

Radiological Sciences

# 放射線科学

2009.03

Vol.52

第52巻 第3号



Radiological  
Sciences

特集

海洋環境放射能ワークショップ

「沿岸-外洋域における放射性核種の挙動  
観測からモデル構築へ」

ISSN 0441-2540

特集 / 海洋環境放射能ワークショップ  
「沿岸—外洋域における放射性核種の挙動  
観測からモデル構築へ」

## Contents

- 04 巻頭言  
放射線防護研究センター 那珂湊支所長 日下部 正志
- 06 (1)「沿岸—外洋域における放射性核種の動態の総合的調査研究」の概要説明  
放射線防護研究センター 那珂湊支所 海洋環境調査技術開発室 青野 辰雄  
放射線防護研究センター 那珂湊支所長 日下部 正志
- 12 (2)太平洋東北沖における放射性核種の濃度分布と変動  
放射線防護研究センター 那珂湊支所 中西 貴宏
- 16 (3)太平洋東北沖における放射性核種の挙動に果たすプランクトンの役割について  
放射線防護研究センター 那珂湊支所 梶山 秀樹
- 23 (4)沿岸域における放射性核種の海産生物への移行について  
(財)電力中央研究所 環境科学研究所 立田 穰
- 27 (5)海水、懸濁粒子、沈降粒子および堆積物中のプルトニウム同位体の分布と挙動  
放射線防護研究センター 環境放射線影響研究グループ  
海洋動態解析研究チーム 山田 正俊
- 34 (6)本周辺海域における人工放射性核種の濃度分布と経年変化について  
(財)海洋生物環境研究所 中央研究所 稲富 直彦、鈴木 千吉、御園生 淳、原 猛也、城戸 勝利  
(財)日本分析センター 太田 博、小島 健治
- 40 (7)「青森県周辺における放射性核種の挙動に影響を与える海況について」  
(財)日本海洋科学振興財団 むつ海洋研究所 海洋研究部 島 茂樹
- 48 (8)六ヶ所村大型再処理施設周辺の水圏環境における放射性核種移行モデルの構築  
(財)環境科学技術研究所 環境動態研究部 植田 真司、近藤 邦男、久松 俊一
- 53 (9)海洋における放射性核種の挙動モデルについて  
(独)日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門 小林 卓也
- 58 随想  
市川 龍資
- 59 編集後記



▲太平洋東北沖における海洋観測の様子:現場型大容量海水濾過濃縮装置の取付け作業



▲艀装を終えて、出港する調査船



▲海洋観測機器の取付け



▲大型プランクトンネット



▲調査仕様に艀装した後部甲板

巻頭言

放射線防護研究センター 那珂湊支所長  
日下部 正志



日下部 正志 (Masashi Kinokabe)

海水中には、様々な物質が様々な形態で存在しており、同時にそれらは時々刻々変化している。海洋における物質循環の模式図を図1に示す。太陽光が届く海洋表層では植物プランクトンは溶存している栄養塩を取込み、光合成により増殖する。この植物プランクトンは食物連鎖のベースになる。この植物プランクトンは動物プランクトンに、動物プランクトンは魚類に補食される。これらのプランクトンのライフサイクルの過程で、主に排泄やプランクトン自身の死により多種類の生物起源粒子が生産される。この中で比較的大型の粒子は、海洋深層へ沈降すると同時に、一部は途中で分解や溶解をして小粒子に変化したり、バクテリアにより無機化される。小さい粒子は重力による沈降の影響はあまりないものの、活発な成長（衝突による大粒子化）、分解、溶存のプロセスを経ている事が予想される。海水中に溶けている物質は程度の差はあるものの多くがこれら粒子の表面に吸着する。一方、風や海流に伴う表層の海水の混合や拡散は純粋に物理過程であり、そこに溶けている物質（及び一部の小粒子）はその物理過程に支配さ

