

令和 3 年 5 月 5 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K11615

研究課題名（和文）溶存性および吸着性放射性核種を利用した日本列島近海の汚染物質循環の解析

研究課題名（英文）Transport paths of contaminants around the Japanese Archipelago from distributions of soluble 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・准教授

研究者番号：60283090

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：海洋環境における溶存成分の循環に関する情報は、海洋物質動態のみならず、有事の事故に関わる海洋汚染に備え非常に重要である。本研究では、東シナ海、日本海、およびオホーツク海における複数の溶存放射性核種（Cs-134, Cs-137, Ra-226, Ra-228）濃度の空間的に高分解能かつ高精度なデータベースを作成した。特に、福島原子力発電所事故由来のCs-134の分布は有効な海水循環のトレーサーとなった。さらにラジウムのデータベースが、日本列島を取り巻く溶存汚染物質の循環パターンを予測するうえでの指標として有効であることを明らかにした。

研究成果の学術的意義や社会的意義

溶存放射性核種の分布から、日本列島近辺にもたらされる海水循環に関する情報を議論した。本海域における溶存成分循環の時間軸設定は、汚染問題を考えるうえで極めて重要であるにも関わらず、環境中に放出された時期・地域の明らかな放射性セシウムをトレースする以外の手法では困難である。これら放射性核種の空間分布の充実、海水循環の解明のみならず、今後の有事の際の溶存汚染物質循環の対策にも有効である。さらに本研究で得られる日本列島を取り巻く海水のCs-134およびCs-137濃度の分布は、風評被害対策にも重要である。

研究成果の概要（英文）：Soluble radionuclides (Cs-134, Cs-137, Ra-226, and Ra-228) in seawater have been used as powerful tracers to investigate geochemical cycles in marine environments. By employing low-background gamma-spectrometry, we conduct fine-resolution observations of spatial variations of these radionuclides in the Sea of Japan, East China Sea, and Okhotsk Sea, and assess the circulation patterns of water masses. Particularly, FDNPP accident-derived Cs-134 explained circulation paths of soluble components around the Japanese Archipelago. Furthermore, the migration of Ra-228 readily explained the circulation patterns of Cs-134.

研究分野：海洋化学

キーワード：放射性セシウム ラジウム ガンマ線計測 福島原子力発電所事故 物質循環

## 1. 研究開始当初の背景

あらゆる海洋では、海流の運搬による原発事故等由来の放射能汚染やその他にも様々な海洋汚染の危機にさらされている。海洋環境においては、様々な越境汚染の物質循環パターンの予測に関する研究が必要となってきた。日本列島をとりまく親潮寒流、黒潮暖流に関する情報は、海洋での物質動態のみならず有事の事故に関わる海洋汚染に備え非常に重要である。

2011年3月の福島第一原子力発電所(FDNPP)事故により、著しく多量の放射性セシウム( $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ )が環境中に放出された。かつての大気圏内核実験由来が環境中に残っている長寿命 $^{137}\text{Cs}$ (半減期; 30.2年)に対し、海洋において現在検出しうる短半減期の $^{134}\text{Cs}$ (2.06年)は、FDNPP事故由来のみである。環境中に放出された時期・地域の限定される $^{134}\text{Cs}$ は、現在使用しうる最も有効なトレーサーである。従来の放射能汚染モニタリングに加え、溶存成分である放射性セシウムの空間分布の把握は、北太平洋を舞台とした海水循環調査に有効である。

一方、我々の先の研究でラジウム同位体、 $^{226}\text{Ra}$ (半減期; 1600年)、 $^{228}\text{Ra}$ (5.75年)、の空間分布が、太平洋側三陸沖、東シナ海、日本海および千島列島沖といった調査海域で水塊独自の値を示し、それはセシウムの分布を説明すうえで重要な役割を示した。これはラジウムも海水循環および溶存汚染物質の循環予想にも重要な知見をもたらすことを示した。本申請ではラジウム(および塩分など物理データ)を並列して利用することにより、単純でないセシウムの海洋循環を解析する。

