

## 日本海大和堆および沿岸周辺海域における $^{226}\text{Ra}$ , $^{228}\text{Ra}$ および $^{137}\text{Cs}$ 濃度の鉛直分布

田 中 究\*・井 上 睦 夫\*・御園生 淳\*\*・小 村 和 久\*

(2006年1月20日受付, 2006年6月29日受理)

### Vertical profiles of $^{226}\text{Ra}$ , $^{228}\text{Ra}$ and $^{137}\text{Cs}$ activities in seawater around the Yamato Ridge and coastal areas of the Sea of Japan

Kiwamu TANAKA\*, Mutsuo INOUE\*, Jun MISONOO\*\* and Kazuhisa KOMURA\*

\* Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University,  
Nomi, Ishikawa 923-1224, Japan

\*\* Marine Ecology Research Institute,  
Chiyoda, Tokyo 101-0051, Japan

To obtain implications for the vertical water mixing within the Sea of Japan, we collected 29 water samples from 2 sites around the Yamato Ridge (3,685 m and 2,610 m depth), and 24 samples from coastal areas (12 sites) along the Japan Island (85-475 m depth) in May-June 2004 and 2005.  $^{226}\text{Ra}$  ( $t_{1/2} = 1,600$  y),  $^{228}\text{Ra}$  (5.75 y) and  $^{137}\text{Cs}$  (30.2 y) were quantitatively coprecipitated by  $\text{BaSO}_4$  and AMP using 20-60 L of water samples, and their activities were measured by low-background  $\gamma$ -spectrometry.

From surface to the Upper Proper water (1-1,000 m), the  $^{228}\text{Ra}$  and  $^{137}\text{Cs}$  activities exhibit gradual decrease from 1.8-0.2 mBq/L and 1.7-0.2 mBq/L, respectively. From the gradient of  $^{228}\text{Ra}$  activity, the vertical eddy diffusivity was calculated to be  $\sim 6$   $\text{cm}^2/\text{s}$  around the Yamato Ridge. In the Deep Proper Water ( $>1,000$  m), the  $^{228}\text{Ra}$  activity keeps approximately constant ( $\sim 0.2$  mBq/L). These vertical distributions are reflecting the intense vertical mixing compared with those in other oceans.

For deep sites of coastal areas ( $>\sim 250$  m depth), the  $^{228}\text{Ra}$  activities of bottom waters are notably lower ( $\sim 0.5$  mBq/L) than those of shallow sites ( $<\sim 250$  m) (0.7-2.2 mBq/L). The exchange of radium between shallow and deep water is inhibited by the boundary layer (thermocline at  $\sim 250$  m depth).

**Key words:**  $^{228}\text{Ra}$  activity,  $^{137}\text{Cs}$  activity, low-background  $\gamma$ -spectrometry, Sea of Japan, vertical mixing

### 1. はじめに

日本海は西北太平洋の代表的な縁辺海の1つである。隣接した海域をつなぐ海峡はいずれも150 m以浅である一方、最大深度3,796 m (平均深度1,350 m)のお盆状の形状をもつことから、周囲の海洋の影響をほとんど受けない独立した深層循環が形成されている。この深層循環により水深200~300 mから海底ま

\* 金沢大学自然計測応用研究センター  
〒923-1224 石川県能美市和気

\*\* 海洋生物環境研究所  
〒101-0051 東京都千代田区神田神保町3-29  
帝国書院ビル5階

で均一な冷水塊（日本海固有水）が存在する（蒲生, 1995）。この日本海においても、地球規模の環境変化および原子力発電所事故やタンカー事故、核廃棄物の不法投棄などによる人為的な汚染物質の流出に備え、固有水を含めた大規模な鉛直混合や、生活に密接する沿岸周辺海域への影響も含めた総合的な研究を進めていくことが必要となってきた。これまで、ポテンシャル水温、塩分、溶存酸素などの海洋物理的手段、あるいは放射性核種（例えば、 $^3\text{H}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , ラジウム同位体）など化学的手法を利用して多くの海洋科学データが蓄積されてきており（e.g., Gamo and Horibe, 1983; Watanabe *et al.*, 1991; Senju *et al.*, 2005）、その物質循環を含む海水循環は、表層を中心に明らかになりつつある。

沿岸堆積物などから供給された海水中のラジウム同位体は、溶存成分として海水とともに移動する（Moore, 1969）。特に、半減期5.75年の $^{228}\text{Ra}$ は、数年から数十年の海水循環を調べる天然放射性核種として、他の核種で解明できない海洋現象の研究（例えば、沿岸堆積物や浅層大陸棚の寄与を受けた海水循環の把握）に有効である。これまでも、沿岸や大陸棚から沖合への水平混合（Kaufman *et al.*, 1973; Inoue *et al.*, 2006）や表層から深層への鉛直混合（Moore, 1972; Trier *et al.*, 1972）などの海水循環の指標核種として古くから利用されてきた。また1950年代半ばから60年代初頭にかけての大気圏内核実験や1986年のチェルノブイリ事故に代表される原子力施設事故により放出されたフォールアウト核種 $^{137}\text{Cs}$ （半減期30.2年）は、ラジウムと同様に海水とともに移動することから、海水循環を探ることが出来る（Aoyama and Hirose, 1995）。日本海における $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$ 濃度の水平および深度分布についても報告がなされており、日本海海水循環に重要な知見をもたらしてきた（Harada and Tsunogai, 1986; Okubo, 1980; Ito *et al.*, 2005）。

その一方で、これらの放射性核種は海水中には極微量しか存在しておらず、特に汚染物質運搬の時間スケールに近い半減期をもつ $^{228}\text{Ra}$ は、温度躍層以深で急激に濃度が下がることから、信頼しうる鉛直分布の報告例は、日本海ばかりか全世界の海洋をみても少ない（Trier *et al.*, 1972; Schmidt *et al.*, 1998）。 $^{228}\text{Ra}$ の定量には、古くから $^{228}\text{Th}$ による $\alpha$ 線法（Moore, 1969）、マンガファイバー（ $\text{MnO}_2$  impregnated fiber）を利用したラジウム回収過程を経た $\gamma$ 線法