れている。そのため海洋における放射性核種の挙動を調査研究する場合、海水中の多様な物質の存在形（溶存、粒子、プランクトン等）を考慮した物質循環と放射性核種の関連性を定量的に明らかにする必要がある。

海洋における放射性核種の挙動を研究する目的は2つある。まず現状の把握である。そこから海洋環境の放射能が安心なレベルにあることを確認する。これは主に地方自治体が定期的に行っており、地域住民の安心安全を担保している。もう一つは未来予測である。現在環境に放出されている放射性核種は、コントロールされたレベルであるが、それは将来的にどうなるのだろうか？薄められてしまうというけど、ゼロになる訳はない。ゼロでないという事は危険という事？魚に濃縮しないの、海藻は、貝は？更には、確かに、今はあまり汚染がないようだけど、事故があったらどうなるという疑問になる。最近の環境に対する人々の関心の高まりは、時には過剰な不安となる場合もあり、我々はきちんと汚染の状況、将来の見通し、事故時の対応とその影響予測ができなければならない。

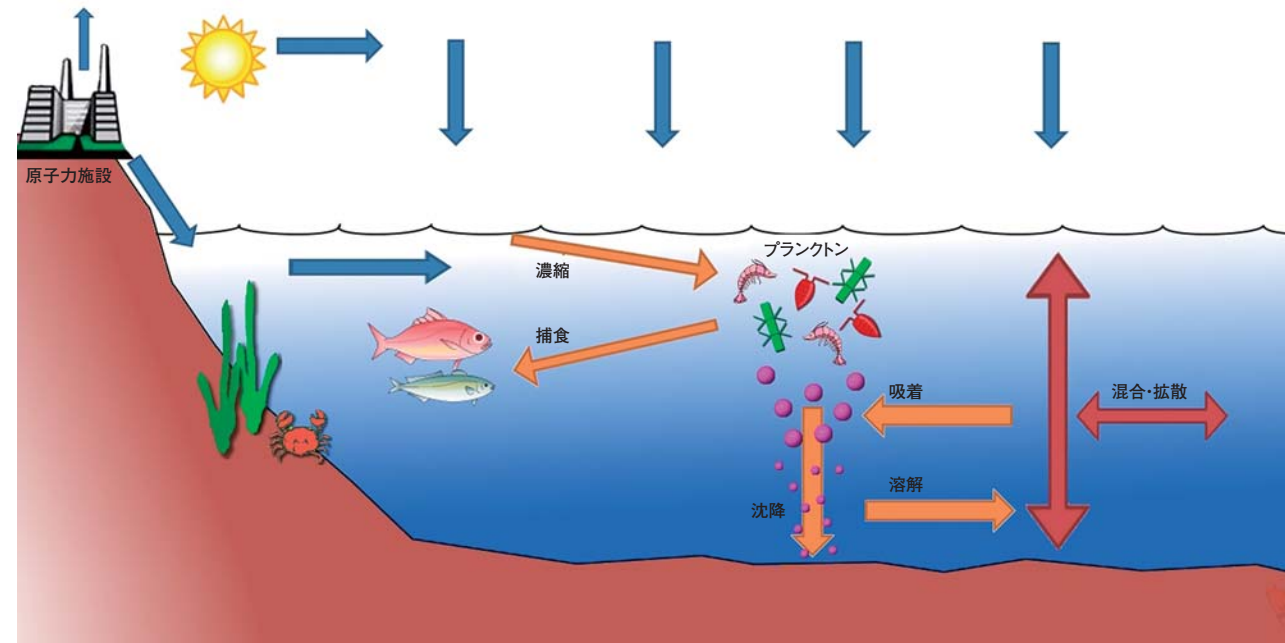


図1：海洋における物質循環の模式図

海洋におけるプランクトン等を含む物質循環を数学的に記載し、現状を再現し、未来予測を行う試みは、さかんに行われている。しかし、現実的には、使われるデータは量的／質的に不十分であり、さらにデータを説明する理論が完全ではない。我々はまず上に示した多様な存在形に関わるデータを収集、整理し、それを統一的に説明しなければならない。データは時空間的な変動を示すはずで、その解釈も不可欠である。

