

放射能と放射線：環境汚染・被ばく問題から地球科学的利用まで

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 —

大学院理学研究科 地球惑星システム学専攻

坂口 綾

本論文では、近年の分析・測定技術の発展に伴い測定可能となってきた環境中の人工放射性ウラン(U)同位体である ^{236}U に着目した研究について報告する。ここでは特に、地球表層環境にある ^{236}U の起源や濃度、蓄積量についてセシウム(Cs)-137の分布などと共に詳細に調べた結果に加え、明らかになった ^{236}U の特性を活かした地球科学的研究への応用例として、海水循環トレーサー利用に関して日本海をフィールドとした研究についても紹介する。

1. 諸言

2011年3月に起こった福島第一原子力発電所の事故以降、「放射性物質は良くないもの、環境中には絶対に不要なもの」として位置づけられ、マスコミによる不安を煽るような報道やインターネットの不正確な記事が今もなお多く見られる。しかし、地球には形成当時から放射性物質は存在し、地球進化、生命誕生や生命活動維持に重要な役割を果たしてきたのも事実である。

“放射性核種の代名詞”と言っても過言ではないU同位体には、天然放射性系列核種として ^{238}U (ウラン系列出発核種：半減期 4.56×10^9 年)、 ^{238}U の子孫核種である ^{234}U (半減期 2.45×10^5 年)、そしてアクチニウム系列の出発核種である ^{235}U (半減期 7.03×10^8 年)がある。U同位体は地球誕生時から存在し、現在も表層環境に普遍的に存在している。これらは、系列や起源の違いなどによりその組成や挙動が異なることから、特徴や事象を十分に把握することで強力な地球科学的ツールとして利用できる。特に、核種固有の半減期によりその存在量が減少するため、絶対量や組成比を上手く組み合わせることにより、空間的情報のみならず時間的情報も与えてくれる。また、Uは核エネルギー資源として利用価値がある一方、その使用により放射性廃棄物を生じ、長半減期・系列核種であるがゆえに放射能汚染は長期にわたり残留する。そのため、環境中でのU挙動に関する研究は分野を問わず重要視されている。

天然放射性Uの地球科学的利用法として最も一般的なのは、年代測定である。岩石、鉱物、沈殿物などが生成する際に取り込まれたUの崩壊と、そこから成長する子孫核種との親子関係から年代を求めることができる。地球の年齢決定にもウラン-鉛(U-Pb)放射年代法が用いられたことはよく知られている¹⁾。また、最近ではU同位体組成やその子孫核種およびトリウム(Th)系列の放射性核種(^{238}U , ^{234}U , ^{230}Th , ^{232}Th)を用いて、バイカル湖などの湖沼堆積物から古環境を復元するツールとしての利用も試みられている^{2, 3)}。

近年、機器分析技術の進歩により ^{236}U (半減期 2.34×10^7 年)が“環境中のU同位体”の一つとして注目されるようになり、天然環境での極微量 ^{236}U 検出や、環境・地球科学研究のツール/プロキシとして利用が試みられつつある^{4~8)}。特に、欧米諸国では加速器質量分析計(AMS)を用いた測定により、 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 原子比が 10^{-12} のレベルまで測定可能になり、環境中の ^{236}U を用いた研究が今後拡大することは必然である⁹⁾。

表層環境中の ^{236}U は主に4つの起源がある¹⁰⁾。一つ目は、天然Uと中性子の核反応 $^{235}\text{U}(n, \gamma)$ および $^{238}\text{U}(n, 3n)$ により生成する ^{236}U である。この場合、中性子の起源はMg, Naなどの地殻中主要軽元素と α 粒子の

(α , n)反応や、二次宇宙線が地表に到達したものである。地殻中の U 濃度や地表での中性子フラックス、核反応断面積などを用いて、この反応によりもたらされる表層土壌中の $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を計算すると、 $3 \times 10^{-14} - 7 \times 10^{-13}$ と見積もられる。これは、現在の AMS 測定技術では検出限界以下である。二つ目は、劣化 U (^{235}U を燃焼した残りかす) や核関連施設周辺の放射能汚染地域で検出される ^{236}U である。この ^{236}U は、 ^{235}U 燃焼時の $^{235}\text{U}(n, \gamma)$ 反応により生成される。この燃えかすである U を弾丸として利用したり(劣化 U 弾)、核施設からの漏えいで環境中に放出した場合、汚染地帯の表層土壌や環境水中の $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は $10^{-7} - 10^{-3}$ と非常に高い値になる⁴⁾。三つめは大気圏内核実験で生成し、グローバルフォールアウトとして地表にもたらされた ^{240}Pu (半減期 6.35×10^3 年) から、 α 壊変により成長した ^{236}U である。日本における ^{240}Pu 蓄積量から見積もられた成長 ^{236}U は、2012 年現在 $1.0 \times 10^9 - 5.0 \times 10^{11} \text{ atoms m}^{-2}$ 、 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比では $2.6 \times 10^{-12} - 5.3 \times 10^{-11}$ である。環境中 ^{236}U の四つ目の起源は、グローバルフォールアウト由来の ^{236}U である。これは、主として水爆の外殻として用いられた ^{238}U の $^{238}\text{U}(n, 3n)$ 反応により生成したと考えられる。最近、我々のグループの研究結果から、日本における環境中の主要な ^{236}U の起源はグローバルフォールアウトであることが明らかになっており、その蓄積量は約 $1.8 \times 10^{13} \text{ atom m}^{-2}$ と見積もられた。またこの値から、全世界的に約 900 kg の ^{236}U が表層に降下していると推算された^{7, 8)}。

我々はこの環境中の ^{236}U に着目し、新たな海洋循環トレーサーとして確立することを目指して研究を進めてきた。ここでは、最近新たに利用可能となった環境放射能分析手法による環境中(陸域, 海洋) ^{236}U 研究について、現在まで明らかになっている部分に関して報告する。

2. 放射性核種のトレーサー利用 - 海水循環研究 -

海水の循環は、海上風により駆動されている風成循環と、主に水温と塩分に起因した海水の密度変化による熱塩循環に大きく支配されることが知られている。一方で、海水は温暖な地域から寒冷な地域に熱を運ぶ媒体として働き、この循環により気候へ影響を与える場合もある。このように海水循環は、地球表層でのエネルギーの不均一性を緩和し、より安定で生活しやすい表層環境の状態を維持するための重要な役割を担っている。さらに、海水循環は地球表層の物質循環に大きな影響を与えている。海水の循環により、酸素を豊富に含む表層水を下層にもたらし、下層から栄養素を含む水を表層に供給するほか、栄養素を貧栄養海域に運ぶなど、地球表面の大半を占める海洋において、その循環過程と生物生産は深く関わっている。また、海洋中には大気と比較して数十倍もの二酸化炭素が存在しており、海水循環は二酸化炭素の貯留や供給にも大きな影響を与える。一方で、海水が物質循環の媒体になり得るということは、結果的に汚染の拡散にも寄与している。このように、物質循環に深く関わる海水の流動は、日射量や風などの定常的な変動に加え、長期的な気候変動や地殻変動の他、突発的な気象イベントなど、様々な時間スケールの外的要因により変化する。それゆえ、生物生産量の評価、異常気象のサイクルや気候変動の予測、汚染除去・拡大防止策を講じるためには、対象とする事象に応じた適切な時間分解能で海水循環の時系列観測が重要である。しかし、係留系などにより水そのものの動きを追跡することは、特に広い海域において非常に困難である。そこで、海水循環を明らかにするために、トレーサー技術を用いた研究が行われてきた。

