

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 9 日現在

機関番号：15401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2011～2013

課題番号：23710008

研究課題名(和文)天然・人工放射性核種をマルチトレーサーとした日本海固有水・物質循環解明

研究課題名(英文) Study on material/seawater circulation in the Japan Sea using environmental radionuclides

研究代表者

坂口 綾 (Sakaguchi, Aya)

広島大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：00526254

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,500,000円、(間接経費) 1,050,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、日本海およびその周辺で採取した試料中の、人工放射性核種 ^{236}U を精度よく分析することができた。それら結果から、長半減期の ^{236}U はこれまで海水循環を明らかにするためのトレーサーとして利用されてきた短半減期の ^{137}Cs に代わり、新たなトレーサーとして利用できることを証明した。また、日本海北部の深層水で明らかな ^{236}U の濃度上昇が確認され、 ^{236}U 濃度の高い表層水が何らかのプロセスで沈み込み、北部日本海の底水で観察されたと考えられる。

研究成果の概要(英文)：We analysed ^{236}U concentration and distribution as well as its chemical state in samples obtained from the Sea of Japan and its surroundings to establish ^{236}U as new oceanographic tracer. ^{236}U concentration in all samples were determined with high precision, which made clear that much smaller samples are sufficient. Our results show that the main source of ^{236}U in the Sea of Japan is direct inflow through Tsushima-strait and that ^{236}U stays in dissolved form in the water column. The depth profile of ^{236}U as well as the diffusion coefficient were found to be similar to the ones of ^{137}Cs , which was widely used as an oceanographic tracer isotope in former research. This suggests that the long-lived anthropogenic radionuclide ^{236}U has a huge potential to replace the short-lived ^{137}Cs as oceanographic tracer. Furthermore, the distributions of ^{236}U suggested a possibility of deep-water formation with the subduction of surface water.

研究分野：環境学

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：ウラン同位体 海水循環 人工放射性核種 日本海 トレーサー セシウム

1. 研究開始当初の背景

日本海は閉鎖性の強い、太平洋の代表的な縁辺海である。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凝縮していることから“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(深層)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・有害化学物質の不法投棄や生活・工業排水の流入など、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循環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、さらには物理量や主要元素濃度の測定精度の限界などから日本海における深層水の循環・形成機構は未だ十分な理解には至っていない。

2. 研究の目的

本研究では、近年の急激な水温上昇や深層水中の溶存酸素量低下、越境海洋汚染が懸念されているミニチュアオーシャン日本海において、海洋中の人口放射性核種分布の総合的な時・空間的解析から日本海における詳細な物質・海水循環の解明を最終的に目指す。特に、人工放射性核種として1950年代から60年代に地球表層に供給された可能性のある ^{236}U (ウラン-236)を“環境中のU同位体”の一つに加え、起源や導入年代そして環境中での存在状態をきちんと把握した上でトレーサーとして確立するとともに、実際に日本海で適用することで、日本海固有(深層)水形成過程や循環に関する新たな知見を得る。

3. 研究の方法

本研究は、大きく分けて以下の3つの研究から成る。

日本海への ^{236}U 導入量・導入年代解析

日本海への表層海水流入海峡に位置する壱岐島において、サンゴを採取し(図1) U同位体を年輪毎に分析・測定する。降水物および北赤道海流の分岐である対馬海流として直接流入した ^{236}U の表層海水濃度および導入年代(変遷)を高時間分解能で明らかにする。最終的には、今後のモデリングにおけるインプットパラメータとする。

トレーサーとしての利用可能性検討

採取した海水・浮遊懸濁物質・堆積物などの海洋試料中の ^{236}U および ^{238}U の精密測定からするとともに、これまで海洋トレーサーとして利用されてきた ^{137}Cs 濃度や蓄積量の水平・鉛直分布と比較する。

