

令和 4 年 6 月 15 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2021

課題番号：19H04252

研究課題名(和文) 両極アイスコアの高解像度分析による放射性ヨウ素・塩素のフォールアウト変動の解明

研究課題名(英文) High resolution analysis of fallout records of radioactive iodine and chlorine in ice core from both poles

研究代表者

松崎 浩之 (Matsuzaki, Hiroyuki)

東京大学・総合研究博物館・教授

研究者番号：60313194

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,500,000円

研究成果の概要(和文)：グリーンランドSEドームアイスコア中の塩素36の時系列プロファイル，及び南極アイスコア中のヨウ素129の時系列プロファイルを得た．先行研究で得られているグリーンランドSEドームアイスコア中のヨウ素129のプロファイルと比較し，以下のことが分かった．(1)塩素36は太平洋上で核実験が行われた1950年代にピークを示し，1970年以降の使用済み核燃料再処理工場の稼働による増加は見られなかった．(2)ヨウ素129は，グリーンランドでは再処理工場による増加が見られるのに対し，南極では見られなかった．これらの結果は，核種の環境動態研究のための「標準」構築のための重要な知見となる．

研究成果の学術的意義や社会的意義

ヨウ素の長寿命放射性同位体，ヨウ素129(半減期1570万年)と塩素の長寿命放射性同位体，塩素36(半減期30.1万年)は，主に人為起源の放射性同位体であり，大気圏内核実験や再処理工場あるいは原子力事故などから環境中に放出される．これらの核種は，様々な環境動態研究に用いられる．ヨウ素129は地殻内物質移動や生物地球化学的循環のトレーサーとして利用される．また，塩素36は地下水の年代マーカーとして有用な核種である．本研究の成果は，ヨウ素129及び塩素36の大気フォールアウトの過去数十年間にわたる記録の復元を与えるものであり，これらの核種を利用する応用研究により高い精度を付与するものとなる．

研究成果の概要(英文)：Time course profiles of Chlorine-36 in Greenland SE dome ice core and Iodine-129 in Antarctic ice core were obtained and compared with Iodine-129 profile of Greenland. A prominent peak was observed in 1950's in the Chlorine-36 profile corresponding to the atmospheric weapons testing conducted on the marine environment. The bomb testing peaks were observed both in the Iodine-129 profiles of Greenland and Antarctic, however an enhancement due to the operation of spent-nuclear fuel reprocessing was observed only in the Greenland but Antarctic. These knowledges are significant for the construction of standards time course profiles of the anthropogenic Chlorine-36 and Iodine-129.

研究分野：加速器質量分析，同位体地球化学

キーワード：ヨウ素129 塩素36 加速器質量分析 アイスコア 大気圏核実験 核燃料再処理

様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

ヨウ素の長寿命放射性同位体であるヨウ素 129 (半減期 1570 万年) と塩素の長寿命放射性同位体である塩素 36 (半減期 30.1 万年) は、主に人為起源の放射性同位体であり、大気圏内核実験や再処理工場あるいは原子力事故などから環境中に放出される。これらの核種は、近年様々な環境動態研究に用いられるようになってきた。ヨウ素 129 は地殻内物質移動や生物地球化学的循環のトレーサーとして利用される [1]。また、塩素 36 は地下水の年代マーカーとして有用な核種である [2], [3]。こうした研究に、より高い精度を付与するためには、これらの核種の大気フールアウトを過去数十年間に遡って復元することが重要であるが、過去の時系列記録を保持する天然試料の問題、及びその中に記録されている微量なヨウ素 129 と塩素 36 を検出するための技術的問題の 2 点が課題としてあげられた。

2. 研究の目的

前節で述べた課題に対して、本研究では、両極 (北極と南極) の氷床コア (アイスコア) に着目した。アイスコアは、放射性核種の優れた時系列記録のアーカイブである。しかも、両極を比較することによって、これらの核種のグローバルな分布の特徴を調べることができる。また、本研究では、ヨウ素 129、塩素 36 の高感度な測定手法である、加速器質量分析を利用することによって、検出のための技術的問題をクリアできると考えた。以上を基に、本研究の目的は、

- 1) グリーンランドアイスコアの高解像度分析により、1955 年以降の塩素 36 の大気フールアウト時系列記録を得る。ヨウ素 129 の記録 (申請者らによる先行研究) と比較する。
- 2) 南極アイスコアの高解像度分析により、1940 年以降のヨウ素 129 の大気フールアウト時系列記録を得る。南極アイスコア中のヨウ素 129 の時系列データは、もし成功すれば世界初となる。グリーンランドのヨウ素 129 の記録と比較する。
- 3) 双方の記録間の比較や、堆積物等の他のアーカイブからの記録との比較より、ヨウ素 129 と塩素 36 の長期環境動態研究への「標準」を提示する。とした。