対象がなんであれ物質の動態を定量的に調べる方法には、人為的に既知量の物質を対象物に添加し、その濃度を時系列で追跡すればよい。生物学の実験ではよく行われている手法である。海の研究はこの手があまり使えない。結果として、実際に海に出かけ、試料を採取し、分析しなければならない。沿岸と外洋では環境（生物、物理、化学的）が異なるため、試料採取は面的なカバーが必要である。物質循環は生物活動（主にプランクトン）の影響をうけ、それは季節変動する。従って、できれば時系列に沿って試料を採取したい。同時に試料の存在状態も明らかにしたいと、求める試料に対する要求はだんだん多くなる。更に厄介な事は、日本近海の環境は放射能的には極めてきれいだ。故に測定に際しては、分析法を改良して検出感度を最大限に上げると同時に、試料の量を増やして、測定誤差を少なくするべく努力する必要がある。

海を対象とした環境放射能の調査研究の場合、これらすべてを念頭に置きながらも、すべてにおいて満足いく方法はとり様がなく、どこかで妥協していかざるを得ない。妥協した分は工夫で補う。類似する研究目的を共有する研究機関との情報交換もまた限りある研究資源を補う上で必須である。平成15年より始まったエネルギー対策特別会計事業「沿岸-外洋域における放射性核種の動態の総合的調査研究」を締めくくるにあた

り、関連する研究機関と現在の状況と今後の展開について情報交換を行うため、平成20年12月2日、那珂湊支所研究者主催による海洋環境放射能ワークショップを開催した（図2）。当日の会場では、多くの有益な情報、アイデア等の交換がなされると同時に、那珂湊支所研究者への貴重な助言もいただき、大変有意義なものであった。本特集号は同ワークショップの内容をまとめたものである。上に示した海洋における放射性核種の多様な動態の解明のために、海洋環境放射能研究の最前線では様々な視点から多くのことが行われている。本特集号よりその現場の様子を理解いただければ幸いです。ワークショップでの活発に議論に参加いただき、原稿の執筆をしていただいた財）電力中央研究所、財）海洋生物環境研究所、財）日本海洋科学振興財団、独）原子力研究開発機構、財）環境科学技術研究所の方々にこの場を借りて御礼を申し上げる。

図2：海洋環境放射能ワークショップのポスター

# (1)「沿岸-外洋域における放射性核種の動態の総合的調査研究」の概要説明

放射線防護研究センター 那珂湊支所  
海洋環境調査技術開発室 主任研究員  
青野 辰雄

放射線防護研究センター 那珂湊支所長  
日下部 正志



青野 辰雄 (Tatsu Aono)

## 1. はじめに

平成15年度から那珂湊支所では、原子力関連施設の立地の円滑化及び安全性に対する理解促進に資することを目的に、沿岸から外洋の海域における放射性核種の分布及び挙動を多角的な視点から解析するための「沿岸-外洋域における放射性核種の動態の総合的調査研究」(エネルギー対策特別会計事業)を開始した。本調査研究の概要は次の3つに分けられる。

### (1) 放射性核種の形態別(海水、懸濁物、プランクトン等)分布の把握

海水中の粒子に含まれる放射性核種の定量には、乾重量で数百mg以上の粒子試料が要求される。そのためにはmlオーダーの大容量の海水と、海水をろ過して粒子を採取するろ過装置が必要になる。そこで、放射性核種の形態別の分布を把握するために、現場型超大容量海水濾過濃縮装置の開発と実証実験を行い、また特定の放射性核種を濃縮する採取法から定量までの分析法の検討も行う。そして太平洋東北沖における調査海域で海洋観測と試料採取を行い、海洋における存在状態別の放射性核種の濃度分布を明らかにするための調査を行う。