1950 年代から 1960 年代の冷戦時代、アメリカや旧ソ連などにより行われた大気圏内核実験の結果、核分裂生成核種が広い範囲の地表面や海洋表面に降下した(グローバルフォールアウト)。代表的な核分裂核種である ^{137}Cs (半減期 30.2 年) は、北半球において 765 PBq(ペタベクレル; 10^{15} Bq) が降下したと近年再見積もりされており、それらは 1963 年に局時的に地球表層に降下していることも明らかになっている^{11, 12)}。このように人工放射性核種は、天然放射性核種(例えば、ラジウム同位体: ^{226}Ra , ^{228}Ra) に比べて、その系への導入起源や導入された時期、さらには供給量が明らかである場合が多いため、環境中の物質循環を追う、よいトレーサーとなり

うる。

トリチウム(^3H)は核実験の際に Cs や Pu と同様に表層環境に供給された人工放射性核種である。水そのものの組成であるため、水循環を明らかにするためのトレーサーとしては最適な核種である。この ^3H を用いて海洋循環を明らかにする研究も行われていたが、半減期が短く(半減期 12.3 年)、海水中の ^3H 濃度は 1990 年代前半にはすでに測定が困難な状況になっていた。これに代わり、近年では ^3H の壊変核種である ^3He のトレーサー利用が試みられているが、試料採取や保存方法において改良すべき課題が残されている。海洋循環のトレーサーとしては、上述した ^{137}Cs も精力的に利用されている。Cs はアルカリ金属であるため水に溶けやすく、グローバルフォールアウトにより海洋表層に供給された後、安定して海水に溶存する。炭素 14(^{14}C)やヨウ素 129(^{129}I)などと比較して、動植物による利用が少なく、ガス成分としての大気-水の平衡(交換)も考慮する必要がないため、その分布は海水流動によって概ね決定されると仮定できる。従って、海水中における ^{137}Cs の濃度分布を明らかにすることで、海水の沈み込みや循環についての情報を得ることができる。しかし、優秀な海洋循環トレーサーとして利用されている ^{137}Cs も、大気圏内核実験により表層環境に供給された後、半減期 30 年に従った原子核の壊変のために、現在、海水中の存在量は極微量である。このような、極微量 ^{137}Cs 測定のためには、数十~数百リットル以上の海水から Cs を濃集し、通常の放射線測定よりも 100-200 倍バックグラウンドの低い条件での測定を必要とする。そのため、今後さらに ^{137}Cs の測定は困難になり、海水循環を明らかにしたり経時観測をするには、これに代わる新たなトレーサーを早急に見つけることが必要不可欠である。そこで着目したのが、 ^{236}U である。

3. 方法

3.1 研究対象地域 -日本海-

本稿では、 ^{236}U の海洋循環トレーサーとしての有用性を検証するために、日本海に着目して行ってきた研究について紹介する。

日本海は周囲をユーラシア大陸と日本列島に囲まれた、北西太平洋に位置する閉鎖性の高い太平洋の代表的な縁辺海である。日本海と、隣接した海域を繋ぐ 4 つの海峡(対馬海峡・津軽海峡・タタール(間宮)海峡・宗谷海峡)は、いずれも 150 m 以下と非常に浅い水深であるのに対し、日本海の内部は非常に深く、最大水深は約 3800 m、平均水深は約 1700 m であり、お椀状の地形を形成している。外洋の深層水は、浅い海峡に阻まれることにより、日本海内部に侵入することが出来ない。そのため、200-300 m 以深の「日本海固有水」とよばれる均質かつ安定な深層水は、日本海北西部の大陸付近において冬季に大陸から吹き込む強い季節風によって表層水が冷却され、密度が増大した海水が沈み込むことにより独自に形成されると言われている^{13~15)}。また、小さい海域であるにも関わらず、対馬暖流やリマン寒流などのような暖流と寒流が存在し、それらが接する亜極前線が形成されている。このように、世界的な海洋大循環や大洋の特徴を凝縮した日本海は「ミニチュアオーシャン」と呼ばれ、海洋研究のメッカとなっている。近年、そのミニチュアオーシャンで水温の急激な上昇、それによる鉛直循環の弱まりや溶存酸素濃度の低下が観測されており、将来起こり得る全世界的な環境変化を暗示しているのではないかと危惧されている^{16~18)}。また、閉鎖性が強いため、日本海を囲む国々による生活・工業廃水の排出やさまざまな廃棄物の海洋投棄による汚染の影響が顕著に表れる。このような問題解決のためには、海水循環をきちんと把握し、日本海で起こり得る現象を理解した上で対策を講じることが必要不可欠である。

3.2 試料採取

本研究に用いた全ての試料は、福島第一原発事故前である 2009 年から 2010 年にかけて採取した。

3.2.1 表層土壌

グローバルフォールアウトにより環日本海域に供給された ^{236}U の降下量と人工放射性核種の同位体組成を把握するため、2009年の夏から冬にかけて秋田県(AK)、長野県(NG)、石川県(IK)、広島県(HS)の4県における未攪乱地から直径4.7 cm、長さ30 cmの表層土壌コア試料を採取した(Fig. 1)。採取後直ちに表層から5 cmごとにカットして室温で風乾した。

3.2.2 海底堆積物

日本海において、水柱から粒子態として海底に除去された ^{236}U の割合を見積もるため、同航海中に孔径9 cmのマルチプルコアラーで海底堆積物試料を採取した(Fig. 1)。採取後、直ちに船上にて表層から1 cmごとに5 cmまでカットし、分析まで無酸素袋で冷蔵保存した。

3.3 分析

3.3.1 表層土壌

風乾後の土壌をそれぞれ深さ2 mmメッシュの篩で、小石などを取り除いた。試料を粉碎し均質化した後、径56 mm、高さ39 mmのスチロール容器に隙間なく詰め込んだ。この密封試料をGe半導体検出器(ORTEC, GWL-120230-S)にて γ 線測定した。試料はそれぞれ約1日間測定した。ジオメトリーを合わせた標準試料も同様に測定した。標準試料として γ 線標準容積線源MX-033(日本アイソトープ協会)(基準日時:2000年3月1日12:00, ^{137}Cs 放射能:6.27 Bq g $^{-1}$, 重量:40 g)を用いた。 Cs-137 放射能は661.7 keVのピークで定量した。