日本海深層水(固有水)循環に関する考察

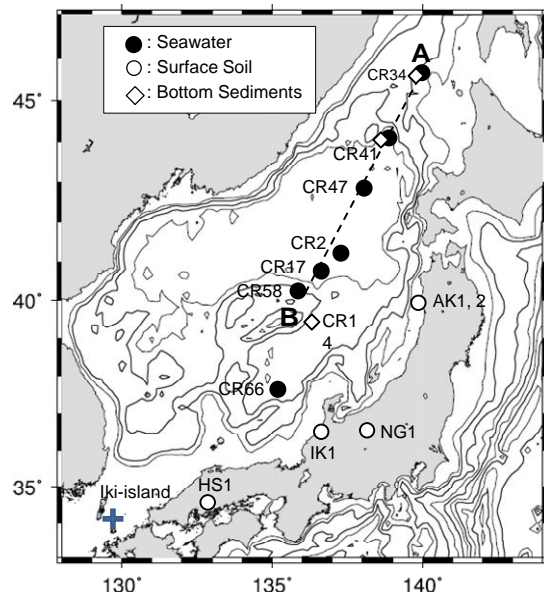


図1 海水、堆積物、表層土壌、サンゴ試料採取地点

上記研究で得られた結果を総まとめし、日本海における ^{236}U の挙動および日本海深層水循環に関して専門家も交えて考察を行う。

4. 研究成果

日本海への ^{236}U 導入量・導入年代解析

図2 壱岐島のサンゴから復元された日本海

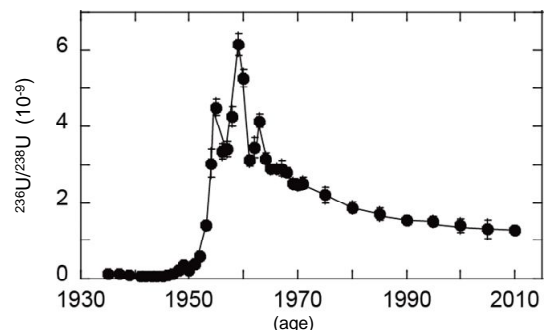


図2 サンゴから復元された日本海表層海水中ウラン同位体比

表層海水中ウラン同位体比を示す。 ^{236}U は1950年代の前半に大きなピークが見られ、最大濃度は1958年に観測された。これまで、 ^{236}U は1963年に ^{137}Cs 同様大気圏内核実験により大気から地球表層に供給されたと考えられていたが、本研究結果より、日本海への導入は赤道太平洋核実験場で行われた際に生成した ^{236}U が海流により日本近海に運ばれ、すでに1950年代前半には日本海に供給されていたということが明らかになった。また、最大濃度は現在日本海で観測される濃度の6倍であることも明らかになった。また、表層海水中の ^{236}U 見かけの半減期は37年であり、大西洋で確認されているその半分以下であった。つまり、日本海では他の海域よりも激しい海水の上下混合により表層 ^{236}U が下方に輸送されていると考えられる。

トレーサーとしての利用可能性検討

海水、堆積物、懸濁物質中の ^{236}U を定量した結果、 ^{236}U はほぼ完全に溶存態として海水中に存在していることが明らかになった（懸濁態：溶存態 = 1:1000、水柱：堆積物 = 100:1）。さらに、これまで海水循環を明らかにするためのトレーサーとして利用されてきた ^{137}Cs と同様な深度分布をしており、今後その測定がさらに困難になる ^{137}Cs に代わる新たなトレーサーとして利用可能であるということを示した。実際の海水中 ^{236}U 深度分布を図3に示す。

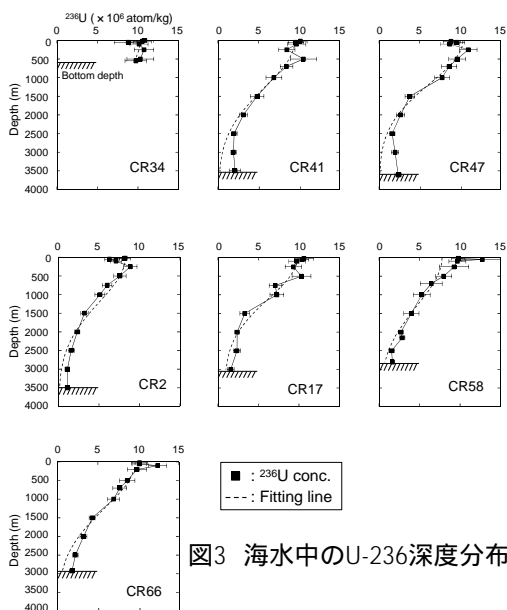


図3 海水中のU-236深度分布

日本海深層水(固有水)循環に関する考察上記の結果から、図1における点線A-Bの ^{236}U 深度分布断面図を以下に示す。

日本海の北部底層水では、顕著な ^{236}U 濃度増加が観測され、表層水が沈み込み底層に供給されたと考える。底層へ表層海水が供給されるメカニズムとしては、(1)ウラジオストク沖(Senjyu et al. 2005)や(2)タートル海峡(Aramaki et al. 2007)の表層海水が冬期に大陸からの冷たい乾燥した空気により蒸発・冷却することで沈み込み底層を反時計