### (2) 海洋生物による放射性核種の濃縮過程の評価

海洋生物による放射性核種の濃縮過程を把握するために、プランクトンを含めた海洋生物試料の分析法の検討を行い、調査海域においてプランクトンに関する生物量の調査や放射性核種濃度の測定を行なう。また室内実験において、プランクトンによる放射性核種の濃縮移行過程について調査を行う。

### (3) 沿岸-外洋域における放射性核種の輸送、拡散、移動過程の把握

(1)や(2)の調査結果をもとにして、海洋における放射性核種の存在状態及び濃度分布とそれに関連するパラメータ、室内実験により得られた放射性核種の移行量等のパラメータ、及び関係機関で収集された情報等を有機的に結びつける。そして再処理施設等原子力施設の沿岸から外洋の海域における放射性核種の移動量を定量的に見積もる収支モデルの構築を行う。

本調査研究について、その年次計画を表1に示した。

## 2. 現場型超大容量海水濾過濃縮装置システムの開発

海水中の粒子濃度は沿岸から外洋と海域により異なる

が、数から数百 $\mu\text{g/L}$ とされている<sup>1)</sup>。ICP-MS等の分析機器の発展に伴い、これら機器の感度や精度は年々向上し、数Lの海水から海水中の全濃度の測定も可能になった放射性核種もある<sup>2)</sup>。しかし海水中の濃度が極めて微量な放射性核種もあり、これらを形態別に分別するには大量の海水が必要とされる。海洋環境で生態系が地域や海域により異なるように、海水は均一に混合されていない。そのため海洋表層水だけのデータから海域や海洋全体の物質循環機構を知ることはできない。一方で特定の水深の海水を数百リットル採水することは可能であるが、ろ過などの処理を船上で行なうにはスペースや時間の関係で極めて困難である。

そこで本事業では現場型超大容量海水濾過濃縮装置システムの開発を行った<sup>3)</sup>。これは船上から海底へ吊り下げたケーブルに現場型超大容量海水濾過濃縮装置を吊り下げ、複数の任意の水深で、一定時間、海水のろ過を行ない、粒子の捕集と溶存成分の濃縮を行うものである(図1)。従来は動力にバッテリー式のものがあるが、海水のろ過ポンプの稼働は約2時間でろ過能力は最大1m<sup>3</sup>である。今回、対象核種であるPuやTc等の存在状態別の定量に

必要な海水を調査したところ、数時間で数m<sup>3</sup>の海水の処理能力を有する装置が必要であることが明らかになった。そこでBishop(1985)が開発したモデル<sup>4)</sup>を参考にして、本調査の目的に合い、国内の船舶で使用可能なシステムの構築を行った。本ろ過装置(図2)の特徴は、大型口より流入した海水は粒子サイズ分別ができるフィルターユニットで70 $\mu\text{m}$ 以上の粒子と1-70 $\mu\text{m}$ の粒子に分別捕集を行い、さらにろ過された海水は特定の吸着剤を取り付けたカートリッジフィルターを介し、ポンプへ吸引される。一方、フィルターユニットが目詰まりした場合のポンプの負荷を軽減するためにサブラインを取り付け、比較的少量の海水で分析可能な核種を吸着剤に吸着させるように組み合わせ、それぞれの積算流量を記録した。この装置は電気伝送ケーブルに取り付け、海水中に係留する。船上から電気を送ることによりポンプを稼働させ、試料の採取を行った。船上に駆動スイッチがあることにより海況や天候の変化に対応したろ過時間を設定できることや、ろ過後に回収した装置には、分別捕集された粒子や吸着剤に濃縮された試料のみが回収され、大容量海水採水法に比べても船上での後処理が容易になる等の長所を有する。

