

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 12 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(C)

研究期間：2009～2011

課題番号：21510011

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海の物質循環に関する研究

研究課題名（英文） Geochemical cycles in the Japan Sea 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

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海、東シナ海およびオホーツク海海水試料に適用することにより、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  および  $^{228}\text{Th}$  濃度を測定し、これら核種の空間的・時間的分布を探った。その結果より、日本海、さらに東シナ海、オホーツク海の三次元的物質循環（滞留時間、水塊混合など）を解明した。海水、粒子の循環のみならず、福島第一原発事故の放射性セシウムの汚染レベルおよび循環に重要な知見をもたらした。

研究成果の概要（英文）：

In this study, we applied low-background gamma-spectrometry to conduct a investigations of spatial and temporal variations of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{134}\text{Cs}$ , and  $^{228}\text{Th}$  activities in the Japan Sea, the East China Sea, and the southwestern Okhotsk Sea. We could elucidate the flow patterns of water masses and particles in these areas (e.g., vertical water circulation and lateral mixing of surface water masses). We also clarified contamination levels and delivery pattern of radiocesium after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2009 年度	1,300,000	390,000	1,690,000
2010 年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2011 年度	800,000	240,000	1,040,000
年度			
年度			
総計	3,500,000	1,050,000	4,550,000

研究分野：複合新領域

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

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

西北太平洋の代表的な縁海、日本海では、

最大水深 3796 m に対し、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、オホーツク海の深層水の影響をほとんど受けない非常に均質な性質をもつ日本海固有水が、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、それに隣接する東シナ海、オホーツク海は全く異なる循環パターンを示す。日本海、東シナ海、オホーツク海における海水およびそれに含まれる粒子の循環に関する情報は、汚染物質の媒体として、原子力発電事故など日本海汚染事故または大陸からの汚染物質の流入など有事に備え必要である。これら現状に対処するため、あらゆる地球化学的データの蓄積、およびそれらもたらす物質循環の解明が不可欠である。海水に溶存する $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$  および $^{137}\text{Cs}$  は、海水循環のトレーサーとして、粒子反応性の高い $^{228}\text{Th}$  は、海水中の粒子との反応、それら粒子の挙動、さらには粒子による重金属の除去メカニズムに関するトレーサーとなるなど、環境動態の解析に有効である。海水中のこれら放射性核種濃度は著しく低く、その測定はきわめて困難であり、日本海を含めその報告例は多くない。一方で、海洋を舞台とした詳細な物質循環を探るためには、複数の核種を対象とした時間的・空間的に高分解能かつ高精度なデータが必要となる。

本研究で得られる成果は、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。

## 2. 研究の目的

1つの海水試料に複数の共沈法を組み合わせることにより、極微量であることから、測定が困難とされてきた深層海水の $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  および $^{228}\text{Th}$ の同時測定が可能になった。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。その上で以下の議論をおこなう。

### (1) 表層海水の循環パターン

東シナ海浅層海水は世界的に最も高い $^{228}\text{Ra}$ 濃度を示す。この浅層海水の一部は日本海にもたらされ、さらには対馬暖流として日

本海を北上、宗谷暖流として宗谷海峡を経てオホーツク海南西部にもたらされる。この $^{228}\text{Ra}$ をトレーサーとし、表層海水の水平循環を議論する。

### (2) 鉛直循環

日本海の代表的な海域さらに東シナ海、オホーツク海での、各核種の鉛直分布の解析、比較により、日本海固有水をはじめとする各海域における水塊、粒子の鉛直方向の物質循環の特徴を調べる。特に、放射性核種の固有の半減期を利用することにより、水塊および粒子循環の時間軸を設定する。

