

平成 30 年 5 月 18 日現在

機関番号：13301

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2015～2017

課題番号：15K00518

研究課題名(和文) 複数の放射性核種の高分解能空間分布からみた日本列島周辺海域の物質循環

研究課題名(英文) Geochemical cycles in sea environments around the Japanese Archipelago from 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・准教授

研究者番号：60283090

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,700,000円

研究成果の概要(和文)：海洋環境における溶存成分および粒子吸着性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放射性核種濃度の季節的・空間的に高分解能かつ高精度なデータベースを作成・解析した。日本海におけるラジウム同位体の時空間的分布は、放射性セシウムの循環パターンを説明した。すなわちラジウムのデータベースが、日本海にもたらされる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。一方で、Th-228、Th-234の時空間分布からは、粒子の循環モデルを構築した。

研究成果の概要(英文)：Soluble and reactive radionuclides (Ra-226, Ra-228, Cs-134, Cs-137, Th-228, and Th-234) 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 and seasonal variations of these radionuclides in the Sea of Japan (and the neighboring East China Sea and Okhotsk Sea), and assess the circulation patterns of water masses and particles. Furthermore, the migration of Ra-228 readily explained the expanding pattern of the 2011 Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident-derived radiocesium around the Japanese Archipelago.

研究分野：海洋化学

キーワード：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

供給源、半減期および地球化学的挙動の全く異なる ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{228}Th および ^{234}Th の時間的・空間的に高分解能かつ高精度なデータは、日本列島を取り巻く海洋放射能汚染をはじめとする汚染事故などに起因する溶存および非溶存有害物質の循環予測に、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、日本列島近海の三次元的物質循環、さらにその季節変動の解明を進める。濃度が著しく低いなどその測定の困難さから、本アプローチは、世界的にみても、我々が先行研究でおこなった $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比以外はない。

日本列島周辺縁海域では、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引き金が存在する。溶存性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、有事の際の溶存汚染物質循環の対策にも有効である。また粒子反応性の ^{228}Th 、 ^{234}Th 濃度分布を利用した、粒子吸着性汚染物質の循環および除去モデルの構築も必要となる。

2. 研究の目的

指標となりうる放射性核種は、その測定の困難さから、海水の放射能研究は、単一核種に限定した、季節変動(季節的な海流変化)の考慮のない海水循環の議論が大半を占める。

溶存成分の ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の空間・季節的分布から、水塊移動や水塊同士の混合パターンを解析する。空間的さらには季節的(特にデータ数の少ない冬季)に分解能を上げる方針である。一方で、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 濃度測定は、福島原発等との評価にも有効である。

一方、粒子吸着性の ^{228}Th 、 ^{234}Th の季節変動、空間的(水平・鉛直)分布および季節変動を解析し、粒子吸着性汚染物質の除去メカニズム(粒子吸着性物質の滞留時間に相当)さらには日本列島近海の海水中の粒子の循

環に関する知見を引き出す。

本研究では、日本列島近海～沖合を舞台とした、これら複数の放射性核種分布のデータベースの蓄積(^{134}Cs 、 ^{137}Cs の汚染調査を兼ねる)を経て、有事の際の溶存汚染物質の循環パターンを解析する。

3. 研究の方法

海水試料採取

・鉛直分布調査用海水試料：中央水産研究所、日本海区水産研究所、および海洋生物環境研究所の調査航海で、シナ海～日本海～オホーツク海において海水試料を採取した。

・表層の水平・季節変動調査用海水試料：日本海において、様々な大学の臨海実験施設や各県の水産センターに定期的表層海水採取を依頼、採取した(1ヶ月に1回)。

化学処理・ガンマ線測定

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、トリウム、セシウム同位体の海水試料からの同時回収をおこなった。目的核種濃度は著しく低いことから、全ての海水試料に、地下測定室を利用した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、前例のない多数の海水試料で、かつ地球化学的挙動の異なる多核種(^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{228}Th および ^{234}Th)の濃度データを得た。すでに報告のある対象海域海水のこれら核種濃度データ(申請者グループおよび他の研究グループの文献)を加えることにより、海洋環境の物質動態を解析するうえで非常に有効な放射性核種分布データベースを構築した。