（Reid *et al.*, 1979; Moore *et al.*, 1985）などが用いられてきた。これらの手法は多量（200~1,000 L）の海水試料の採取および長時間をかけての複雑な化学処理過程を必要とした。最近の極低バックグラウンド $\gamma$ 線測定法の進歩および化学処理法の確立（Inoue *et al.*, 2005）によって、少量（10 L）の海水試料を用いた容易で短時間の化学処理、ラジウム同位体をはじめとする多核種同時測定が可能になった。さらに検出限界の大幅な低減により、深層海水における $^{228}\text{Ra}$ の精密測定ができるようになった。

本研究では、日本海大和堆の南北に位置する日本海盆と大和海盆、さらに本州沿岸周辺5地域で採取された海水試料に極低バックグラウンド $\gamma$ 線測定を適用し、半減期と供給源の異なるラジウム同位体（ $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ）および $^{137}\text{Cs}$ 濃度の鉛直分布を調べる。その結果から、日本海大和堆周辺および沿岸周辺海域における海水の鉛直混合の解明を試みる。

## 2. 海水試料および実験手順

### 2.1 海水試料

本研究で使用した海水試料の採取地点を Fig. 1 に示す。大和堆付近では、日本海盆に位置する YR 1 地点（水深3,685 m; 40.50°N, 138.00°E）、大和海盆の YR 5 地点（水深2,610 m; 39.22°N, 136.30°E）において、鉛直方向に250~500 m 間隔で、合計29試料を採取した。また沿岸周辺海域では、北海道（HK）、

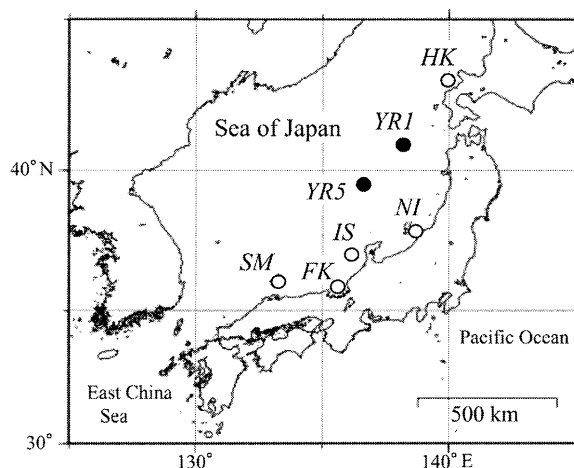


Fig. 1 The sampling locations for off-shore water samples around the Yamato Ridge (the Yamato Basin, YR 1 and the Japan Basin, YR 5) and coastal water samples (SM, FK, IS, NI and HK areas).

新潟 (NI), 石川 (IS) および島根 (SM) で2地点, 福井 (FK) で4地点, 合計12地点 (水深85~475 m) において表層海水および海底直上水 (海底から~20 m 上の海水) を採取した。全ての海水試料は, 第12海工丸の航海において, 2004年5月22日から24日または2005年5月22日から6月4日の期間, バンドン式採水器 (離合社) を使用して採取された。海水試料の採取時にろ過処理はおこなわなかったが, 採取地点において, 他の研究用に海水をろ過したフィルター (0.45  $\mu\text{m}$ ) を入手して $\gamma$ 線測定をおこない,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$  濃度への懸濁粒子の混入による寄与も調べた。

## 2.2 化学処理法

採取された海水試料のうち, 20 L を本研究に使用した。2005年に大和堆付近で採取された海水試料に関しては, より高精度の測定をおこなうため60 L を使用した。採取後, 濃硝酸を加え pH 1 に調製し, 容器壁面への吸着を防いだ。海水試料20 L 当たり, バリウムキャリア320 mg を加え,  $\text{BaSO}_4$ 沈殿としてラジウムを共沈回収した。バリウムキャリアはラジウム汚染の少ない医療用造影剤の  $\text{BaSO}_4$  (堀井薬品工業社製) ( $^{226}\text{Ra}$ , 1.5 mBq/g-Ba;  $^{228}\text{Ra}$ , 検出限界以下) を化学処理により塩酸に可溶な  $\text{BaCO}_3$  に替え,  $\text{Ba}^{2+}$  として加えた。さらに鉄キャリア800 mg を加え, pH 7 に調製し  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  を沈殿させた。これにより, 他のウランおよびトリウム系列核種や宇宙線放射線核種 $^7\text{Be}$  などの回収も可能となる。 $^{137}\text{Cs}$  は,  $\text{BaSO}_4$ ,  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  を取り除いた上澄み液から, リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) 4 g を使用し, 共沈回収した。 $\text{BaSO}_4$ ,  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  および AMP は, それぞれ乾燥した後均一に混合し, 半径15 mm の円柱状に成形して $\gamma$ 線測定用試料とした (2005年採取の YR 1, YR 5 試料に関しては,  $\text{BaSO}_4$ ,  $\text{Fe}(\text{OH})_3$  と AMP を別試料とした)。本化学処理過程におけるラジウム同位体および $^{137}\text{Cs}$  の平均回収率は, それぞれ  $\text{BaSO}_4$  の回収率, および AMP 共沈処理前後の海水試料におけるセシウム濃度 ( $^{137}\text{Cs}$ ) の比較より, それぞれ 79%, 94% と見積もられた。本化学処理法については, Inoue *et al.* (2005) に詳しい。

以上の化学処理過程における化学試薬の影響は, バリウムキャリアの $^{226}\text{Ra}$  濃度への寄与が $< \sim 3\%$ 以下である以外は, 無視しうる程度であった。また, ろ過によりフィルターで集めた懸濁粒子の $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$  濃度から見積もった, 懸濁粒子混入による海

水の各核種濃度への寄与は,  $^{226}\text{Ra}$  で $\sim 5\%$ 以下,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  においては, 無視しうる程度であった。

## 2.3 極低バックグラウンド $\gamma$ 線測定

微弱放射性核種の検出には, 石川県小松市の尾小屋地下測定室 (水深換算270 m) 内に設置した低バックグラウンド仕様で検出効率の高い井戸型ゲルマニウム検出器4台 (相対効率; 73.5%, 70.5%, 56%, 51%) を使用した (Hamajima and Komura, 2004)。これにより, 日本海固有水においても $^{228}\text{Ra}$  濃度の測定が可能となった。尾小屋地下測定室を利用した極低バックグラウンド $\gamma$ 線測定の効果については, Appendix にまとめた。

