

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成30年6月1日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15H02149

研究課題名(和文) 化学種解析による元素分配の系統的理解に基づく同位体分別の予測と分子地球化学的展開

研究課題名(英文) Speciation of trace elements for the prediction of isotope fractionation

研究代表者

高橋 嘉夫 (Takahashi, Yoshio)

東京大学・大学院理学系研究科(理学部)・教授

研究者番号：10304396

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 33,000,000円

研究成果の概要(和文)：天然試料やその模擬系での元素の分配と化学種を調べ、その化学種の特徴から同位体分別の向きや程度を予測し、いくつかの系で予想に近い同位体分別を観測した。これらの同位体体系は、日本初の新しい地球化学ツールとして利用されることが期待される。例えば、溶液中の溶存タングステン酸と水酸化鉄・マンガン酸化物への吸着態との間で同位体分別が起こることを化学種解析から予想し、実際に0.8‰程度の同位体分別を観測した。同様にゲルマニウム、ルビジウムなどで新しい同位体分別系が地球の進化史の解明などで有用であることが示された。また鉄の気化に伴う同位体分別を解明し、エアロゾル中の鉄の起源解析に有効であることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：Isotope fractionation of various elements in various geochemical systems has been predicted by the speciation of these elements in the samples, which can provide new isotopic geochemical tool to clarify the history of the earth and planet. For example, tungsten isotope fractionation between its dissolved species and adsorbed species on iron and manganese oxides has been studied based on the speciation and isotope analyses. The 0.6 permil isotope fractionation observed in this system can be useful for the better understanding of redox history of the earth, especially when applied with molybdenum isotope which is sensitive only for the adsorption on manganese oxide. Similar isotope fractionation was predicted and actually observed for germanium and rubidium in the adsorption systems. Moreover, isotope fractionation of Fe at the 4 permil level was observed during the evaporation of Fe such as in anthropogenic combustion process, which can be useful to distinguish source of Fe in aerosols.

研究分野：地球化学、環境化学

キーワード：化学種解明 同位体分別 モリブデン 吸着構造 XAFS

### 1. 研究開始当初の背景

研究代表者(高橋)は2000年以降、X線吸収微細構造(XAFS)などの分光法や分子軌道法を地球・環境化学試料の系に応用し、原子・分子レベルでの化学種の把握に基づきマクロな現象の本質を解明する研究を進め、「元素の分配と挙動を原子・分子の化学素過程から理解する地球化学(分子地球化学)」の確立を目指している。本研究では、特に微量元素の化学種の解明に基づいて微量元素の分配を深く理解することを通じて、同位体分別などを系統的に理解し、新たな地球化学的概念や手法を構築することを目指した。

### 2. 研究の目的

本研究では、地球の様々な系(結晶-メルト系、水-岩石系など)での元素の分配を化学種解明に基づいて解釈し、局所構造変化(例えば4配位/6配位の変化)を伴う分配やそれによる同位体分別を見出すことで、新しい地球化学的手法を確立することを目指す。ここでは、固体地球や表層環境でみられる様々な分配現象の中から、本研究に最適なテーマとして、「結晶-メルト間の分配の異常値と同位体分別の可能性」、「鉄マンガン酸化物への元素の分配の系統的理解と同位体分別」の2つに加え、粘土鉱物への吸着反応などの反応に着目し、化学種-分配の系統的理解-同位体分別の関係解明とそれに基づく応用的地球化学の研究を進めた。また関連する手法(放射光分析・分子軌道法の適用)の開発にも力を注いだ。

### 3. 研究の方法

天然試料分析や室内模擬実験により結晶-メルト間や水相(海水)-固液界面間の元素分配をICP-MS、LA-ICP-MS、EPMAなどで調べると共に、これらの系の化学種をマイクロXAFS法、STXM法、分子軌道法、熱力学的計算などにより明らかにすることで、元素分配の化学素過程を解明する。この素過程の理解を基に特徴のある同位体分別を示すと予想される元素について、MC-ICP-MSを用いた同位体比の測定を行い、その地球化学的意義を探った。