放射性核種を濃縮するために使用する吸着剤についても調査を行った。二酸化マンガコートフィルターによる海水中のThの捕集濃縮は普及しており<sup>5)</sup>、Puについても有効な方法と報告されている<sup>6)</sup>。しかし本研究では濃縮フィルターへの捕集効率を上げるために、水酸化鉄-二酸化マンガンはコートフィルターを用いた。CsとSrについては、シアン系やモリブデン酸系吸着剤が微細な粒子構造のために吸着性に優れているとされているが、本装置の流量に適

表1: 年次計画

	平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	平成19年度	平成20年度
現場型超大容量海水濾過装置の開発と実証実験	■					
調査海域における観測と試料採取		■	■	■	■	■
ICP-MSの導入、分析法の確立	■					
海洋試料の分析		■	■	■	■	■
生物サンプルの分析法の確立	■					
生物試料の採取及び分析		■	■	■	■	■
プランクトンの放射性核種の濃縮移行					■	■
データ解析		■	■	■	■	■
情報収集、セミナー						■
放射性核種の収支モデルの構築						■
まとめ						■

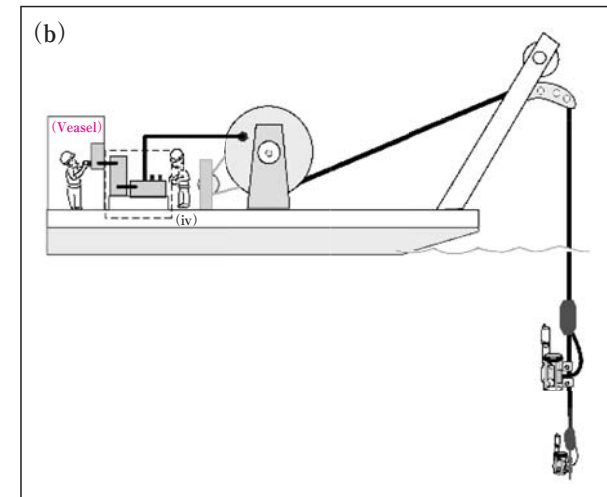
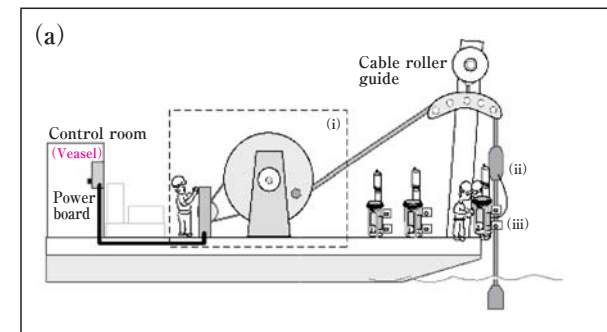


図1: 現場型超大容量海水濾過濃縮システム概念図:(a)海水濾過装置取付時の様子。(b)海水濾過装置による試料の採取時、(i)海水濾過装置取付け兼動力伝送ケーブルドラム、(ii)電源コネクタ、(iii)海水濾過装置、(iv)海水濾過装置用ポンプ制御盤