日本海、オホーツク海、ベーリング海などの縁海の深層海水は閉鎖系ゆえに様々な人為事故や汚染に弱い。本研究では、特に、日本列島を取り巻くこれら縁海において、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の広範囲の高精度なデータベースを作成・解析することにより、海水の循環モデルを構築する。これら放射性核種の空間分布の充実は、海水循環の解明のみならず、今後の有事の際の溶存汚染物質循環の対策にも有効である。

## 2. 研究の目的

供給源および半減期の異なる溶存性 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、さらには粒子吸着性の $^{228}\text{Th}$ および $^{232}\text{Th}$ の時間的・空間的に高分解能かつ高精度なデータは、日本列島沖合および近海に寄与を与える海洋放射能汚染をはじめとする汚染事故に起因する溶存性汚染物質の循環予測に、極めて重要である。これら複数の核種濃度の組み合わせにより、日本列島近海表層の物質循環の季節変動、さらに三次元的物質循環の解明を進める。

溶存放射性核種の分布から、日本列島近辺にもたらされる海水循環に関する知見を引き出す。北太平洋における溶存成分循環の時間軸設定は、汚染問題を考えるうえで極めて重要であるにも関わらず、環境中に放出された時期・地域の明らかな放射性セシウムをトレースする以外の手法では困難である。

これらをもとに、本研究では、1) FDNPP事故由来のセシウムに注目することにより、北太平洋北西域の海流の時間軸を含めた海水循環トレーサーとして利用する、2) 有事の際の溶存性汚染物質循環の対策(風評被害対策を含む)に対応しうるものにまとめることを目的とした。

### 3. 研究の方法

実験は、以下の手順で進めた。海水試料採取、化学処理およびガンマ線測定、およびデータベースの構築（以下の - ）を継続しておこなった。そのうえで、FDNPP 事故由来の放射性セシウムを中心に、海水および溶存成分の循環を解明した（ ）。

#### 海水試料採取

日本列島をとりまく親潮海流域（オホーツク海、ベーリング海を含む）および黒潮暖流流域（日本海、東シナ海を含む）で、海水採取をおこなった。特に、2018–2020年7月には、中央水産研究所（現：水産資源研究所）の海調査航海に参加し、それぞれ日本海西南域～東シナ海、日本海北東域～オホーツク海で、電気伝導度（塩分）・水温・水深計（CTD）にニスキンボトルを使用、鉛直方向に海水採取をおこなった（ $^{134}\text{Cs}$  測定のため、100 L/試料の採取が必要）。申請期間中、表層海水～130 試料、鉛直海水～120 試料、合計～250 試料を採取した。

#### 化学処理・線測定

$\text{BaSO}_4$ 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$  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、それぞれ、ラジウム、トリウム、および放射性セシウムの海水試料からの回収をおこなった。

目的放射性核種（特に、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ ）濃度は著しく低いことから、全ての海水試料に、地下測定室に設置のゲルマニウム検出器を利用した極低バックグラウンドガンマ線測定を適用した。

#### データベースの構築

以上の成果として、前例のない広範囲の多数の海水試料で、供給源や半減期の異なる多核種（ $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ ）の濃度データの蓄積（FDNPP 事故由来の  $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  の汚染調査を兼ねる）をおこなった。

#### 日本列島近海の物質循環の解明

溶存放射性核種（ $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ ）の時空間分布およびその経時変動より、日本列島を取り巻く海流（特に親潮、黒潮）の循環を議論した。これをもとに、CTD で得られる塩分などの物理データを加えて、日本列島に向かう親潮、黒潮によりもたらされる物質循環を解明、有事の際の時間軸を伴う溶存性汚染物質の循環パターンの解析をおこなった。

### 4. 研究成果

本研究では、日本列島近海に影響を与える親潮、黒潮海域において、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{228}\text{Th}$  および  $^{224}\text{Th}$  濃度の広範囲の高精度なデータベースを作成・解析した。以下にその代表的成果をまとめた。なお、以下に示す  $^{134}\text{Cs}$  濃度は、全て FDNPP 事故時に壊変補正したものである。