4. 研究成果

溶存核種(^{226}Ra 、 ^{228}Ra 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs)の空間分布から、日本列島を取り巻く水塊の循環、季節的变化の解明を議論した。また粒子反応性の ^{228}Th 、 ^{234}Th の濃度より、粒子の移

動・除去およびその時間軸を検証した。これをもとに、日本列島を取り巻く三大縁海の物質循環を解明、有事の際の溶存および粒子汚染物質の循環パターンの解析をおこなった。

以下に、その代表的成果を示す。

(1) ^{228}Ra からみた表層海水循環

東シナ海大陸側浅層海水は世界的にみても ^{228}Ra に著しく富む。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を、東シナ海での ^{228}Ra の乏しい黒潮との混合、その後の日本海での循環、さらにはオホーツク海への混入パターンを探るトレーサーとして確立し、その知見をまとめた (図.1 ; Inoue *et al.*, 2017c)。

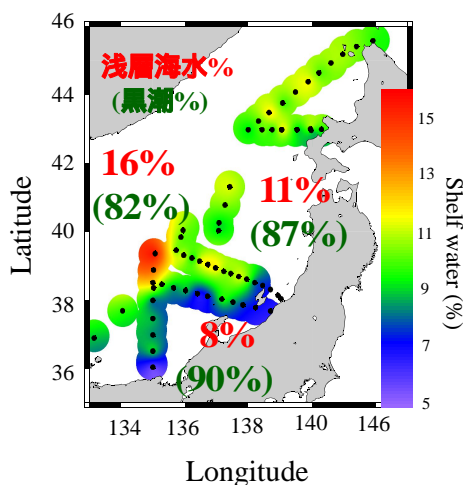


図.1 ^{228}Ra 濃度から見積もった日本海表層の東シナ海浅層海水の寄与

(2) 日本海のセシウム汚染評価

2011年の福島原発事故により海洋に放出された ^{134}Cs 、 ^{137}Cs が、日本海において、2013年以降に極微弱ながら検出された。福島原発起源の放射性セシウムに汚染された黒潮分枝の日本海への再流入を示した (図.2 ; Inoue *et al.*, 2018c)。

(3) ^{228}Ra からみた溶存汚染物質循環

日本列島周辺海域において、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の分布が、福島原発起源の放射性セシウム循環の有効な指標になることを明らかにした。例えば日本海では、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比が低い (黒潮海水比が高い) 季節に ^{134}Cs 濃度が上昇することが確認された (図.3 ; Inoue *et al.*, 2018c)。

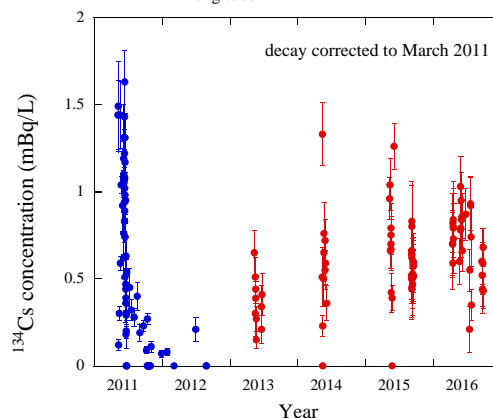
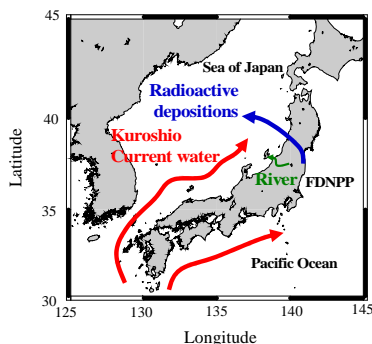