### (3) 原発のセシウム汚染調査

日本海を中心に表層海水の $^{134}\text{Cs}$  および $^{137}\text{Cs}$ 濃度分布、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その後の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(2009年、2010年7-8月；蒼鷹丸)、北海道大学(2011年6-7月；おしよろ丸)の調査航海に参加し、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)。さらに客船飛鳥II(2011年10月)を利用した海水採取をおこなった。高分解能鉛直分布を得るため地点ごとにできるだけ多くの試料を採取した。

### (2) 海水化学処理

簡単な共沈法による海水試料の多核種同時測定法の確立を目的とし、海水試料から、 $\text{BaSO}_4$ 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 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、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  および $^{228}\text{Th}$ の同時回収をおこなった。

### (3) ガンマ線計測

処理済の海水試料に対し、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

本研究の結果、以下の新たな知見が得られた。

### (1) 日本海鉛直循環

日本海(日本海盆・大和海盆)における  $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  および  $^{228}\text{Th}$  濃度の鉛直分布より、これら海域における三次元的な物質循環およびその時間軸に関する知見を得た。特に、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$  の鉛直分布 (Fig. 1) より日本海固有水の滞留時間を 100 年と見積もった。

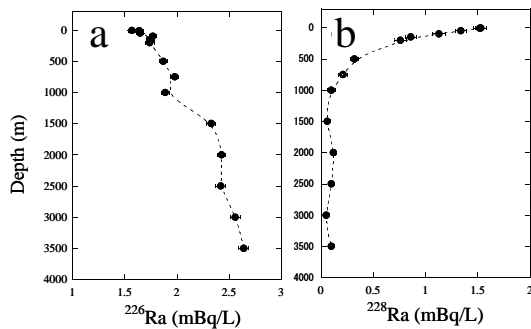


Fig. 1: Vertical profiles of a)  $^{226}\text{Ra}$  and b)  $^{228}\text{Ra}$  activities of the water samples from the Japan Basin (N41°02', E138°10'; 水深3700 m).

### (2) 東シナ海の物質循環

東シナ海東域 (YK2; N31°45', E127°15'; YK3; N31°45', E128°45') の表層海水に  $^{228}\text{Ra}$  濃度の水平および季節変動に大きな変動がみられた (Fig. 2)。これら海域における大陸棚浅層海水と黒潮海水と混合比を見積もった。東シナ海東域表層では、夏季に大陸棚浅層海水の寄与が最大 (70%)、冬季に最小 (0%) であった (partly from Inoue *et al.*, 2010)。

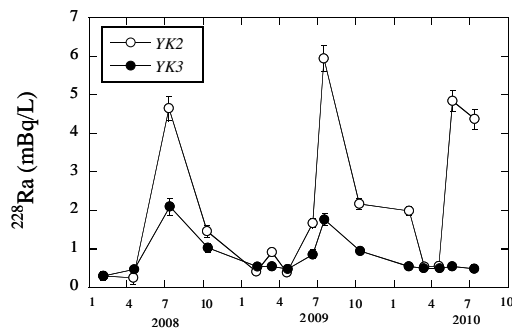


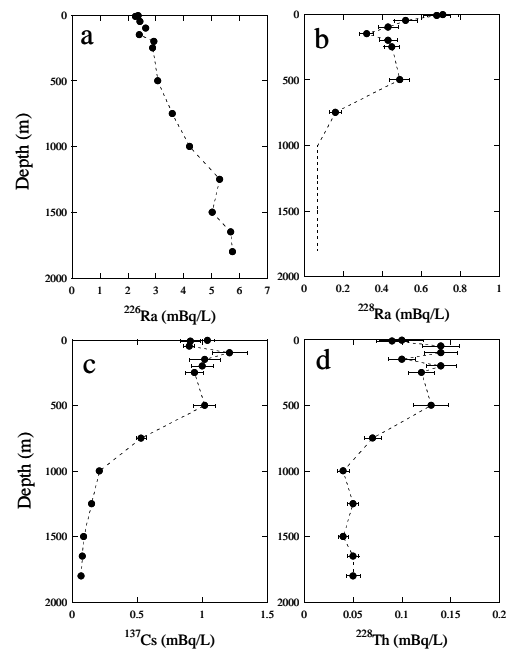
Fig. 2: Seasonal variation in  $^{228}\text{Ra}$

activities in surface waters of the eastern East China Sea.

