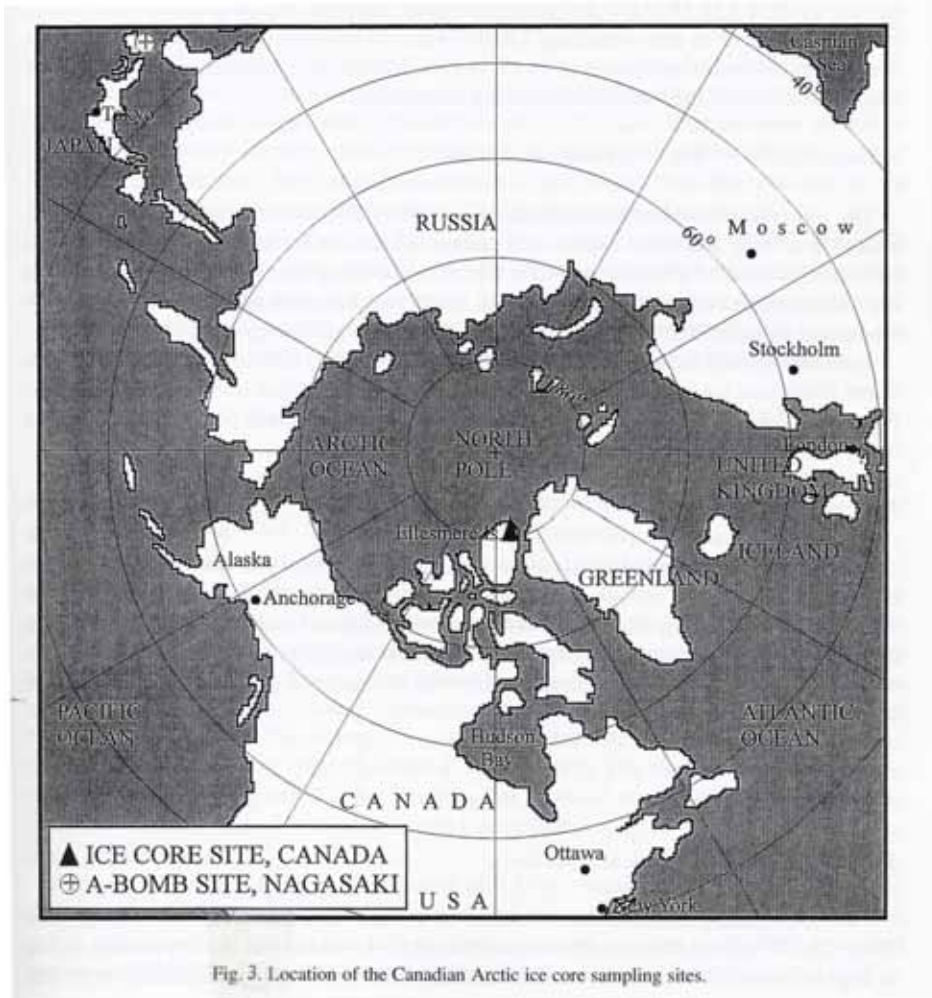
地点で最大深度 500 cm 迄の土壤 (= 30 cm) を連続採取した。地下水については、沢の湧水ならびに土壤採取後の堀削孔より採取した。生物試料については、西山貯水池とその周辺で樹齢 78 年の杉を伐採しその年輪と、その他に魚やさつまいもを採取した。特に、杉の年輪中の分布について年輪の中にフォールアウトの降下履歴が記録されているかを確認するために調査を行った。

長崎原爆からのグローバル・フォールアウト Pu 痕跡を確認するために、北極圏に位置するカナダ領エルズミア島のアガシ氷原 (Fig.3) から 14m 長さの氷柱を採取し、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の降下履歴を調査した。

3. 環境試料の調整と放射能分析

3.1 分析試料の調整

各環境試料中の ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ の分析のために土壤試料は、植物の根茎や落ち葉を除去した後 110 °C で 48 時間乾燥し、ボールミルで粉碎し調整した。底質試料については、土壤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 10 cm 程度の 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。

3.2 放射能の分析方法

(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、粒子スペクトロメータを用いて計測を行った。また、化学分離手法と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 を用いて行なった。測定限界は、0.01 kg の土壌、底質、灰化試料当たり 0.05Bq/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ーGe 検出器をもつ線スペクトロメータを用いて $\text{max.} 5 \times 10^5$ 秒で測定した。測定限界は、0.1 kg の土壌、底質、灰化試料当たり 0.05Bq/kg である。

(3) ^{90}Sr 分析

^{90}Sr の濃度は、HASL-300⁹⁾ 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分離し2 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、0.1 kg 試料当たり 0.2Bq/kg である。

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

4. 調査結果とその評価

4.1 局地フォールアウト Pu の降下範囲とプルトニウムの物質収支

1945年8月9日11時に長崎市浦上上空500mで炸裂したPu爆弾からの放射能を含んだ黒い雨が、長崎市の北東地域の広い範囲で観測されている。しかしながら、この黒い雨と局地フォールアウトPuの降下範囲が、一致するのことは今までの調査では、明らかにされていなかった。まずFig.4にフォールアウトPuの未攪乱表層土壌(～5cm)中の蓄積量を示す。爆心地から東側2.8kmの地点で最高濃度64.5mBq/gを観測した。この点を境に東側、西側ともにPuの濃度は、急激に減少しており、20km地点では、長崎原爆の局地フォールアウトの降下が無かったと予想される爆心から100kmの地点での

