

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 5 月 31 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2012～2014

課題番号：24510011

研究課題名(和文) 複数の放射性核種の三次元分布からみた日本列島を取り巻く海洋物質循環に関する研究

研究課題名(英文) Geochemical cycles in the marginal seas around Japan Islands from spatial distributions of multi-radionuclides

研究代表者

井上 睦夫 (INOUE, Mutsuo)

金沢大学・環日本海域環境研究センター・助教

研究者番号：60283090

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 4,200,000円

研究成果の概要(和文)：低バックグラウンドガンマ線測定法を日本列島を取り巻く縁海、日本海、東シナ海およびオホーツク海の海水試料に適用することにより、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^7Be および ^{228}Th 濃度を測定し、これら核種の空間的分布を探った。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比、 ^{137}Cs 、 ^7Be の空間分布より、これら縁海における海水およびそれに含まれる溶存成分の、さらには $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比より、粒子吸着性成分の三次元的物質循環を解明した。福島第一原発事故の ^{134}Cs および ^{137}Cs の分布は、本海域における微弱放射性セシウムの汚染レベルに重要な知見をもたらした。

研究成果の概要(英文)： We applied low-background gamma-spectrometry to conduct an investigations of spatial variations of ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{137}Cs , ^{134}Cs , ^7Be , and ^{228}Th activities in marginal seas around the Japan Islands; the Sea of Japan, the East China Sea, and the southwestern Okhotsk Sea. We could elucidate the flow patterns of water masses (e.g., lateral and vertical water circulation) from $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio and ^{137}Cs and ^7Be activities and migration pattern of particles and reactive components from $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ ratio in these areas. We also clarified contamination levels of radiocesium in these areas after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident from ^{134}Cs and ^{137}Cs activities.

研究分野：海洋化学

キーワード：海洋化学 放射性核種 ガンマ線計測 日本海 物質循環

1. 研究開始当初の背景

日本海では(最大水深 3796 m)、隣接した海洋をつなぐ4つの海峡はいずれも150 m以浅である。それゆえ、東シナ海の深層水の影響をほとんど受けない日本海固有水が、深さ~250 mから海底までを占めており、閉鎖系で様々な人為事故や汚染に弱い。一方で、東シナ海、オホーツク海は全く異なる循環パターンを示す。放射性核種はその地球化学的特性や半減期の違いを利用し、海洋環境における水塊流動特性や物質動態の評価に有効である。ラジウム同位体やセシウム同位体は海水とともに移動することから溶存成分循環の指標となる。一方、粒子吸着性であるトリウム同位体は粒子除去により、その一部は海水表層より除去される。特に ^{228}Th (半減期1.91年)は ^{228}Ra の娘核種であり、それら濃度を比較する($^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比)ことにより、粒子吸着性元素(成分)の挙動に重要な知見をもたらす。一方で、海水中のこれら放射性核種濃度は著しく低く、その測定は困難であり、日本海を含めその報告例は多くない。本研究では、低バックグラウンドガンマ線測定を適用することにより、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^7Be および ^{228}Th の空間分布を明らかにし、本調査海域における物質循環を議論する。

2. 研究の目的

複数の共沈法を組み合わせることにより、海水試料の ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^7Be および ^{228}Th の同時測定を可能とした。供給源、半減期および地球化学的挙動の異なるこれら複数の核種の同時測定を、これまでに例のない空間的・時間的高分解能でおこなう。その結果より、日本海を中心とした日本列島を取り巻く三大縁海における海水およびそれに含まれる粒子の循環を解明する。この成果は、汚染事故などに起因する有害物質の他、大陸側からの不法投棄による漂流物の移動を探るうえで、さらに現在の物質循環の情報を記録するうえで極めて重要である。

さらには、日本海を中心に福島原発起源の ^{134}Cs および ^{137}Cs 濃度の空間分布、およびその経時変動を調べることにより、2011年福島第一原発事故に伴い環境中に放出された放

