

VII-279

ウラン同位体比を指標とする環境汚染の調査-土壌および環境水の調査結果から

京都大学原子炉実験所	正会員	藤川陽子
機動建設工業		岡野善徳
大阪産業大学工学部	学生会員	池田恵美
新洲	正会員	三井光彦
大阪産業大学工学部	正会員	菅原正孝
京都大学原子炉実験所	正会員	工藤 章

【はじめに】 天然ウラン（U-234, 235, 238）の同位体比は、物質の移行や環境汚染の検出の指標として用いることができる。ウランは、土壌・岩石・水・大気中の埃に含まれ、人間環境中で最もよく見られる放射性物質のひとつである。ウラン同位体の化学的性質は同一であるが、（1）原子燃料として用いられる濃縮ウランの製造・使用・再処理の過程において、特徴ある同位体比を有するウランが環境中に放出されうること、（2）U-234 はアルファ反跳により U-238 に比べて環境中での易動性が高いこと、等により、環境中の U-234, 235, 238 の同位体比には、自然および人工の要因による変動が生じうる。一般に、（1）放射平衡状態では、U-234 と U-238 の放射能比は 1 である、（2）同位体比変動要因の作用していない天然ウランでは、U-234, 235, 238 の存在比は、原子数比にして、0.0054%、0.7205%、99.2741%である、ことが知られている。

本研究では、特に、表層土壌および表流水・地下水中のウランの天然同位体（U-234, 235, 238）の存在比（同位体比）の変動状況を調査し、人工的な汚染による同位体比変動を自然現象による同位体比変動と弁別して検出する可能性について検討したので、報告する。

【実験手法】 土壌試料については、茨城県那珂町（soil-b, c, d）、大阪府熊取町（soil-KUR）および岡山県上齊原村（中津河土、天王土）において、70cm～2m の深さの採取孔を掘り、5cm～20cm ずつの層位別に土壌を採取したもの进行分析に供した。水試料については、岡山県上齊原村の中津河、恩原の地下水、同村人形峠地区の河川水、鳥取県八束村の塩釜冷泉（地下水）を採取して分析した。

ウラン同位体比の分析にあたっては、土壌については、乾式灰化後、ふっ化水素酸・過塩素酸・硝酸により全量分解した上で、米国 Eichrom 社製の錯生成樹脂（U-TEVA）を用いて試料からウランを分離し、誘導結合プラズマ質量分析装置（ICP-MS）により測定した。地下水等の水試料については、蒸発濃縮後、土壌の場合と同様な手順によりウランを分離測定した。なお、酸分解、蒸発濃縮等の操作は、空気清浄度クラス 100 の環境下で実施した。

【実験結果および考察】 土壌中総ウラン同位体比の深さ方向の分布を、soil-b を例として、図 1、2 に示す。図から明らかなように、ウランの同位体比には、深さ方向に明確な傾向はなく、同じ土壌について測定した鉛の同位体比が、深さにより大きく変化し、人間活動に由来するケミカルフォールアウトの影響を示していた¹⁾のと、対照的である。この傾向は、調査した他の土壌についても、ほぼ共通していた。土壌母材が古い soil-KUR においては、U-234/238 比が浅いほうでより小さい値をとる傾向がわずかながら見られ、長期の風化により、U-238 に比べ U-234 の溶脱が促進されたためと考えられた。

上記の結果より、土壌中ウラン同位体比は、ウランによる環境汚染の指標としては、あまり鋭敏ではない

キーワード：ウラン、同位体比、地下水、表流水、土壌

〒590-04 大阪府泉南郡熊取町 京都大学原子炉実験所 TEL 0724-51-2442 FAX 0724-51-2620、

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

と考えられた。実際、人間活動により、特異な同位体組成を有するウランが大気中に放出された例は、広島原爆をはじめとしていくつかあるが、そのようなウランの沈着量は、土壤中にもともと存在するウランと比

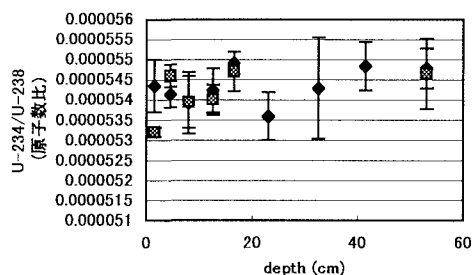


図1. soil-bにおけるU-234/238の比の深さ方向変化

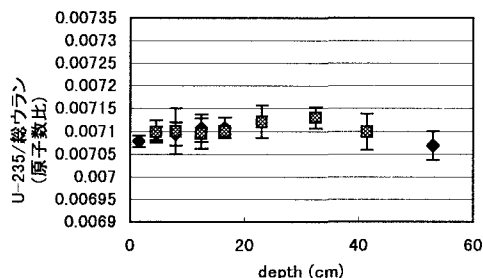


図2. soil-bにおけるU-235/総ウランの比の深さ方向変化

べて小さいために、土壤中ウランの同位体比の変化として検出されにくいと考えられる。

表1に、土壌におけるウラン同位体比の深さ方向平均値と、地下水等の水試料のウラン同位体比を示す。なお、U-234/U-238については、原子数比と放射能比を示した（放射能比は、放射平衡状態で1.0）。

表1 土壌（深さ方向平均値）および環境水中ウラン同位体比

試料名	U-234/238 原子数比	U-234/238 放射能比	繰り返し測定 の相対標準偏 差(%)	U-235/ 総ウラ ン 原子数 比	繰り返し測定 の相対標準偏 差(%)
soil-b	0.000055	1	1.1	0.0071	0.4
soil-c	0.000055	1.01	0.9	0.0071	0.5
soil-d	0.000055	1.01	1.0	0.0071	0.5
soil-kur	0.000054	0.98	2.1	0.0071	0.6
天王土	0.000055	1	2.0	0.0071	0.4
中津河土	0.000054	0.99	1.3	0.0071	0.5
中津河地下水	0.000057	1.04	3.2	0.0071	0.2
塩釜冷泉地下水	0.000082	1.48	0.3	0.0071	0.2
恩原高原地下水	0.000054	0.98	0.8	0.0071	0.6
人形峠河川水	0.000055	1	4.4	0.0071	1.1

表1より、U-234/U-238比は、例えば、塩釜冷泉では、放射平衡状態（放射能比1.0）から大きくずれており、地下水齢が古いために、 α 反跳により溶出したU-234が地下水中に蓄積していることを示唆している。中津河の地下水も、U-234/U-238比がやや高かった。人形峠付近の河川水は、U-234/U-238比について放射平衡であった。全般に、環境水試料に比して土壌試料におけるU-234とU-238の同位体比は、放射平衡からのずれは小さかった。ただし、soil-kurのU-234/U-238比が放射能比にして0.98と1.0より低く、長期間にわたり風化が進んで、U-234が溶脱した結果と考えられた。一方、U-235/総ウランの存在比については、今回調査した試料の範囲では、変動が見られなかった。ただし、標準値の0.0072に対し、本研究では0.0071の値が観測され、その原因については今後検討していく。

以上の結果より、（1）自然条件下では、U-235/総ウランの比は、通常、変動が少ない、（2）U-234/U-238の同位体比は、自然条件下で、比較的大きく変動し、人工的な影響かどうかを判断する際には、注意が必要である、（3）ウラン同位体比を環境モニタリングの指標として用いる場合、測定対象試料としては、環境水が重要である、と考えられた。

1) 岡野他、1997、田園地帯の表層土壌に蓄積した鉛の起源—鉛同位体比による検討、土木学会学術講演会報文集