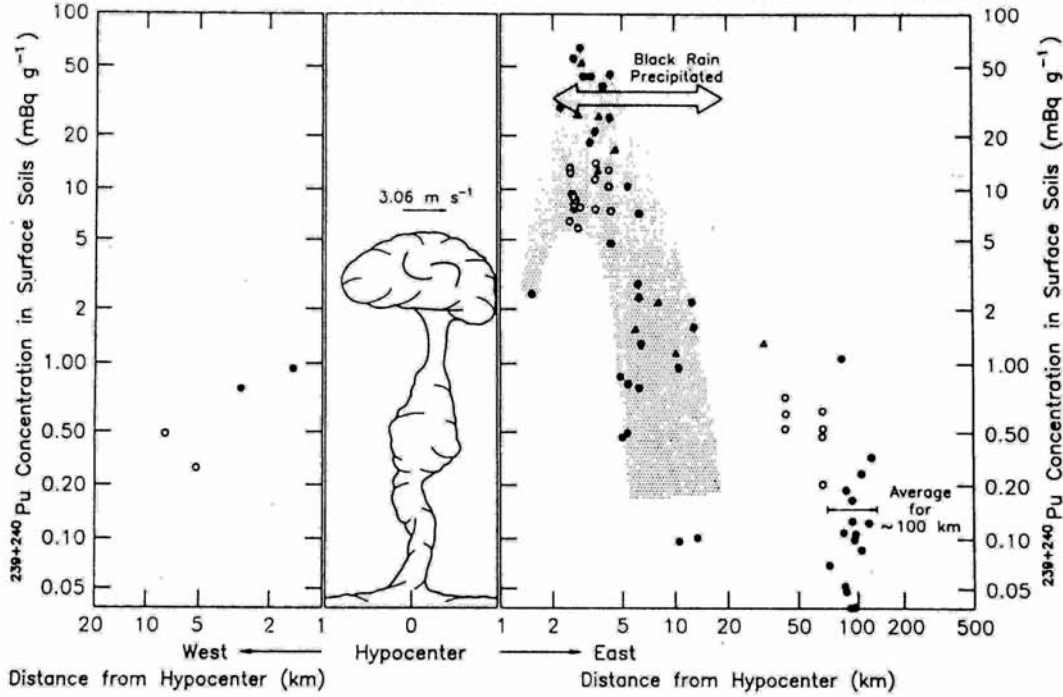


Fig. 4. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ concentrations in surface soils as a function of distance from the hypocenter.

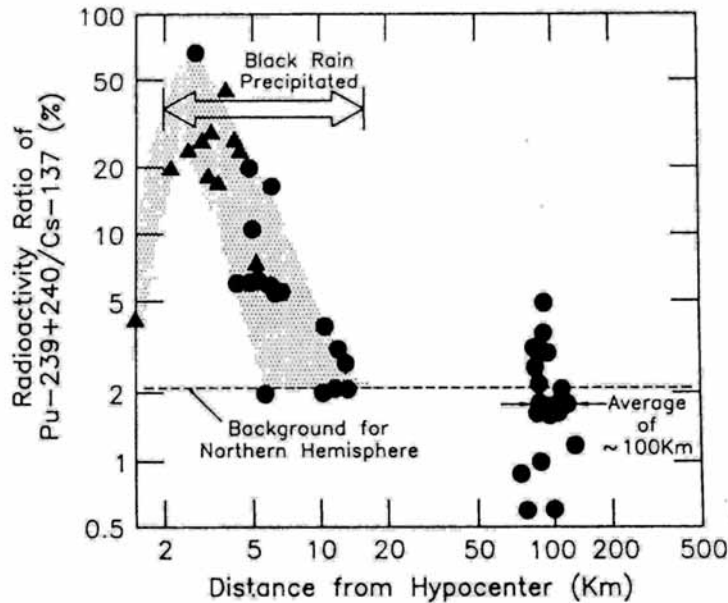


Fig. 5. Radioactivity ratio between $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs .

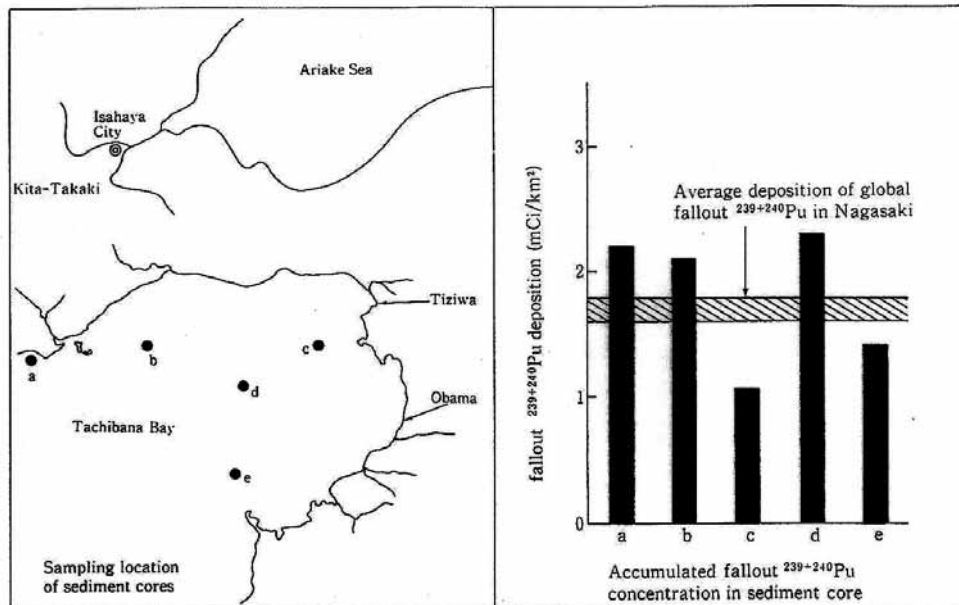


Fig. 6. Distribution of the accumulated fallout Pu concentration in sea sediments in the Tachibana Bay and comparison with the global fallout $^{239+240}\text{Pu}$ accumulation in the Nagasaki area

