

令和 6 年 6 月 5 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H03575

研究課題名（和文）福島原子力発電所事故由来のセシウムからみた北太平洋北域の溶存汚染物質循環

研究課題名（英文）Transport patterns of soluble contaminants in the northern North Pacific Ocean: Implications from FDNPP-derived radiocesium

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） 13,500,000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、低バックグラウンドガンマ線測定法を適応し、亜寒帯海域を中心とした複数の溶存放射性核種（ $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ ）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 $^{134}\text{Cs}$ の分布は有効な海水循環のトレーサーとなった。さらにラジウムのから得られる水塊情報を加え、亜寒帯海域を取り巻く時間軸を含む溶存汚染物質の循環パターンモデルを構築した。

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。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のが極めて有効である。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。さらに本研究で得られる日本列島を取り巻く海水の $^{134}\text{Cs}$ および $^{137}\text{Cs}$ 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 ( $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ ) in seawater have been used as powerful tracers to investigate geochemical cycles in marine environments. By employing low-background gamma-spectrometry, we conducted fine-resolution observations of spatial variations of these radionuclides in the subarctic zone, and assessed the water circulation. Along with implications of water transport from  $^{228}\text{Ra}$ , FDNPP accident-derived  $^{134}\text{Cs}$  explained the circulation paths and timescale of soluble components in the subarctic zone.

研究分野：海洋化学

キーワード：放射性セシウム ラジウム 福島原子力発電所事故 ガンマ線計測 亜寒帯海域 海水循環

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 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。北太平洋亜寒帯域に関する情報は、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する短半減期の  $^{134}\text{Cs}$  (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、現在使用す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。放射壊変および海洋拡散により濃度が低くなった福島原発事故由来の  $^{134}\text{Cs}$  の実測値に基づく分布パターンの解析は、測定の高難さから著しく少ない。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、日本列島周辺および千島列島沖といった調査海域で水塊独自の濃度を示し、それはセシウムの循環パターンを理解する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。特に、オホーツク海、ベーリング海などの縁海の深層海水は準閉鎖系ゆえに様々な人為事故や汚染に弱い。本研究では、これら亜寒帯海域縁海において、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$  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

北太平洋における溶存成分循環の流動パターンおよびその時間軸設定は、汚染問題を考えるうえで極めて重要である。これに対し、環境中に放出された時期・地域の明らかな 2011 年福島原子力発電所事故に由来する放射性セシウムをトレーサーとする手法が、現在有効である。本研究では、日本列島を取り巻く海洋環境に影響を与える北太平洋北西域 (ベーリング海、カムチャッカ海流域、親潮寒流域、オホーツク海南西域)、特に北海道東沖において、供給源および半減期の異なる溶存性の  $^{134}\text{Cs}$  (半減期 2.06 年)、 $^{137}\text{Cs}$  (30.2 年)、 $^{226}\text{Ra}$  (1600 年)、および  $^{228}\text{Ra}$  (5.75 年) 濃度を極低バックグラウンドガンマ線測定法により求め、広範囲の高精度なデータベースを作成・解析する。そのうえで北太平洋北西域を舞台とした海水循環、微弱放射性セシウム (特に  $^{134}\text{Cs}$ ) に注目することにより、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) 有事の際のグローバルスケールおよび縁海スケールにおける溶存性汚染物質循環の対策 (風評被害対策を含む) に対応するものにまとめることを目的とした。

### 3．研究の方法

本研究は、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1-3）をおこなった。そのうえで、FDNPP事故由来の放射性セシウムを中心に事故を評価（4）、最終的には海水および溶存成分の循環を解明した（5）。

1) 海水試料採取：オホーツク海、ベーリング海、および北太平洋北西域および黒潮暖流含む日本列島周辺で、海水採取をおこなった。特に、2020-2023年の7月、10月、および1月には、水産資源研究所の海調査航海に参加し、日本海北東域～オホーツク海を中心に、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（ $^{134}\text{Cs}$ 濃度測定のため、100-150L/試料の採取が必要）。さらに、海洋研究開発機構の調査船「みらい」の調査航海でも亜寒帯～ベーリング海～北極海において海水試料を採取した。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。

2) 化学処理・ガンマ線測定： $\text{BaSO}_4$ 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 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、低レベル放射線測定用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。

3) 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（ $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{226}\text{Ra}$ 、 $^{228}\text{Ra}$ ）の濃度データの蓄積をおこなった。

4) 福島原発事故評価： $^{134}\text{Cs}$  および  $^{137}\text{Cs}$  濃度分布の記録を継続する。これは福島原発寄与の評価にも有効であり、さらに日本列島を取り巻く海洋風評被害防止にも有効である。