### 4. 研究成果

天然試料あるいはその模擬系における元素の化学状態の解明と分配について調べ、その化学種の特徴から同位体分別の向きや程度を予測し、実際にいくつかの系で予想に近い同位体分別を観測した。これらの同位体系は、今後新しい日本初の地球化学ツールとして広く利用されることが大いに期待される。こうした成果のいくつかについて、以下に紹介する。

三宅島の火山岩中のオリビン・斜長石と石基間の亜鉛の分配比と化学状態を調べた。化学状態はマイクロXRF-XAFS法で調べた結果、オリビン・斜長石中では6配位の亜鉛が主であったが、石基では4配位が存在することが分かった。この配位数の変化に伴い、亜鉛の同位体比が分別する可能性があるこ

とが期待される。

溶液中の溶存タングステン酸と水酸化鉄・マンガン酸化物への吸着態との間での同位体分別の分別係数の決定とXAFS法による化学状態の同定から、溶存状態(4配位)から吸着態(6配位)に変化することに伴い、同位体比が $\Delta^{186/183}\text{W}_{\text{liquid-solid}}$ で0.76‰(水酸化鉄)から0.88‰(マンガン酸化物)程度分別することが分かった。固相側で軽くなることは、分子軌道計算からの予想とも一致した。

吸着に伴う同位体分別について、イオン半径に対する依存性を調べたところ、4配位と6配位の両方をとりえる元素で、同位体分別が大きいことが予想された。これに該当するのは、ゲルマニウム、ヨウ素などであり、実際にゲルマニウムの吸着反応で同位体分別が確認された。

特に同位体分別が大きなモリブデンのマンガン酸化物への吸着系について、分子軌道法と錯体化学的知見による解析を行った結果、遷移金属でd0の電子配置を持ち、適切なイオン半径の元素の場合、大きな同位体分別を生じることが分かった。

人為的燃焼により鉄が気化する場合の同位体分別を調べた。本研究では工場等での人為的燃焼を経て大気中に放出されるエアロゾル中の鉄に着目し、海洋表層における生物生産に対するその影響を明らかにするための研究を行い、人為起源鉄が特異的に低い鉄安定同位体比( $\delta^{56}\text{Fe}$ (‰) =  $\{({}^{56}\text{Fe}/{}^{54}\text{Fe})_{\text{試料}}/({}^{56}\text{Fe}/{}^{54}\text{Fe})_{\text{標準}} - 1\} \times 1000$ )を持ち、これが人為的に生成した鉄のトレーサーとして用いることができることを明らかにした。さらに、人為起源鉄の同位体比を用いて、海洋表層に予想されたエアロゾル中の人為起源鉄の寄与を評価することが可能になった。

様々なイオン半径のイオンの2:1型粘土鉱物への吸着種を調べ、ルビジウムやセシウムでは、粘土鉱物の層構造と相互作用をし、内圏錯体を形成することが分かった。このことを基にルビジウム同位体比の分別を調べた結果、粘土鉱物への吸着でルビジウム同位体比が分別し、堆積物のルビジウム同位体比から、堆積物の生成深度や海水量などが推定することが分かった。

関連して、福島第一原発により放出されたセシウムやウランの化学状態や同位体比に関する研究や、粘土鉱物への吸着に基づくラジウムの挙動解明やウラン系列放射非平衡に関する研究など、分子地球化学的視点を基にした研究を幅広く行い、多数の成果を得た。またこれらの反応を利用した有害元素の除去などの応用的研究も進めた。

### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計66件)

(以下すべて査読有)