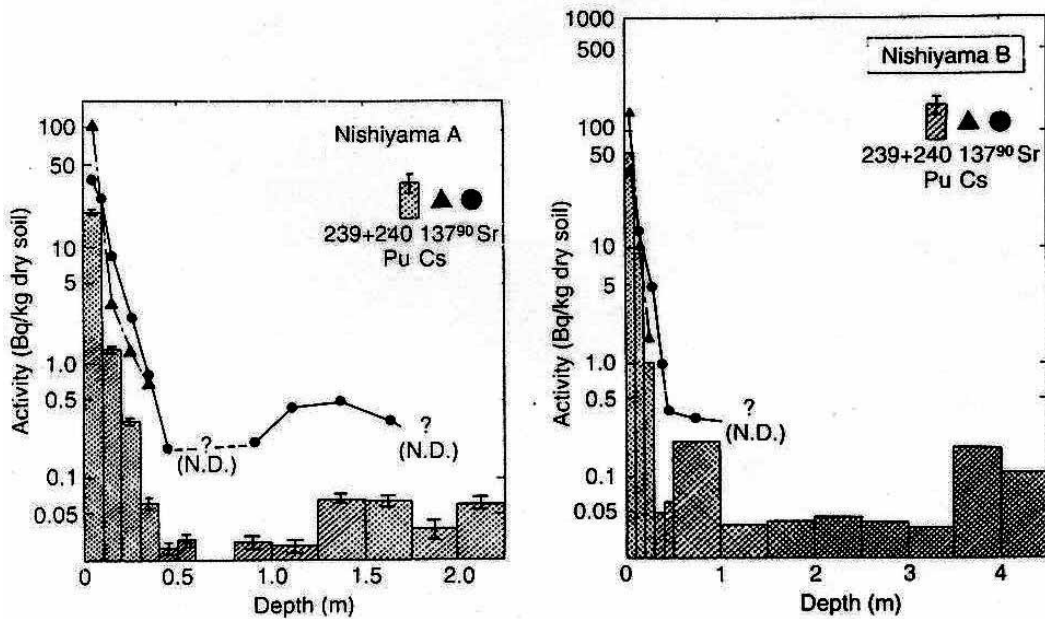
平均的な観測値 0.2mBq/g と比較しても大差無い結果であった。また、爆心の西側については、爆心から 1.5 km と 3 km の地点の表層から 30 cm の深度まで未攪乱土壌を採取して調査をした結果、局地フォールアウトの降下は殆ど認められなかった。さらに各観測地点での $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比を北半球のグローバル・フォールアウトの $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比 (2.13%) と比較して Fig.5 に示す。この結果を見ると局地フォールアウト Pu の降下範囲としては、爆心地の東側 2 km から 18 km の範囲のかなり狭い範囲であることが明らかとなった。また、原爆の茸雲が上空を通過したと予測されている長崎市の北東側に位置する橋湾において海底土中 30 cm までの $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の鉛直分布を調べた。今回調査した海域は、橋湾の中でも海水の交換性が低い停滞性の水塊域であることを考えると周辺の陸地部に降下したフォールアウト Pu の蓄積が比較的大きく、陸上の降下履歴を反映した結果が得られるものと推察される。この海域での Pu の蓄積分布の結果を Fig.6 に示す。結論的には、橋湾奥全体での $^{239+240}\text{Pu}$ の降下量は、平均で 64Bq/m^2 で長崎と同緯度でのグローバル・フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の降下量 (60Bq/m^2 ¹⁰⁾ にほぼ等しく、この結果から局地フォールアウト Pu の降下は、殆どなかったものと推測できる。

長崎原爆に用いられたプルトニウムの量については、未だに機密扱いであるのでさだかではないが、プルトニウムの臨界質量が約 5 kg であることを考慮すると $10\sim 15\text{ kg}$ 程度と推測される¹¹⁾。仮に、 15 kg と考えると核爆発のエネルギーの推定値¹²⁾ 22Kt を基に核分裂に用いられたプルトニウムの量を推定すると 1.2 kg となり全体の 8% となる。一方、西山地区を中心に降下した局地フォールアウト・ $^{239+240}\text{Pu}$ が、爆心から東北東に $1\sim 18\text{ km}$ の扇形の範囲に降下したと仮定し、表層土壌中の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度を基に表層土壌中に蓄積されている $^{239+240}\text{Pu}$ を推定するとその量は、約 0.038 kg となり全体の僅か 0.25% に過ぎない。残りの 91.75% はグローバル・フォールアウトとして地球全体に広がったと推定される。

ここで述べた内容の詳細については Water Science and Technology, Vol.22 を参照されたい。

4.2 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.2 に示す A, B の 2 地点で最大深度 500



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

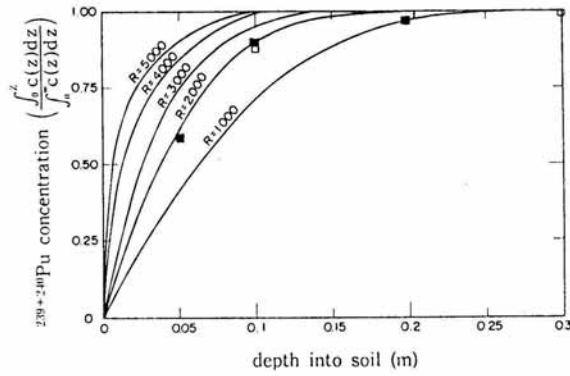
Fig. 7. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr into two undisturbed 30cm diam. soil cores collected from sites A and B in Nishiyama area. (N.D.: Not detected).

cmまでの土壌コアを連続的に採取して $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr の濃度を測定した。測定結果を Fig.7 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 30 cm 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、30 cm 以深でも観測され $^{239+240}\text{Pu}$ は、コア-A, B でそれぞれ孔底まで観測された。また ^{90}Sr は、コア-A では、200 cm 深度にまで、コア-B では 100 cm 深度まで分布しているのが確認された。一方、 ^{137}Cs は 40 cm 深度以深では存在が確認されなかった。

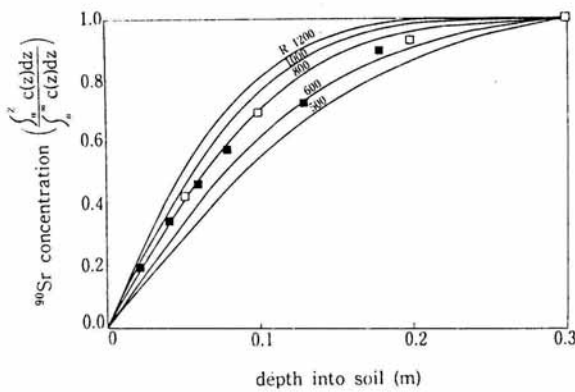
大部分のフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr が吸着されている 30 cm 深度までの不飽和土壌中での各核種の地中での移動速度を求めるため一次元移流拡散方程式の解析解を用いて核種の移動速度ならびに現位置条件で評価推定された分配係数 (K_d) をもとめた。その際、地下水の鉛直移流浸透速度は、降水中に含まれるトリチウム (HTO) の降下履歴と不飽和土壌中土中水のトリチウム濃度と比較して推定した値 2.5 m/yr を用いた。この値は臭素イオンをトレーサーとして現位置で土中水の鉛直浸透速度を観測した値とほぼ一致した。