Cs-137 深度分布や他の核種の蓄積量から、採取試料がグローバルフォールアウト後に未攪乱であることを確認した土壌において、U同位体濃度および比(^{238}U , $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$)の定量分析を行った。土壌中のU同位体を測定するためには、 α スペクトロメトリーやAMSでの測定の際に妨害となる元素・核種を除く必要がある。まず、土壌コア表層から30 cmの深度までの土壌試料を均一化し、30 g分取した。電気炉で3時間450度で灰化し有機物を除去した。冷却後、土壌試料をビーカーに移し、15M HNO_3 を100 mL加えて140°Cで5時間加熱した。この間30分毎に H_2O_2 を2 mLずつ加えた。その後、3000 rpmで10分間遠心分離し、上澄みを別容器に移した。残さ土壌に再度15M HNO_3 を100 mL加え、140°Cで3時間加熱した。遠心分離後、上澄みを先の抽出液と合わせ、抽出液全量を1:4:15に分け、それぞれAMSでの $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 測定用、 α スペクトロメトリーでの ^{238}U 測定用、ICP-MSでのPu測定用とした。Puの結果については今回示さない。

U-238測定用試料溶液に、化学収率を補正するため ^{232}U (2.9806 dpm mL $^{-1}$)を0.1 mlスパイクし、140°Cで蒸発乾固した。通常スパイク添加は試料の灰化処理前に行うが、今回はそのスパイク(^{232}U や ^{233}U)中に含まれる ^{236}U がバックグラウンドの増加をもたらす可能性があったため、AMS測定フラクションを分取した後に添加した。なお、土壌中の ^{236}U は15M HNO_3 の加熱抽出によりほぼ全て抽出されることが分かっている。蒸発乾固した試料を超純水250 mLで溶解し、 NH_4OH を加えてpH 7-8に調整することでU同位体を水酸化鉄に共沈させた。遠心分離で水酸化鉄沈殿を回収し、少量の12M HCl に溶かした。この溶液から、7Mジイソプロピルエーテルを用いて鉄を有機相に抽出した。Uの存在する水層を回収して蒸発乾固した後、20 mLの10M HCl に溶解した。この溶液を50 mLの10M HCl でコンディショニングした陰イオン交換カラム(Dowex® 1x8, 内径0.8 m, 樹脂高5 cm)に流した。樹脂中に残留しているマトリクスを除くため、10M HCl を10 mL, 50 mLの順に流した。続いて8M HNO_3 を5 mL, 5 mL, 10 mLの順に流し、鉄などの元素を洗い流した。再度20 mLの10M HCl でカラムをコンデ

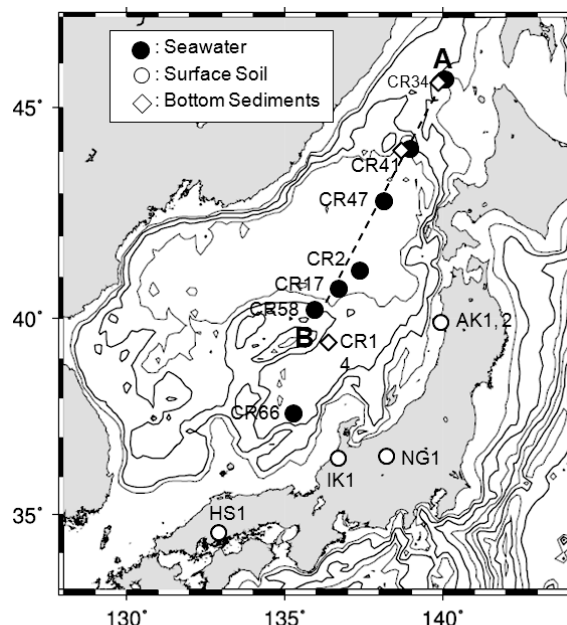


Fig. 1 : Sampling locations of surface soil, seawater, suspended solid and bottom sediments at the pan-Japan Sea.

イソネーションした後、2M HCl を 80 mL 流して U を溶離した。溶離液を 140°C で加熱し蒸発乾固した後、H₂SO₄ を 15 滴加え U を溶解した。冷却後、NH₄OH を用いて約 pH 4 に調整した。この溶液中の U を直径 2.5 cm のステンレス板に電着し、金沢大学低レベル放射能実験施設の Si 半導体検出器を用いてαスペクトロメトリーで²³⁸U の定量を行った。

U-236/U-238 測定用に分取した抽出液に対して²³⁸U 測定用試料と同じく U 精製を行った。140°C で加熱し 20 mL まで減容した U 溶離液に鉄標準液 (Fe; 1000 mg mL⁻¹) を 3 mL 加え、スターラーで攪拌しながら NH₄OH を加えて沈殿生成した。沈殿は 50 mL の超純水で二度洗浄し、90°C で 12 時間乾燥した。これを 800°C で 3 時間加熱したものを AMS での測定試料とした。試料はアルミ製のホルダにセットし、Cs をイオン源として U をイオンビームとして取り出し、最終的に²³⁸U をファラデーカップで、²³⁶U を TOF-MS で測定した。AMS による分析は全て VERA (ウィーン大学 加速器研究機関) で行った。分析における詳しい測定条件ならびに装置のスペックなどは Steier ら⁹⁾ や Sakaguchi ら¹⁰⁾ を参照されたい。Si 半導体検出器により測定した²³⁸U 濃度と AMS により測定した²³⁶U/²³⁸U から²³⁶U 濃度を算出した。

3.3.2 海水

海水中の¹³⁷Cs および U 同位体を測定するため以下の処理を行った。

海水試料 (20 L) を 45 L 容器に移し、15M HNO₃ を 200 mL と 100 mg mL⁻¹ の¹³³Cs 溶液をキャリアとして 2.8 mL 加え、加熱しながら 2 時間攪拌した。その後、試料を常温まで冷却し、リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) を 4 g 加えてさらに 2 時間攪拌した。溶液を一晩静置し、Cs が吸着した AMP と上澄み液を分けた。上澄みは 45 L 容器に移し、²³⁶U/²³⁸U および Pu 同位体分析用とした。AMP は 80°C で 12 時間乾燥し、γ線スペクトロメトリー用試料とした。¹³⁷Cs 定量には土壌測定と同じ条件を用いた。

AMP による Cs 濃集処理における回収率を求めため¹³⁷Cs 測定済みの AMP を 0.01 g 分取し、0.1% TMAH 溶液で溶解・希釈した試料を ICP-MS での分析溶液とした。内標準には Re を用い、ICP-MS (Agilent 7700) で溶液中の¹³³Cs を定量した。得られた Cs 回収率を用いて正確な¹³⁷Cs 濃度を算出した。

上述した方法により AMP 沈殿の上澄みとして得た²³⁶U/²³⁸U 分析フラクションに 100 mg mL⁻¹ の Fe 溶液を 2 mL 加え、NH₄OH で pH 7-8 に調整し、溶液中の U を鉄共沈試料として回収した。これ以降の U 精製は、土壌中 U 測定試料と同じ方法で行った。

海水試料中に含まれる²³⁸U 濃度を ICP-MS (Agilent 7700) を用いて測定した。この際、内標溶液として In を使用した。ICP-MS により測定した²³⁸U 濃度と AMS により測定した²³⁶U/²³⁸U から²³⁶U 濃度を算出した。