#### 1) ベーリング海表層の $^{134}\text{Cs}$ 濃度

2018年8月に、ベーリング海北東域表層において、日本海、オホーツク海南西域よりも数倍高い  $^{134}\text{Cs}$  濃度の実測値が確認された [1] (図. 1)。これは FDNPP 近辺より太平洋を横断し、アメリカ西海岸に到着、反時計回りに反転した  $^{134}\text{Cs}$  に富む水塊がアリューシャン列島に沿ってのアラスカ海流を経た後のベーリング海流入が示された。それら海流の流路および時間軸に重要な制約を与えた。

## 2) オホーツク海西南域の $^{134}\text{Cs}$ 濃度

オホーツク海西南域では、 $^{134}\text{Cs}$  濃度が、今日に至るまで徐々に上昇を続けている [2] (図. 2)。これらベーリング海の  $^{134}\text{Cs}$  濃度上昇に影響を与えた海流 (例えば、東カムチャッカ海流) が、日本列島親潮海流域へ影響をもたらしていることが推測された。

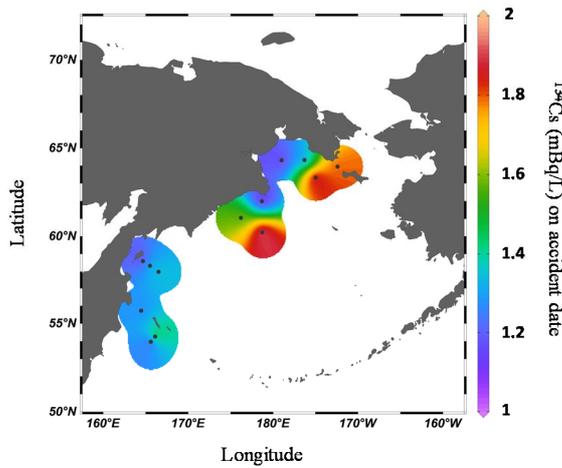


図. 1: ベーリング海表層の  $^{134}\text{Cs}$  濃度

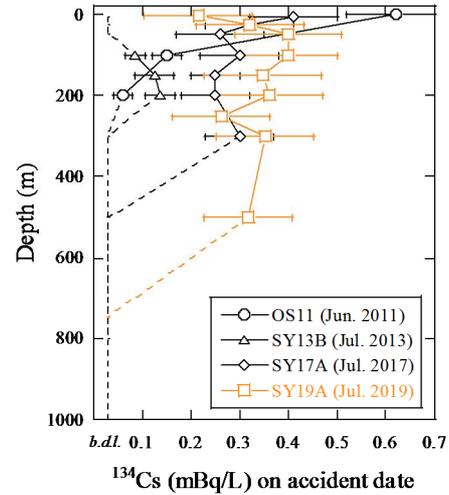


図. 2: オホーツク海西南域の  $^{134}\text{Cs}$  濃度の経年変動

## 3) 東シナ海の $^{134}\text{Cs}$ 濃度

2019年6-12月に東シナ海北東域では、水深200mに、 $^{134}\text{Cs}$  濃度の最大値が確認された (図. 3)。これら  $^{134}\text{Cs}$  濃度の時空間分布より、太平洋側からの黒潮海流に伴う東シナ海を経由した日本海への放射性セシウムの供給メカニズム (例えば、亜熱帯モード水の寄与) について明らかにした [3]。

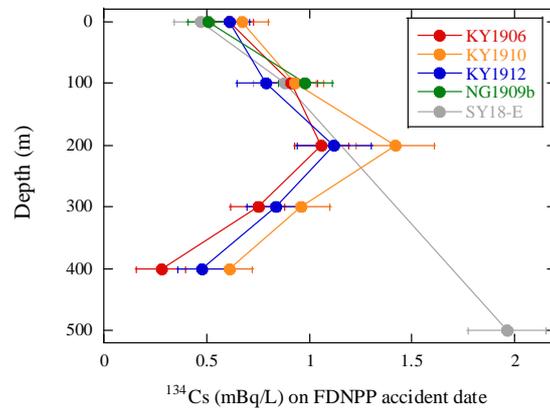


図. 3: 東シナ海表層の  $^{134}\text{Cs}$  濃度

## 4) 日本海表層の $^{134}\text{Cs}$ 濃度

日本海表層では2013年以降、2018年までほぼ同濃度の  $^{134}\text{Cs}$  が太平洋側から流入している [3] (図. 4)。太平洋側に日本海への供給源として、均一な  $^{134}\text{Cs}$  濃度を示す水塊の存在が推測される。