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.8 に示す。また、この結果を基に推定した $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr の現位置での分配係数の大きさは、各々 960, 1200, 300 ml/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 (V) と考えられるが、室内実験で用いた ^{239}Pu は、(IV) であったため、Nelson 等¹³⁾ 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分布から推定した分配係数の方が、室内実験で測定した分配係数より大きくなった理由としては、これらの核種が、酸化状態の違い、微生物の影響や溶存有

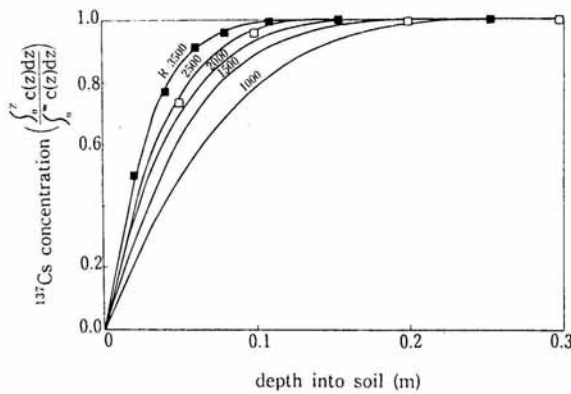
機物の影響を受ける度合いが低いことを考慮すると、この違いは、吸着時間の長さの違い、つまりフールアウト核種の場合は、40年以上の interaction であるのに対し、室内実験での interaction の時間は、24 時間と極めて短い事がある原因の一つと考えられる。 ^{137}Cs と ^{90}Sr の吸着メカニズムが、土壌のイオン交換反応であると考えれば、24 時間という時間は、必ずしも短くはない。このことは、核種の土壌に対する吸着メカニズムは、短期間で終わるイオン交換反応とゆっくりと進行する不可逆



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

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。

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あるのでそれを参照にされたい。

4.3 地下水

ボーリング孔内より採水した地下水 200 l を 0.45 μ m 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 $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}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 $0.024 \pm 0.005 \text{ Bq/m}^3$, $0.963 \pm 0.385 \text{ Bq/m}^3$ で検出されたが、一方、 ^{137}Cs は、検出限界以下であった。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。

4.4 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。二つの貯水池の結果を比較すると西山貯水池の方は、1945 年の局所フォールアウトと 1963 年頃のグローバル・フォールアウトの一連のピークの降下履歴が明瞭に認められる。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、意外だったことは、1945 年頃の深度 (28 ~ 36 cm) から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、 $\text{Excess}^{210}\text{Pb}$ 年代測定法から推定される 1945 年の年代とほぼ一致することから推定される。同一底質中では、深度 22 cm 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 も深度 28 cm より深い部分では、全く検出されなかったことも、この推定を支持している。

小ヶ倉の底質サンプル中に含まれる全 Pu の内で 1945 年の原爆フォールアウトの寄与率は、約 11% であった。この事からも爆心から南西にわずか 7 km しか離れていない地域においても局所フォールアウトの降下の影響が極めて小さかったことが確認された。この結果は、4.1 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事を支持している。Fig.9 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.10 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

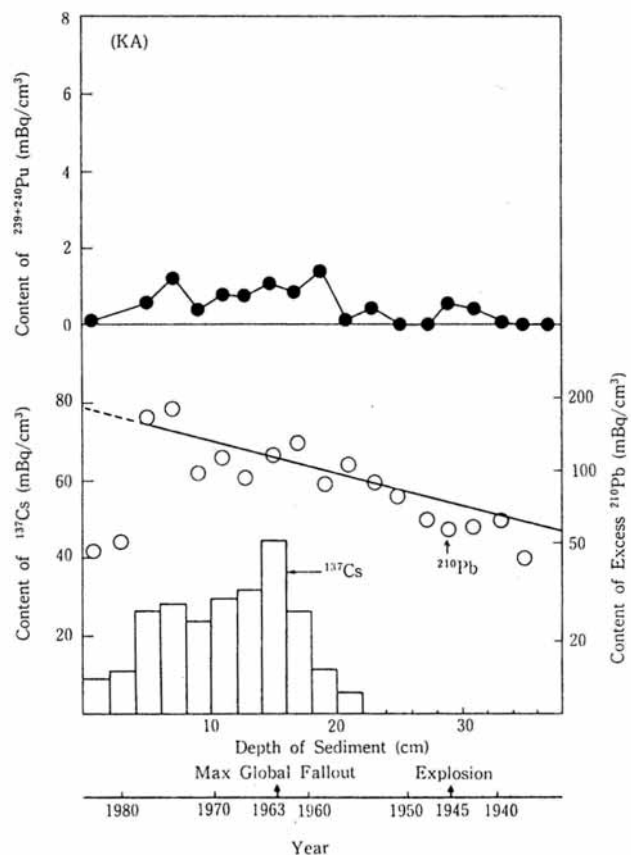


Fig. 9. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr and $\text{Ex.}^{210}\text{Pb}$ in the sediment core collected from Kogakura reservoir

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強く受けてコアの浅い部分 (Sediment-A: ~ 30 cm , Sediment-B: ~ 10 cm) は、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降下フォールアウト ^{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、1984 年時点で ^{137}Cs では、50% が局所フォールアウト成分であり、残りの 50% がグローバル・フォールアウト成分であるとの結果となった。また、 ^{90}Sr では、47% が局所フォールアウト成分であり残りの 53% がグローバル・フォールアウト成分であるとの結果となった。Sediment-A の 30 cm 以深の洪水の影響を受けていないコア部分の深度 50 cm 付近に局地フォールアウトの $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の大きなピークが見られる。 ^{137}Cs は、深度 57 cm までは検出されるがそれより以深では全く検出されない、一方 $^{239+240}\text{Pu}$ は、コアの最深部の 90 cm 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 ~ 75 cm の間に比較的濃度が高いピークが 2 ヶ