3.3.3 浮遊懸濁物試料

浮遊懸濁物中の U 同位体を測定するために、30 mL の 15M HNO₃ と 3 mL の 35% H₂O₂ を加えて試料をフィルターごと溶解した。分解溶液に、38% HF と 70% HClO₄ をそれぞれ 10 mL、3 mL 加えて 1 時間加熱した後、溶液を蒸発乾固した。再度 HF と HClO₄ を加えて同様の操作を 5 回繰り返した。乾固後の溶液に 10M HCl を 10 mL と 100 mg mL⁻¹ の鉄キャリア溶液を 2 mL 加え、土壌中²³⁶U/²³⁸U 測定試料と同じ方法で U 精製を行った。試料溶解後の溶液を一部分取し、海水と同様に ICP-MS で²³⁸U 濃度測定を行った。なお、各層ごとに採取した 20 L の海水から得た懸濁粒子量が少なく、²³⁶U を検出することが困難であることが予想されたため、表層 (0-250 m)、上部固有水 (250-1000 m)、深層水 (1000-2000 m)、底層水 (2000 m-bottom) 層ごとに懸濁粒子を合わせて試料処理を行った。

3.3.4 海底堆積物

海底堆積物中の¹³⁷Cs および U 同位体を測定するため以下の作業を行った。

105°C で 24 時間乾燥した海底堆積物試料を粉碎し、均質化した。試料秤量後、3-4 g 分取し、浮遊懸濁物と

同様に試料を全分解した。硝酸(pH = 1)で約 1L に希釈し, 100 mg mL⁻¹ の ¹³³Cs 溶液をキャリアとして 1.4 mL 加え, AMP を 2 g 入れ Cs を吸着濃集した。海水試料と同様に, 攪拌, 静置し, 上澄みは遠心分離後に別の容器に移して ²³⁶U/²³⁸U および Pu 同位体分析用とした。乾燥後の AMP を口径 1 cm のチューブに封入し, γ線スペクトロメトリーにより ¹³⁷Cs を定量した。方法は土壌試料および海水試料測定と同様に行った。

上澄み中の U, Pu 同位体については, 土壌や浮遊懸濁物質試料と全て同様の方法で試料処理・分析を行った。

4. 結果と考察

4.1 日本海周辺における土壌中 ²³⁶U と ¹³⁷Cs インベントリ

日本各地で採取した土壌試料中に含まれる ²³⁶U, ¹³⁷Cs インベントリおよび ²³⁶U/¹³⁷Cs 比を Table 1 に示す。今回分析した全ての土壌試料において ¹³⁷Cs の濃度は表層 5 cm 以浅で最大を示し, 深度と共に急激に減少する深度分布が得られた。これは今までの研究より明らかになっているように, グローバルフォールアウトとして地上に降下してから整地や動物により攪乱されずに保存されていることを示しており^{19, 20}, 本研究で

Table 1 ²³⁶U, ¹³⁷Cs inventories and ²³⁶U/¹³⁷Cs ratio in surface soil.

Sampling Station	²³⁶ U (× 10 ¹³ atom m ⁻²)	¹³⁷ Cs (× 10 ³ Bq m ⁻²)	²³⁶ U/ ¹³⁷ Cs (× 10 ⁹ atom Bq ⁻¹)
AK1	1.27 ± 0.10	2.66 ± 0.06	4.78 ± 0.36
AK2	2.56 ± 0.19	3.87 ± 0.01	6.61 ± 0.50
NG1	0.59 ± 0.61	1.09 ± 0.02	5.46 ± 0.56
IK1	1.78 ± 0.05	4.34 ± 0.03	4.10 ± 0.12
HS1	0.67 ± 0.03	1.66 ± 0.02	3.97 ± 0.24

用いた試料は降下当時のインベントリ情報を保持していると言える。これら表層土壌試料中の ²³⁶U, ¹³⁷Cs インベントリおよび ²³⁶U/¹³⁷Cs 比はそれぞれ (0.59-2.56) × 10¹³ atom m⁻², (1.09-4.34) × 10³ Bq m⁻², (3.97-6.61) × 10⁹ atom Bq⁻¹ であった。これらは, Sakaguchi ら (2009, 2010)^{7, 8} によって日本の土壌で見積もられたグローバルフォールアウト由来の ²³⁶U, ¹³⁷Cs インベントリおよび ²³⁶U/¹³⁷Cs 比(それぞれ 17.8 × 10¹² atom m⁻², 1.89 × 10³ Bq m⁻², 4.88 × 10⁹ atom Bq⁻¹)と同等であった。本研究で分析した表層土壌中の ²³⁶U と ¹³⁷Cs は, 主としてグローバルフォールアウト由来であり, その組成はどの地点においても均質なものであることが分かった。

4.2 日本海における ²³⁶U および ¹³⁷Cs 濃度の鉛直分布

海水試料採取を行った地点のうち, CR58 におけるポテンシャル水温(°C), 塩分(psu), 溶存酸素濃度(μmol kg⁻¹), ポテンシャル密度(σ_θ: kg m⁻³)の深度分布を例として Fig. 2 に示す。各深度分布では, 表層から約 1000 m 間において水温と溶存酸素濃度の減少や, 塩分と密度の増大傾向となり, 1000 m 以深の日本海固有水層で一様となるプロファイルを示している。日本海北部の海水試料採取地点から大和堆によって隔離されている CR66 や宗谷海峡近くの水深が浅い CR34 以外の観測点は, 何れの地点においても CR58 で得られた各種深度分布と同様な分布を示していた。

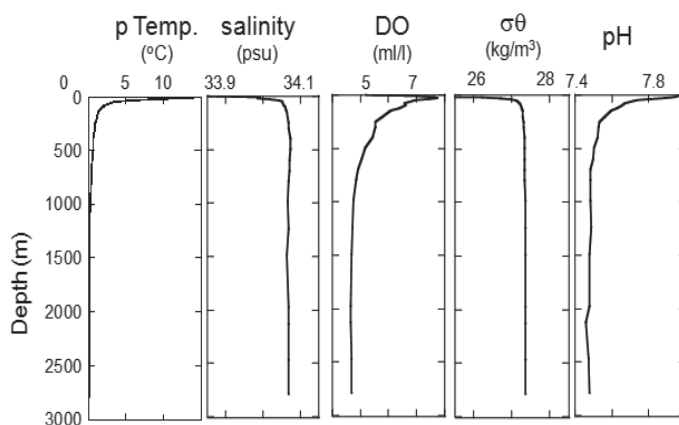


Fig. 2. Depth profiles of potential temperature (°C), salinity (psu), dissolved oxygen (ml/l), potential density (σ_θ: kg/m³) and pH (SWS scale 25°C) data at CR58. σ_θ is the density calculated with *in situ* salinity, potential temperature, and pressure = 0, minus 1000 kg/m³.