図.2 ^{134}Cs 濃度の供給源とその経時変動

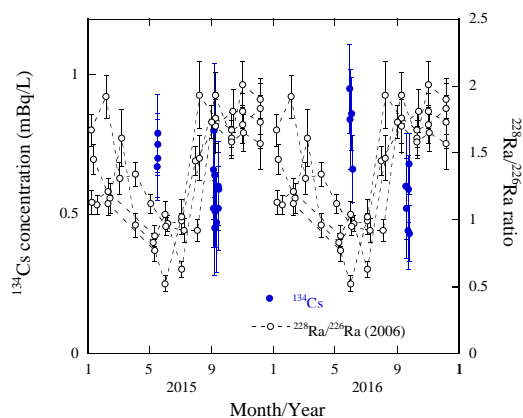


図.3 日本海表層における ^{134}Cs 濃度の季節変動

(4) オホーツク海のセシウム汚染評価

オホーツク海南東域の ^{134}Cs 濃度の鉛直分布より、福島原発起源の放射性セシウムが2017年には太平洋から再流入していることが明らかになった (Inoue *et al.*, submitted)。

(5) 河川起源のセシウムの評価

河川水の運搬による、福島原発由来の放射性セシウムの日本海への影響を調べた。その総蓄積量 (2015年7月の段階で06 TBq) は、太平洋側の0.3%と見積もられた (図.4 ; Inoue *et al.*, 2017a)。

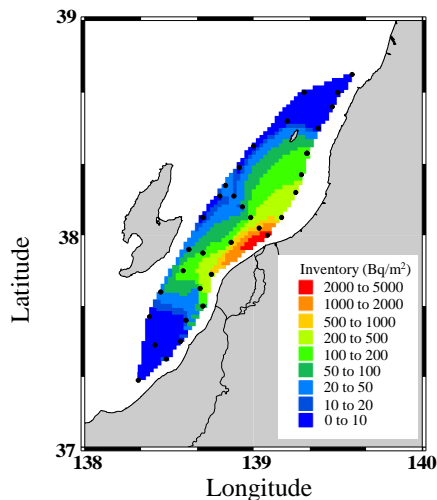


図.4 新潟沿岸～沖合における¹³⁴Cs集積量

(6) トリウムからみた粒子除去

東シナ海～日本海の表層において、²²⁸Th および ²³⁴Th 濃度の大きな空間分布、季節変動を明らかにした。その時空間的高分解能測定 of 粒子循環解析への有効性を確認した。

以上の成果の多くは、査読有国際誌において公表された (2015 年以降、申請者筆頭で 10 本；研究業績参照)。

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)

- (1) Inoue, M., Yoneoka, S., Ochiai, S., Morokado, T., Uemura, H., Nagao, S. (2018a) Low levels of ¹³⁴Cs in suspended solids in rivers discharging into the Sea of Japan. *Journal of Radioanalytical Nuclear Chemistry* (accepted). <https://doi.org/10.1007/s10967-018-5783-7>
- (2) Inoue, M., Shirovani, Y., Nagao, S., Aramaki, T., Kim, Y.I., Hayakawa, K. (2018b) Spatial variations of ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ¹³⁴Cs, and ¹³⁷Cs concentrations in western and southern waters off the Korean Peninsula in July 2014. *Journal of Environmental Radioactivity* **182**, 151-156. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.11>.

- (3) Inoue, M., Shirovani, Y., Yamashita, S., Takata, H., Kofuji, H., Ambe, D., Honda, N., Yagi, Y., Nagao, S. (2018c) Temporal and spatial variations of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs levels in the Sea of Japan and Pacific coastal region: Implications for dispersion of FDNPP-derived radiocesium. *Journal of Environmental Radioactivity* **182**, 142-150. <https://doi.org/10.1016/j.jenvrad.2017.11.032>
- (4) Inoue, M., Uemura, H., Kofuji, H., Fujimoto, K., Takata, H., Shirovani, Y., Kudo, N., Nagao, S. (2017a) Spatial variation of low-level ¹³⁴Cs in the coastal sediments off central Honshu in the Sea of Japan: Implications for delivery, migration, and redistribution patterns. *Journal of Oceanography* **73**, 571-584.
- (5) Inoue, M., Yamashita, S., Fujimoto, K., Kofuji, H., Miki, S., Nagao, S. (2017b) Simple ⁴⁰K removal by acidified water leaching for estimating low levels of radiocesium in fishery products following Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Applied Radiation and Isotopes* **120**, 17-21.
- (6) Inoue, M., Y. Shirovani, Furusawa, Y., Fujimoto, K., Kofuji, H., Yoshida, K., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Honda, N., Morimoto, A., Takikawa, T., Shiomoto, A., Isoda, Y., Minakawa, M. (2017c) Migration area of the Tsushima Warm Current Branches within the Sea of Japan: Implications from transport of ²²⁸Ra. *Continental Shelf Research* **143**, 167-174. <http://dx.doi.org/10.1016/j.csr.2016.08.010>
- (7) 井上睦夫・藤本 賢・森田貴己 (2017d)