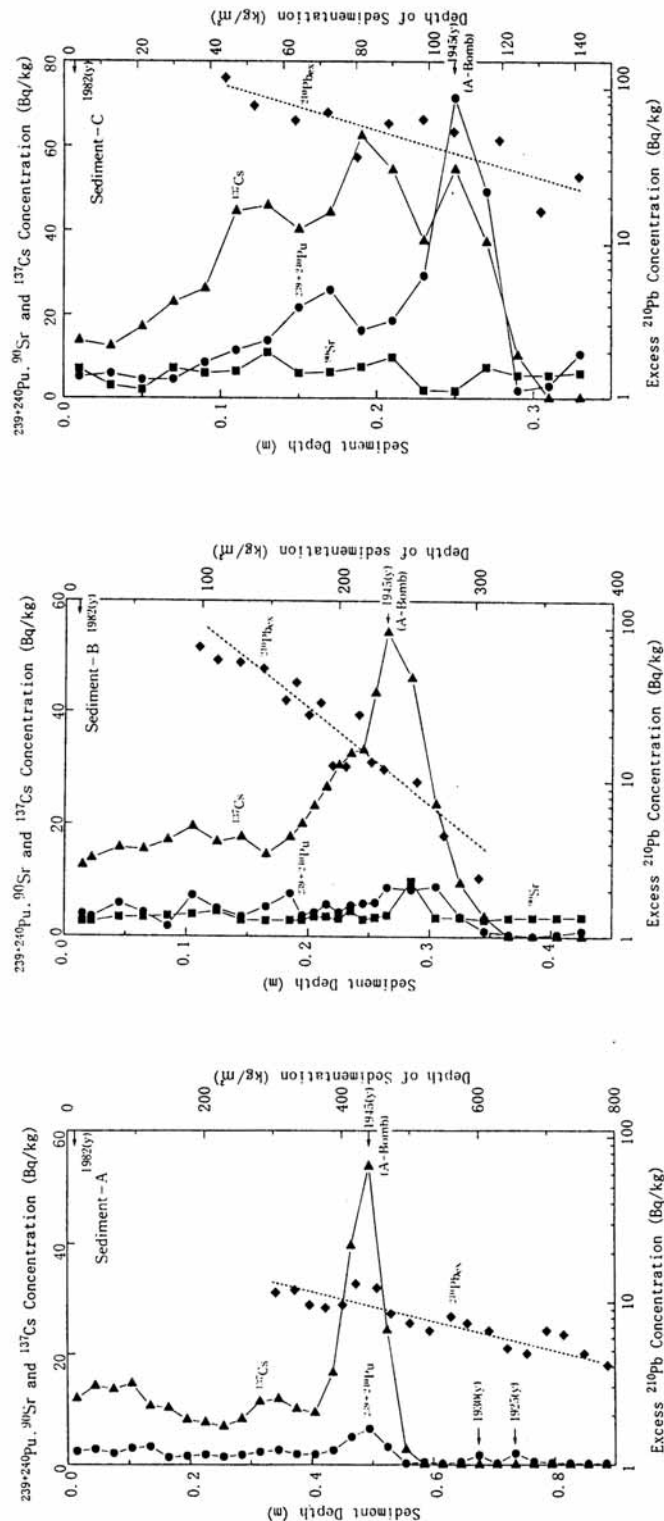


Fig. 10. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr and excess ^{210}pb in sediment cores collected from Nishiyama reservoir

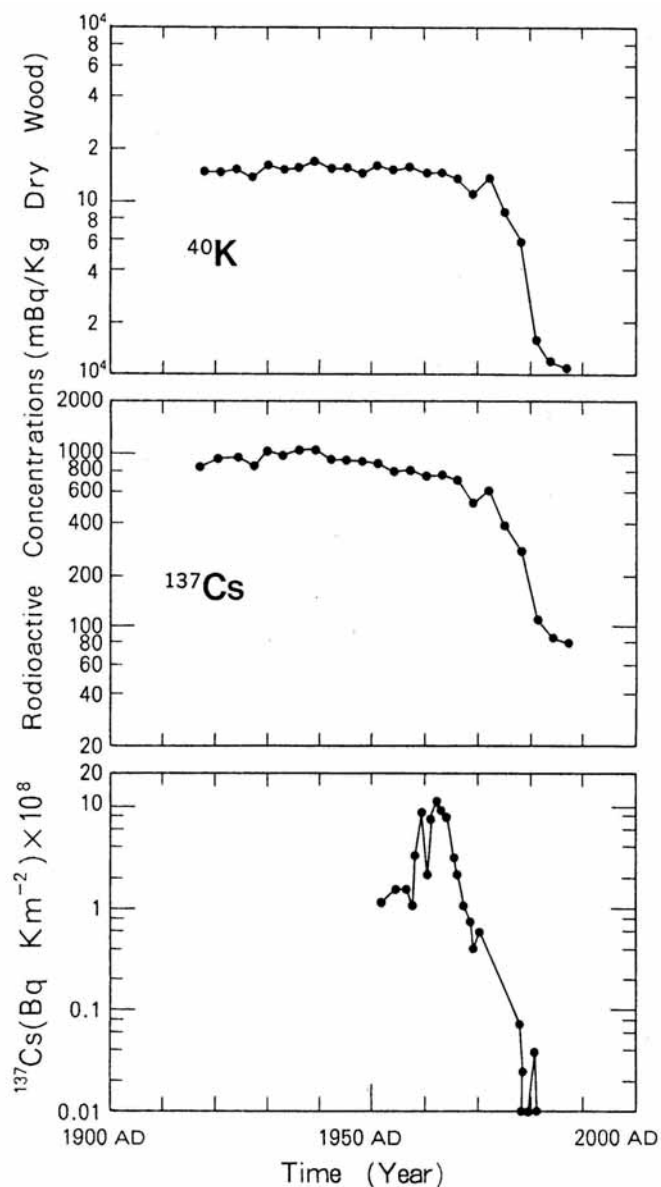
所見されることである。その濃度は、Sediment-A の最大 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度 6.43m Bq/g の $1/3 \sim 1/4$ に達するもので、同一深度の底質中で ^{137}Cs が検出されないこと、さらには、この深度の底質の堆積年代が 1925 ~ 1932 年頃であることを考慮すると移動性の異なる $^{239+240}\text{Pu}$ が、僅かながら存在することを示唆しているようである。また、貯水池の底で底質が、水の動きや微生物などの攪拌による水理学的あるいは生物活動に伴う機械的な乱れの大きさを表す底質混合拡散係数 (Particle Mixing Coefficients) D_e の大きさを、局地フォールアウトの $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs のモノピークを用いて評価すると、その値は、 $D_e = 0.078 \sim 0.12\text{cm}^2/\text{yr}$ あり太平洋の 5000m 以深の深海底で測定された値 $D_e = 0.03 \sim 0.4\text{cm}^2/\text{yr}$ と比較しても決して大きなものではなく、貯水池の底における底質の動きは、極めて小さいことが明らかとなった。

