

VII-278

環境中ウランおよびプルトニウムの動態に及ぼす有機物の影響

長崎、鳥取、大阪等における調査結果

大阪産業大学工学部	正 会 員	菅原正孝
大阪産業大学工学部	学生会員	池田恵美
京都大学原子炉実験所	正 会 員	藤川陽子
新 洲	正 会 員	三井光彦
機 動 建 設 工 業		岡野善徳
京都大学原子炉実験所	正 会 員	工藤 章

1.はじめに

CO₂による地球温暖化を考慮し、我が国では今後、さらに原子力発電所の建設、及びそれに関連する核燃料濃縮工場、再処理工場の建設が見込まれる。これらの施設から、環境中に放射性物質が放出されている可能性はないとは言えない。環境中の影響を調査する上で指標となるウランを初めとする重金属元素の土壌中挙動は土壌有機物との結合の関連が示唆されている。そこで本研究では土壌有機物であるフミン酸に着目し、その中に含まれる U、Pu の挙動を調査したが、この調査を行う上で、Cu の土壌有機物との結合状況も考察し、U、Pu との比較検討を行った。ここで、Cu を選択したのは、この元素が自然界に存在する非放射性の重金属物質の中でもフミン酸との結合する割合が高いとされているためである¹⁾。これらの非放射性元素の土壌-有機物間の分配状況を U、Pu の分配と対比することにより、実環境中での U、Pu の挙動の特徴をより鮮明にとらえることができた。

2.実験方法

土壌およびフミン酸中の Cu、U、Pu の濃度を以下の手順に従って求めた。

- (1) 土壌試料を長崎市西山地区（4 箇所）、鳥取県八束村（旭川 30 箇所）大阪府熊取町、茨城県那珂町（茨城 3 箇所、茨城-d、茨城-b と示す。）において採取し用いた。
- (2) 土壌試料をマイクロ波分解装置を用いて酸分解後、誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）により Cu、U を、アルファ線スペクトロメトリーにより Pu を、各々測定し各元素濃度を算出した。
- (3) アルカリ抽出法により土壌試料からフミン酸を抽出した。
- (4) Pu 測定にあたっては、試料に収率トレーサを添加後酸分解を行ない、Pu 分離、電着操作後、アルファ線スペクトロメトリーで測定した。この分離測定においては、カナダ国立科学研究院（オタワ市・カナダ）の協力を得ている。

3.実験結果及び考察

(1) 土壌断面における U、Cu の分布移動集積過程

土壌断面における U 濃度の鉛直分布について検討した。その結果、図 1 から茨城-d、茨城-b、大阪では、表層において U 濃度が高くなる傾向は認められなかったが、Cu については、いずれの土壌においても表層で濃度が高い傾向が見られる²⁾。なお、この表層の Cu 蓄積は、鉛等においてよく観測されるケミカル・フオールアウトに起因する蓄積ではないと考えられる。このように特定の元素について土壌表層部での蓄積が認められる場合、①大気からの沈着、②土壌有機物との結合割合が高く表層土壌中に保持されやすい、などが考えられる。特に Cu については過去の研究の多くは、有機物との結合度合いが強いことを示唆している³⁾。Cu については有機物と結合した成分が降水による溶脱・風化に抵抗して、有機物の多い土壌表層に残留富化したものと考えられる。

Key word : ウラン、プルトニウム、フミン酸

〒574-0013 大阪府大東市中垣内 3-1-1 大阪産業大学工学部土木工学科 TEL 0720-75-3001 FAX 0720-75-5044

〒590-0451 大阪府泉南郡熊取町 京都大学原子炉実験所 TEL 0724-51-2467 FAX 0724-51-2610

（2）土壌中のフミン酸—金属の結合

土壌および土壌より抽出したフミン酸中の重金属（Cu、U、Pu）を ICP-MS およびアルファ線スペクトロメトリーにより定量した。その結果、フミン酸と錯体形成している土壌中重金属の割合 R（%）を次の式より算出した。

$$R = 100XH / (YM)$$

H（g）は土壌 M（g）から抽出されたフミン酸の質量
Y は土壌中の当該金属元素濃度、X はフミン酸中の当該金属元素濃度である。この値を表 1 に示す。また、土壌フミン酸中の金属元素濃度の比（X/Y）も示す。