5) 亜寒帯海域の物質循環の解明：溶存放射性核種の時空間分布およびその経時変動より、亜寒帯海域のグローバルスケールの海流の循環を議論した。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、本海域を舞台とした物質循環を解明、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

各海域で以下の結果および知見が得られた。本研究では、福島原発由来の放射性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グローバルスケールの海水循環の化学的トレーサーとして利用した。

1) 北海道道東沖：道東沖では表層の  $^{134}\text{Cs}$  濃度が、2020年に最大値を示した（図.1）[1, 2]。福島原発由来の  $^{134}\text{Cs}$  が主要海流とともに反時計回りに北太平洋を循環、アメリカ西海岸近海を經由し10年かけて道東に到達したことが推測された。一方、2023年1月に、その濃度は再度上昇した。オホーツク海を經由した水塊のタイムラグを反映していると推測された。

2) ベーリング海：かつての大気圏内核実験由来の残留  $^{137}\text{Cs}$  に加え、ベーリング海では  $^{137}\text{Cs}$  濃度の 2018–2020 年の急上昇の後、2023 年に減少傾向がみられた(図.2) [3, 4]。太平洋側からの流入海水における FDNPP 由来の  $^{137}\text{Cs}$  の濃度変動を反映していると推測された。

3) オホーツク海南西域：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 [5] (図. 3)。表層の  $^{134}\text{Cs}$  濃度および  $^{134}\text{Cs}$  インベントリー（水柱単位面積当たりの  $^{134}\text{Cs}$  総量）が 2017 年から 2022 年まで徐々に上昇を続けている。反時計回りの海流によってもたらされた  $^{134}\text{Cs}$  が東カムチャッカ海流を経由し、オホーツク海で蓄積していると推測された。

4) ラジウム同位体の知見：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推測するうえで有効な指標となった [1-3, 5]。これは今後ラジウム濃度分布の解析（文献調査含む）も含み、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。

5) 亜寒帯海域全体：以上の  $^{134}\text{Cs}$  を中心とした溶存放射性核種の結果から得られた亜寒帯海域全体の海水循環イメージを、図.4 にまとめた [1]。循環中の  $^{134}\text{Cs}$  濃度の比較より、東方向への北太平洋海流（8–10 mBq/L [6]）以降との混合などによる道東海域への希釈率 1/5–1/10 とそこに至る時間軸（10 年）に関する知見が得られた。

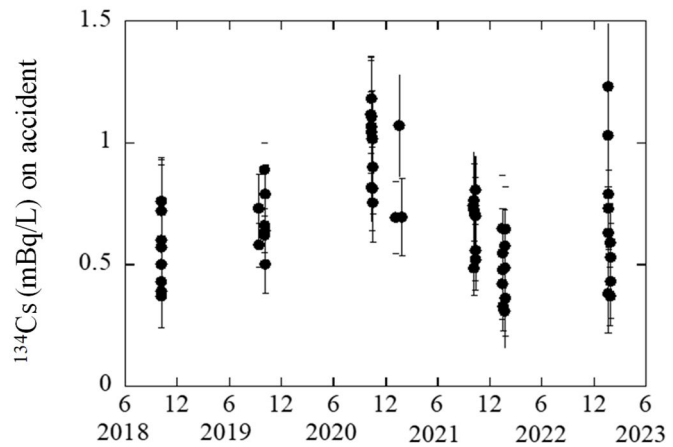


図.1 北海道道東沖表層における  $^{134}\text{Cs}$ 濃度の経年変動 [1, 2]

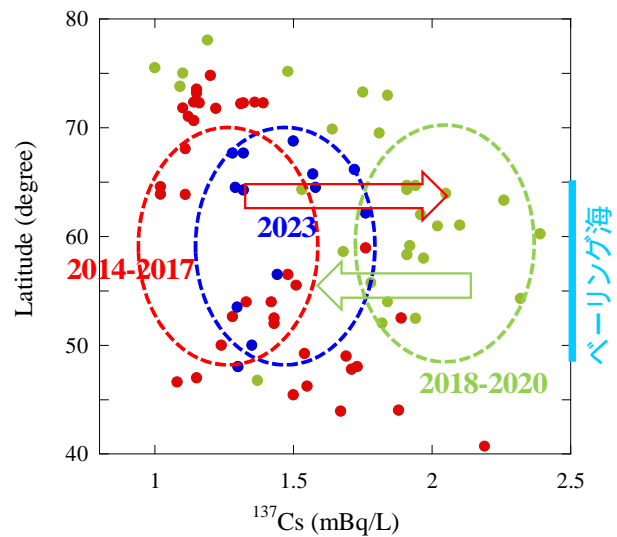


図.2 ベーリング海表層における  $^{137}\text{Cs}$ 濃度の経年変動 [3, 4]