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。

4.5 杉年輪

樹林 78 年の杉の年輪を 3 年毎に分け ^{40}K , $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の濃度分布を測定した結果を Fig.11 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言うことは、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ことである。

$^{239+240}\text{Pu}$ 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無いようである。 $^{239+240}\text{Pu}$ の分布は、Fig.11 に示す年代と核実験によって大気圏へ放出された



Distribution of ^{40}K and ^{137}Cs in Tree Rings at Nagasaki

Fig. 11. Pu history in Nagasaki tree rings along with other trace elements

^{137}Cs の降下量と比較すると良く似た分布をしていることが分かる。比較的大きな濃度ピークが 1944 ~ 1946 年、1956 ~ 1958 年、1965 ~ 1967 年に認められる。ピークの大きさは、1965 ~ 1967 年、1956 ~ 1958 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アウト・ピークよりも低い。この事は、周辺土壤中の $^{239+240}\text{Pu}$ 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とグローバル・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色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予想される 1963 年に最大濃度ピークが出現せず 2~3 年遅れで濃度ピークが現れているが、その理由も良く分かっていない。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根幹を通して吸収されたと考え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

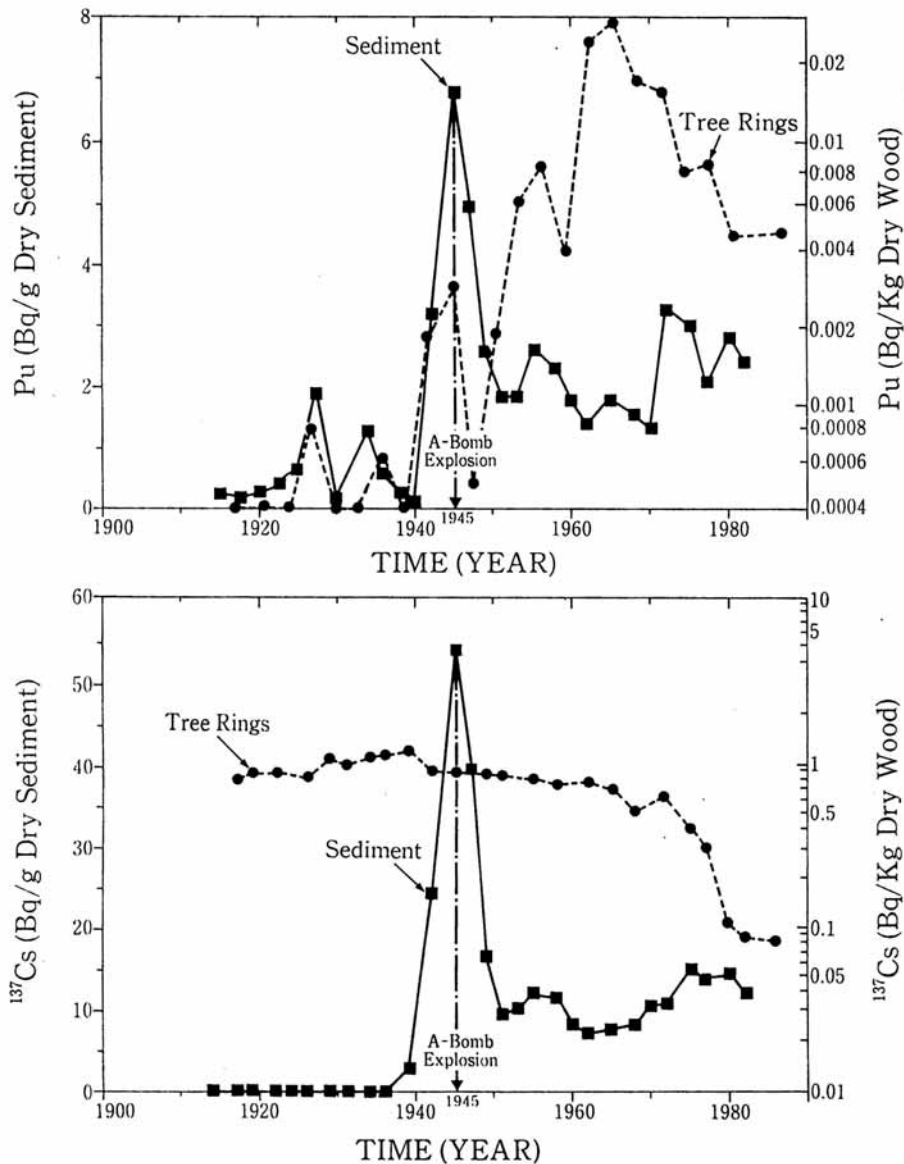


Fig. 12. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in sediment cores and tree rings

土壌に強く吸着されるのでその殆どは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深度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年に認められることである。これらのピークは、いずれも原爆フールアウトの降下が起こった1945年以前に観測されている。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矛盾するように思えるが、ここでの観測結果が $^{239+240}\text{Pu}$ の検出限界値である 0.45mBq/Kg と比較しても十分に有意な値であることを考慮すると $^{239+240}\text{Pu}$ の中には一部環境中では移動性の高い成分が出来ると解釈できる。意外な事実として年輪中に残された $^{239+240}\text{Pu}$ 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 の中でも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、既に述べたところである。Fig.12に年輪中の $^{239+240}\text{Pu}$ と Sediment-A 中の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度分布を、年代を合わせて重ねて示す、また比較のために年輪中の ^{137}Cs と Sediment-A 中の ^{137}Cs の濃度分布を示す。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が、 ^{137}Cs は土壌や底質の中では移動性は低いが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。