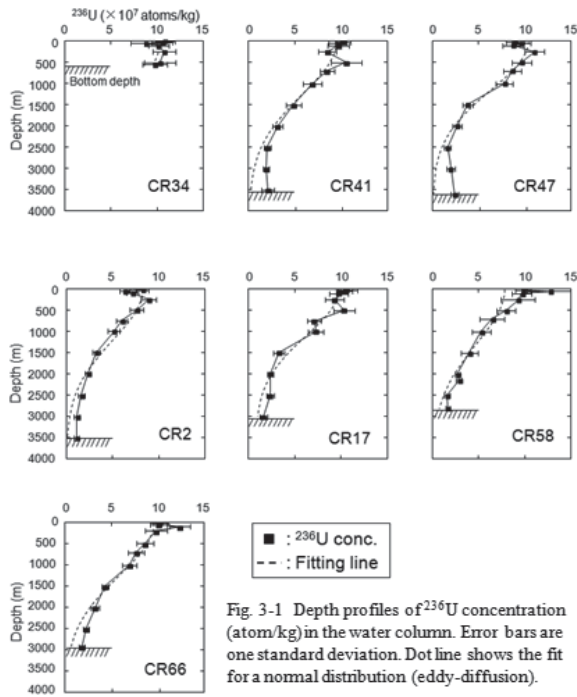


Fig. 3-1 Depth profiles of ^{236}U concentration (atom/kg) in the water column. Error bars are one standard deviation. Dot line shows the fit for a normal distribution (eddy-diffusion).

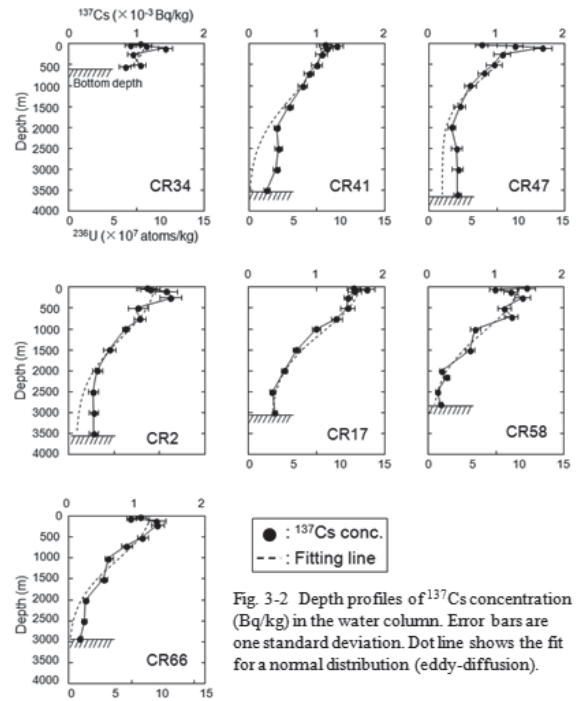


Fig. 3-2 Depth profiles of ^{137}Cs concentration (Bq/kg) in the water column. Error bars are one standard deviation. Dot line shows the fit for a normal distribution (eddy-diffusion).

海水試料中の ^{236}U 濃度を ^{137}Cs 濃度と共に Fig. 3-1, 3-2 に示す. 同図に示した海水中の ^{236}U 濃度は, 1 試料当たり 20 L の海水を用いて精度よく測定したものであるが, ここで得た正確な濃度・同位体比や AMS の仕様を考慮すると, ^{236}U は 1 から数リットルの海水のみでも誤差 5% 以内の精度で十分に測定可能であると推算される. ^{236}U 濃度は, 表層付近で最大値 $(12.7-1.06) \times 10^6 \text{ atom kg}^{-1}$ となり, 深度と共に急激に減少する傾向がみられ, 底層付近で $(0.15-0.19) \times 10^6 \text{ atom kg}^{-1}$ という最小値を得た. この ^{236}U 濃度の深度分布は, 天然に存在する U 同位体 ^{238}U 濃度の深度分布 (鉛直方向に一樣) とは著しく異なる分布であり, ^{236}U が日本海において未だ定常状態に至っていないことを示している. このことは, 海水滞留時間が 100-500 年である日本海において^{16, 21~27)}, 近年の海水循環を明らかにするための最適な時間スケールを兼ね備えたトレーサーの一つであると言える.

この時に得た各地点における海水中の $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 原子比は, 極大値が表層付近で $(1.75-1.32) \times 10^{-9}$, 極小値が底層付近で $(0.20-0.24) \times 10^{-9}$ の範囲内にあり, 濃度とほぼ等しい深度分布となっていた. 海水処理時のコンタミネーションが指摘されているが, 大西洋の 1 地点で測定された結果が正しいとすると²⁸⁾, 今回観測された日本海の海水中 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は, それと等しいか数倍大きい値であった.

各層における懸濁粒子中の ^{236}U 濃度と, 対応する層ごとに平均化した海水中の溶存 ^{236}U 濃度を Table 2 に示す. 各層の懸濁粒子中の ^{236}U 濃度は上部固有水では検出限界以下, またそれ以外の地点では $(6.95-3.67) \times 10^3 \text{ atom kg}^{-1}$ という結果が得られた. この値は海水中の ^{236}U 濃度の約 1/10000-1/1000 であり, ^{236}U は懸濁粒子との反応性を持たず, 大部分の ^{236}U が溶存態として海水中に存在していることが分かった.

Table 2 Concentration of ^{236}U in seawater and suspended solid.

	Depth	^{236}U in SW	^{236}U in SS
	(m)	($\times 10^6 \text{ atom kg-SW}^{-1}$)	($\times 10^3 \text{ atom kg-SW}^{-1}$)
Surface	20-250	9.94 ± 0.23	6.95 ± 6.04
UJSPW	250-1000	9.46 ± 0.26	N.D.
DJSPW	1000-2000	5.63 ± 0.23	3.67 ± 0.97
BJSPW	2000-bottom	2.20 ± 0.08	4.98 ± 1.65

N.D.: Not Detected

UJSPW: Upper Japan Sea Proper Water, DJSPW: Deeper Japan Sea Proper Water
BJSPW: Bottom Japan Sea Proper Water

4.3 日本海における ^{236}U および ^{137}Cs インベントリ

海水中の ^{236}U , ^{137}Cs インベントリおよびその $^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$ 比を Table 3 に示す. 各採取地点の水柱に含まれる ^{236}U , ^{137}Cs インベントリおよび $^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$ 比はそれぞれ $(0.58-1.63) \times 10^{13}$ atom m^{-2} , $(0.58-2.35) \times 10^3$ Bq m^{-2} , $(5.84-9.97) \times 10^9$ atom Bq $^{-1}$ であった. これらは, Table 1 に示した土壌試料測定の結果から得られたインベントリ値とほぼ等しい値となった. 日本の表層土壌中の ^{236}U は, グローバルフォールアウトによって供給されたものであることから, 日本海における ^{236}U の起源は土壌と同じくグローバルフォールアウトが主であり, 核燃料再処理工場など, 他の供給源からの寄与は無視できうる程度であるということが示唆された.