## 5) 日本海鉛直の $^{134}\text{Cs}$ 濃度

2018-2019年7月に  $^{134}\text{Cs}$  濃度の日本海での鉛直分布を調査した [4] (図. 5)。表層および混合層 (水深250m程度) にまで  $^{134}\text{Cs}$  が検出された一方、それ以深の日本海固有水には、 $^{134}\text{Cs}$  沈み込みの影響はみられなかった。

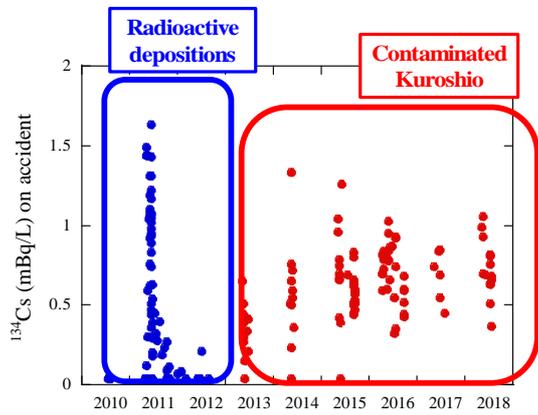


図. 4: 日本海海表層の $^{134}\text{Cs}$ 濃度の経年変動

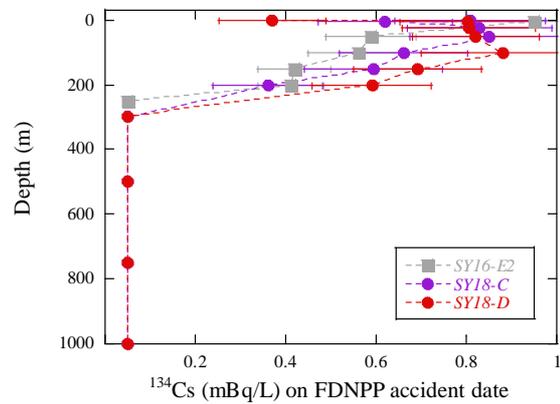


図. 5: 日本海の $^{134}\text{Cs}$ 濃度の鉛直分布

#### 6) $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ と $^{134}\text{Cs}$ 濃度の関係

日本海表層においては、対馬海盆域で他の海域に比較し低い $^{134}\text{Cs}$ 濃度が確認された。 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 濃度より、本海域で $^{134}\text{Cs}$ に乏しい東シナ海浅層海水の寄与が大きい(対馬第二分枝)ことによると説明された [5]。その他、日本列島近辺海域およびベーリング海など、我々が実行したすべての調査において、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ 濃度の分布が、FDNPP事故由来の放射性セシウム循環を考えるうえで有効な指標となった [6]。これはラジウムも海水循環および溶存汚染物質の循環予想にも重要な知見をもたらすことを示した。

#### 7) 日本海の粒子除去

粒子反応性の $^{228}\text{Th}$ 、 $^{234}\text{Th}$ の濃度分布より、粒子の移動および除去モデルの構築を試みた。日本海においては、日本海盆による粒子除去の寄与が、対馬海盆、大和海盆より小さいことが明らかになりつつある。今後、より詳細な解析をおこなう。

**関連文献：** [1] Inoue, M. *et al.* (2020) *Mar. Chem.* **225**, 103843; [2] Inoue, M. *et al.* (2018) *J. Environ. Radioactivity* **192**, 580-586; [3] Inoue, M. *et al.* (2020) *J. Environ. Radioactivity* **223-224**, 106382; [4] Inoue, M. *et al.* (2019) *Mar. Chem.* **214**, 103661; [5] Inoue, M. *et al.* (2021) *Cont. Shelf Res.* **214**, 104328; [6] Inoue, M. (2018) *Trans-Boundary Pollution in North-East Asia*. pp261-278. Nova Science Publishers.