海水試料は線源作製後, 3週間以上放置して,  $^{222}\text{Rn}$  (半減期3.83日) が $^{226}\text{Ra}$  と放射平衡になった後, 表層海水試料は約4日間, 固有水試料は約7日間測定した。 $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$  濃度は, それぞれ $^{214}\text{Pb}$  (295, 352 keV),  $^{228}\text{Ac}$  (338, 911 keV) および $^{137}\text{Cs}$  (662 keV) のピークから見積もった。既知量のウラン系列核種標準試料 (New Brunswick Laboratory; NBL-42-1) および KCl を加えた海水試料の模擬試料 (海水試料とほぼ同じ化学組成をもつ標準試料) を使用することにより,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$  濃度を得た。 $\gamma$ 線測定の際のバックグラウンドの寄与は,  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$  に対して, それぞれ $< 1 \sim 2\%$ ,  $1 \sim 10\%$ ,  $2 \sim 6\%$ であった。

## 3. 結果および考察

大和堆付近および沿岸周辺地域の海水試料における $\gamma$ 線測定の結果を Table 1 および Table 2 に示した。 $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$  の計数誤差 ( $1\sigma$ ) は, それぞれ  $1 \sim 5\%$ ,  $3 \sim 20\%$  および  $5 \sim 10\%$  であった。

### 3.1 大和堆付近の海水の鉛直混合

2004年および2005年に採取された大和堆付近の海水における $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  濃度,  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比および $^{137}\text{Cs}$  濃度の鉛直分布を, ポテンシャル水温, 塩分の変化とともに, それぞれ Fig. 2, Fig. 3 にまとめた。本稿では, 水温の鉛直分布より250 m を表層水と固有水を分ける温度躍層とし, 固有水層においては, 水深1,000 m を上部固有水と下部固有水の境界とした (Sudo, 1986)。

2005年の海水試料においては, YR 1, YR 5 地点で共通して,  $^{226}\text{Ra}$  濃度は表面 (YR 1, 1.3 mBq/L; YR 5, 1.8 mBq/L) から上部固有水において増加傾向を示すが, それ以深では $\sim 2.6$  mBq/L とほぼ一定

であった (Fig. 3 a)。これは大和堆付近で報告のある  $^{226}\text{Ra}$  濃度の鉛直分布 (Harada and Tsunogai, 1986) と同じ傾向である。この下部固有水層にみられる高い  $^{226}\text{Ra}$  濃度は、表層からの沈降による  $^{226}\text{Ra}$  の供給, または長期間深層にとどまる日本海固有水が、海底から  $^{226}\text{Ra}$  の継続的な供給を受けたためと推測される。 $^{226}\text{Ra}$  濃度が一定値を示したのは、表層または

海底から供給された  $^{226}\text{Ra}$  が盛んな鉛直混合により均一になっているためと考えられる。

日本海の大和堆付近の表層海水については、 $^{228}\text{Ra}$  濃度の報告があり (1.8 mBq/L; Okubo, 1980), 本研究の結果とほぼ一致する。 $^{228}\text{Ra}$  濃度の深度分布は 2 地点とも、表層 (YR 1, 1.2 mBq/L; YR 5, 1.8 mBq/L) から上部固有水 (0.2 mBq/L) へと深さとと

Table 1  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  activities and  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio and  $^{137}\text{Cs}$  activity around the Yamato Ridge.

site	sample	sampling (y.m.d)	depth (m)	salinity (PSU)	$^{226}\text{Ra}$ (mBq/L)	$^{228}\text{Ra}$ (mBq/L)	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio	$^{137}\text{Cs}$ (mBq/L)	
YR1	40.50N	YR1-0-0405	2004/5/22	1.3	33.90	n.a.	n.a.	0.63 ± 0.05	1.48 ± 0.08
	138.00E	YR1-1-0405	2004/5/22	250	34.07	n.a.	n.a.	0.31 ± 0.03	1.57 ± 0.06
		YR1-2-0405	2004/5/22	500	34.08	n.a.	n.a.	0.13 ± 0.03	1.61 ± 0.04
		YR1-3-0405	2004/5/22	750	34.07	n.a.	n.a.	0.14 ± 0.03	1.60 ± 0.04
		YR1-4-0405	2004/5/22	1000	34.07	n.a.	n.a.	0.04 ± 0.03	1.35 ± 0.05
		YR1-5-0405	2004/5/22	1500	34.07	n.a.	n.a.	0.07 ± 0.03	0.86 ± 0.04
		YR1-6-0405	2004/5/22	2000	34.07	n.a.	n.a.	0.07 ± 0.02	0.33 ± 0.03
		YR1-9-0405	2004/5/22	3560	34.07	n.a.	n.a.	0.17 ± 0.04	0.53 ± 0.03
YR5	39.22N	YR5-0-0405	2004/5/24	1.1	34.10	n.a.	n.a.	0.82 ± 0.06	1.98 ± 0.06
	136.30E	YR5-1-0405	2004/5/24	250	34.07	n.a.	n.a.	0.17 ± 0.03	1.57 ± 0.04
		YR5-2-0405	2004/5/24	500	34.07	n.a.	n.a.	0.05 ± 0.02	1.24 ± 0.04
		YR5-3-0405	2004/5/24	750	34.07	n.a.	n.a.	0.09 ± 0.02	1.29 ± 0.04
		YR5-4-0405	2004/5/24	1000	34.07	n.a.	n.a.	0.06 ± 0.02	0.84 ± 0.04
		YR5-5-0405	2004/5/24	1250	34.07	n.a.	n.a.	0.10 ± 0.02	0.47 ± 0.02
		YR5-6-0405	2004/5/24	1500	34.07	n.a.	n.a.	0.15 ± 0.03	0.46 ± 0.03
		YR5-9-0405	2004/5/24	2610	34.07	n.a.	n.a.	0.09 ± 0.02	0.35 ± 0.03
YR1	40.50N	YR1-0-0505	2005/5/27	1.8	34.03	1.31 ± 0.04	1.24 ± 0.06	0.95 ± 0.06	1.52 ± 0.10
	138.00E	YR1-1-0505	2005/5/27	250	34.07	1.57 ± 0.03	0.54 ± 0.04	0.34 ± 0.03	1.72 ± 0.09
		YR1-2-0505	2005/5/27	500	34.07	2.22 ± 0.04	0.41 ± 0.04	0.18 ± 0.02	1.51 ± 0.08
		YR1-3-0505	2005/5/27	750	34.07	2.26 ± 0.04	0.20 ± 0.02	0.09 ± 0.01	1.40 ± 0.08
		YR1-4-0505	2005/5/27	1000	34.07	2.37 ± 0.04	0.17 ± 0.03	0.07 ± 0.01	1.14 ± 0.09
		YR1-5-0505	2005/5/27	1500	34.07	2.61 ± 0.05	0.17 ± 0.03	0.07 ± 0.01	0.70 ± 0.05
		YR1-6-0505	2005/5/27	2000	34.06	2.76 ± 0.04	0.16 ± 0.03	0.06 ± 0.01	0.43 ± 0.03
		YR1-9-0505	2005/5/27	3610	34.06	2.56 ± 0.03	0.10 ± 0.02	0.04 ± 0.01	0.17 ± 0.02
YR5	39.22N	YR5-0-0505	2005/5/27	1.5	34.21	1.75 ± 0.07	1.78 ± 0.11	1.02 ± 0.08	1.76 ± 0.09
	136.30E	YR5-1-0505	2005/5/27	300	34.07	2.09 ± 0.05	0.51 ± 0.05	0.24 ± 0.02	1.51 ± 0.07
		YR5-2-0505	2005/5/27	750	34.07	2.24 ± 0.03	0.21 ± 0.02	0.09 ± 0.01	1.00 ± 0.07
		YR5-3-0505	2005/5/27	1500	34.07	2.52 ± 0.03	0.17 ± 0.02	0.07 ± 0.01	0.71 ± 0.05
		YR5-9-0505	2005/5/27	2610	34.06	2.57 ± 0.03	0.18 ± 0.02	0.07 ± 0.01	0.64 ± 0.03

