

機関番号：15401  
 研究種目：研究活動スタート支援  
 研究期間：2009～2010  
 課題番号：21810018  
 研究課題名(和文) 環境ウラン研究の新展開：U-236 グローバルフォールアウトと日本海物質循環解明  
 研究課題名(英文)： Distribution of  $^{236}\text{U}$  in Japan Sea: Feasibility of  $^{236}\text{U}$  as a tracer of water masses in ocean  
 研究代表者  
 坂口 綾 (SAKAGUCHI AYA)  
 広島大学・大学院理学研究科・助教  
 研究者番号：00526254

## 研究成果の概要 (和文)：

本研究により、核関連施設周辺のみならず世界中がすでに大気圏内核実験由来のグローバルフォールアウト(GF)U-236により汚染されている事が明らかになった。さらに、このU-236の降水量や環境中での挙動を他の人工放射性核種(Cs-137 や Pu-239,240)も併せて定量的に明らかにした。また、ここで見積もった放射能組成や降水量を用いて、ミニチュアオーシャンとして注目されている日本海の海水・物質循環を時空間的に明らかにするためのツールとして用いる試みを行った。

## 研究成果の概要 (英文)：

We found that the surface environment have been already contaminated with U-236 as a global fallout. The global fallout U-236 level and behavior in soil was analyzed from measurements of U-236, Pu-239,240 and Cs-137 in natural environment surface soils which are solely influenced by global fallout. Furthermore, the application of global fallout U-236 together with other artificial nuclide to the water and material circulation in the "miniature ocean", the Japan sea, have been attempted.

## 交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,050,000	315,000	1,365,000
2010 年度	1,050,000	315,000	1,365,000
年度			
年度			
年度			
総計	2,100,000	630,000	2,730,000

## 研究分野：核地球科学

科研費の分科・細目：環境動態解析

キーワード：ウラン、人工放射性核種、核実験、グローバルフォールアウト、日本海、加速器質量分析、海水循環、物質循環

## 1. 研究開始当初の背景

日本海は、環境変動に敏感であり、外洋で見られる様々な地球規模での海洋現象が存在していることから“ミニチュアオーシャン”として、海洋研究のための格好の実験場を提供している。近年このミニチュアオーシャンにおいて、急激な水温の上昇や固有水中の溶存酸素量低下(鉛直対流の停滞)が報告されて

おり、全球的な近未来の環境変化を暗示している可能性があるとして危惧されている。また、日本海への放射性廃棄物も含めた有害物質の不法投棄や汚染物質の流入など、その影響評価と対策が緊急の課題となっている。海洋環境への影響を評価し、対策を講じるにはそのシステムや変化を正確に把握してメカニズムを解明することが重要であるが、政治

的背景などによる海水試料採取の困難さ、循環の複雑さなどから日本海における表層・低層水の循環・形成機構は未だ十分な理解には至っていない。

そこで今回着目したのが人工放射性核種 $^{236}\text{U}$ (半減期 $2.3 \times 10^7$ 年)である。

加速器技術の進歩により、欧米では天然 $^{236}\text{U}$ の測定やそのトレーサー利用の試みがされつつある。 $\text{U-236}$ は $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239,240}\text{Pu}$ などとともにグローバルフォールアウト(大気圏内核実験由来全球降下)によって海洋にもたらされ、海水中では保存性(溶存性)物質として存在すると考えられる。そのため、海水中でのこれら人工放射性核種の分布や核種組成は水塊・懸濁物質の有用なトレーサーとなる。さらに様々な半減期をもつ海水保存性・非保存性(溶存性、粒子吸着性)の放射性核種も併せて測定・解析することで水塊の起源、混合、循環および粒子の挙動や除去機構について時間軸を入れての詳細な解明が可能となる。

## 2. 研究の目的

本研究では、これまで汚染物質または地球科学的ツールとして一般的に認識されてきた“環境中のU同位体U-234, 235, 238”に、近年の測定技術開発に伴い注目されているU-236を、新規に“環境中のU同位体”の一つに加え、新たな知見からの地球環境科学的研究を行うことを最終的な目的とする。その目的達成のための課題として、海洋も含めた地球表層に存在するU-236の主起源であると考えられる“グローバルフォールアウト”核種を、U-236と他の代表的な人工放射性核種(Cs-137, Pu同位体)も併せて定量的に地球表層への供給量・導入量を評価する。また、U-236も含めたグローバルフォールアウト由来の放射性核種を、地球科学研究に適用する最初の例として、上記の結果を元にU-236と他の放射性核種も含めた総合的な時・空間的解析から、日本海における詳細な物質・海水循環の解明を目指す。