海底堆積物中からも微量な ^{236}U が検出され, 各地点の ^{236}U インベントリは CR34: $(0.89 \pm 0.03) \times 10^{11}$ atom m^{-2} , CR41: $(1.20 \pm 0.06) \times 10^{11}$ atom m^{-2} , CR1: $(1.40 \pm 0.03) \times 10^{11}$ atom m^{-2} と見積もられた. これは, 水柱に含まれる溶存 ^{236}U インベントリ $(0.58-1.63) \times 10^{13}$ atom m^{-2} ; (Table 3) に比べて約 1/100 であり, 粒子態として海底に除去されたのは水柱に存在する量のごくわずかであることが分かった. なお, CR14 で採取した海底堆積物中 ^{137}Cs インベントリは, 37 Bq m^{-2} であり, Ito et al.²⁹⁾ によって報告されている結果と同程度の値であった. 堆積物中の ^{137}Cs インベントリは海水中の ^{137}Cs インベントリに比べて約 1/40 であり, ^{236}U と比較すると 2 倍以上高い結果となった. 海洋における Cs の詳細なスキヤベンジング過程はいまだ明らかになってはいないが, 今回の結果から ^{236}U は ^{137}Cs よりも安定に溶存態として海水中に存在しており, 海水循環トレーサーとしての絶対必要条件を満たしていると言える.

4.4 ^{236}U の海洋循環トレーサーとしての確立

これまでの結果をまとめると, 日本海においてグローバルフォールアウトとして海洋に供給された ^{236}U は主に溶存態として存在し, 海洋循環トレーサーとしてのポテンシャルを有することが分かってきた. そこで, これまで海洋循環トレーサーとして多くの研究で利用されてきた ^{137}Cs の結果と比較検討する.

Cs-137 濃度の深度分布は ^{236}U と同様に表層付近で最大値 1.67-1.29 mBq kg^{-1} となり, 深度と共に急激に減少する傾向がみられた (Fig. 3-2). 最小値は底層付近で観測され, 濃度は 0.17-0.33 mBq kg^{-1} の範囲内であった. これらの濃度幅と深度分布は, 過去に日本海で報告された結果と同程度か, 低い結果となった^{30, 31)}. 濃度が低く得られた理由として, 採取地点の違いなどもあるが, 表層海水中 ^{137}Cs 濃度が下方への拡散などにより減少している³²⁾ のも原因の一つと考えられる. U-236 濃度の深度分布を ^{137}Cs 濃度の深度分布と比較すると, すべての地点において両者はほぼ同様な分布を示した. 両核種の間には, 標準偏差 2σ から外れた CR58 における 50 m と 700 m, CR47 における 50 m と 100 m を除くと $R = 0.9$ 以上の非常に良い相関がみられた. また, グローバルフォールアウトにより 1963 年に局時的に日本海表層に供給された核種が, 渦拡散のみにより深層に供給されたと仮定して ^{236}U と ^{137}Cs の拡散係数を計算した結果, それぞれ $4.10-5.56$ cm^2 s^{-1} , $2.71-5.00$ cm^2 s^{-1} という値が得られた. これらの値は過去に他の保存性核種を用いて算出された値 (^{137}Cs : $1-10$ cm^2 s^{-1} ; Tsumune ら³³⁾, Ra 同位体: 6 cm^2/s ; Tanaka ら³¹⁾) とほぼ等しい値であり, これらの結果からも ^{236}U は日本海において他の保存性核種と同様の挙動を示していると言える.

以上の事より, 半減期が長い人工放射性核種の ^{236}U は, グローバルフォールアウトにより表層環境にもたらさ

Table 3 ^{236}U , ^{137}Cs inventories and $^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$ ratio in seawater column.

Sampling	^{236}U	^{137}Cs	$^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$
Station	($\times 10^{13}$ atom m^{-2})	($\times 10^3$ Bq m^{-2})	($\times 10^9$ atom Bq $^{-1}$)
CR2	1.56 ± 0.06	2.17 ± 0.10	7.17 ± 0.46
CR17	1.37 ± 0.06	2.35 ± 0.06	5.84 ± 0.31
CR34	0.58 ± 0.05	0.58 ± 0.03	9.97 ± 0.93
CR41	1.63 ± 0.09	2.05 ± 0.07	7.96 ± 0.50
CR47	1.59 ± 0.07	1.98 ± 0.10	8.05 ± 0.54
CR66	1.44 ± 0.06	1.52 ± 0.06	9.46 ± 0.52
CR58	1.37 ± 0.08	1.40 ± 0.05	9.82 ± 0.71

れ、海水中では保存性物質として ^{137}Cs と同様に海水の流動と共に移行することが証明された。U-236 の測定に必要な海水量が少ない事(約 1 L)や、試料採取・保存の簡便さ、採取・処理時のより少ないコンタミネーションの可能性など加味すると、今後の海洋循環トレーサーとして非常に有用であると結論付けられる。

4.5 ^{236}U 分布を用いた日本海循環に関する予備的考察

日本海の海水循環において、特に底層水に関してはその観測の難しさから未だに不明瞭な事が多い。底層水循環は、季節変動の他にも突発的な変化により流速や循環様式の変化、さらには複数の異なる海域からの表層水沈み込みによる底層水形成など^{34~36)}、その解明には長期にわたる詳細な観測・研究が必要となる。これまでの研究から、平均すると日本海におけるこの底層水の滞留時間は 100-500 年^{16, 21~27)} と幅があるのも、観測に用いるトレーサーの特徴や観測の難しさに起因していると考えられる。このように、詳細かつ長期的な観測が必要である海水循環であるが、本研究ではその一助として 2010 年夏に観測された ^{236}U 分布から得られる知見について以下に述べる。

Fig. 1 に示した破線 A-B における ^{236}U 濃度の鉛直断面図を Fig. 4 に示す。CR66 は大和堆によって隔離されているため除外した。今回、鉛直断面図を作成するには観測点が少ないため、その解釈には注意が必要であるが、この図から以下のことが言える。40°N から 40.5°N 間における 1000 m 以浅の ^{236}U 濃度分布に急激な変化がみられた。 ^{137}Cs 濃度や塩分、溶存

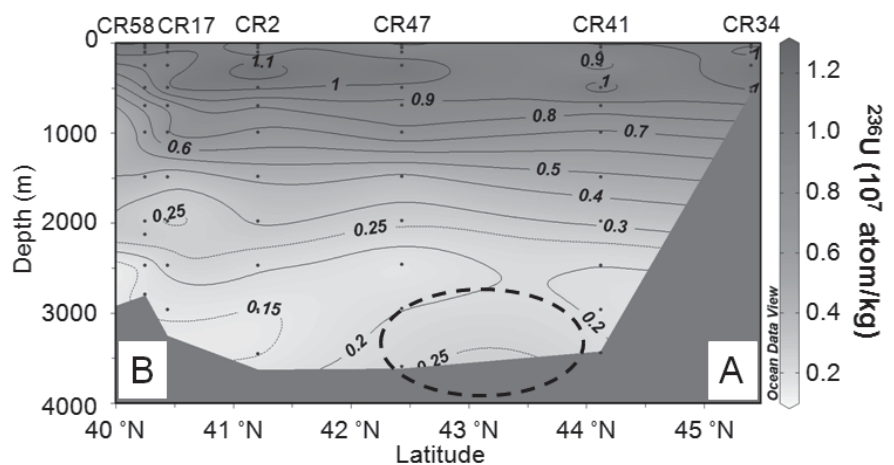


Fig. 4 Contour map of ^{236}U concentration in the Japan Sea through the cross section A to B in the map of Fig. 1. Dashed-line circle shows the water-mass which has high concentration of ^{236}U .