"n.a." denotes unknown yield of  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$

Table 2  $^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Ra}$  activities and  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio and  $^{137}\text{Cs}$  activity of coastal samples.

area	site	sample	depth (m)	salinity (PSU)	$^{226}\text{Ra}$ (mBq/L)	$^{228}\text{Ra}$ (mBq/L)	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio	$^{137}\text{Cs}$ (mBq/L)
HK	HK1	HK1-505S	1	33.22	1.54 ± 0.08	1.49 ± 0.12	0.97 ± 0.09	1.82 ± 0.07
	(43.10N, 140.16E)	HK1-505B	327	34.07	2.20 ± 0.07	0.45 ± 0.07	0.20 ± 0.03	1.52 ± 0.05
		HK3	HK3-505S	2	34.06	1.38 ± 0.07	1.13 ± 0.10	0.82 ± 0.09
	(43.02N, 140.18E)	HK3-505B	460	34.06	2.19 ± 0.06	0.35 ± 0.06	0.16 ± 0.03	1.42 ± 0.04
NI	NI1	NI1-505S	2	33.33	1.52 ± 0.07	1.06 ± 0.10	0.69 ± 0.07	1.69 ± 0.06
	(37.56N, 138.37E)	NI1-505B	350	34.07	2.39 ± 0.08	0.68 ± 0.06	0.29 ± 0.03	1.46 ± 0.05
		NI2	NI2-505S	2	32.79	1.72 ± 0.07	1.23 ± 0.09	0.72 ± 0.06
	(37.50N, 138.35E)	NI2-505B	475	34.07	3.02 ± 0.08	0.71 ± 0.07	0.23 ± 0.02	1.31 ± 0.04
IS	IS1	IS1-506S	1	34.31	1.26 ± 0.05	0.92 ± 0.10	0.73 ± 0.08	1.53 ± 0.05
	(37.17N, 136.27E)	IS1-506B	1	34.39	1.78 ± 0.07	2.18 ± 0.15	1.22 ± 0.10	1.72 ± 0.06
		IS2	IS2-506S	1	34.61	1.40 ± 0.06	1.07 ± 0.11	0.76 ± 0.08
	(37.08N, 136.26E)	IS2-506B	175	34.22	1.81 ± 0.07	1.87 ± 0.15	1.03 ± 0.09	1.66 ± 0.06
FK	FKE2	FKE2-506S	2	34.44	1.41 ± 0.06	0.74 ± 0.08	0.53 ± 0.06	1.87 ± 0.07
	(35.57N, 135.50E)	FKE2-506B	245	34.09	2.13 ± 0.08	0.93 ± 0.09	0.44 ± 0.05	1.75 ± 0.07
		FKE4	FKE4-506S	2	34.58	1.46 ± 0.08	0.96 ± 0.10	0.66 ± 0.08
	(35.58N, 135.42E)	FKE4-506B	255	34.07	2.05 ± 0.08	1.20 ± 0.11	0.58 ± 0.06	1.39 ± 0.06
	FKW2	FKW2-506S	1	34.61	1.87 ± 0.06	0.82 ± 0.08	0.44 ± 0.05	1.88 ± 0.06
	(35.50N, 135.35E)	FKW2-506B	185	34.32	1.93 ± 0.10	1.49 ± 0.15	0.77 ± 0.09	1.65 ± 0.09
		FKW4	FKW4-506S	1	34.55	1.48 ± 0.07	0.70 ± 0.10	0.47 ± 0.07
	(35.45N, 135.30E)	FKW4-506B	120	34.66	1.73 ± 0.06	0.70 ± 0.07	0.40 ± 0.04	1.73 ± 0.05
SM	SM1	SM1-506S	2	34.62	1.41 ± 0.06	0.66 ± 0.07	0.47 ± 0.05	1.12 ± 0.05
	(35.47N, 133.12E)	SM1-506B	65	34.65	2.16 ± 0.06	1.06 ± 0.07	0.49 ± 0.04	1.85 ± 0.07
		SM3	SM3-506S	1	34.65	0.89 ± 0.05	0.52 ± 0.08	0.58 ± 0.09
	(35.48N, 132.56E)	SM3-506B	95	34.63	1.97 ± 0.07	0.86 ± 0.09	0.44 ± 0.05	1.44 ± 0.06

もに単調に減少した (Fig. 3 b)。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比は、主に $^{228}\text{Ra}$  濃度の鉛直分布を反映して (Fig. 3 c) 変化しており、2004年の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比 (Fig. 2 a) も、この2005年の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比の深度分布の特徴と一致する。

海洋における海水循環速度の指標として、鉛直渦動拡散係数 (vertical eddy diffusivity;  $D$ ) が用いられる (e.g., 角皆, 1972; Moore, 1972)。日本海沖合表層では、 $\sim 2 \text{ cm}^2/\text{s}$  という拡散係数が報告されている