なお、ここで述べた詳細な内容については J.Environmental Radioactivity, Vol 21 ならびに Applied Radiation Isotopes, Vol. 46⁽¹⁴⁾を参照されたい。

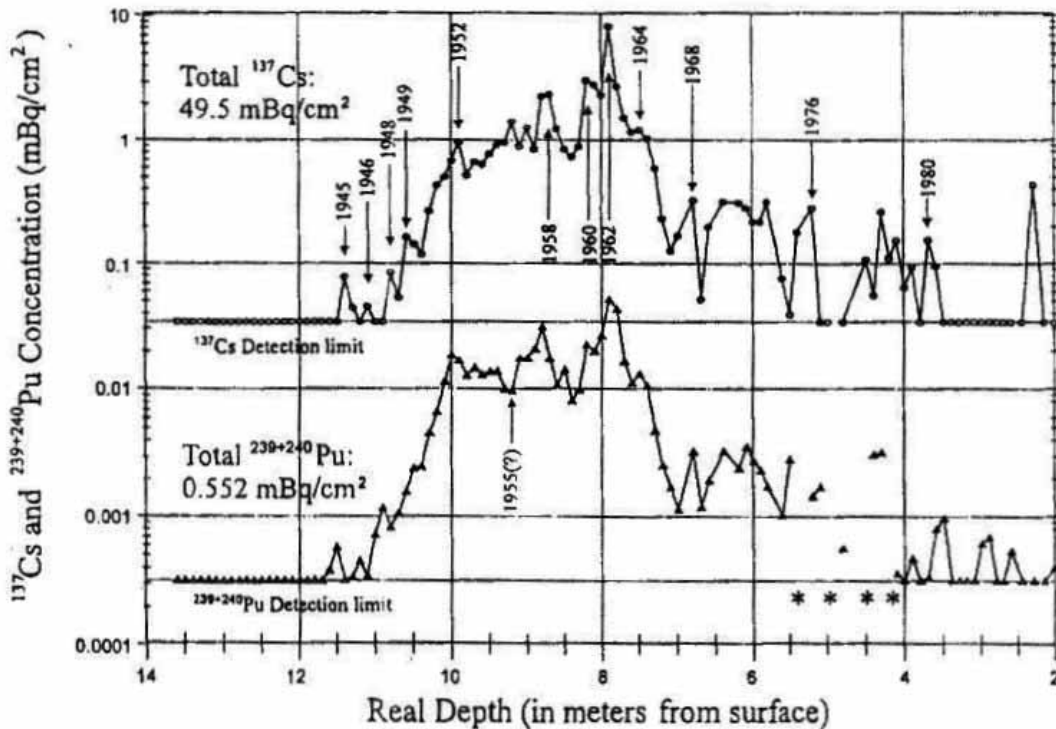


Fig.13. $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs concentrations in the ice layers at Ellesmere, Canada (after Kudo et al., 1998).

4.6 Ice Core

長崎原爆によって環境に放出されたグローバル・フォールアウト Pu の存在の確認と地球規模での物質輸送に関する知見を得るために、北極の Ice Core 内の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の濃度分布を調べた。その結果を Fig.-13 に示す。グローバル・フォールアウトとしての $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の降下履歴が鮮明に残されている。最大濃度は、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs とともに 1962 年の層からである。この結果は、国内で観測された 1963 年の最大降下出現記録からは 1 年異なる。これは、1963 年に部分的な大気圏核実験が中止される直前の 1962 年に大量に行われた旧ソビエトの北極圏に位置するノバヤ・ゼムリア島での核実験からの寄与が大きいことと関係があり、中緯度に位置する我が国とはその降下の履歴に若干の時間的なずれが生じたのと判断される。また、11m 深度の氷層から、わずかながら 1945 年に環境に放出された Pu と Cs の明瞭な痕跡が認められる。

1945 年には、アラマゴード、広島、長崎での核爆発があり、1946 年ビキニで 2 回の広島・長崎クラスの核実験が行われたが、1947 年には実験は行われていない。また、アラマゴードでの核実験は、地表付近であり長崎原爆は、地上 560m であったことを考慮すると、距離的には離れているが、少なくともその半分は長崎原爆からのグローバル・フォールアウトの寄与と考えられる。長崎でのローカル・フォールアウトの寄与とこの分布と降下量を比較すると、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の大気を通じての輸送メカニズムの違いを見ることができる。

なお、ここで述べた詳細な内容については J.Environmental Radioactivity, Vol 40 ならびに Kudo 著の Plutonium in the Environment (2001) を参照されたい。

5. まとめ

長崎原爆によって環境中に放出された未核分裂フォールアウト・プルトニウムの物質収支を踏まえ、局所フォールアウトの種々の環境媒体中での分布とグローバル・フォールアウトの痕跡を確認した北極 Ice Core 調査について報告した。結論的に言えば、フォールアウト Pu の大部分は、その移動性は小さく環境媒体中に長く留まる可能性が極めて高い。しかしながら、これら移動性が非常に小さい大部分の Pu とは別に移動性が高い Pu が環境中では僅かながら存在することも明らかとなった。その割合は、底質、土壌、生体（樹木）の中に含まれる全 Pu 中で、各々 9%, 3%, 1% であった。これら移動性の高い Pu の形成のメカニズムは明らかではない。ここで得られた結果は、フォールアウト Pu のような難溶性で半減期が極めて長い核種によって地上近傍が汚染された場合、その汚染は長く地上に留まり長く影響が続く事を示唆している。したがって、チェルノブイリ事故の火災によって環境に放出された核種の中で、とりわけ Pu は地上に長く留まりその影響は長く続くものと推論される。

また、地球規模での汚染物質の輸送に関しては、同じ事象の中で発生しても生成の起源が異なれば、輸送物質の化学特性によって輸送の割合もメカニズムも大きく異なることが、グローバル・フォールアウトの追跡調査から明らかとなった。

参考文献

- 1) Mahara, Y., Storage and Migration of Fallout Strontium-90 and Cesium-137 for Over 40 Years in the Surface Soil of Nagasaki, *J. Environ. Qual.*, **22**, 722-730, (1993)
- 2) Mahara, Y., and Miyahara, S., Residual Plutonium Migration in Soil of Nagasaki, *J. Geophys. Res.*, **89 (B9)**, 7931-7936, (1984)
- 3) Kudo, A., Mahara, Y., Kauri, T. and Santry, D.C., Fate of Plutonium Released from the Nagasaki A-Bomb,