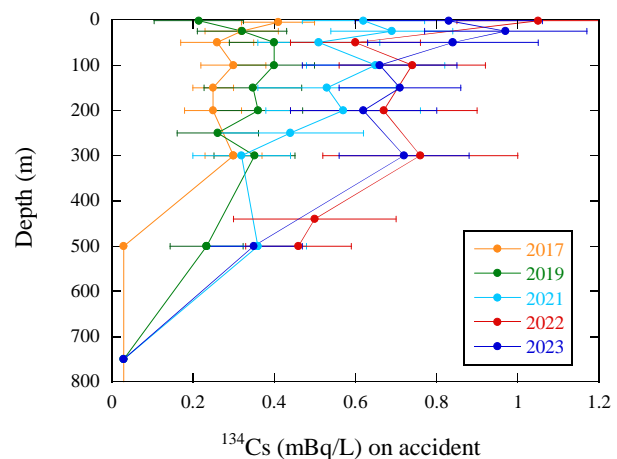


図.3 オホーツク海南西域における  $^{134}\text{Cs}$  の濃度鉛直分布の経年変動 [5]

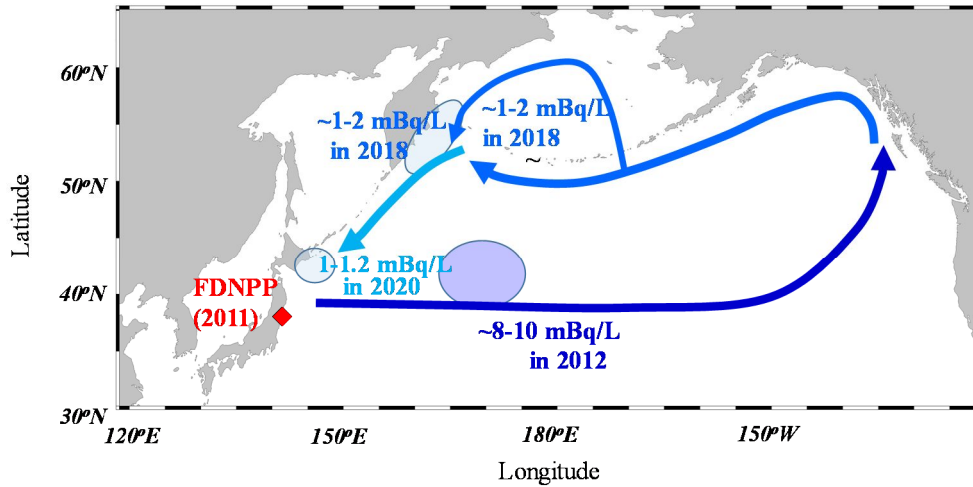


図.4 亜寒帯海域における<sup>134</sup>Cs濃度の変動と海水循環 [1, 6]

**関連文献：** [1] Inoue, M. *et al.* (2023) *Sci. Rep.* **13**, 7524: [2] Inoue, M. *et al.* (2021) *Prog. Oceanogr.* **195**, 102587: [3] Inoue *et al.* (2016) *J. Environ. Radioactivity* **162-163**, 33-38: [4] Kumamoto *et al.* (2022) *J. Environ. Radioactivity* **251-252**, 106949: [5] Inoue, M. *et al.* (2022) *J. Environ. Radioactivity* **250**, 106931: [6] Kumamoto *et al.* (2022) *J. Environ. Radioactivity* **251-247**, 106864