(Okubo, 1980)。 $^{228}\text{Ra}$  濃度の高精度測定の結果,  $YR 1$ ,  $YR 5$  ともに、表層から上部固有水層 (水深  $1 \sim 1,000 \text{ m}$ ) における鉛直渦動拡散係数として、 $\sim 6 \text{ cm}^2/\text{s}$  という値が得られた。この結果は、太平洋および大西洋表層海水の鉛直渦動拡散係数 ( $D=0.1\sim 1.6 \text{ cm}^2/\text{s}$ ; Kaufman *et al.*, 1973; Moore, 1972) と比べ、かなり高く、表層海水を供給源とした場合、大和堆付近においては、他の海洋に比べ、表層から上部固有水層

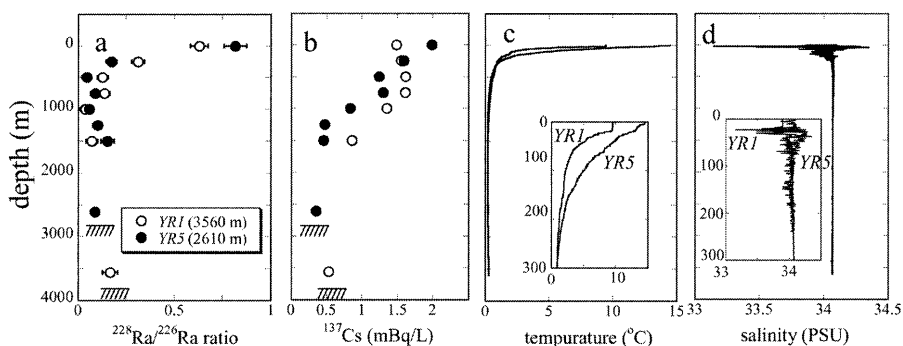


Fig. 2 Vertical profiles of a)  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio, b)  $^{137}\text{Cs}$  activity, c) potential temperature and d) salinity of off-shore water samples collected around the Yamato Ridge (May 22-24, 2004)

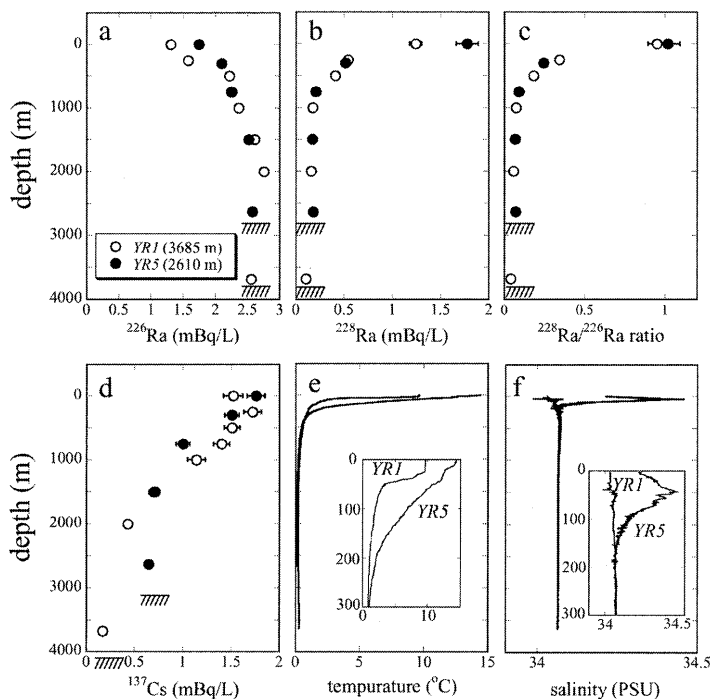


Fig. 3 Vertical profiles of a)  $^{226}\text{Ra}$  activity, b)  $^{228}\text{Ra}$  activity, c)  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio, d)  $^{137}\text{Cs}$  activity, e) potential temperature, and f) salinity of off-shore water samples collected around the Yamato Ridge (May 26-27, 2005)

にかけ盛んな鉛直混合が示唆される。これに対し、下部固有水層 (1,000 m 以深) における $^{228}\text{Ra}$  濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比は、それぞれ0.2 mBq/L および $\sim 0.07$  であり、深さによる大きな変動はみられなかった。これまでに報告のある大西洋 ( $^{228}\text{Ra} = \sim 0.01$  mBq/L,  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra} = \sim 0.05$ ; Moore, 1972), 北大西洋 ( $^{228}\text{Ra} = \sim 0.05$  mBq/L; Trier *et al.*, 1972) の $^{228}\text{Ra}$  濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比は、これより低い値を示し、さらに北大西洋における $^{228}\text{Ra}$  濃度は海底付近で増加傾向がみられている。下部固有水層においては、 $^{228}\text{Ra}$  についても、他の海洋に比べ大きく、表層のみならず海底からのラジウムの寄与を含む供給が考えられる。さらに $^{228}\text{Ra}$  濃度がほぼ一定になっていることから、大きい鉛直混合が推測される。大和海盆域の下部固有水においては、上部固有水より大きな鉛直渦動拡散係数 ( $34 \text{ cm}^2/\text{s}$ ; Senjyu *et al.*, 2005) が報告されている。表層、海底双方からの供給にさらされているなど $^{228}\text{Ra}$  濃度による鉛直渦動拡散係数の算出は困難であるが、下部固有水では、上部固有水よりも著しく盛んな循環があると推定される。

一方、 $^{137}\text{Cs}$  濃度は、YR 1 では水深250 m, YR 5 では表面 (1 m) においてそれぞれ最大値 (1.7 mBq/L) を示し、それ以深では深度とともに減少する特徴がみられた (Figs. 2 b, 3 d)。2004年に比べ2005年の海水試料でこの傾向が顕著であった。これは塩分濃度の鉛直分布と矛盾がない (Fig. 2 d, 3 f)。このように日本海沖合表層の $^{137}\text{Cs}$  の最大濃度の深度が異なることは既に報告がある (Ito *et al.*, 2003)。日本海盆域 (YR 1) に比べ大和海盆域 (YR 5) における表層水の高い塩分、ポテンシャル水温 (Figs. 2 c, 2 d, 3 e, 3 f) は、Senjyu and Sudo (1994) で報告されているように、大和堆周辺の北緯 $40^\circ$  近辺による暖流、寒流域の境界を示唆する。 $^{137}\text{Cs}$  濃度の鉛直分布の違いは、YR 1 と YR 5 の表層が、異なる水塊から構成されていることを示す。これに対し、 $^{228}\text{Ra}$  濃度の鉛直分布の特徴に違いはみられなかった。 $^{137}\text{Cs}$  の大部分が大気圏内核実験で供給されたのに対し、 $^{228}\text{Ra}$  は沿岸堆積物からの定常的な供給にさらされている、または $^{137}\text{Cs}$  がその供給後の数十年のスケールでの海水循環を示すのに対し、短半減期の $^{228}\text{Ra}$  では、明確な差がみられないなど、両核種の供給時期や半減期の違いを反映していると考えられる。さらに下部固有水における $^{137}\text{Cs}$  濃度の鉛直分布は、YR 5 において一定、YR 1 では緩やかな減少を示すなど、2地