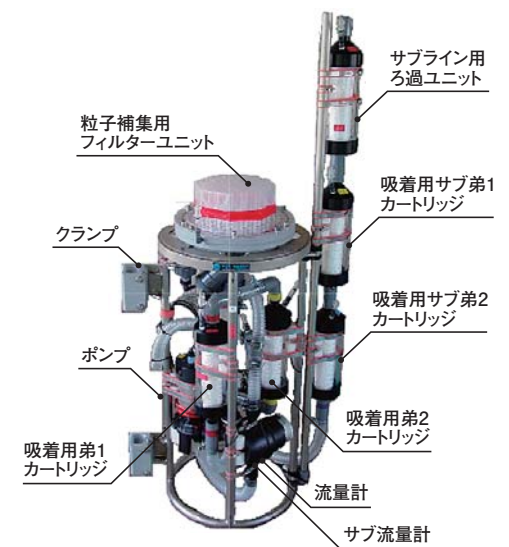


図2: 現場型超大容量海水濾過濃縮装置

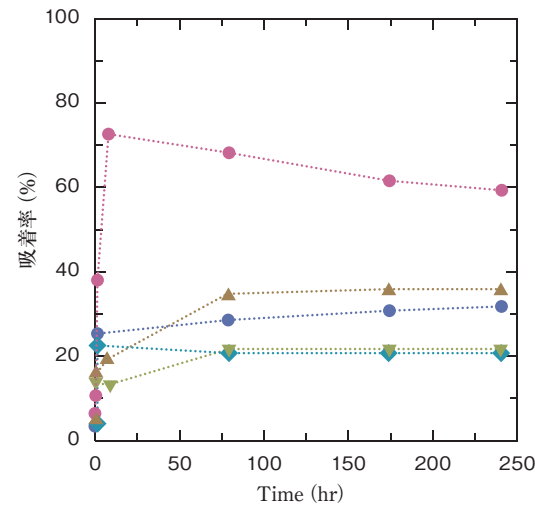
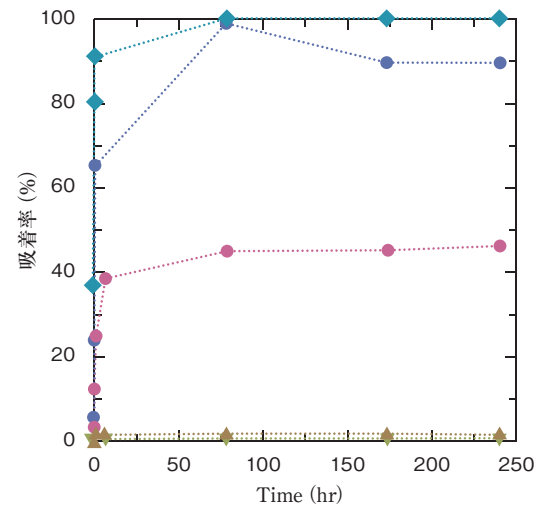


図3: 吸着剤に対するCs(上)とSr(下)の吸着特性: ●無機酸化物系吸着材E-96、●無機酸化物系吸着材A-51、◆シアン系吸着剤Anfezh、▼二酸化マンガン繊維、▲アルミナ

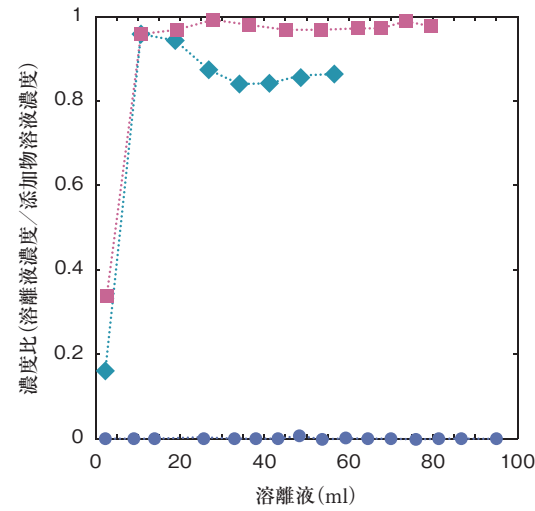


図4: 吸着剤によるTcの吸着特性: ●陰イオン交換樹脂、◆水酸化鉄-二酸化マンガンコートフィルター、■水酸化鉄コートフィルター

応していないために、ゼオライトなどの無機酸化物系吸着剤とシアン系吸着剤の Anfezh (ロシア Eksorb 社製) を用いて検討を行った。その結果、海水中の Sr に対して有効な吸着剤を見出すことができなかった。一方、Cs に対しては Anfezh が本装置の条件に最も適した吸着剤であった (図3)。同様に Tc も水酸化鉄コートフィルター等を用いて吸着剤の検討を行った結果、陰イオン交換樹脂が最適な吸着剤であった (図4)<sup>7)</sup>。目的とする放射性核種に応じた吸着剤の仕様を組立て、本装置に装着した。平成16年3月に茨城県東海村沖で実証実験を行い、ろ過時間に対して安定した流量で本装置が稼働することを確認した。