3. 研究の方法

グリーンランドアイスコアに関しては、南東部の北緯 67.18 度・西経 36.37 度 (標高 3170m) にて 2015 年に掘削された SE-Dome アイスコアを分析に用いた。このコアは、涵養量が極めて大きい ( $1.01 \pm 0.22 \text{ m yr}^{-1}$ ) にもかかわらず、夏季にも融解層が認められず、年間を通じた降雪層とその保存が確認されている [4] [5]。申請者らは、既に 1955~1975 年の 20 年を対象に約半年の時間解像度でヨウ素 129 の分析を行った実績があり [6]、本研究では、主として塩素 36 を分析した。南極アイスコアについては、2013 年に東南極沿岸部の H15 地点 (南緯 69.07 度、東経 40.75 度、標高 1030m) にて掘削された長さ 30m のアイスコア (以後、2013H15 アイスコア) を分析に用いた。このコアでは、水同位体とイオンの季節変化に基づいて年層が認定されており、硫酸イオンスパイクに基づく火山イベント対比により年代モデルがクロスチェックされている (本山ほか、未公表)。その結果に基づく、2013H15 アイスコアは 1940~2012 年を網羅し、年平均涵養量は約 30 cm である。このコアからヨウ素 129 の時系列記録を得た。

実験方法を図 1. にまとめる。

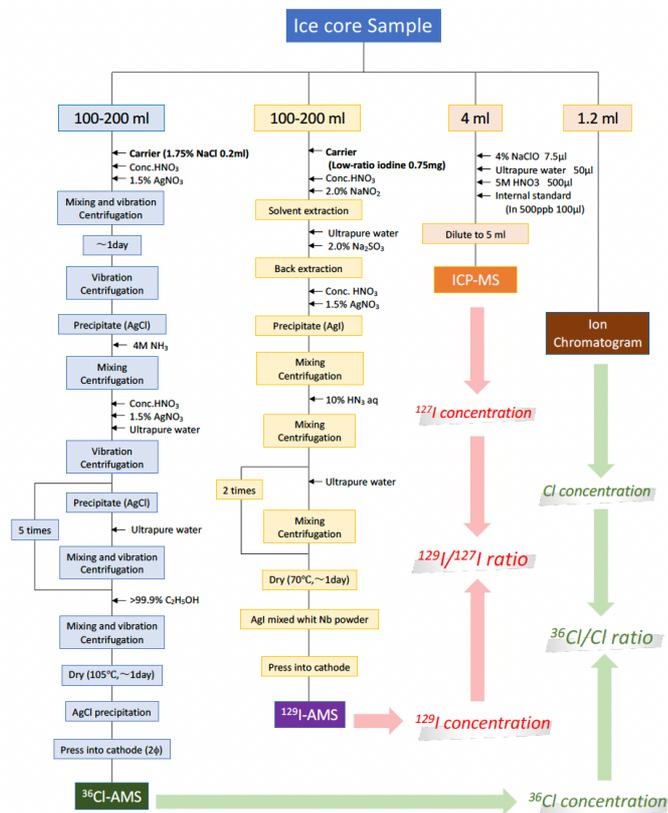


図 1. 実験方法

#### 4. 研究成果

##### (1) グリーンランドアイスコアにおける塩素 36 の記録, ヨウ素 129 との比較

グリーンランド SE ドームアイスコアの塩素 36 の分析結果を図 2. に示す. 図 2. では, ヨウ素 129 の結果と比較している. まず, 両核種でピーク位置が明確に異なる. ヨウ素 129 は核分裂核種であるため, 大気圏核実験においては, 必ず生成される. そのため, グリーンランドと地理的に近い核実験が行われた 1962 年近傍に明確なピークが見られる. 一方塩素 36 は中性子放射化核種であるため, 標的となる塩素 35 が大量に存在する海洋環境で行われた核実験で主に生成される. 1950 年代によく行われた太平洋上での核実験に生成した塩素 36 がグリーンランドにおいてピークを形成したものと考えられる. また, 1970 年代以降は, 使用済み核燃料再処理工場の稼働の影響で, ヨウ素 129 は増大しているのに比して, 塩素 36 ではそのような増加が見られない. この点も両核種の生成メカニズムを反映したものとなっている.