## 3. 研究の方法

日本海における $^{236}\text{U}$ を利用した海水・物質循環の三次元的解明を本研究の目的として、期間内に以下のことを行うこととした。

### ① 表層土壌中グローバルフォールアウト核種分析

非核汚染未かく乱地の表層土壌コア試料中Pu同位体、 $^{236}\text{U}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 深度分布および放射能比の詳細な測定・解析することで、さまざまな土壌組成や環境下にあったこれら放射性核種の土壌中での挙動を、時間軸を入れて明らかにする。特にUに関しては、これまで、土壌中の天然U同位体(U-238, 235, 234)に妨害されその挙動を詳細に解析するのは非常に困難であった。しかし、現在表層環境中で測定しうる $^{236}\text{U}$ はグローバルフォールアウト由来であり、その起源も系(表層土壌)への導入時期(1963年)も明らかである。実験室系ではなく、人間が生活する環境における様々な状況(地域、土壌組成等)でのナチュラルアナログ研究として、これら放射性核種の挙動

を明らかにする。

### ・試料採取/分析

これまで使用してきたコアサンプラー(直径4.8 cm 深度30 cm)を用いてFig. 1に示す地点から表層土壌試料採取を行う。試料はそれぞれ、0-10, 10-20, 20-30 cmごとに風乾し核種分析のための前処理を行う。Cs-137, Pu同位体, U同位体をそれぞれ適した方法で精製・濃縮し、Ge半導体検出器、ICP-MS・MC-ICP-MS(誘導結合プラズマ質量分析計)およびAMS(加速器質量分析計)にて定量する。

### ② グローバルフォールアウト核種インベントリー・降下量試算

上記①から得た情報から、 $^{236}\text{U}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ やPu同位体のインベントリー(蓄積量)を見積もる。これにより、グローバルフォールアウトとし



Fig. 1 Sampling points of surface soil sample from Japan.

て地表(海洋)にもたらされた放射性核種組成(インベントリー比)の情報を得る。すでに国内外から表層土壌コアを採取しつつあるが、今回は国内において徹底的に行い信頼性の高い情報を得る。

### ③ 海水中グローバルフォールアウト核種の分布

過去の調査航海で採取された海水試料および研究機関内に採取する試料中(海水、浮遊懸濁物質、堆積物)のU同位体(U-238, 236, 235, 234)、Pu同位体(Pu-240, 239, 238)、Cs-137濃度を測定する。これら核種は化学的性質・挙動、物理半減期が異なり、放射能(原子)比、蓄積量の水平・鉛直分布を明らかにすることで、今後の物質循環解明に有用な知見を与える。

### ・試料採取/分析

Fig. 2に示した赤丸地点にて、7-12深度からニスキンボトルにより10-20 L海水試料を採取する。採取後はただちにろ過し浮遊懸濁物質と分ける。また、黄色丸地点では海底堆積物も採取する。堆積物試料は表層から1 cmごとにカットし、乾燥・前処理を行う。Cs-137, Pu同位体, U同位体をそれぞれ適した方法で精製・濃縮し、Ge半導体検出器、ICP-MS・MC-ICP-MS(誘導結合プラズマ質量分析計)およびAMS(加速器質量分析計)にて定量する。

最終的に、主として②、③により日本海の

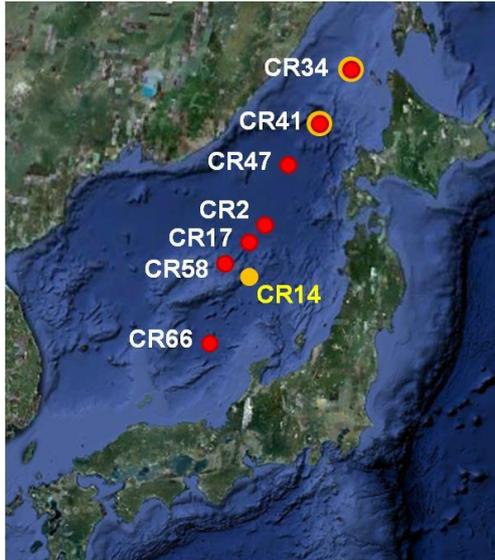


Fig. 2 Sampling points of sea-water, suspended solid and sediments in the Japan Sea.