射性セシウムの海水汚染レベルの確認、さらには海洋への供給および循環メカニズムを議論する。

3. 研究の方法

(1) 海水試料のサンプリング

水産総合研究センター中央水産研究所の蒼鷹丸調査航海(2012-2014年7-8月)に参加し、日本海から東シナ海、オホーツク海において、水平・鉛直方向に海水採取をおこなった(各海水試料20-60L)。さらには、目的核種の高分解能分布を得るため、多くの関係研究機関にも表層海水試料の採取を依頼した。

(2) 海水化学処理とガンマ線計測

海水試料から、 BaSO_4 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ およびリンモリブデン酸アンモニウムによる共沈回収により、ラジウム同位体、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^7Be および ^{228}Th の同時回収をおこなった。

これら海水試料に対し、地下測定室における低バックグラウンドガンマ線計測を適用し、目的核種の定量をおこなった。

4. 研究成果

(1) 表層海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比からみた対馬暖流の水塊流動

東シナ海大陸棚浅層海水は著しく高い ^{228}Ra 濃度を示す。この浅層海水の一部は ^{228}Ra に乏しい黒潮海水と混合し、日本海の主要な海流、対馬暖流として日本海を北上する。本研究では、日本海表層海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比から、表層海水の循環パターンを議論した。その結果、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比に福井沿岸~沖合側線に明らかな境界(~37°N)がみられた。対馬沿岸分枝と沖合分枝の存在を示す。秋田沿岸~沖合側線では、その中間値を示すなど沿岸分枝と沖合分枝のほぼ対等な混合を示唆した。一方で、北緯~40°以北で、リマン海流が確認された(Fig. 1a, b)。

さらには、塩分と ^{228}Ra 濃度より、夏季(7月)における日本海表層における東シナ海浅層海水の混合比(沿岸分枝~8%、沖合分枝~11-16%)を見積もった(Fig. 1c)。

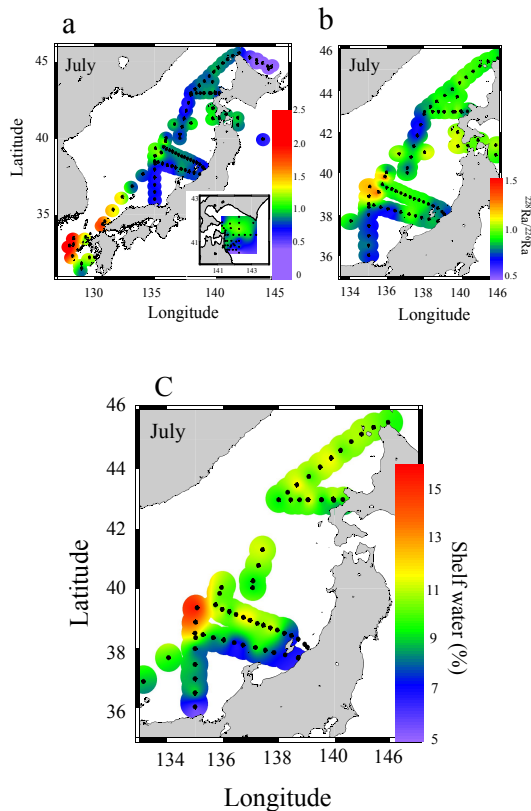


Fig. 1: Lateral profile of a) $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio of surface waters in the Sea of Japan (range of 0–2.5) in July 2010–2014, b) enlarged view of the central–northeastern area (range of 0.5–1.5), and c) fraction of the shelf water.