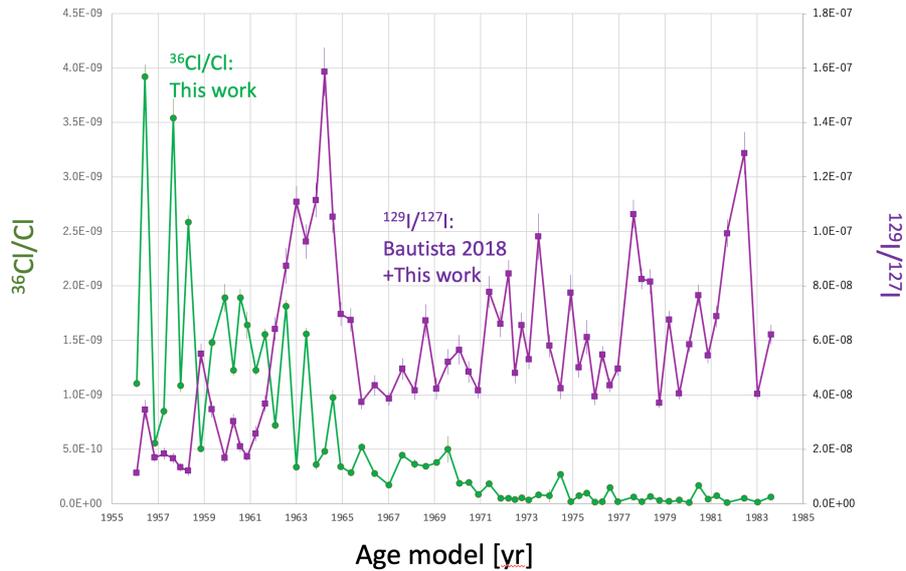


図 2. グリーンランド SE ドームアイスコアにおける塩素 36 の時系列プロファイル (同位体比, ヨウ素 129 のプロファイルとの比較)

##### (2) 南極アイスコアにおけるヨウ素 129 の記録, グリーンランドとの比較

南極アイスコアから, ヨウ素 129 の時系列記録を世界で初めて得た. 結果をグリーンランドの記録と比較する形で図 3. に示す. 南極アイスコアにおいては, ヨウ素 129 濃度自体が極めて小さかったため, グリーンランドに比べると時間分解能は悪くなっている. 図 3. ではグリーンラン

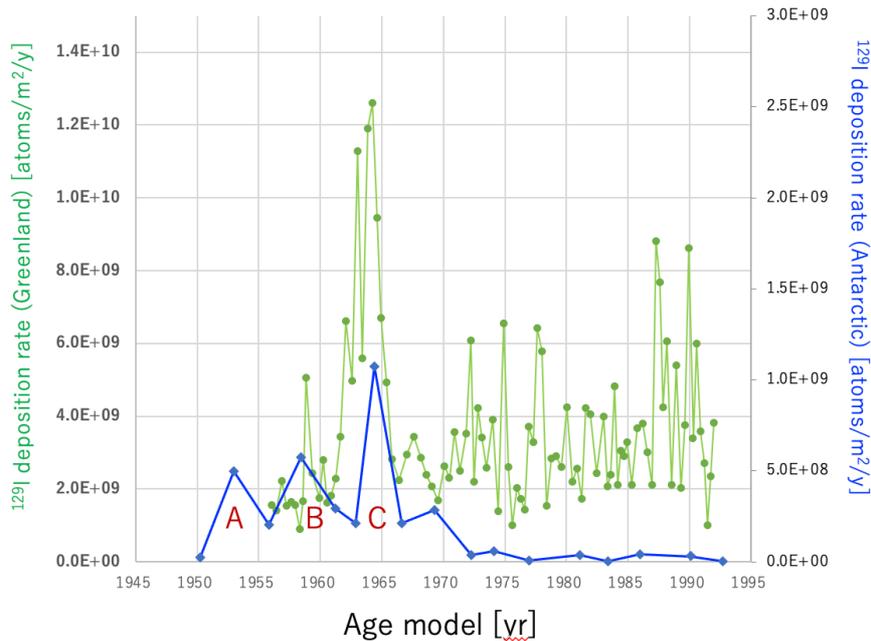


図 3. 南極アイスコアにおけるヨウ素 129 の時系列プロファイル (フラックス, グリーンランドとの比較)

ド及び南極のヨウ素 129 の大気からの沈積フラックスの形で比較しているが、軸のスケールが異なっており、実際には南極はグリーンランドのおよそ 1/10 であった。南極のヨウ素 129 の時系列プロファイルの特徴の 1 つは、1954 年、1958 年、1962 年を中心に行われた大規模な大気圏核実験に対応する 3 つのピークが明確に現れていることである。もう 1 つの特徴は、1970 年代以降の使用済み核燃料再処理工場の影響が見られないことであり、グリーンランドのプロファイルと対照的である。これは、再処理工場から大気への放出は対流圏であることも遠隔地へ到達しないことが理由として挙げられる。

(3) ヨウ素 129 と塩素 36 の長期環境動態研究への「標準」の提示について

本研究の第 3 の目的として挙げた「標準」の提示については、未達と言わざると得ない。然しながら、ヨウ素 129 と塩素 36 の時系列記録の特徴、特に生成源と地理的要因についての重要な知見が多数得られた。今後さらにデータを蓄積することによって、「標準」の提示が可能となることが明らかとなった。

#### <引用文献>

[1] Y. Muramatsu, S. Yoshida, U. Fehn, S. Amachi, Y. Ohmomo (2004) Studies with natural and anthropogenic iodine isotopes: iodine distribution and cycling in the global environment, *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 74, 221-232. doi.org/10.1016/j.jenvrad.2004.01.011.