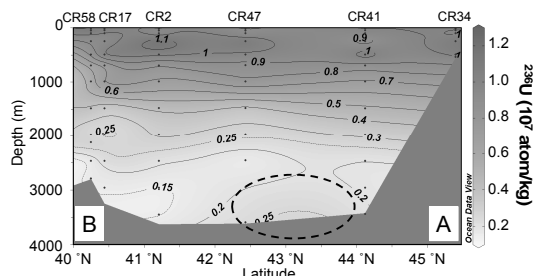


図4 日本海におけるU-236濃度断面図(図1のA-Bライン)

回りに循環すると報告されているが、今回の結果はいずれの結果でも説明できないものであった。これにより、別の場所での沈み込みが起こっているか、沈み込んだ後にこれまで報告されている循環様式とは異なる循環である可能性が示唆された。

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20件)全て査読あり

1. K. Tanaka, H. Iwatani, A. Sakaguchi, Y. Takahashi, Y. Onda, Relationship between particle size and radiocesium in fluvial suspended sediment related to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, J. Radioanal. Nucl. Chem. (in press) 10.1007/s10967-014-3159-1
2. M. Yamamoto, A. Sakaguchi, S. Ochiai, and T. Imanaka, Isotopic compositions of transuranic nuclides released by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident: with emphasis on Cm isotope, J. Radioanal. Nucl. Chem. (in press). 10.1007/s10967-014-3003-7
3. K. Tanaka, H. Iwatani, A. Sakaguchi, Y. Takahashi, and Q. Fan, Size-dependent distribution of radiocesium in riverbed sediments and its relevance to the migration of radiocesium in river systems after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, J. Environ. Radioactivity (in press)
4. A. Sakaguchi, K. Tanaka, H. Iwatani, H. Chiga, Q. Fan, Y. Onda, and Y. Takahashi, Size distribution studies of ^{137}Cs in river water in the Abukuma riverine system following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, J. Environ. Radioactivity (in press)
5. Q.H. Fan, M. Tanaka, K. Tanaka, A. Sakaguchi, and Y. Takahashi, An EXAFS study on the effects of natural organic matter and the expandability of clay minerals on cesium adsorption and mobility. Geochim. Cosmochim. Acta, 135 (2014) 49–65. 10.1016/j.gca.2014.02.049
6. A. Sakaguchi, P. Steier, Y. Takahashi, and M. Yamamoto, Isotopic compositions of ^{236}U and Pu isotopes in “Black Substances” collected from roadsides in Fukushima Prefecture: fallout from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Environ. Sci. & Tech. 48 (2014) 3691-3697. 10.1021/es405294s
7. M. Yamamoto, A. Sakaguchi, S. Ochiai, T. Takada, K. Hamataka, T. Murakami, and S. Nagao, Isotopic Pu, Am and Cm, signatures in environmental samples contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident, J. Environ. Radioactivity, 132 (2014) 31-46.
8. 坂口綾, 門倉彰伸, シュタイアーピーター, 山本政儀, 坂田昂平, 富田純平, 高橋嘉夫, 環境中の人工ウラン同位体 U-236 を利用した研究-海洋循環トレーサーとしての確立を目指して-, 分析化学 62 (2013) 1001-1012.
9. K. Tanaka, H. Iwatani, Y. Takahashi,

A. Sakaguchi, K. Yoshimura, and Y. Onda, Investigation of spatial distribution of radiocesium in a paddy field as a potential sink. *PLoS ONE* 8(11) (2013): e80794. doi:10.1371/journal.pone.0080794.

10. K. Tanaka, A. Sakaguchi, Y. Kanai, H. Tsuruta, A. Shinohara, and Y. Takahashi. Heterogeneous distribution of radiocesium in aerosols, soil and particulate matters emitted by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: retention of micro-scale heterogeneity during the migration of radiocesium from the air into ground and river systems, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295 (2013) 1927-1937. 10.1007/s10967-012-2160-9

11. K. Tanaka, H. Iwatani, A. Sakaguchi, and Y. Takahashi. Local distribution of radioactivity in tree leaves contaminated by fallout of the radionuclides emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 295 (2013) 2007-2014. 10.1007/s10967-012-2192-1

12. K. Tanaka, A. Sakaguchi, Y. Kanai, H. Tsuruta, A. Shinohara Y. Takahashi. Heterogeneous distribution of radiocesium in aerosols, soil and particulate matters emitted by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident: retention of micro-scale heterogeneity during the migration of radiocesium from the air into ground and river systems, *Journal of Radioanalytical Nuclear and chemistry.* 295, 1927-1937, 2013.