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計10件（うち査読付論文 10件／うち国際共著 0件／うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Inoue, M., Shirotni, Y., Morokado, T., Hanaki, S., Ito, M., Kameyama, H., Kofuji, H., Okino, A., Shikata, T., Yoshida, M., Nagao, S.	4. 巻 214
2. 論文標題 Kuroshio fractions in the southwestern Sea of Japan; implications from radium isotopes	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Continental Shelf Research	6. 最初と最後の頁 104328
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.csr.2020.104328	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Inoue, M., Takehara, R., Takikawa, T., Shirotni, Y., Morita, T., Honda, N., Nagao, S.,	4. 巻 223-224
2. 論文標題 Circulation paths of 134Cs in seawater southwest of Japan in 2018 and 2019.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 106382
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2020.106382	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Inoue, M., Takehara, R., Hanaki, S., Kameyama, H., Nishioka, J., Nagao, S.,	4. 巻 225
2. 論文標題 Distributions of radiocesium and radium isotopes in the western Bering Sea in 2018.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Marine Chemistry	6. 最初と最後の頁 103843
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.marchem.2020.103843	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Takata, H., Aono, T., Aoyama, M., Inoue, M., Kaeriyama, H., Suzuki, S., Tsuruta, T., Wada, T., Wakiyama, Y.	4. 巻 online
2. 論文標題 Suspended Particle - Water Interactions Increase Dissolved 137Cs Activities in the Nearshore Seawater during Typhoon Hagibis.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Environmental Science and Technology	6. 最初と最後の頁 online
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s40710-020-00433-8	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Kaeriyama, H. Fujimoto, K., Inoue, M., Minakawa, M.	4. 巻 222
2. 論文標題 Radiocesium in Japan Sea associated with sinking particles from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 106348
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2020.106348	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

1. 著者名 Inoue, M., Takehara, R., Yamashita, S., Senjyu, T., Morita, T., Miki, S., Nagao, S.	4. 巻 214
2. 論文標題 Convection of surface water in the northeastern Japan Sea: Implications from vertical profiles of <sup>134</sup> Cs concentrations.	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Marine Chemistry	6. 最初と最後の頁 103661
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.marchem.2019.05.004	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Inoue, M., Yamashita, S., Takehara, R., Miki, S., Nagao, S.	4. 巻 145
2. 論文標題 Low levels of Fukushima Dai-ichi NPP-derived radiocesium in marine products from coastal areas in the Sea of Japan (2012-2017)	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Applied Radiation and Isotopes	6. 最初と最後の頁 187-192
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apradiso.2018.12.029	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Inoue, M., Morokado, T., Fujimoto, K., Miki, S., Kofuji, H., Isoda, Y., Nagao, S.	4. 巻 192
2. 論文標題 Vertical profiles of Fukushima Dai-ichi NPP-derived radiocesium concentrations in the waters of the southwestern Okhotsk Sea (2011-2017)	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 580-586
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2018.04.021	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Takata, H., Inoue, M., Shirotani, Y., Kudo, N.	4. 巻 141
2. 論文標題 Radiocesium in the swash zones off the coast of the Japan Sea.	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Applied Radiation and Isotopes	6. 最初と最後の頁 64-69
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.apradiso.2018.08.012	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nomura, R., Inoue, M., Kofuji, H.	4. 巻 197
2. 論文標題 Preliminary investigation of 222Rn in the Yakumo Wind-hole, an algific talus deposits, from Izumo, southwest Honshu, Japan	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 109-115
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2018.12.008	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計1件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件)

1. 発表者名 Inoue, M.
2. 発表標題 Introduction of latest researches in Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Japan.
3. 学会等名 1st Integrated Conference on Joint research Program in Mongolia (ICJPM)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 井上 睦夫	4. 発行年 2019年
2. 出版社 日本分析化学会	5. 総ページ数 2
3. 書名 ぶんせき	

1. 著者名 M. Inoue	4. 発行年 2018年
2. 出版社 Nova Science Publishers	5. 総ページ数 18
3. 書名 Trans-Boundary Pollution in North-East Asia	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分 担 者	長尾 誠也  (Nagao Seiya)  (20343014)	金沢大学・環日本海域環境研究センター・教授   (13301)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------