Y. Ijichi, T. Ohno, and S. Sakata, Copper isotopic fractionation during adsorption on

- manganese oxide: effects of pH and desorption. *Geochim. J.*, 52, 2018, e1-e6, doi: doi:10.2343/geochemj.2.0516.
- A. Yoshigoe, H. Shiwaku, T. Kobayashi, I. Shimoyama, D. Matsumura, T. Tsuji, Y. Nishihata, T. Kogure, T. Ohkochi, A. Yasui, and T. Yaita, Nanoscale spatial analysis of clay minerals containing cesium by synchrotron radiation photoemission electron microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 112, 2018, 21603, doi: 10.1063/1.5005799.
- Q. Fan, and Y. Takahashi, Employment of the generalized adsorption model for the prediction of the solid-water distribution of radiocesium in the river-estuary-ocean system. *Appl. Geochem.*, 79, 2017, 75-84, doi: 10.1016/j.apgeochem.2017.01.020.
- T. Kashiwabara, S. Kubo, M. Tanaka, R. Senda, T. Iizuka, M. Tanimizu, and Y. Takahashi, Stable isotope fractionation of tungsten during adsorption on Fe and Mn (oxyhydr) oxides. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 204, 2017, 52-67, doi: 10.1016/j.gca.2017.01.031.
- R. Nakada, M. Tanaka, M. Tanimizu, and Y. Takahashi, Aqueous speciation is likely to control the stable isotopic fractionation of cerium at varying pH. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 218, 2017, 273-290, doi: 10.1016/j.gca.2017.09.019.
- T. Nomura, A. Sakaguchi, P. Steier, R. Eigl, A. Yamakawa, T. Watanabe, K. Sasaki, T. Watanabe, R. Golser, Y. Takahashi, and H. Yamano, Reconstruction of the temporal distribution of U-236/U-238 in the Northwest Pacific Ocean using a coral core sample from the Kuroshio Current area. *Marine Chem.*, 190, 2017, 28-34, doi: 10.1016/j.marchem.2016.12.008.
- H.-B. Qin, Y. Takeichi, H. Nitani, T. Terada, and Y. Takahashi, Tellurium Distribution and Speciation in Contaminated Soils from Abandoned Mine Tailings: Comparison with Selenium. *Environ. Sci. Technol.*, 51, 2017, 6027–6035, doi: 10.1021/acs.est.7b00955.
- F. Shiraishi, Y. Hanzawa, T. Okumura, N. Tomioka, Y. Kodama, H. Suga, Y. Takahashi, and A. Kano, Cyanobacterial exopolymer properties differentiate microbial carbonate fabrics. *Sci. Rep.*, 7, 2017, 11805, doi: 10.1038/s41598-017-12303-9.
- K. Tanaka, M. Tanaka, N. Watanabe, K. Tokunaga, and Y. Takahashi, Ligand exchange adsorption and coordination structure of Pd on delta-MnO<sub>2</sub> in NaCl solution. *Chem. Geol.*, 460, 2017, 130-137, doi: 10.1016/j.chemgeo.2017.04.022.
- K. Tokunaga, and Y. Takahashi, Effective Removal of Selenite and Selenate Ions from Aqueous Solution by Barite. *Environ. Sci. Technol.*, 51, 2017, 9194–9201, doi: 10.1021/acs.est.7b01219.
- R. Nakada, M. Tanaka, M. Tanimizu, and Y. Takahashi, Aqueous speciation is likely to control the stable isotopic fractionation of cerium at varying pH. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 218, 2017, 273-290, doi: 10.1016/j.gca.2017.09.019.
- Y. Takahashi, Q. Fan, H. Suga, K. Tanaka, A. Sakaguchi, Y. Takeichi, K. Ono, K. Mase, K. Kato, and V. V. Kanivets, Comparison of solid-water partitions of radiocesium in river waters in Fukushima and Chernobyl areas. *Sci. Rep.*, 7, 2017, 12407, doi: 10.1038/s41598-017-12391-7.
- Y. Watanabe, T. Kashiwabara, J. Ishibashi, and Y. Takahashi, Different partitioning behaviors of molybdenum and tungsten in a sediment–water system under various redox conditions. *Chem. Geol.*, 471, 2017, 38-51, doi: 10.1016/j.chemgeo.2017.09.009.
- K. Fukushi, Y. Suzuki, J. Kawano, T. Ohno, M. Ogawa, T. Yaji, and Y. Takahashi, Speciation of Magnesium in monohydrocalcite: XANES, ab initio and geochemical modeling. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 213, 2017, 457-474, doi:10.1016/j.gca.2017.06.040.
- S. Higaki, Y. Kurihara, H. Yoshida, Y. Takahashi, and N. Shinohara, Discovery of non-spherical heterogeneous radiocesium-bearing particles not derived from Unit 1 of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, in residences five years after the accident. *J. Environ. Radioact.* 177, 2017, 65–70, doi: 10.1016/j.jenvrad.2017.06.006.
- H. Suga, S. Kikuchi, Y. Takeichi, C. Miyamoto, M. Miyahara, S. Mitsunobu, T. Ohigashi, K. Mase, K. Ono, and Y. Takahashi, Spatially Resolved Distribution of Iron Species around Microbe at Submicron Scale in the Natural Bacteriogenic Iron Oxides, *Microbes. Environ.*, 32, 2017, 283-287, doi: 10.1264/jsme2.ME17009.
- K. Sakata, A. Sakaguchi, Y. Yokoyama, Y. Terada, and Y. Takahashi, Lead Speciation Studies on Coarse and Fine Aerosol Particles by Bulk and Micro X-ray Absorption Fine Structure Spectroscopy. *Geochim. J.*, 51, 2017, 215-225, doi: 10.2343/geochemj.2.0456.
- H.-B. Qin, J.-M. Zhu, Y. Takahashi, Z.-Q. Lin, W.-P. Xu, D.-C. Tan, L.-R. Zheng, Selenium speciation in agricultural soils from selenosis areas using sequential extractions and X-ray absorption spectroscopy. *Environ. Pollution*, 255, 2017, 361-369, doi: 10.1016/j.envpol.2017.02.062.