13. A. Sakaguchi, M. Hoshi, M. Aoyama, H. Kato, Y. Onda, Soil particle size measurements for the calculation of the spread of dusts blown up by the explosion of the Hiroshima atomic bomb - For radiation dose estimation from neutron activated dusts of soils used in traditional Japanese houses and those of the ground surface -, Revisit The Hiroshima A-bomb with a Database-Last scientific view on local fallout and Black Rain, ISBN 978-4-9905935-1-3, 15-24, 2013.

14. K. Tanaka, H. Iwatani, A. Sakaguchi and Y. Takahashi. Local distribution of radioactivity in tree leaves contaminated by fallout of the radionuclides emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, *Journal of Radioanalytical Nuclear and chemistry.* 295, 2007-2014, 2013.

15. A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, M. Hoshi, T. Nakakuki, M. Yamamoto, Uranium-236 as a new oceanic tracer: a first depth profile in the Japan Sea and comparison with caesium-137, *Earth and Planetary Science Letters*, 333-334, 165-170, 2012.

16. A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, K. Tanaka, Y. Takahashi, H. Chiga, A. Matsushima, S. Nakashima and Y. Onda, Isotopic

determination of U, Pu and Cs in environmental waters following the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. *Geochemical Journal*, 46, 355-360, 2012.

17. M. Yamamoto, T. Takada, S. Nagao, T. Koike, K. Shimada, M. Hoshi, K. Zhumadilov, T. Shima, M. Fukuoka, T. Imanaka, A. Sakaguchi, S. Kimura, An early survey of the radioactive contamination of soil due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, with emphasis on plutonium analysis, *Geochemical Journal*, 46 (2012) 341-353.

18. K. Tanaka, Y. Takahashi, A. Sakaguchi, M. Umeo, S. Hayakawa, H. Tanida, T. Saito, Y. Kanai, Vertical Profiles of Iodine-131 and Cesium-137 in Soils in Fukushima Prefecture related to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station Accident, *Geochemical Journal*, 43, 73-76, 2012.

19. H. Qin, Y. Yokoyama, Q. Fan, H. Iwatani, K. Tanaka, A. Sakaguchi, Y. Kanai, J. Zhu, Y. Onda, and Y. Takahashi, Investigation of cesium adsorption on soil and sediment samples from Fukushima Prefecture by sequential extraction and EXAFS technique, *Geochemical Journal*, 46, 297-302, 2012.

20. A. Sakaguchi, H. Chiga, K. Shizuma, M. Hoshi, M. Yamamoto, Preliminary results on ¹³⁷Cs in soil core samples collected from the under-floors of houses built within 1-4 years after the Hiroshima Atomic Bomb, Revisit The Hiroshima A-bomb with a Database-Last scientific view on local fallout and Black Rain, ISBN 978-4-9905935-0-6, 93-96, 2011.

〔学会発表〕(計 19 件うち招待講演 7 件)

1. 坂口綾, 高橋嘉夫, Peter Steier, 山本政儀. 環境中ウラン、超ウラン元素同位体測定に関する最近の動向. アクチニド元素の化学と工学専門研究会, アクチニドおよびFP核種の分析化学研究. 2014. 3. 12. 京都大学原子炉, 熊取.
2. 坂口綾, Peter Steier, 高橋嘉夫. 加速器質量分析による環境中のウラン同位体 U-236 測定とその応用, 広島地区分析技術講演会. 2014, 3.4. 広島大学, 東広島.
3. A. Sakaguchi, T. Nomura, P. Steier, T. Watanabe, K. Sasaki, Y. Takahashi, H. Yamano. Reconstruction of anthropogenic ²³⁶U input to the Japan Sea, in International Joint workshop on Coral reef environmental earth sciences, 2014. 3. 25-26. Hokkaido University, Sapporo.
4. 坂口綾, 身の回りの見えないモノからみる & 見えないモノをみる ~ 海と陸のサイエンス ~, 2013 年日本放射光学会 市民公開講座. 2014. 1. 12. 国際会議場, 広島.
5. 坂口綾, 江藤飛鳥, Peter Steier, 山崎敦子, 渡邊剛, 佐々木圭一, 高橋嘉夫 and 山野博哉. サング骨格に記録された赤道太平洋表層水中の人工放射性核種 ²³⁶U 変動. 日本地球