三次元的な物質循環を総括的に議論する。

#### 4. 研究成果

##### ①②の研究成果 表層土壌中グローバルフォールアウト核種の挙動、インベントリー見積もり

Cs-137, Pu-239+240 および U-236 の代表的な表層土壌中深度分布を Fig. 3 に示す。Cs-137, Pu-239+240, U-236 とともに最表層でも最も濃度が高く、深度と共に指数関数的に減少する傾向が見られた。未攪乱地では、全国いずれの地域においても同様な深度分布が得られた。これら核種の蓄積量は、採取場所により異なり Cs-137, Pu-239, U-236 はそれぞれ  $1000-7000$ ,  $30-150 \text{ Bq/m}^2$ ,  $(5-30) \times 10^{12} \text{ atom/m}^2$  であった。これは、地域による降水量の差を反映しており、平均すると日本国内における Cs-137, Pu-239, U-236 インベントリーはそれぞれ約  $4000$ ,  $80 \text{ Bq/m}^2$ ,  $17 \times 10^{12} \text{ atom/m}^2$  であった。これら核種の比  $^{239}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}=0.013 \pm 0.002$  (A.R.)、 $^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}=(4.33 \pm 1.21) \times 10^9 \text{ atom/Bq}$ 、

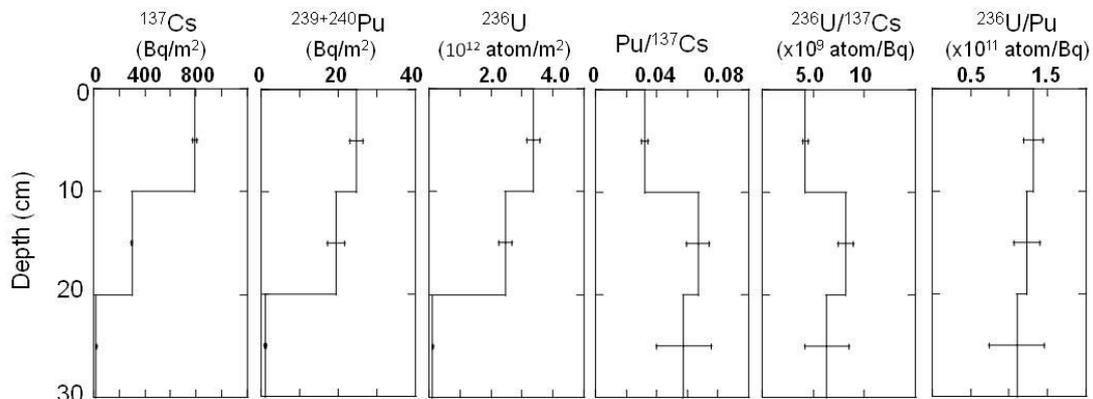


Fig. 3 Depth profiles of global fallout nuclides, Cs-137, Pu-239, U-236 inventories and their ratios in soil core sample.

$^{236}\text{U}/^{239}\text{Pu}=(3.17 \pm 0.10) \times 10^{11} \text{ atom/Bq}$  は試料採取地点に関わらずほぼ一定であり、グローバルフォールアウト核種組成を代表する値であると言える。このように、本研究により U-236 も含めたグローバルフォールアウト核種組成が明らかになった。

##### ③の研究成果 日本海での U-236 測定と分布

2010 年夏に行われた白鳳丸航海 (KH10-02) で採取した 77 の海水試料すべてにおいて U-236 が精度よく測定できた。海水中 U-236 の代表的な深度分布を Fig. 4 に示す。海水中の U-236 濃度は

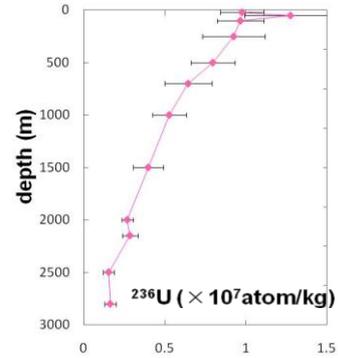


Fig. 4 The representative depth profile for U-236 in the water from Japan Sea, sampling point CR58.