- T. Maruoka, T. Kawamoto, T. Ohno, Y. Muramatsu, H. Matsuzaki, T. Matsumoto, and P. Aggarwal, Tritium and iodine-129 concentrations in precipitation at Tsukuba, Japan, after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Geochem. J.*, 51, 2017, 449-455, doi: 10.2343/geochemj.2.0423.
- T. Iizuka, T. Yamaguchi, K. Itano, Y. Hibiya, and K. Suzuki, What Hf isotopes in zircon tell us about crust–mantle evolution. *Lithos*, 274–275, 2017, 304–327, doi: 10.1016/j.lithos.2017.01.006.
- ②① K. Itano, and T. Iizuka, Unraveling the mechanism and impact of oxide production in LA-ICP-MS by comprehensive analysis of REE-Th-U phosphates. *J. Anal. At. Spectrom.*, 32, 2017, 2003–2010, doi: 10.1039/C7JA00182G.
- ②② K. Kubota, Y. Tsuchihashi, T. Kogure, K. Maeyama, F. Hattori, S. Kinoshita, S. Sakuda, H. Nagasawa, E. Yoshimura, and M. Suzuki, Structural and functional analyses of a TIMP and MMP in the ligament of *Pinctada fucata*. *J. Structural Biol.*, 199, 2017, 216-224, doi: 10.1016/j.jsb.2017.07.010.
- ②③ M. Honda, I. Shimoyama, T. Kogure, Y. Baba, S. Suzuki., and T. Yaita, Proposed cesium-free mineralization method for soil decontamination: demonstration of cesium removal from weathered biotite. *ACS Omega*, 2, 2017, 867-868, doi: 10.1021/acsomega.7b01304.
- ②④ H. Kintsu, T. Okumura, L. Negishi, S. Ifuku, T. Kogure, S. Sakuda, and M. Suzuki, Crystal defects induced by chitin and chitinolytic enzymes in the prismatic layer of *Pinctada fucata*. *Biochem. Biophys. Res. Communications*, 48, 2017, 89-95, doi: 10.1016/j.bbrc.2017.05.088.
- ②⑤ N. Kaneyasu, H. Ohashi, F. Suzuki, T. Okuda, F. Ikemori, N. Akata, and T. Kogure, Weak size dependence of resuspended radiocesium adsorbed on soil particles collected after the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioact.*, 172, 2017, 122-129, doi: 10.1016/j.jenvrad.2017.03.001.
- ②⑥ S. Kato, M. Miyazaki, S. Kikuchi, T. Kashiwabara, Y. Saito, E. Tasumi, K. Suzuki, K. Takai, L.T. Cao, A. Ohashi, and H. Imachi, Biotic manganese oxidation coupled with methane oxidation using a continuous-flow bioreactor system under marine conditions. *Water Sci. Technol.*, 76, 2017, 1781-1795, doi: 10.2166/wst.2017.365.
- ②⑦ Y. Watanabe, T. Kashiwabara, J. Ishibashi, O. Sekizawa, K. Nitta, T. Uruga, Y. Takahashi, Different distribution behaviors of molybdenum and tungsten in a sediment–water system under various redox conditions. *Chem. Geol.*, 471, 2017, 38-51, doi: 10.1016/j.chemgeo.2017.09.009.