- 化学会年会. 2013, 9. 11-13. 筑波大学, つくば.
6. 坂口綾. 放射能と放射線. 2013 年日本地球化学会若手シンポジウム 2013. 9. 13. 草加.
 7. A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, T. Nakakuki, M. Yamamoto, Depth distributions of uranium-236 and cesium-137 in the Japan Sea; toward the potential use as a new oceanic circulation tracer, APSORC'13 - 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry, 2013. 9. 22-27, Kanazawa Bunka Hall, Kanazawa, Japan.
 8. 坂口綾・江藤飛鳥・Peter Steier・山崎敦子・渡邊剛・佐々木圭一・高橋嘉夫・山野博哉, サンゴ骨格に記録された赤道太平洋表層水中の人工放射性核種 ^{236}U 変動, JAMS-15、名古屋、2013/3/9-10
 9. A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, M. Yamamoto, Depth distributions of uranium-236 and cesium-137 in the Japan/East Sea; toward the potential use as a new oceanic circulation tracer, EGU(Europe Geoscience Union) general assembly 2012, Vienna, Austria, 2012/4/22-27
 10. A. Sakaguchi, H. Chiga, P. Steier, K. Shizuma, M. Hoshi, Y. Takahashi, M. Yamamoto, Preliminary Results of Uranium-236, Plutonium-239, 240 and Cesium-137 Measurements in Samples Related With 'Black Rain' after the Hiroshima Atomic Bomb, Health Physics Society 58th annual meeting, Sacramento, USA, July 7-11, 2012.
 11. 森千晴, 坂口綾, 佐々木圭一, 宇留賀朋哉, 谷田肇, 寺田靖子, 高橋嘉夫, サンゴ中のウランに関する研究 同位体組成分析および蛍光分光XAFS法を用いた化学形態分析 日本地球化学会 2012 年会、福岡、2012/9/11-13.
 12. A. Sakaguchi Radiological situation in Fukushima -Result of radio Cs mapping in Fukushima pref.- IAEA 8th ALMERA Coordination Meeting, Austria, 2011.9.5-7,
 13. 坂口綾, 放射性同位体を利用した地球科学, 2011 年日本地球化学会年会ショートコース, 北海道大学、2011 年 9 月 13 日
 14. Chiga, H., Sakaguchi, A., Steier, P., Shizuma, K. Hoshi, M., Takahashi, Y., Yamamoto, M. Study on "Black-rain" after the Hiroshima atomic bomb-Reconstruction of close-in fallout deposition-4th East Asian Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, Tokyo, 2011.12.16-18
 15. Kadokura, A., Sakaguchi, A., Steier, P., Shizuma, K., Takahashi, Y. Distribution of ^{236}U in the Japan Sea, 4th East Asian Symposium on Accelerator Mass Spectrometry, Tokyo, 2011.12.16-18.
 16. Sakaguchi, A., Chiga, H., Steier, P., Shizuma, K., Hoshi, M., Takahashi, Y., Yamamoto, M.,

- Preliminary results on soil core samples collected from the under-floors of houses built within 1-4 years after the Hiroshima Atomic Bomb, 17th Hiroshima International Symposium, Lessons from unhappy events in the history of nuclear power development. Hiroshima, 2012.1.25-26.
17. Yamamoto M, Sakaguchi A, Hoshi M, Imanaka T, Miyamoto Y, What is the origin of ^{137}Cs detected in soil samples under houses built 1-3 years after the Hiroshima atomic bomb? 17th Hiroshima International Symposium, Lessons from unhappy events in the history of nuclear power development, Hiroshima, 2012.1.25-26.
 18. 坂口綾, 門倉彰伸, Peter Steier, 静間清, 高橋嘉夫, 山本政儀, 日本海における U-236 の分布, 2011 年 日本放射化学会年会(信州大学、2011.9.20-22.
 19. 坂口綾, 門倉彰伸, Peter Steier, 静間清, 高橋嘉夫, 山本政儀, Development of uranium-236 as a new oceanic circulation tracer:a first depth profile in the Japan/East Sea compared with cesium-137.白鳳丸クリーン観測による微量元素・同位体研究の現状と展望 GEOTRACES 計画、東京大学、2012.3.8-9.

〔図書〕(計1件)

1. 地球と宇宙の化学事典, 朝倉書店、2012、分担執筆 全 479 ページ 担当部分: 環境放射能 437 ページ

〔その他〕

ホームページ等

<http://home.hiroshima-u.ac.jp/enviro/>

<http://www.gender.go.jp/c-challenge/senpai/riigaku/etc/001.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 准教授

研究者番号: 00526254