さらには  $^{228}\text{Th}$  濃度の分布から、生物起源粒子による夏季に、トリウム (及び他の重金属) の除去の寄与が最大であることを示唆した。

### 3) オホーツク海の物質循環

オホーツク海西南域表層における  $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  濃度の分布より、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  に富む宗谷暖流とそれらに乏しい東樺太海流の混合パターンが明らかにした。



さらに、オホーツク海西南域 (N45°01', E145°01'; 水深 1850 m) でみられる  $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  および  $^{228}\text{Th}$  濃度の鉛直分布 (Fig. 3) より、これら核種が水深 50-500 m で均一であることを明らかにした。本海域を特徴づける東樺太海流の沈み込みによるオホーツク海中層水の生成に関する知見を得た (Inoue *et al.*, 2012c)。

Fig. 3: Vertical profiles of a)  $^{226}\text{Ra}$ , b)  $^{228}\text{Ra}$ , c)  $^{137}\text{Cs}$ , and d)  $^{228}\text{Th}$  activities of the water samples in the southwestern Okhotsk Sea.

### 4) 原発事故による日本海セシウム汚染

日本海表層海水の  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{134}\text{Cs}$  濃度測定の結果、2011年の福島原発事故により大気・海

洋中に放出された表層の<sup>134</sup>Cs濃度が20年前のレベルであること、さらに対馬暖流により北上しながら濃度が急速に減少していることが明らかになった。福島からの放射性粒子による供給、その後の海水循環による拡散というメカニズムが示唆された (Inoue *et al.*, 2012b)。

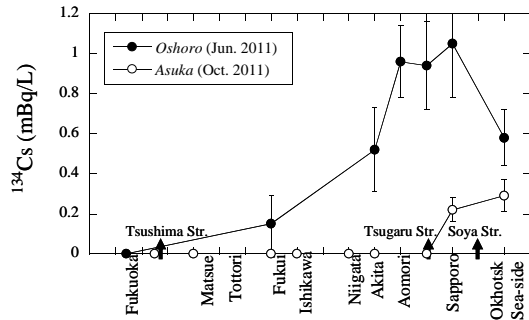


Fig. 4: Lateral profiles of <sup>134</sup>Cs activity in surface waters of the Japan Sea and the southwestern Okhotsk Sea.

#### 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4件)

- ① Inoue, M., Kofuji, H., Hamajima, Y., Nagao, S., Yoshida, K., Yamamoto, M. (2012a) <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs activities in coastal seawater along Northern Sanriku and Tsugaru Strait, northeastern Japan, after Fukushima Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactivity* (in press) (査読有).
- ② Inoue, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Yoshida, K., Fujimoto, K., Takada, T., Isoda, Y. (2012b) Lateral variation of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>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 (査読有).
- ③ Inoue, M., Yoshida, K., Minakawa, M., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y., Yamamoto, M. (2012c) Spatial variations of <sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ra, <sup>137</sup>Cs, and <sup>228</sup>Th activities

in the southwestern Okhotsk Sea. *J. Environ. Radioactivity* **104**, 75-80 (査読有).

- ④ Inoue, M., Nakano, Y., Yoshida, K., Kiyomoto, Y., Kofuji, H., Hamajima, Y., Yamamoto, M. (2010) Seasonal variation of <sup>228</sup>Ra/<sup>226</sup>Ra ratio in surface water from the East China Sea and the Tsushima Strait. *J. Oceanogr.* **66**, 425-428 (査読有).