酸素濃度においても同様な変化が確認された。Kumamotoら³⁷⁾によると、40°N 付近において対馬暖流(高塩分、高溶存酸素濃度)とリマン寒流(低塩分、低溶存酸素濃度)由来の異なる水塊が接するため、このような急激な濃度変化を持つ分布がみられたと結論付けている。U-236 や ^{137}Cs で確認された濃度分布に関しても、塩分や溶存酸素濃度と同様に ^{236}U , ^{137}Cs 濃度の異なる北部と南部の表層水が表層対流によって輸送され、両者が 40°N 付近で接触するために、このような濃度変化が激しい分布が形成されたと考えられる。

40.5°N 以北では、表層から 2000 m まで拡散に従った ^{236}U 濃度減少傾向がみられたが、42°N から 44°N 間 (CR41, 47) の 2500-3000 m 以深において顕著な ^{236}U 濃度の増大がみられた。Cs-137 濃度の深度分布についても同様に、日本海北部で採取した試料の 2500-3000 m 以深において顕著な濃度の増加傾向が確認された。CR41 と CR47 に見られた底層での ^{236}U と ^{137}Cs 濃度増大傾向は、4.4 で算出した渦拡散係数に従った濃度分布形成では説明できないことから (Fig. 3 のフィッティングライン参照)、日本海北部の底層に高濃度の ^{236}U と ^{137}Cs を持つ表層水が、縁辺域より海底に沿って沈み込んだ可能性があることを示唆している。

日本海盆北東部における表層水の侵入経路には、いくつかのプロセスが考えられている。例えば、Senjyu ら (2005)³⁸⁾ により提案されている、厳冬季に日本海北西部のウラジオストック沖において沈み込んだ表層水の底層循環による輸送である (Fig. 5)。この深層水循環のモデルでは、ウラジオストック沖で沈み込んだ表層水が、日本海盆南西部、大和堆、大和海盆を経て日本海盆北東部へと運ばれると考えられている。また、Aramaki ら³⁴⁾ では、厳冬季にタタール海峡(間宮海峡)北部で表層から沈み込んだ水塊が、海底の傾斜に沿って南方へ下降

することにより日本海盆底層へ侵入するプロセスを報告している。

ウラジオストク沖において沈み込んだ表層水が Fig. 5 に示した底層循環によって日本海盆北部まで輸送されたとすると、大和堆北部(CR58)の東方向への流れにも、日本海盆北部(CR41)で観察された、底層における ^{236}U 濃度の増大が表れると予想される。しかし、CR58の底層においては ^{236}U 濃度の増大は確認されていない。このことから、今回観測された日本海盆北東部での高 ^{236}U 濃度を持つ底層水は、①ウラジオストク沖から沈み込む表層水に起因するものではない、②ウラジオストク沖から供給された表層水が、 40°N 付近(CR58)を経由せず、別のルートで日本海北部底層へと輸送された、または③ウラジオストク沖から表層水が沈み込み、Fig. 5の循環に従い日本海北部底層へ供給されたが、表層海水の沈み込みは定常的なイベントではないため、その後の深層水の循環によりCR58深層ではすでに高 ^{236}U 濃度の水塊が見えない、という可能性が提案できる。

また、タタール海峡からの表層水供給の可能性については、過去に一時的に沈み込んだ表層海水が、 ^{236}U 濃度の低い底層水の循環系(Fig. 5)内に流れ込むことにより、比較的 ^{236}U 濃度の高い海水が底層付近で局所的に分布したと考えることができる。

今回の結果は人工放射性核種 ^{236}U の海洋循環トレーサーとしての確立を主目的として得られた、日本海で南北方向に限定した単発的な観測データである。今後、各試料採取地点の水温、塩分、溶存酸素濃度および密度データの他、東西方向も含めた経時変化やこれまでの観測パラメータ、他のトレーサーから得られている知見も併せて解析を進めることで、日本海深層水に関する循環が詳細に明らかになることが期待される。

5. 結語

日本海およびその周辺地域において表層土壌、海水、懸濁粒子および海底堆積物中に含まれる人工放射性核種 ^{236}U を測定し、その濃度、蓄積量、存在状態を明らかにすると共に、 ^{137}Cs と比較することで新たな海洋トレーサーとしての確立・利用を試みた。

日本海において、海水試料中の ^{236}U 濃度を測定した結果、20Lの海水から精度よく ^{236}U 測定することに成功し、実際には数リットルの海水で十分測定可能であるということが明らかになった。日本海に存在する ^{236}U の起源は主としてグローバルフォールアウトであり、海水中では溶存態として水柱に存在していることが分かった。また ^{236}U の深度分布は、これまで海水循環のトレーサーとして利用されてきた ^{137}Cs と同様な分布を示しており(濃度相関 $R > 0.9$)、渦拡散係数も近似した値が得られた。これら結果より、人工放射性核種 ^{236}U は半減期の短い ^{137}Cs に代わり海洋循環トレーサーとして利用可能であることが分かった。

日本海大和海盆以北における南北方向の ^{236}U 深度分布から、日本海北部の底層で顕著な濃度の増加が確認された。これは、 ^{236}U 濃度の高い表層水の沈み込みによる痕跡である可能性が示唆されるが、今後、東西方向の観測や経時変化また他のパラメータと併せて解析することで、日本海深層水循環に関する詳細な知見が得られると期待できる。

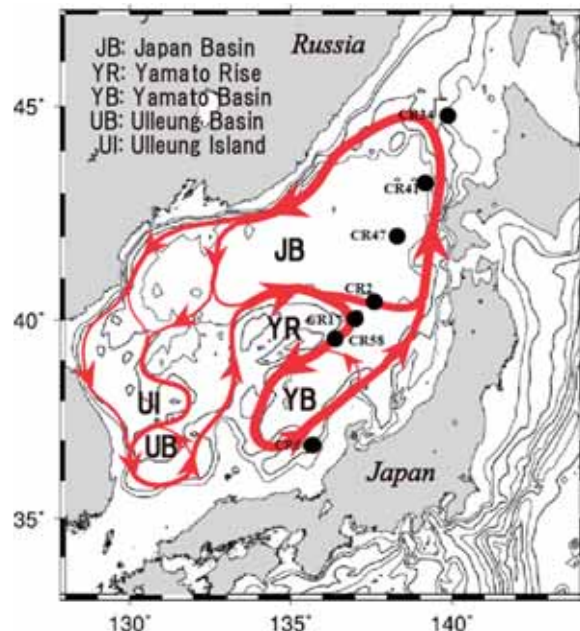


Fig. 5 Circulation model of the deep water (proper water) in the Japan Sea. (Senjyu et al., 2005)