(2) ^7Be 濃度の鉛直分布からみた日本海の水塊流動

海水の鉛直循環に関する知見を得るため、2012年7月に採取された日本海において、短寿命（半減期53日）の ^7Be 濃度の鉛直分布を求めた（Fig. 2）。 ^7Be の50 m以深への供給は著しく小さく、40–70日という滞留時間が見積もられた。本結果は、海洋学のみならず、有事の際の汚染物質の鉛直方向の移行を推測する上でも重要である。

(3) $^{228}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ 比からみた東シナ海～日本海表層の粒子除去

東シナ海西部の大陸棚浅層海水は栄養塩や陸域や生物生産から生まれた粒子を、黒潮海水より多く含む。東シナ海では、 $^{228}\text{Th}/^{226}\text{Ra}$ 比が浅層海水の混入につれ低くなるという傾

向がみられ（Fig. 3）、初夏に生物起源粒子によるトリウム（及び他の重金属）の除去が示唆された。一方、日本海表層では、 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比は東シナ海より変動は小さかった。今後、 $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比の空間分布および季節変動の蓄積により、東シナ海、日本海において、対馬暖流に含まれる粒子吸着性成分の粒子除去について明らかにする予定である。

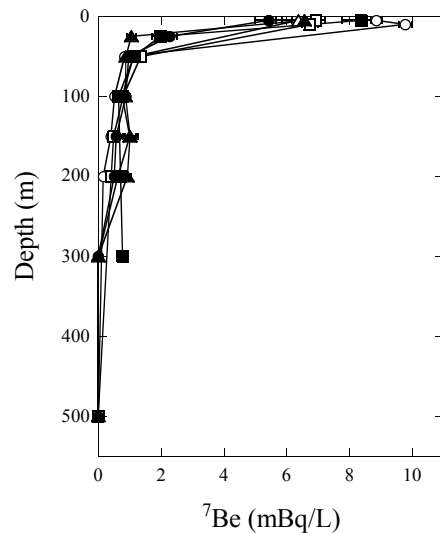


Fig. 2: Vertical profile of ^7Be activity of the water samples in the Sea of Japan.

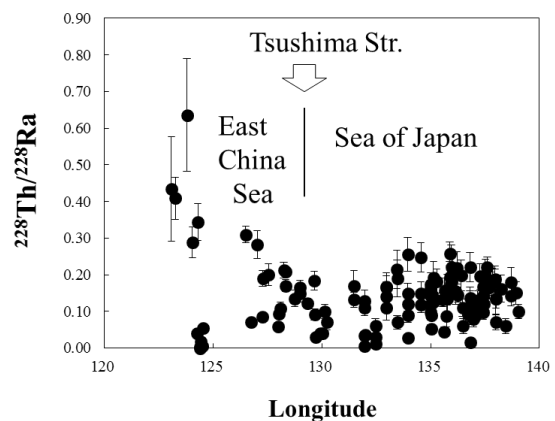


Fig. 3: Lateral profile of $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ ratio of the surface water samples in the East China Sea and the Sea of Japan in June.

(4) 原発事故による日本海セシウム汚染

2012年および2013年7月に、日本海およびオホーツク海南西部の0–1000 m水深で深層海水60 Lを採取し、低バックグラウンド線測定法を適用した。福島第一原発事故に

起因する ^{134}Cs は全試料において検出限界以下 ($<0.03\text{ mBq/L}$) であった。我々の先の研究で、秋田～北海道沖合の表層海水に極微弱 ($\sim 1\text{mBq/L}$) なセシウムの汚染がみられたが、対馬暖流の寄与により、それら大部分は深層に移行する以前に津軽海峡、宗谷海峡から流出したと考えられた。これは $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比および ^7Be より推測された、日本海にもたらされた福島原発起源の放射性セシウムの日本海からの除去パターンを支持するものであった。

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 10件)

Inoue, M., Kofuji, H., Fujimoto, K., Furusawa, Y., Yoshida, K., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Minakawa, M. (2014) Delivery mechanism of ^{134}Cs and ^{137}Cs in seawater off Sanriku Coast, Japan, following the Fukushima Dai-ichi NPP accident. *J. Environ. Radioactivity* **137**, 113-118. doi: 10.1016/j.jenvrad.2014.07.001 (査読有).