[2] Y. Mahara, M.A.Habermehl, T.Hasegawa K.Nakata, T.R.Ransley, T.Hatano, Y.Mizuochi, H.Kobayashi, A.Ninomiya, B.R.Senior, H.Yasuda, T.Ohta (2009) Groundwater dating by estimation of groundwater flow velocity and dissolved  $^4\text{He}$  accumulation rate calibrated by  $^{36}\text{Cl}$  in the Great Artesian Basin, Australia, *Earth and Planetary Science Letters*, Vol. 287, 43-56. doi.org/10.1016/j.epsl.2009.07.034.

[3] Y. Tosaki, N. Tase, K. Sasa, T. Takahashi, Y. Nagashima (2011) Estimation of Groundwater Residence Time Using the  $^{36}\text{Cl}$  Bomb Pulse, *Groundwater*, Vol. 49, 891-902. doi.org/10.1111/j.1745-6584.2010.00795.x.

[4] R. Furukawa, R. Uemura, K. Fujita, J. Sjolte, K. Yaoshimura, S. Matoba, Y. Iizuka (2017) Seasonal-Scale Dating of a Shallow Ice Core From Greenland Using Oxygen Isotope Matching Between Data and Simulation, Vol. 122, 10873-10887. doi.org/10.1002/2017JD026716.

[5] Y. Iizuka, R. Uemura, K. Fujita, S. Hattori, O. Seki, C. Miyamoto, T. Suzuki, N. Yoshida, H. Motoyama, S. Matoba (2017) A 60 Year Record of Atmospheric Aerosol Depositions Preserved in a High-Accumulation Dome Ice Core, Southeast Greenland, *JGR Atmospheres*, Vol. 123, 574-589. doi.org/10.1002/2017JD026733.

[6] A.T. Bautista VII, Y. Miyake, H. Matsuzaki, Y. Iizuka, K. Horiuchi (2018) High-resolution  $^{129}\text{I}$  bomb peak profile in an ice core from SE-Dome site, Greenland, *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 184-185, 14-21. doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.12.015.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 1件 / うち国際学会 4件）

1. 発表者名 松崎浩之, 戸谷美和子, 堀内一穂, 飯塚芳徳
2. 発表標題 グリーンランドSEドームアイスコア中の塩素36の分析
3. 学会等名 第68回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H. Matsuzaki, M. Toya, K. Horiuchi, Y. Iizuka, A.T. Bautisuta, L. Wang, W. Xiao
2. 発表標題 CI-36 records in Greenland SE dome ice core
3. 学会等名 ENVIRA 2019 (Prague) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 M. Toya, H. Matsuzaki, K. Horiuchi, Y. Iizuka, A.T. Bautista, L. Wang, W. Xiao
2. 発表標題 Halogen isotopes analysis in Greenland SE dome ice core
3. 学会等名 The 8th East-Asia AMS symposium Inagoya) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 H. Matsuzaki
2. 発表標題 Geochemistry of Anthropocene: Novel application field of AMS
3. 学会等名 Technical Meeting on Developments in Non-Radiocarbon Accelerator Mass Spectrometry Techniques and Relevant Applications (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 H. Matsuzaki, M. Toya, K. Horiuchi, Y. Iizuka
2. 発表標題 Time course profile of Chlorine-36 in Greenland SE dome ice core
3. 学会等名 15th International Conference on Accelerator Mass Spectrometry (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 松崎浩之, 花澤庄潤哉, 戸谷美和子, 堀内一穂, 本山秀明
2. 発表標題 南極氷床アイスコア中の人為起源ヨウ素129の分析
3. 学会等名 第69回応用物理学会春季学術講演会
4. 発表年 2022年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

#### 6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	堀内 一穂  (Horiuchi Kazuho)  (00344614)	弘前大学・理工学研究科・准教授   (11101)	
研究分担者	本山 秀明  (Motoyama Hideaki)  (20210099)	国立極地研究所・研究教育系・教授   (62611)	
研究分担者	笹 公和  (Sasa Kimikazu)  (20312796)	筑波大学・数理物質系・准教授   (12102)	

#### 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------