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 9件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Inoue, M., Shirodani, Y., Morokado, T., Hanaki, S., Kameyama, H., Kofuji, H., Okino, A., Yoshida, M., Miki, S., Shikata, T., Honda, N., Takikawa, T., Morita, M., Nagao, S.	4. 巻 241
2. 論文標題 Transport of reactive materials in the Sea of Japan: Implications from fine-resolution surface distribution of 228Th/228Ra ratio.	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Continental Shelf Research	6. 最初と最後の頁 104749
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.csr.2022.104749	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., Mashita, K., Kameyama, H., Takehara, R., Hanaki, S., Kaeriyama, H., Miki, S., Nagao, S.	4. 巻 250
2. 論文標題 Transport paths of radiocesium and radium isotopes in the intermediate layer of the southwestern Sea of Okhotsk.	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 106931
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2022.106931	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 Kumamoto, Y., Aoyama, M., Hamajima, Y., Inoue, M., Nishino S., Kikuchi, T., Murata, A., Sato, K.	4. 巻 251-252
2. 論文標題 Fukushima-derived radiocesium in the western subarctic area of the North Pacific Ocean, Bering Sea, and Arctic Ocean in 2019 and 2020	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 106949
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2022.106949	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., Shirodani, Y., Morokado, T., Hanaki, S., Kameyama, H., Kofuji, H., Okino, A., Yoshida, M., Miki, S., Shikata, T., Honda, N., Takikawa, T., Morita, M., Nagao, S.	4. 巻 241
2. 論文標題 Transport of reactive materials in the Sea of Japan: Implications from fine-resolution surface distribution of 228Th/228Ra ratio.	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Continental Shelf Research	6. 最初と最後の頁 104749
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.csr.2022.104749	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., Mashita, K., Kameyama, H., Takehara, R., Hanaki, S., Kaeriyama, H., Miki, S., Nagao, S.	4. 巻 250
2. 論文標題 Transport paths of radiocesium and radium isotopes in the intermediate layer of the southwestern Sea of Okhotsk.	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 106931
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2022.106931	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 Kumamoto, Y., Aoyama, M., Hamajima, Y., Inoue, M., Nishino S., Kikuchi, T., Murata, A., Sato, K.	4. 巻 251-252
2. 論文標題 Fukushima-derived radiocesium in the western subarctic area of the North Pacific Ocean, Bering Sea, and Arctic Ocean in 2019 and 2020	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 106949
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2022.106949	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., Mitsunushi, H., Mashita, K., Matsunaka, T., Inomata, Y., Hayashi, M., Archer, S., Nagao, S.	4. 巻 258
2. 論文標題 Origin of surface water in the Southern Ocean: Implications of soluble radionuclide distributions	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Journal of Environmental Radioactivity	6. 最初と最後の頁 107106 ~ 107106
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jenvrad.2022.107106	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 該当する

1. 著者名 Inoue, M., Mashita, K., Kameyama, H., Mitsunushi, H., Hatakeyama, Y., Taniuchi, Y., Nakanowatari, T., Morita, T., Nagao, S.	4. 巻 13
2. 論文標題 Subarctic-scale transport of <sup>134</sup> Cs to ocean surface off northeastern Japan in 2020	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Scientific Reports	6. 最初と最後の頁 7524
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1038/s41598-023-34775-8	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., Mashita, K., Mitsunushi, H., Nagao, S., Kumamoto, Y.	4. 巻 201
2. 論文標題 Unique transport paths of 137Cs from the Indian to Southern Oceans	5. 発行年 2024年
3. 雑誌名 Marine Pollution Bulletin	6. 最初と最後の頁 116168 ~ 116168
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.marpolbul.2024.116168	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 1件)

1. 発表者名 Inoue, M., Mashita, K., Takehara, R., Kameyama, H., Kaeriyama, H., Miki, S., Nagao, S.
2. 発表標題 Spatial distribution of 134Cs concentration in the southwestern Sea of Okhotsk in 2019-2021.
3. 学会等名 6th International Conference on Environmental Radioactivity (Envira 2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計3件

1. 著者名 井上睦夫	4. 発行年 2022年
2. 出版社 海洋出版株式会社	5. 総ページ数 7
3. 書名 月刊海洋	

1. 著者名 井上睦夫	4. 発行年 2023年
2. 出版社 環日本海域環境研究センター	5. 総ページ数 8
3. 書名 日本海域研究	



1. 著者名 Inoue, M., Ochiai, S.	4. 発行年 2023年
2. 出版社 Springer	5. 総ページ数 13
3. 書名 Field Work and Laboratory Experiments in Integrated Environmental Sciences	

[ 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 (Seiya Nagao) (20343014)	金沢大学・環日本海域環境研究センター・教授  (13301)	循環モデル構築
研究分担者	松中 哲也 (Tetsuya Matsunaka) (60731966)	金沢大学・環日本海域環境研究センター・助教  (13301)	化学処理と測定

	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
研究協力者	熊本 雄一郎 (Kumamoto Yuichirou)		
研究協力者	三木 志津帆 (Miki Shizuho)		
研究協力者	谷内 由貴子 (Taniuchi Yukiko)		

6. 研究組織（つづき）

	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
研究協力者	本多 直人  (Honda Naoto)		
研究協力者	城谷 勇陸  (Shirotani Yuhei)		

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