- ②⑧ K. Tokunaga, T. Uruga, K. Nitta, Y. Terada, O. Sekizawa, S. Kawagucci, and Y. Takahashi, Application of arsenic in barite as a redox indicator for suboxic/anoxic redox condition. *Chem. Geol.*, 447, 2016, 59-69, doi: 10.1016/j.chemgeo.2016.10.016.
- ②⑨ M. Kurisu, Y. Takahashi, T. Iizuka, and M. Uematsu, Very Low Isotope Ratio of Iron in Fine Aerosols Related to Its Contribution to the Surface Ocean. *J. Geophys. Res.*, 121, 2016, 11119–11136, doi: 10.1002/2016JD024957.
- ③⑩ J. Fujimoto, K. Tanaka, N. Watanabe, and Y. Takahashi, Simultaneous recovery and separation of rare earth elements in ferromanganese nodules by using *Shewanella putrefaciens*. *Hydrometallurgy*, 166, 2016, 80–86, doi: 10.1016/j.hydromet.2016.09.005.
- ③⑪ C. Miyamoto, M. A. Marcus, K. Sakata, M. Kurisu, and Y. Takahashi, Depth-dependent calcium speciation in individual aerosol particles by combination of fluorescence yield and conversion electron yield XAFS using X-ray microbeam. *Chem. Lett.*, 45, 2016, 934–936, doi: 10.1246/cl.160392.
- ③⑫ M. Kurisu, K. Sakata, C. Miyamoto, Y. Takaku, T. Iizuka, and Y. Takahashi, Variation of iron isotope ratios in anthropogenic materials emitted through combustion processes. *Chem. Lett.*, 45, 2016, 970–972, doi: 10.1246/cl.160451.
- ③⑬ A. Sakaguchi, T. Nomura, P. Steier, R. Golser, K. Sasaki, T. Watanabe, T. Nakakuki, Y. Takahashi, and H. Yamano, Temporal and vertical distributions of anthropogenic <sup>236</sup>U in the Japan Sea using a coral core and seawater samples. *J. Geophys. Res.*, 121, 2016, doi: 10.1002/2015JC011109.
- ③⑭ H. Makita, S. Kikuchi, S. Mitsunobu, Y. Takaki, T. Yamanaka, T. Toki, T. Noguchi, K. Nakamura, M. Abe, M. Hirai, M. Yamamoto, K. Uematsu, J. Miyazaki, T. Nunoura, Y. Takahashi, and K. Takai, Comparative analysis of microbial communities in iron-dominated flocculent mats in deep sea hydrothermal environments. *Appl. Environ. Microbiol.*, 82, 2016, 5741-5755, doi: 10.1128/AEM.01151-16.
- ③⑮ S. Mitsunobu, M. Zhu, Y. Takeichi, T. Ohigashi, H. Suga, M. Jinno, H. Makita, M. Sakata, K. Ono, K. Mase, and Y. Takahashi, Direct detection of Fe(II) in extracellular polymeric substances (EPS) at the mineral-microbe interface in bacterial pyrite leaching. *Microbes. Environ.*, 31, 2016,