謝辞

本研究を遂行するに当たり、試料採取で多大なるご協力を頂いた白鳳丸 KH-10-2 航海の全ての乗船者に感謝致します。本研究発表の機会を与えて下さった技術センター柴田氏、本稿の作成にあたり推敲に御協力下さった三原氏に感謝致します。本研究は、文部科学省科学研究費補助金 スタート支援、若手(B)(No. 1810018, 23710008)の一部により行われました。

最後に、我々が行う全ての研究において研究試料の作成・測定および器具や研究室整備に関してお世話になっている広島大学技術職員の皆様に深謝致します。

文献

- 1) G. B. Dalrymple: *Special Publications, Geological Society of London* **190** (1), 205, (2001).
- 2) A. Sakaguchi, M. Yamamoto, K. Sasaki, K. Kashiwaya: **35**, 807, (2006).
- 3) A. Sakaguchi, M. Yamamoto, J. Tomita, K. Mino, K. Sasaki, K. Kashiwaya, T. Kawai: *Quatern. Int.*, **205**, 65 (2009).
- 4) S. F. Boulyga, S. F. and Heumann, K. G.: *J. Environ. Radioact.* **88**, 1, (2006).
- 5) S. H. Lee, P. P., Povinec, E. Wyse, M. A. C. Hotchkis: *App. Radiat. Isot.* **66**, 823 (2008).
- 6) M. Srncik, P. Steier, G. Wallner: *Nucl. Instr. and Meth. B*, **268**, 1146, (2010).
- 7) A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, F. Quinto, K. Mino, J. Tomita, M. Hoshi, N. Whitehead, M. Yamamoto: *Sci. Total Environ.*, **407**, 4238 (2009).
- 8) A. Sakaguchi, K. Kawai, P. Steier, T. Imanaka, M. Hoshi, S. Endo, K. Zhumadilov, M. Yamamoto: *Sci. Total Environ.* **408**, 5392 (2010).
- 9) P. Steier, F. Dellinger, O. Forstner, R. Golser, K. Knie, W. Kutschera, A. Priller, F. Quinto, M. Srncik, F. Terrasi, C. Vockenhuber, A. Wallner, G. Wallner, E. M. Wild: *Nucl Instr and Meth B*, **268**, 1045 (2010).
- 10) A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, M. Hoshi, T. Nakakuki, M. Yamamoto: *Earth Planet. Sci. Lett.*, **333**, 165 (2012).
- 11) Aoyama, M., K. Hirose, Y. Igarashi: *J. Environ. Monitor.* **8**, 431 (2006).
- 12) Y. Katsuragi: *Pap. Meteorol. Geophys.*, **33**, 277 (1983).
- 13) M. Uda: *J. imp. Fish. Exp. Sta.*, **5**, 57 (1934) (in Japanese).
- 14) H. Nitani: "On the deep and the bottom waters in the Japan Sea" p.151 (1972) (Researches in Hydrography and Oceanography, Hydrographic Department of Japan, Maritime Safety Agency, Tokyo).
- 15) H. Sudo: *Progr Oceanogr*, **17**, 313 (1986).
- 16) T. Gamo, Y. Horibe,: *J. Oceanogr. Soci. Japan* **39**, 220 (1983).
- 17) H. Minami, Y. Kano, K. Ogawa: *J. Oceanogr*: **55**, 197 (1999).
- 18) K. Kim, k R. Kim, D. H. Min, J. H. Yoon, M. Takematsu: *Geophys. Res. Lett.*, **28**, 3293 (2001).
- 19) K. Bunzl, H. Forster, W. Kracke, W. Schimmack: *J. Environ. Radioactiv.*, **22**, 11 (1994).
- 20) M. H. Lee, C. W. Lee: *J. Environ. Radioactiv.* **47**, 253 (2000).
- 21) M. Christl, J. Lachner, C. Vockenhuber, O. Lechtenfeld, I. Stimac, I., M. R. van der Loeff, H. A. Synal: *Geochim. Cosmochim. Acta.* **77**, 98 (2012).
- 22) T. Ito, S. Otsuka, H. Kawamura: *J. Nucl. Sci. Technol.* **44**, 912 (2007).
- 23) T. Ito, T. Aramaki, T. Kitamura, S. Otsuka, T. Suzuki, O. Togawa, T. Kobayashi, T. Senjyu, E. L.

- Chaykovskaya, E. V. Karasev, T. S. Lishavskaya, V. P. Novichkov, A. V. Tkalin, A. F. Shcherbinin, Y. N. Volkov: *J. Environ. Radioactiv.* **68**, 249 (2003).
- 24) K. Tanaka, M. Inoue, J. Misono, K. Komura: *Chikyukagaku*, **40**, 167 (2006) (in Japanese).
- 25) T. Miyao, K. Hirose, M. Aoyama, Y. Igarashi: *J. Environ. Radioactivity*, **40**, 239 (1998).
- 26) D. Tsumune, H. Suzuki, T. Saegusa, K. Maruyama, C. Ito, N. Watabe: Central Research Institute of Electric Power Industry U98029, p. 1 (1999) (in Japanese).
- 27) T. Aramaki, T. Senjyu, O. Togawa, S. Otsuka, T. Suzuki, H. Kitamura, T. Amano, Y. N. Volkov: *Radiocarbon* **49**, 915 (2007).
- 28) S. Tsunogai, K. Kawada, S. Watanabe, T. Aramaki : *J. Oceanogr.* **59**, 685 (2003).
- 29) 福島, 小嶋: 海上保安庁研究成果報告書 海洋情報部研究報告 **47**, 32-43.
- 30) Y. Kumamoto, M. Yoneda, Y. Shibata, H. Kume, A. Tanaka, T. Uehiro, M. Morita: *Geophys. Res. Lett.* **25**, 651 (1998).
- 31) C. F. Postlethwaite, E. J. Rohling, W. J. Jenkins and C. F. Walker: *Deep-Sea Res. II*, **52**, 1648 (2005).
- 32) 鈴木, 皆川, 外川: 「微量元素海洋学」事始: 海洋の微量元素・同位体研究の動向と今後の展望 (GEOTRACES 計画) 講演要旨集, pp 10-11, 2009 年 1 月 22 日, 東京大学海洋研究所 (2009).
- 33) C. R. Riser, M. J. Warner and G. I. Yurasov: *J. Oceanogr.* **55**, 133 (1999).
- 34) Y. W. Watanabe, S. Watanabe and S. Tsunogai: *Mar. Chem.* **34**, 97 (1991).
- 35) 宮尾, 青山, 広瀬, 五十嵐: 海と空, **74**, 172 (1999).
- 36) K. Harada, S. Tsunogai: *Earth Planet. Sci. Lett.* **77**, 236 (1986).
- 37) Y. Kumamoto, T. Aramaki, S. Watanabe, M. Yoneda, Y. Shibata, O. Togawa, M. Morita, K. Shitashima: *J. Oceanogr.* **64**, 429 (2008).
- 38) T. Senjyu, H. R. Shin, J. H. Yoon, Z. Nagano, H. S. An, S. K. Byun, C. K. Lee: *Deep-Sea Res. II* **52**, 1726 (2005).