[学会発表] (計5件)

- ① 井上睦夫、吉田圭佑、皆川昌幸、清本容子、小藤久毅、長尾誠也、浜島靖典、山本政儀：東シナ海表層海水の<sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Raおよび<sup>228</sup>Th濃度の季節変動。第55回放射化学討論会、(2011/9/22) (長野県)
- ② Inoue, M., Yoshida, K., Minakawa, M., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y., Shiimoto, A., Yamamoto, M. : Spatial distributions of <sup>226</sup>Ra, <sup>228</sup>Ra, <sup>228</sup>Th, and <sup>137</sup>Cs in the southwestern area of the Sea of Okhotsk. *Environmental Radioactivity -New Frontiers and Developments-*, (2010/10/25) (イタリア)
- ③ Inoue, M., Nakano, Y., Tanaka, K., Watanabe, S., Kofuji, H., Minakawa, M., Kiyomoto, Y., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Komura, K. : Seasonal variation of the <sup>228</sup>Ra/<sup>226</sup>Ra ratio in surface waters within the Sea of Japan and the East China Sea. *Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences*, (2009/11/5) (石川県)
- ④ Inoue, M., Kofuji, H., Komura, K. : Distributions of <sup>3</sup>H, <sup>7</sup>Be, <sup>22</sup>Na, <sup>137</sup>Cs, and <sup>228</sup>Ra of groundwater, river water, and precipitation in Tedori River Area, Ishikawa, Japan. *Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences*, (2009/11/5) (石川県)
- ⑤ Inoue, M., Minakawa, M., Yoshida, K., Nakano, Y., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y., Yamamoto, M. Vertical

distributions of  $^{228}\text{Ra}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in the Japan Basin; implications for water circulation and residence time. Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '09, Napa, California, (2009/12/1) (USA)

[図書] (計6件)

- ① Inoue, M., Yoshida, K., Minakawa, M., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y., Yamamoto, M. (2012) Vertical distributions of  $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{228}\text{Ra}$ , and  $^{137}\text{Cs}$  activities in the southwestern part of the Sea of Okhotsk. In Environmental Radioactivity 2010 (EPJ Web of Conferences, 4001)
- ② Yoshida, K., Inoue, M., Kiyomoto, Y., Minakawa, M., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y., Yamamoto, M. (2012) Seasonal variations of  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  and  $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$  ratios in surface water from the eastern East China Sea. In Environmental Radioactivity 2010. (EPJ Web of Conferences, 4005)
- ③ Inoue, M., Nakano, Y., Tanaka, K., Watanabe, S., Kofuji, H., Minakawa, M., Kiyomoto, Y., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Komura, K. (2010) Seasonal variation of the  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  ratio in surface waters within the Sea of Japan and the East China Sea. In *Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences* pp23-28
- ④ Inoue, M., Kofuji, H., Komura, K. (2010) Distributions of  $^3\text{H}$ ,  $^7\text{Be}$ ,  $^{22}\text{Na}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , and  $^{228}\text{Ra}$  of groundwater, river water, and precipitation in Tedoru River Area, Ishikawa, Japan. In *Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences* pp178-182
- ⑤ Kofuji, H., Inoue, M. (2010)

Distributions of  $^{228}\text{Ra}$  and  $^{226}\text{Ra}$  in surface water off Shimokita Peninsula, Japan. In *Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences* pp98-105

- ⑥ Yoshida, K., Inoue, M., Nakano, Y., Kiyomoto, Y., Nagao, S., Hamajima, Y., Yamamoto, M. (2010) Seasonal variation of  $^{228}\text{Th}$  and  $^{228}\text{Ra}$  in surface water on East China Sea. In *Low-level Measurement of Radionuclides and Its Application to Earth and Environmental Sciences* pp94-97

## 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

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

皆川 昌幸 (MINAKAWA MASAYUKI)

水産総合研究センター中央水産研究所・海  
洋生産部・室長

研究者番号：80371839

乙坂 重嘉 (OTOSAKA SHIGEYOSHI)

日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学  
研究部門・研究員

研究者番号：40370374