- Japan, *Wat. Sci. Tech.*, **23**, 291-300, (1991)
- 4) Mahara, Y., Kudo, A., Kauri, T. and Santry, D.C., and Miyahara, S., Mobile Pu in Reservoir Sediments of Nagasaki, Japan., *Health Phys.*, **54**, 107-111, (1988)
 - 5) Mahara, Y. and Matsuzuru, H., Mobile and Immobile Plutonium in a Groundwater Environment, *Water Res.*, **23**, 43-50, (1989)
 - 6) Kudo, A., Suzuki, T., Santry, D.C., Mahara, Y., Miyahara, S. and Garrec, J.P., Effectiveness of Tree Rings for Recording Pu History at Nagasaki, Japan, *J. Environ. Radioactivity*, **21**, 55-63, (1993)
 - 7) Kudo, A., Mahara, Y., Santry, D.C., Suzuki, T., Miyahara, S., Sugahara, M., Zheng, J., and Garrec, P.J., Plutonium Mass Balance Released from Nagasaki A-Bomb and Applicability for Future Environmental Research, *J. Appl. Radiat. Isot.*, **46**, 1089-1098, (1995)
 - 8) Kudo, A., Koerner, R.M., Fisher, D.A., Bouregeois, J., Santry, D.C., Mahara, Y. and Sugahara, M., 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 Core Studies of Global Biogeochemical Cycles (ed. by Robert J. Delmas)*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, (1995)
 - 9) Hardy, J.H. (ed.). Health and Safety Laboratory Procedures Manual. Rep. HASL-300. U.S. Energy Res. and Dev. Admin., New York., (1972)
 - 10) Hardy, E.P., Kery, P.W. and Volchok, H.L., Global Inventory and Distribution of Fallout Plutonium, *Nature*, **241**, 444-445, (1973)
 - 11) Kudo, A., Mahara, Y., Santry, D.C., Miyahara, S., and Garrec, P.J., Geographical Distribution of Fractionated Local Fallout from the Nagasaki A-bomb, *J. Environ. Radioactivity*, **14**, 305-316, (1991)
 - 12) 丸山隆司, 原爆線量再評価に関する諸問題, *日本原子力学会誌*, **27**, 112-119, (1985)
 - 13) Nelson, D.M. and Lovett, M.B., Oxidation States of Plutonium in the Irish Sea, *Nature*, **276**, 599-601, (1978)
 - 14) Mahara, Y. and Kudo, A., Plutonium Released by the Nagasaki A-Bomb: Mobility in the Environment, *J. Appl. Radiat. Isot.*, **46**, 1191-1201, (1995)
 - 15) Kudo, A., Zheng, J., Koerner, R. M., Fisher, D. A., Santry, D. C., Mahara, Y. and Sugahara, M., Global transport rates of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ originating from the Nagasaki A-bomb in 1945 as determined from analysis of Canadian Arctic ice cores. *J. Environ. Radioactivity*, **40**, 289-298, (1998)
 - 16) Kudo, A., Mahara, Y., Zheng, J., sasaki, T., Yunoki, E., Sugahara, M., Santry, D. C., and Garrec, J.-P., Global transport of plutonium from Nagasaki to the Arctic: review of the Nagasaki Pu investigation and the future, *In Radioactivity in the Environment series, Plutonium in the Environment (Proceedings of the Second Invited International Symposium in 1999 at Osaka, Japan)* ed. by Kudo, A., Elsevier, pp. 233-250, (2001)

Distribution and Behavior of Fallout Plutonium Released by the Nagasaki A-Bomb:

-Surveys at the Nagasaki Area for the local fallout and at Agassiz ice cap for the global fallout-

Yasunori MAHARA and Akira KUDO

ABSTRACT

The first environmental release of $^{239+240}\text{Pu}$ in an area with a high population density came from nuclear explosion at Nagasaki in 1945. Unfissioned $^{239+240}\text{Pu}$ and various fission products (e.g., ^{137}Cs , ^{90}Sr) have been

interacting with various environmental materials (soils, sediments and plants) under humid and temperate conditions for about 50 years. To assess the mass balance of $^{239+240}\text{Pu}$ of the A-bomb and the environmental distributions of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr from this release, the intensive environmental surveys were conducted in the Nagasaki area.

The local fallout $^{239+240}\text{Pu}$ was heavily deposited at Nishiyama 3Km east of the hypocenter. However, the total amount of local fallout was estimated to be only 0.25% of the A-bomb Pu. The remaining 91.65% was scattered in the world as the global fallout and only 8 % was fission in the nuclear explosion. The vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr were determined in unsaturated soil cores up to 500 cm deep. Most radionuclides were found in the soil column 30 cm 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 as well below a depth of 200 cm. No ^{137}Cs was found below 40 cm from the ground surface or in groundwater. These observations reveal that about 3% of total $^{239+240}\text{Pu}$ has been migrating in the soil at a faster rate than the remaining $^{239+240}\text{Pu}$. Sharp peak of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs , indicating heavy deposition from the Nagasaki local fallout of 1945, 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. Although ^{90}Sr was found in these sections, no ^{137}Cs was found. By contrast to the distribution in sediment cores, ^{137}Cs in tree rings had spread by diffusion from the bark to the heart of the tree without holding a fallout deposition record. Most of the $^{239+240}\text{Pu}$ was distributed in the tree rings following a similar deposition record to that found in sediment cores. Furthermore, a very small amount of $^{239+240}\text{Pu}$ (about 1%) was found in pre-1945 tree rings. The only reasonable explanation for these unexpected discoveries is the existence of mobile $^{239+240}\text{Pu}$ in the environment.

The precise deposition record of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs was found in the 14-meter-long ice cores drilled at the Agassiz ice cap in Canada. Deposition of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs were clearly recorded from 1945 to late of 1980 in them. We confirmed the small peak of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs from nuclear explosions (of Alamogordo, Hiroshima and Nagasaki) in 1945. The Pu global fallout was released from the Alamogordo and Nagasaki explosions. At least, the Nagasaki explosion was contributed to the production of an approximate half of the global Pu peak in 1945.