は  $(1.27-0.16) \times 10^7 \text{ Bq/kg}$  の範囲であり、図から明らかのように、表層で濃度が高く深度が深くなるにつれ指数関数的に低くなっている。この深度分布は、保存性(溶存性)核種である Cs-137 と同様であり、U-236 も大気からグローバルフォールアウト核種として海水表層に供給された後、海水中では保存性核種として挙動すると言える。実際に浮遊懸濁物質中の U-236 は検出限界以下、また、検出された深度においても溶存性分と比較して無視できるほど低濃度であった。水柱に存在する U-236 インベントリーは  $(6-16) \times 10^{12} \text{ atom/m}^2$  であり、先に示したグローバルフォールアウトインベントリーと同様な値であった。また、Cs-137 との比は  $(9.82 \pm 0.71) \times 10^9 \text{ atom/Bq}$  を示し、これも土壌から得られたグローバルフォールアウト核種組成とほぼ同様な値であった。このことから、日本海に存在する U-236 および Cs-137 は主としてグローバルフォールアウト起源であることが明らかになった。

このように、U-236 は起源および存在状態が明らかな海洋トレーサーとしての利用可能性が示唆された。今後、次の段階として三次元的にこれらデータを解析し、日本海での物質循環について詳細な時間軸を入れて知見を得る予定である。また、深度により U-236/Cs-137 比に変動が見いだされたことや、堆積物中 U-236 インベントリーは水柱インベントリーの約 1/1000 と非常に少量であるものの、堆積物中から U-236 が検出されたことから、今後さらにこれら核種の挙動について明らかにしていく必要がある。現在、数深度の Pu 同位体分析の結果がすでに得られているが、20 L と Pu 同位体分析には極めて少量の海水中および浮遊懸濁物質から検出されており、今後の結果に非常に期待が持てる。

#### 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 12 件) 全て査読あり  
プロシーディングスは除く

- 1) K. Tanaka, S. Ohde, A. Sakaguchi, CW. McLeod, AG. Cox, Pb/Ca in Thailand coral determined by LA-ICPMS: Anthropogenic Pb input of river run-off into a coral reef from urbanised areas, Water, Air, and Soil Pollution. (in press)
- 2) A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, T. Imanaka, M. Hoshi, S. Endo, K. Zhumadilov, M. Yamamoto, Feasibility of using  $^{236}\text{U}$  to reconstruct close-in fallout deposition from the Hiroshima Atomic Bomb, Science of the Total Environment, 408, 5392-5398, 2010.
- 3) T. Imanaka, M. Yamamoto, K. Kawai, A. Sakaguchi, M. Hoshi M, N. Chaizhunusova, K. Apsalikov, Reconstruction of local fallout composition and gamma-ray exposure in a village contaminated by the first USSR nuclear test in the Semipalatinsk nuclear test site in Kazakhstan. Radiation and Environment Biophysics, 49, 673-684, 2010.
- 4) M. Yamamoto, J. Tomita, A. Sakaguchi, Y. Ohtsuka, M. Hoshi, K. N Apsalikov, Uranium isotopes in well water samples as drinking sources in some settlements around the Semipalatinsk Nuclear Test Site, Kazakhstan, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 284, 309-314, 2010.
- 5) J. Tomita, H. Satake, T. Fukuyama, K. Sasaki, A. Sakaguchi, M. Yamamoto, Radium geochemistry in Na-Cl type groundwater in Niigata Prefecture, Japan. Journal of Environmental Radioactivity, 101, 201-210, 2010.
- 6) W.H. Nahm, G.H. Lee, D.Y. Yang, J.Y. Kim, K. Kashiwaya, M. Yamamoto, A. Sakaguchi, A 60-year record of rainfall from the sediments of Jinheung Pond, Jeongeup, Korea, Journal of Paleolimnology. 43, 489-498, 2010.
- 7) K. Kashiwaya, S. Ochiai, G. Sumino, T. Tsukamoto, A. Szyniszewska, M. Yamamoto, A. Sakaguchi, N. Hasebe, H. Sakai, T. Watanabe, T. Kawai, Climato-hydrological fluctuations printed in long lacustrine records in Lake Hövsgöl, Mongolia, Quaternary International. 219, 178-187, 2010.
- 8) M. Yamamoto, A. Sakaguchi, H. Kofuji, Uranium in acidic mine drainage at the Former Ogoya Mine in Ishikawa Prefecture of Japan, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry. 283, 699-705, 2010.
- 9) A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier et al. First results on  $^{236}\text{U}$  levels in global fallout. Science of the Total Environment. 407, 4238-4242, 2009.
- 10) A. Sakaguchi, M. Yamamoto, J. Tomita et al. Uranium-series chronology for sediments of Lake Hovsgol, Mongolia, and the 1-Ma records of Uranium and Thorium isotopes from the HDP-04 drill core. Quaternary International. 205, 65-73, 2009.
- 11) Hovsgol Drilling Project Members, Sedimentary record from Lake Hovsgol, NW Mongolia: Results from the HDP-04 and HDP-06 drill cores, Quaternary International. 205, 21-37, 2009.
- 12) M. Yamamoto, A. Sakaguchi, J. Tomita, T. Imanaka, K. Shiraishi, Measurements of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  in total diet samples: Estimate of dietary intakes of  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Pb}$  for Japanese, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 279, 93-103, 2009.