- 63-69, doi: 10.1264/jsme2.ME15137.
- ③⑥ Y. S. Togo, Y. Takahashi, Y. Amano, H. Matsuzaki, Y. Suzuki, Y. Terada, Y. Muramatsu, K. Ito, and T. Iwatsuki, Age and speciation of iodine in groundwater and mudstones of the Horonobe area, Hokkaido, Japan: Implications for the origin and migration of iodine during basin evolution. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 191, 2016, 165–186, doi: 10.1016/j.gca.2016.07.012.
- ③⑦ R. Nakada, Y. Takahashi, and M. Tanimizu, Cerium stable isotope ratios in ferromanganese deposits and their potential as a paleo-redox proxy. *Geochim. Cosmochim. Acta*, 181, 2016, 89-100, doi: 10.1016/j.gca.2016.02.025.
- ③⑧ S. Inoue, and T. Kogure, High-angle annular dark field scanning transmission electron microscopic (HAADF-STEM) study of Fe-rich 7Å-14Å interstratified minerals from a hydrothermal deposit. *Clay Miner*, 51, 2016, 603-613, doi: 10.1180/claymin.2016.051.4.05.
- ③⑨ T. Kogure, N. Yamaguchi, H. Segawa, H. Mukai, S. Motai, K. Hasegawa, M. Mitome, T. Hara, and T. Yaita, Constituent elements and their distribution in the radioactive Cs-bearing silicate glass microparticles released from Fukushima Nuclear Plant. *Microscopy*, 65, 2016, 451-459, doi: 10.1093/jmicro/dfw030.
- ④⑩ K. Yang, J. Kim, T. Kogure, H. Dong, H. Baik, B. Hoppie, and R. Harris, Smectite, illite, and early diagenesis in South Pacific Gyre subseafloor sediment. *Appl. Clay Sci.*, 134, 2016, 34-43, doi: 10.1016/j.clay.2016.03.041.
- ④⑪ N. Yamaguchi, M. Mitome, K. Akiyama-Hasegawa, M. Asano., K. Adachi, and T. Kogure, Internal structure of cesium-bearing radioactive microparticles released from Fukushima nuclear power plant. *Sci. Rep.*, 6, 2016, 1-6, doi: 10.1038/srep20548.
- ④⑫ K. Itano, T. Iizuka, C. Qing, J.-I. Kimura, and S. Maruyama, U–Pb chronology and geochemistry of detrital monazites from major African rivers: Constraints on the timing and nature of the Pan-African Orogeny. *Precambrian Res.*, 282, 2016, 139–156, doi:10.1016/j.precamres.2016.07.008.
- ④⑬ S. Kikuchi, H. Makita, U. Konno, F. Shiraishi, A. Ijiri, K. Takai, M. Maeda, and Y. Takahashi, Limited reduction of ferrihydrite encrusted by goethite in freshwater sediment. *Geobiology*, Online, 2016, 1-16, doi: 10.1111/gbi.12181
- ④⑭ Z. W. Zhang, G. D. Zheng, Y. Takahashi, C. Q. Wu, C. F. Zheng, and J. H. Yao, C. Y. Xiao, Extreme enrichment of rare earth elements in hard clay rocks and its potential as a resource. *Ore Geol. Rev.*, 72, 2016, 191-212, doi:10.1016/j.oregeorev.2015.07.018.
- ④⑮ Y. Moritomo, K. Yonezawa, T. Sakurai, T. Yasuda, Y. Takeichi, H. Kamioka, H. Suga, Y. Takahashi, Y. Yoshida, N. Inami, K. Mase, and K. Ono, Morphology of F8T2/PC71BM Blend Film as Investigated by Scanning Transmission X-ray Microscope (STXM). *Molecular Crystals and Liquid Crystals*, 620, 2016, 32-37, doi:10.1080/15421406.2015.1094854.
- ④⑯ Nakada, R. A. Waseda, F. Okumura, and Y. Takahashi, Impact of the decarboxylation reaction on rare earth elements binding to organic matter: From humic substances to crude oil. *Chem. Geol.*, 420, 2016, 231-239, doi:10.1016/j.chemgeo.2015.11.021.
- ④⑰ K. Fukushi, M. Sakai, T. Munemoto, Y. Yokoyama, and Y. Takahashi, Arsenate sorption on monohydrocalcite by coprecipitation during transformation to aragonite. *J. Hazardous Materials*, 304, 2016, 110-117, doi:10.1016/j.jhazmat.2015.10.019.
- ④⑱ Y. Takeichi, N. Inami, H. Suga, C. Miyamoto, T. Ueno, K. Mase, Y. Takahashi, and K. Ono, Design and performance of a compact scanning transmission X-ray microscope at the Photon Factory. *Rev. Sci. Instruments*, 87, 2016, 13704, doi: 10.1063/1.4940409.
- ④⑲ Y. Takahashi, Y. Hayasaka, K. Morita, T. Kashiwabara, R. Nakada, M. A.; Marcus, K. Kato, K. Tanaka, and H. Shmizu, Transfer of rare earth elements (REE) from manganese oxides to phosphates during early diagenesis in pelagic sediments inferred from REE patterns, X-ray absorption spectroscopy, and chemical leaching method. *Geochem. J.*, 49, 2016, 653-674, doi:10.2343/geochemj.2.0393.
- ⑤① H. Mukai, S. Motai, T. Yaita, and T. Kogure, Identification of the actual cesium-adsorbing materials in the contaminated Fukushima soil. *Appl. Clay Sci.*, 121, 2016, 188-193, doi: 10.1016/j.clay.2015.12.030.
- 51 H. Mukai, A. Hirose, S. Motai, R. Kikuchi, K. Tanoi, T. M. Nakanishi, T. Yaita, and T. Kogure, Cesium adsorption/desorption behavior of clay minerals considering actual contamination conditions in Fukushima. *Sci. Rep.*, 6, 2016, doi: 10.1038/srep21543.
- 52 Y. Watanabe, and Y. Takahashi, An experimental study of stabilization of trivalent thallium by natural organic matters. *Chem. Lett.*, 44, 2015, 1356-1358, doi:10.1246/cl.150551.