Inoue, M., Minakawa, M., Yoshida, K., Nakano, Y., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y., Yamamoto, M. (2014) Vertical profiles of ^{228}Ra and ^{226}Ra activities in the Sea of Japan and their implications on water circulation. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **303**, 1309-1312. doi: 10.1007/s10967-014-3492-4 (査読有).

Inoue, M., Yoneoka, S., Ochiai, S., Oikawa, S., Fujimoto, K., Yagi, Y., Honda, N., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Murakami, T., Kofuji, H., Misonoo, J. (2014) Lateral and temporal variations in Fukushima DNPP-derived ^{134}Cs and ^{137}Cs in marine sediments in/around the Sado Basin, Sea of Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **303**, 1313-1316. doi:

10.1007/s10967-014-3518-y (査読有).

R. Nomura, M. Inoue, H. Kofuji (2014) Inspection of residual flow using $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ ratios in the semi-closed water body of Nakaumi, a coastal lagoon in southwest Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **303**, 1595-1599. doi: 10.1007/s10967-014-3680-2 (査読有).

Inoue, M., Kofuji, H., Murakami, T., Oikawa, S., Yamamoto, M., Nagao, S., Hamajima, Y., Misonoo, J. (2013) Spatial variations of low levels of ^{134}Cs and ^{137}Cs in seawaters within the Sea of Japan after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Appl. Radiat. Isot.* **81**, 340-343. doi: 10.1016/j.apradiso.2013.03.084 (査読有).

Inoue, M., Furusawa, Y., Fujimoto, K., Minakawa, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Yoshida, K., Nakano, Y., Hayakawa, K., Oikawa, S., Misonoo, J., Isoda, Y. (2013) $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio and ^7Be concentration in the Sea of Japan as indicators for water transport: Comparison with migration pattern of Fukushima Dai-ichi NPP-derived ^{134}Cs and ^{137}Cs . *J. Environ. Radioactivity* **126**, 176-187. doi: 10.1016/j.jenvrad.2013.08.001 (査読有).

Kofuji, H., Inoue, M. (2013) Temporal variations in ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations in seawater along the Shimokita Peninsula and the northern Sanriku coast in northeastern Japan, one year after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactivity* **124**, 239-245. doi: 10.1016/j.jenvrad.2013.06.003 (査読有).

Inoue, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Yoshida, K., Fujimoto, K., Takada, T., Isoda, Y. (2012) Lateral

variation of ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations in surface seawater in and around the Japan Sea after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactivity* **109**, 45-51. doi: 10.1016/j.jenvrad.2012.01.004 (査読有).

Inoue, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Fujimoto, K., Yoshida, K., Hayakawa, K., Suzuki, A., Takashiro, H., Minakawa, M. (2012) Low-levels of ^{134}Cs and ^{137}Cs in surface seawaters around the Japanese Archipelago after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in 2011. *Geochem. J.* **46**, 311-320. <http://www.terrapub.co.jp/journals/GJ/pdf/4604/46040311.pdf> (査読有).

Inoue, M., Yoshida, K., Minakawa, M., Kiyomoto, Y., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y., Yamamoto, M. (2012) Spatial variations of ^{226}Ra , ^{228}Ra , and ^{228}Th activities in seawater from the eastern East China Sea. *Geochem. J.* **46**, 429-441. <http://www.terrapub.co.jp/journals/GJ/pdf/4605/46050429.pdf> (査読有).

[学会発表](計 12件)

古澤佑一・城谷勇陞・井上睦夫・吉田圭佑・藤本賢・皆川昌幸・塩本明弘・長尾誠也・山本政儀・浜島靖典・小藤久毅： $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比からみた対馬暖流の循環パターン．第 58 回放射化学討論会 (2014/9/12) 名古屋大 (愛知県)

城谷勇陞、古澤佑一、井上睦夫、長尾誠也、山本政儀、浜島靖典、上村宙輝、小藤久毅、森本明彦、滝川哲太郎、藤本賢：東シナ海～日本海表層における $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比の水平分布．第 58 回放射化学討論会 (2014/9/12) 名古屋大 (愛知県) 米岡修一郎、上村宙輝、井上睦夫、落合伸也、長尾誠也、山本政儀、浜島靖典：