点で異なる特徴がみられた (Fig. 3 d)。北太平洋における $^{137}\text{Cs}$  濃度は、水深が深くなるにつれて急激な減少がみられたが (水深1,000 m で $\sim 0.2$  mBq/L; Hirose *et al.*, 2005), 大和堆付近では海底付近でも高濃度に存在する ( $0.2 \sim 0.6$  mBq/L)。フォールアウト核種 $^{137}\text{Cs}$  は、表層水からの供給のみであることから (Miyao *et al.*, 1998), 上部、下部固有水 (特に YR 5) においては北太平洋などに比べ鉛直混合が盛んなことを示す。

### 3.2 沿岸周辺海水の鉛直混合

日本海沿岸周辺海水の $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$  濃度,  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比,  $^{137}\text{Cs}$  濃度, ポテンシャル水温および塩分の鉛直分布を Fig. 4 に示す。

$^{226}\text{Ra}$  濃度は、表層 ( $1.3 \sim 2$  mBq/L) に比べ、海底直上水で高い値 ( $1.7 \sim 3$  mBq/L) を示した (Fig. 4 a)。 $^{226}\text{Ra}$  濃度の鉛直分布は、前述の大和堆付近と類似していることから、沿岸周辺海域においても、海底からの継続的な供給など大和堆付近と同じ $^{228}\text{Ra}$  の供給・移動メカニズムが働いているものと推測される。 $^{228}\text{Ra}$  濃度は、水深 $\sim 200$  m 以浅の地点においては規則的な傾向はみられないが、水深の深い北海道 (HK, 水深460 m), 新潟 (NI, 475 m) では、海底直上水が明らかに低い値 ( $0.4 \sim 0.7$  mBq/L) を示す (Fig. 4 b)。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比は、 $^{228}\text{Ra}$  濃度の鉛直分布とほぼ同じ傾向を示す (Fig. 4 c)。日本海沿岸周辺地域においても、大和堆付近と同様に、温度躍層 (Fig. 4 e) が表層海水と海底直上水との鉛直混合を妨げていると考えられる。さらに HK 海域が NI 海域よりも $^{228}\text{Ra}$  濃度の減少幅が大きいなど、2地域においても差がみられた (渦動拡散係数が、それぞれ  $5 \text{ cm}^2/\text{s}$ ,  $30 \text{ cm}^2/\text{s}$ )。これは沿岸域の各環境における異なるラジウムの供給・循環過程を示唆する。NI 海域による鉛直混合が HK 海域より盛んである、または NI 海域の海底からのラジウムの供給が HK 海域より顕著であるものと推測される。

1990年前後の福井県沿岸周辺海域 (若狭湾) においては、上部固有水層 ( $1.6$  mBq/L) に比べ表層海水の $^{137}\text{Cs}$  濃度が高い ( $3.9$  mBq/L) 傾向がみられた (Kasamatsu *et al.*, 1994)。これに比較し、本研究では、表層 ( $1.9$  mBq/L) と上部固有水 ( $1.4$  mBq/L) の $^{137}\text{Cs}$  濃度差が小さくなっている。海水循環の影響による $^{137}\text{Cs}$  濃度の鉛直分布の経年変化は、日本海沖でも報告されている (Ito *et al.*, 2005)。沿岸海域においても、沿岸海水循環により、表層海水の $^{137}\text{Cs}$  濃度

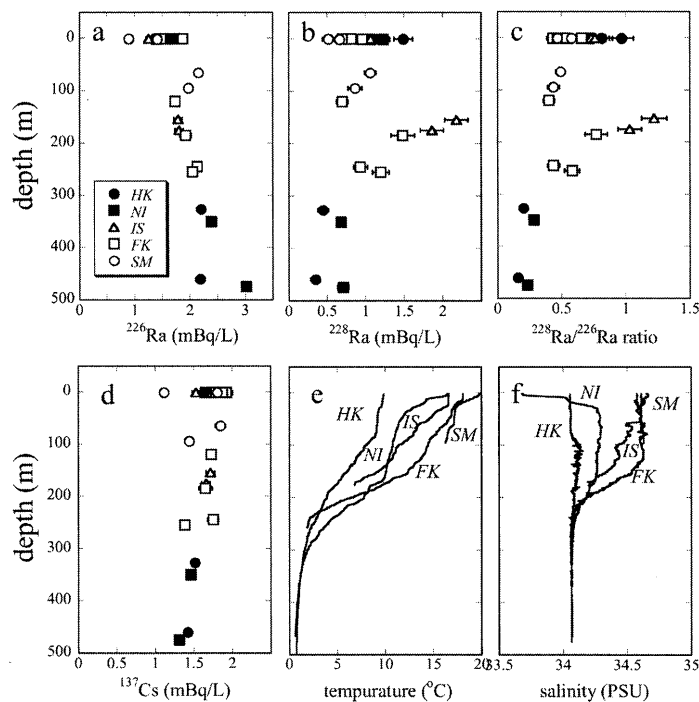


Fig. 4 Vertical profiles of a)  $^{226}\text{Ra}$  activity, b)  $^{228}\text{Ra}$  activity, c)  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio, d)  $^{137}\text{Cs}$  activity, e) potential temperature and f) salinity of surface and bottom water (70-460 m) from sites *HK*, *NI*, *IS*, *FK*, and *SM* (May 22-June 4, 2005).