日本海放射能調査および海洋研究への適用-中央水産研究所「蒼鷹丸」調査航海を例にとって- . *日本海域研究* **48**, 63-70. (査読有)

- (8) Inoue, M., Shirovani, Y., Nagao, S., Kofuji, H., Volkov, Y. N., Nishioka, J. (2016) Migration of the FDNPP-derived ^{134}Cs and ^{137}Cs along with ^{226}Ra and ^{228}Ra concentrations across the northwestern North Pacific Ocean. *Journal of Environmental Radioactivity* **162-163**, 33-38.
- (9) 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. (2015) Lateral and temporal variations in Fukushima DNPP-derived ^{134}Cs and ^{137}Cs in marine sediments in/around the Sado Basin, Sea of Japan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **303**, 1313-1316.
- (10) Inoue, M., Minakawa, M., Yoshida, K., Nakano, Y., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y., Yamamoto, M. (2015) Vertical profiles of ^{228}Ra and ^{226}Ra activities in the Sea of Japan and their implications on water circulation. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **303**, 1309-1312.

[学会発表](計 7件)

- (1) Inoue, M., Yoneoka, S., Ochiai, S., Morokado, T., Uemura, H., Nagao, S., Low-levels of ^{134}Cs in riverine suspended solids discharged to coastal areas off central Honshu in the Sea of Japan. *6th Asia Pacific Symposium on Radiochemistry*. Jeju Island, Korea (2017.9.17-21).
- (2) Inoue, M., Morokado, T., Fujimoto, K., Miki,

S., Kofuji, H., Isoda, Y., Nagao, S., Vertical profiles of FDNPP-derived radiocesium concentrations in southwestern Okhotsk Sea waters. *6th Asia Pacific Symposium on Radiochemistry*. Jeju Island, Korea (2017.9.17-20).

- (3) Inoue, M., Geochemical Cycles in the Sea of Japan: Implications from Radionuclides. *School of Science Seminar series*, Auckland University of Technology, New Zealand (2016.11.17).
- (4) Inoue, M., Shirovani, Y., Furusawa, Y., Fujimoto, K., Kofuji, H., Yoshida, K., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Honda, N., Minakawa, M., Shiimoto, A., Isoda, Y., Hayakawa, K.; Migration pattern of the Tsushima Warm Current within/around the Sea of Japan: Implications from transport of ^{228}Ra . *18th Pacific-Asian Marginal Seas Meeting*, Naha, Okinawa (2015.4.21).
- (5) 井上睦夫・城谷勇陸・古澤佑一・藤本賢・吉田圭佑・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の循環パターン. 研究会集「宗谷暖流を始めとした対馬暖流系の変動メカニズム」, 北海道大学 (2015.7.9).
- (6) 井上睦夫・城谷勇陸・長尾誠也・小藤久毅・西岡純, 北太平洋北西域表層における FDNPP 起源の放射性セシウムの分布. 共同研究シンポジウム「千島海峡および東カムチャツカ海流域における海洋物理と生物地球化学」, 北海道大学 (2015.12.10).
- (7) 井上睦夫・上村宙輝・長尾誠也・米岡修一郎・濱島靖典・落合伸也・城谷勇陸・糸野妙子・山本政儀・藤本賢, 新潟沿岸～沖合堆積物における福島原子力

発電所事故由来 ^{134}Cs の空間分布 .2016
年度春季日本海洋学会，東京大学
(2016.3.17).

〔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：
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・
准教授
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・
准教授

研究者番号：60172970

(3) 連携研究者

藤本 賢 (FUJIMOTO, Ken)
国立研究開発法人 水産研究・教育機構・中央
水産研究所・研究員
研究者番号：20371841

(4) 研究協力者

()