島原発事故由来の低レベル ^{134}Cs をトレーサーとした阿賀野川河川粒子の挙動．第 58 回放射化学討論会 (2014/9/12) 名古屋大 (愛知県)

井上睦夫：水中の放射性不純物分析、新学術「地下素核研究」研究会 (2014/8/23) 大阪大 (大阪府)

井上睦夫、古澤佑一、藤本賢、吉田圭佑、城谷勇陞、小藤久毅、長尾誠也、山本政儀、浜島靖典、皆川昌幸： $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比からみた対馬暖流、宗谷暖流研究会 (2014/7/8) 北海道大 (北海道)

井上睦夫、長尾誠也、山本政儀、浜島靖典、小藤久毅、早川和一、藤本賢、皆川昌幸、磯田豊：福島原発事故以降の日本海およびその周辺海域の低レベル ^{134}Cs , ^{137}Cs 濃度の経時変動、環日本海域環境研究センターシンポジウム (2014/3/7) 金沢大 (石川県)

M. Inoue, S. Ochiai, T. Murakami, S. Oikawa, M. Yamamoto, S. Nagao, Y. Hamajima, H. Kofuji, J. Misonoo: Low levels of ^{134}Cs and ^{137}Cs in bottom sediments along the Japanese Archipelago side of the Sea of Japan after the Fukushima Dai-ichi NPP accident. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (2013/9/23) Kanazawa, Japan.

M. Inoue, M. Minakawa, K. Yoshida, Y. Nakano, H. Kofuji, S. Nagao, M. Yamamoto, Y. Hamajima: Vertical profiles of ^{228}Ra and ^{226}Ra activities in the Sea of Japan and their implications for water circulation. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (2013/9/24) Kanazawa, Japan.

Y. Furusawa, M. Inoue, S. Nagao, M. Yamamoto, Y. Hamajima, H. Kofuji, K. Yoshida, Y. Nakano, K. Fujimoto, A.

Morimoto, T. Takikawa, Y. Isoda: Lateral distribution of $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ and $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios in surface waters of the Sea of Japan and their physical implication. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (2013/9/24) Kanazawa, Japan.

古澤佑一、井上睦夫、長尾誠也、山本政儀、浜島靖典、藤本賢、磯田豊： $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比からみた日本海表層の水塊流動の検討、第56回放射化学討論会(2013/10/3) 東工大(東京都)

井上睦夫： $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^7Be 濃度分布からみた日本海の物質循環、2013年度日本海洋学会春季大会シンポジウム(2013/3/25) 東京海洋大(東京都)

M. Inoue, H. Kofuji, S. Oikawa, T. Murakami, K. Fujimoto, M. Yamamoto, S. Nagao, Y. Hamajima, J. Misonoo: Vertical profiles of low ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations in seawaters of the Japan Sea after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. 6th international Conference on Radionuclide Metrology Low-Level Radioactivity Measurement Techniques (2012/9/20) Jeju, (Korea)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：

番号：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

井上 睦夫 (INOUE, Mutsuo)
金沢大学・環日本海域環境研究センター・
助教
研究者番号：60283090

(2) 研究分担者

山本 政儀 (YAMAMOTO, Masayoshi)
金沢大学・環日本海域環境研究センター・
教授
研究者番号：10121295

長尾 誠也 (NAGAO, Seiya)
金沢大学・環日本海域環境研究センター・
教授
研究者番号：20343014
浜島 靖典 (HAMAJIMA, Yasunori)
金沢大学・環日本海域環境研究センター・
助教
研究者番号：60172970

(3) 連携研究者

藤本 賢 (FUJIMOTO, Ken)
水産総合研究センター中央水産研究所・海
洋生産部・研究員
研究者番号：20371841