[学会発表] (計 4 件)

発表のうち、筆頭著者の場合のみを以下に記載する

- 1) A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, H. Chiga, M. Hoshi, K. Shizuma, M. Yamamoto, Feasibility using  $^{236}\text{U}$  to reconstruct close-in fallout deposition from the Hiroshima Atomic Bomb, AMS-12, 2011, Wellington, NZ. 2011/3/20-2011/3/25.
- 2) A. Sakaguchi, H. Chiga, K. Shizuma, P. Steier, M. Hoshi, S. Endo, K. Zhumadilov, M. Yamamoto, Results on  $^{236}\text{U}$  and other artificial radionuclide level in soil from Hiroshima. Application for Hiroshima Black-Rain issue. Workshop on Dosimetry Studies of Hiroshima Black Rain and Related Studies, Hiroshima, Japan. 2011/1/13.
- 3) 坂口綾、山本政儀、門倉彰伸、吉田圭祐、Peter Steier グローバルフォーラムアウト U-236 と日本海物質循環解明 2010, 日本放射化学会年会、大阪 2010/9/27-2010/9/29.
- 4) 坂口綾、山本政儀、廣瀬勝己、環日本地域における  $^{210}\text{Pb}$  と  $^7\text{Be}$  の時空間的変動、

日本地球化学会、熊谷 2010/9/7-9/9.

〔図書〕(計4件)

- 1) K. Mino, **A. Sakaguchi**, S. Krivonogov et al., Uranium and Thorium Records in the Holocene High-resolution Sediments from Borsog Bay in Lake Hovsgol, Mongolia, Proceedings of International Workshop On Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences, ISBN 978-4-924861-23-7, 129-137, 2010.
- 2) K. Kawai, K. Mino, T. Imanaka, M. Hoshi, K. N. Apsalikov, M. Yamamoto, **A. Sakaguchi**, Radionuclide Contamination of the Settlements where the Semipalatinsk Historical Cohort resided: Laying Stress on Sarzhal and Karaul Settlements in the Southern Area, Proceedings of International Workshop On Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences, ISBN 978-4-924861-23-7, 138-145, 2010.
- 3) **A. Sakaguchi**, K. Kawai, P. Steier, J. Tomita, M. Hoshi, M. Yamamoto, FIRST RESULTS ON <sup>236</sup>U LEVEL IN SOILS FROM GLOBAL FALLOUT-APPLICATION FOR ENVIRONMENTAL DYNAMICS-, Proceedings of International Workshop On Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences, ISBN 978-4-924861-23-7, 81-87, 2010.
- 4) **坂口 綾**、山本政儀, デジタルブック最新第四紀学 (ISBN978-4-9904-6751-7), 2009, 日本第四紀学

〔その他〕

ホームページ等

- 1) <http://home.hiroshima-u.ac.jp/ayaskgc/>
- 2) [http://www.hiroshima-u.ac.jp/top/koho\\_press/hito\\_tsushin/sci/s/](http://www.hiroshima-u.ac.jp/top/koho_press/hito_tsushin/sci/s/)
- 3) [http://www.hiroshima-u.ac.jp/sci/kiseki/geol/p\\_foj9zm.html](http://www.hiroshima-u.ac.jp/sci/kiseki/geol/p_foj9zm.html)

6. 研究組織

(1)研究代表者

坂口 綾 (SAKAGUCHI AYA)

広島大学・大学院理学研究科・助教

研究者番号：00526254

(2)研究分担者

なし

(3)連携研究者

なし