が壊変による半減期30.2年より早く（見かけ上の半減期, 16年; Miyao *et al.*, 1998）減少したためと考えられる。

#### 4. ま と め

2004年および2005年の5月から6月にかけて、日本海の大和堆付近を取り巻く日本海盆 (*YR 1*; 深度3,685 m, 40.50°N, 138.00°E), 大和海盆 (*YR 5*; 深度2,610 m, 39.22°N, 136.30°E) の2地点, および本州—北海道沿岸周辺の5海域（島根, 福井, 石川, 新潟, 北海道）, 12地点（水深85~475 m）において鉛直方向に, 合計53個の海水試料を採取した。極低バックグラウンド $\gamma$ 線測定を適用し,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$  濃度を測定した。

大和堆付近では,  $^{226}\text{Ra}$  濃度は表層 (*YR 1*, 1.3 mBq/L; *YR 5*, 1.8 mBq/L) から上部固有水において増加傾向を示すが, 下部固有水では $\sim 2.6$  mBq/L とほぼ一定であった。 $^{228}\text{Ra}$  濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比は, 表層 (*YR 1*, 1.2 mBq/L, 1.0; *YR 5*, 1.8 mBq/L, 1.0) から上部固有水層 ( $\sim 0.4$  mBq/L,  $\sim 0.07$ )

へと単調に減少,  $\sim 6$  cm<sup>2</sup>/s という太平洋および大西洋より大きな鉛直渦動拡散係数が得られた。さらに下部固有層における $^{228}\text{Ra}$  濃度はほぼ一定 ( $\sim 0.2$  mBq/L) であったことから, 下部固有水層においては, 上部固有水以上に盛んな鉛直循環が推測される。一方,  $^{137}\text{Cs}$  濃度は, *YR 1* で250 m, *YR 5* においては表面で最大値 (1.7 mBq/L) と異なる特徴を示したが, これは日本海盆域と大和堆盆域の表層水が別の水塊から構成されていることを反映する。下部固有水層の $^{137}\text{Cs}$  濃度には, 大きな変動はみられないことから (特に *YR 5*),  $^{228}\text{Ra}$  同様に大きな鉛直混合の存在を示す。

日本海沿岸周辺の $^{228}\text{Ra}$  濃度は, 温度躍層 ( $\sim 200$  m) 以深で減少し, この傾向は, 新潟沿岸より北海道沿岸において顕著であった。これら2地域が異なる海水の鉛直混合にさらされている, または海底からのラジウムの供給量が異なることが示唆された。一方, 表層 (1.9 mBq/L) と上部固有水層 (1.4 mBq/L) の $^{137}\text{Cs}$  濃度の差は縮まりつつある。海水循環の影響により, 表層海水の $^{137}\text{Cs}$  が半減期より早く減少するためと考

えられる。

### 謝 辞

本研究で用いた海水試料は、海洋環境放射能総合評価事業で海洋生物環境研究所（海生研）が採取したものの一部を、水温、塩分のデータとともに、使用した。海水をろ過したフィルターは海生研・稲富直彦主査研究員より提供を受けた。第12海工丸、株式会社環境総合テクノスの皆様には大変お世話になりました。金沢大学自然計測応用研究センター山本政儀教授、日本海洋科学振興財団むつ海洋研究所小藤久毅氏には有益なご助言を頂きました。査読者の方々には本稿査読の際、貴重なご意見を頂きました。記してお礼申し上げます。

(2005年10月18日 Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry, Beijing において発表)

### 参 考 文 献

- Aoyama, M. and Hirose, K. (1995) The temporal and spatial variation of  $^{137}\text{Cs}$  concentration in the western North Pacific and its marginal seas during the period from 1979 to 1988. *J. Environ. Radioactivity* **29**, 5-74.
- 蒲生俊敬 (1995) 日本海の底層循環. 科学, **65**, 316-323.
- Gamo, T. and Horibe, Y. (1983) Abyssal circulation in the Japan Sea. *J. Oceanogr. Soc. Jpn.* **39**, 220-230.
- Hamajima, Y. and Komura, K. (2004) Background components of Ge detectors in Ogoya underground laboratory. *Applied Radiation and Isotopes* **61**, 179-183.
- Harada, K. and Tsunogai, S. (1986)  $^{226}\text{Ra}$  in the Japan Sea and the residence time of the Japan Sea water. *Earth Planet. Sci. Lett.* **77**, 236-244.
- Hirose, K., Aoyama, M., Igarashi, Y. and Komura, K. (2005) Extremely low background measurements of  $^{137}\text{Cs}$  in seawater samples using an underground facility (Ogoya). *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **263**, 349-353.
- Inoue, M., Kofuji, H., Yamamoto, M. and Komura, K. (2005) Seasonal variation of  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio in seaweed - Inference on the environmental changes of the coastal area, Noto Peninsula, Japan - . *J. Environ. Radioactivity* **80**, 341-355.
- Inoue, M., Tanaka, K., Watanabe, S., Kofuji, H., Yamamoto, M. and Komura, K. (2006) Seasonal variations in  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio within coastal waters of the Sea of Japan: implications for water circulation patterns in coastal areas. *J. Environ. Radioactivity* **89**, 138-149.
- Ito, T., Aramaki, T., Kitamura, T., Ootosaka, S., Suzuki, T., Togawa, O., Kobayashi, T., Senjyu, T., Chaykovskaya, E. L., Karasev, E. V., Lishavskaya, T. S., Novichkov, V. P., Tkalin, A. V., Shcherbinin, A. F. and Volkov, Y. N. (2003) Anthropogenic radionuclides in the Japan Sea: their distributions and transport processes. *J. Environ. Radioactivity* **68**, 249-267.
- Ito, T., Aramaki, T., Kitamura, T., Ootosaka, S., Suzuki, T., Togawa, O., Kobayashi, T., Kawamura, H., Amano, H., Senjyu, T., Chaykovskaya, E. L., Lishavskaya, T. S., Karasev, E. V., Novichkov, V. P., Tkalin, A. V., Shcherbinin, A. F., Tkalin, A. V. and Volkov, Y. N. (2005) Anthropogenic radionuclides in seawater of the Japan Sea. The results of recent observations and the temporal change of concentrations. *J. Nucl. Sci. Tech.* **42**, 90-100.
- Kasamatsu, F., Ueda, Y., Tomizawa, T., Nonaka, N. and Nagaya, Y. (1994) Preliminary report on radionuclide concentrations in the bottom waters at the entrance of Wakasa Bay with special reference to the Japan Sea Proper Water. *J. Oceanogr.* **50**, 589-598.
- Kaufman, A., Trier, R. M. and Broecker, W. S. (1973) Distribution of  $^{228}\text{Ra}$  in the world ocean. *J. Geophys. Res.* **78**, 8827-8848.
- Miyao, T., Hirose, K., Aoyama, M. and Igarashi, Y. (1998) Temporal Variation of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in the Sea of Japan. *J. Environ. Radioactivity* **40**, 239-250.
- Moore, W. S. (1969) Measurements of  $^{228}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Th}$  in seawater. *J. Geophys. Res.* **74**, 694-704.
- Moore, W. S. (1972) Radium-228: Application to Thermocline mixing studies. *Earth Planet. Sci. Lett.* **16**, 421-422.
- Moore, W. S., Key, R. M. and Sarmiento, J. L. (1985)