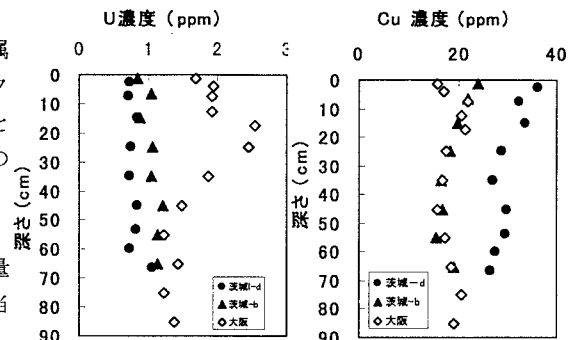


図 1. U、Cu 濃度と深さ分布

表 1. 西山、旭川土壌におけるフミン酸—金属結合

土壌名称	U			Cu			Pu		
	X(ppm)	R(%)	濃度比 X/Y	X(ppm)	R(%)	濃度比 X/Y	X(mBq/g)	R(%)	濃度比 X/Y
西山A	0.6	1.2	0.4	55.2	3.3	1.2	31.0	9.5	3.4
西山B	0.8	1.0	0.6	50.2	2.5	1.4	96.0	8.9	4.8
旭川4A	3.2	4.0	1.7	76.0	5.2	2.2	4.8	19.9	8.3
旭川8A	1.5	4.7	1.1	45.0	5.8	1.4	7.8	6.7	1.4
旭川11A	2.6	6.1	2.0	61.0	6.3	2.1	30.2	10.6	4.1

土壌中重金属の有機物（フミン酸）との結合のパーセント（R）については、Cu より Pu の方が高いが、U においては Cu と同程度かやや高い。図 1 との対比で考えてみると、Cu のように Pu も同様に長期間にわたり表層に残る可能性があると考えられる。すなわち表 1 に示した西山土壌では Pu の土壌フミン酸との結合状況は土壌中全 Pu の 10% 近くがフミン酸と結合した状態であり、Cu、U については、フミン酸との結合画分は各々 3-5%、1% 程度である。これより Pu は、Cu より一層、表層に残りやすい可能性もある。一方、旭川土壌において Pu がフミン酸との結合している割合が 7-20% まで場所により変動しているものの、一貫して高い値を示している。U、Cu 等の重金属と旭川土壌のフミン酸の錯成能が高いことからいっても、旭川土壌は Pu の化学特性とともにこの土壌中のフミン酸の性質が Pu の有機物への固定に寄与していると考えられる。

また、この旭川土壌は、Pu については、収率トレーサの回収率が西山土壌のフミン酸に比べて著しく低下する現象が見られた。この原因として予備灰化後にも僅かに試料中に残留した旭川土壌のフミン酸の骨格の一部が溶液中の Pu と錯形成して化学分離過程において妨害を行なっているためだと考えられ、現在収率の改善方法等を検討中である。

4. 結論

- （1）西山土壌、旭川土壌の双方において U、Pu 等と有機物は、少なくとも、土壌中全量の数%が有機物—U、Pu の結合物として存在している。特に Pu については、最高 20% に及ぶ Pu がフミン酸と結合した状態で存在していることが明らかになった。
- （2）実験室内で Pu 等と有機物の結合が著しく、Pu の定量的分離が疎外されていることが明らかになった。

【参考文献】

- 1) Fujikawa, Y., Fukui, M. and Kudou, A., Vertical Distributions of Trace Metals in Natural Soil Horizons From Japan. Part2. Effect of organic Soil Component. Water, Air and Soil Pollution, 1999 .
- 2) Fujikawa, Y., Fukui, M. and Kudou, A., Vertical Distributions of Trace Metals in Natural Soil Horizons From Japan. Part1. Effect of organic Soil Component. Water, Air and Soil Pollution, 1999.
- 3) Ross, S. M. : 1994, Retention, transformation and mobility of toxic metals in soils, In : Ross, S.M. (Ed) Toxic Metals in Soil—Plant System, John Wiley & Sons, Chichester, England, pp.63-152.