- 53 Y. Muramatsu, H. Matsuzaki, C. Toyama, and T. Ohno, Analysis of 129I in the soils of Fukushima Prefecture: Preliminary reconstruction of 131I deposition related to the accident at Fukushima Daiichi nuclear power plant. J. Environ. Radioact., 139, 2015, 344-350, doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.05.007.
- 54 R. Kikuchi, H. Mukai, C. Kuramata, and T. Kogure, Cs-sorption in weathered biotite from Fukushima granitic soil. J. Mineral. Petrological Sci., 110, 2015, 126-134, doi: 10.2465/jmps.141218.
- [学会発表](計 233 件)
- 高橋嘉夫・栗栖美菜子, エアロゾル中の様々な起源の鉄の HNLC 海域に対する寄与: 化学種および安定同位体比からの考察, JpGU-AGU Joint Meeting 2017, 2017 (招待講演)
- 高橋嘉夫, 特別シンポジウム「高輝度放射光を利用した微量元素計測の最前線」XAFSを用いた状態分析による微量元素の環境挙動解析, 第 28 回日本微量元素学会学術集会, 2017 (招待講演)
- Takahashi, Yoshio, Qiaohui Fan, Kazuya Tanaka, and Vladimir V. Kanivets, Comparison of Solid-Water Distributions of Radiocesium in River Waters between Fukushima and Chernobyl Areas, Goldschmidt2017, 2017
- 高橋嘉夫, 化学種 化学種および同位体比に基づく福島第一原発由来の放射核種の挙動解析, 2017 日本放射化学学会年会・第 63 回放射化学討論会, 2017 (招待講演)
- 高橋嘉夫・山口瑛子, イオン吸着型鉱床: 気候の影響やレアアースの特異性, 日本地質学会第 124 年学術大会 (2017 年愛媛大会), 2017 (招待講演)
- Takahashi, Yoshio, Development of Recovery and Separation Methods of Rare Earth Elements by Adsorption on Bacteria and DNA-related Materials: Importance of Identification of Binding Site using EXAFS Spectroscopy, Rare Earth 2016 in Sapporo Japan, 2016 (招待講演)
- Takahashi, Yoshio, Molecular Geochemistry as a Basis for a Systematic Understanding of Environmental Behaviors of Various Elements, Goldschmit 2016 (招待講演)
- Takahashi, Yoshio, Effect of humic substances on the migration of cesium and iodine related to Fukushima daiichi Nuclear Power Plant(FDNPP) accident revealed by applications of X-ray spectroscopies, IHSS 18, 18th International Conference of International Humic Substances Society, 2016 (招待講演)
- Takahashi, Yoshio, Migration of radionuclides in land-surface in Fukushima:

mechanisms of secondary transport, IGRS 2016 Taiwan—5th International Geo-Hazards Research Symposium, 2016 (招待講演)

Takahashi, Yoshio, Speciation and water soluble fraction of iron in aerosols from various sources, American Geophysical Union 2015 Fall Meeting, 2015 (招待講演)

[図書](計 2 件)

高橋嘉夫, 朝倉書店, 放射化学の事典, 2015, 376(分担執筆)

坂田昌弘, 磯部友彦, 梶井克純, 加藤義久, 高橋嘉夫, 田辺信介, 藤江幸一, 益永茂樹, 講談社, 環境化学, 2015, 272.

[産業財産権]

○出願状況 (計 1 件)

名称: 放射性金属イオン含有汚染水の処理方法及び不溶化処理剤

発明者: 大石徹, 高橋嘉夫, 徳永紘平

権利者: 日鉄住金セメント株式会社、国立大学法人東京大学

種類: 特願

番号: 特願 2017-111915

出願年月日: 2017 年 6 月 6 日

国内外の別: 国内

[その他]

ホームページ等

<http://www-gbs.eps.s.u-tokyo.ac.jp/~environ/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

高橋 嘉夫 (TAKAHASHI, Yoshio)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号: 10304296

(2) 研究分担者

飯塚 毅 (IIZUKA, Takeshi)

東京大学・大学院理学系研究科・准教授

研究者番号: 70614569

大野 剛 (OHNO, Tsuyoshi)

学習院大学・理学部・准教授

研究者番号: 40452007

小暮 敏博 (KOGURE, Toshihiro)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号: 50282728

遠藤 一佳 (ENDO, Kazuyoshi)

東京大学・大学院理学系研究科・教授

研究者番号: 80251411

柏原 輝彦 (KASHIWABARA, Teruhiko)

国立研究開発法人海洋研究開発機構・海底

資源研究開発センター・研究員

研究者番号: 70611515

(3) 連携研究者

特になし。

(4) 研究協力者

特になし。