- Techniques for precise mapping of <sup>226</sup>Ra and <sup>228</sup>Ra in the ocean. *J. Geophys. Res.* **90**, 6983–6994.
- Nir-El, Y. (2001) Minimum detectable activity in gamma-ray spectrometry – Statistical properties and limits of applicability. *The Radiation Protection Journal* **80**, S 22–25.
- Okubo, T. (1980) Radium-228 in the Japan Sea. *J. Oceanogr. Soc. Jpn* **36**, 263–268.
- Reid, D. F., Key, R. K. and Schink, D. R. (1979) Radium, thorium, and actinium extraction from seawater using an improved manganese-oxide-coated fiber. *Earth Planet. Sci. Lett.* **43**, 223–226.
- Schmidt, S., Reyss, J. -L., Landré, F. and Boust, D. (1998) Distributions and fluxes of <sup>226</sup>Ra and <sup>228</sup>Ra in the Irish Sea and in the English Channel, in relation to hydrological conditions and sediment interactions. *Radiation Protection Dosimetry* **75**, 65–67.
- Senjyu, T. and Sudo, H. (1994) The upper portion of the Japan Sea Proper Water; Its source and circulation as deduced from isopycnal analysis. *J. Oceanogr.* **50**, 663–690.
- Senjyu, T., Isoda, Y., Aramaki, T., Otosaka, S., Fujio, S., Yanagimoto, D., Suzuki, T., Kuma, K. and Mori, K. (2005) Benthic front and Yamato Basin Bottom Water in the Japan Sea. *J. Oceanogr.* **61**, 1047–1058.
- Sudo, H. (1986) A note on the Japan Sea Proper Water. *Prog. Oceanogr.* **17**, 313–336.
- Trier, R. M., Broecker, W. S. and Feely, H. W. (1972) Radium-228 profile at the second Geosecs intercalibration station, 1970, in the North Atlantic. *Earth Planet. Sci. Lett.* **16**, 141–145.
- 角皆静男 (1972) 深層水の鉛直渦動拡散係数の見積り. *J. Oceanogr. Soc. Jpn.* **28**, 145–152.
- Watanabe, Y. W., Watanabe, S. and Tsunogai S. (1991) Tritium in the Japan Sea and the renewal time of the Japan Sea deep water. *Mar. Chem.* **34**, 97–108.

## Appendix

2004年5月22日に大和堆付近 (YR 1), 水深1,000 mで採取された海水試料 (20 L) を, 本稿で述べた化学処理法で処理し,  $\gamma$ 線測定用試料とした。尾小屋地下測定室と地上レベル (金沢大学低レベル放射能実験施設; LLRL) に設置した井戸型 Ge 検出器 (それぞれ相対効率; 74%および59%) を使用で得られた  $\gamma$ 線スペクトルを Fig. 5 に比較する。一般的に Ge 検出器の検出効率, 測定時間などの測定条件が同じ場合, 最低検出濃度は, 各核種のベースライン値の平方

根に比例する (Nir-El, 2001)。地下測定室の利用により, ベースラインが1/10にまで低減, すなわち最低検出濃度が1/3以下になった。特に,  $^{228}\text{Ra}$  ( $^{228}\text{Ac}$ ; 338, 911 keV) に関しては, 地上レベルの測定ではバックグラウンドに埋もれていたピークが, 極低バックグラウンド  $\gamma$ 線測定の適用により, 明らかなピークとして検出された。

本手法は, 他のウランおよびトリウム系列核種やさらなる短時間の海水循環の指標としての  $^7\text{Be}$  (半減期 53日), さらには放射能汚染核種 (例えば $^{60}\text{Co}$ ) のモニタリングにも有効である。

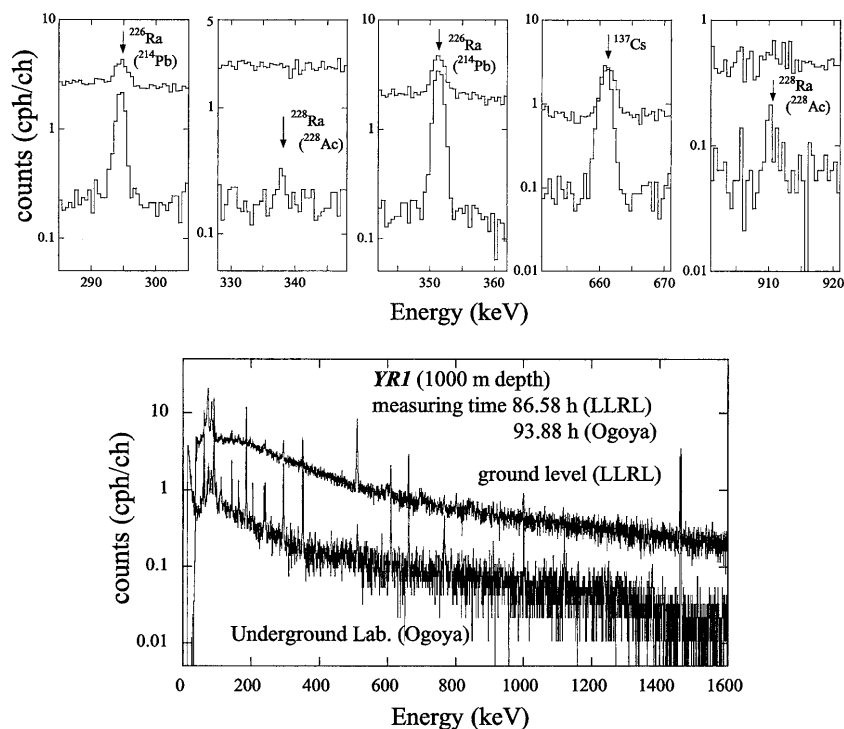


Fig. 5  $\gamma$ -Ray spectra (0.5 keV/channel) of an off-shore water sample around the Yamato Ridge (YR 1; 1,000 m depth) obtained by well-type Ge-detectors equipped in ground-level lab and Ogoya Underground lab.