### 3. 調査海域における海洋観測と試料採取

平成16年から平成19年6月までに、備船した調査船で調査海域の太平洋東北沖において6回の海洋観測 (図5) を実施した。調査海域を図6に示すが、測点は本号の太平洋東北沖の海水中の放射性核種やプランクトンに関する論文の中でも共通している。現場型超大容量海水濾過濃縮装置システムを用いて海水中の人工および天然放射性核種の存在状態別試料の採取を行った。海洋環境等の調査のために、ニスフィン採水器付CTDロゼットマルチサンプラーによる海水の採取および深度別の水温、塩分、栄養塩濃度などの海洋観測を実施した。現場型懸濁粒子計測装置を用いて懸濁粒子の粒径粒度分布の観測も行った。

また放射性核種測定用に大型プランクトンネット水平曳きによる動物プランクトンの大量採取および閉鎖式ネットによる動物プランクトンの鉛直区分採取を行った。各作業の風景は表紙裏に掲載する。

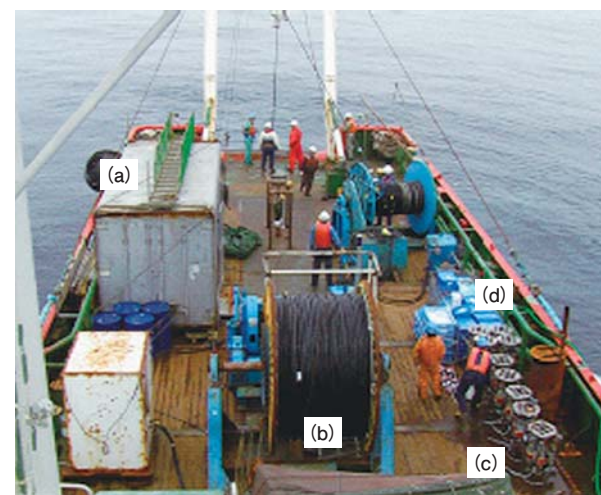


図5: 海洋調査の風景 (ブリッジから後部甲板を撮影) (a) コンテナ実験室、(b) 現場型ろ過ケーブル、(c) 現場型濾過装置ユニット、(d) 海洋調査用関連機材

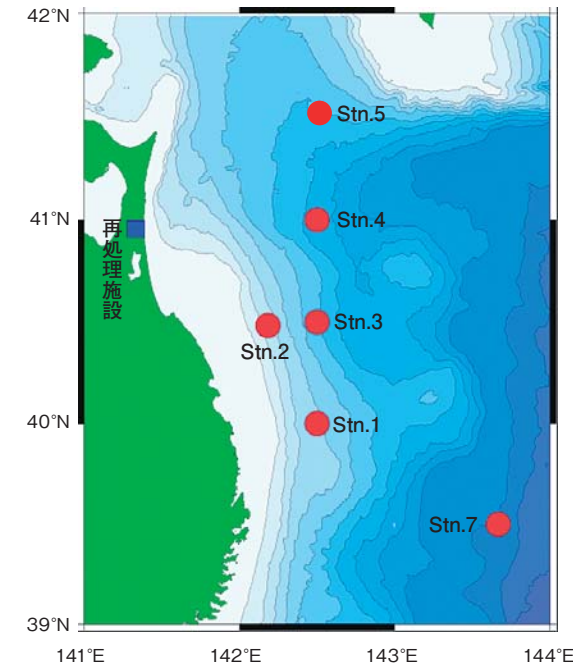


図6: 太平洋東北沖における調査海域。●: 調査測点

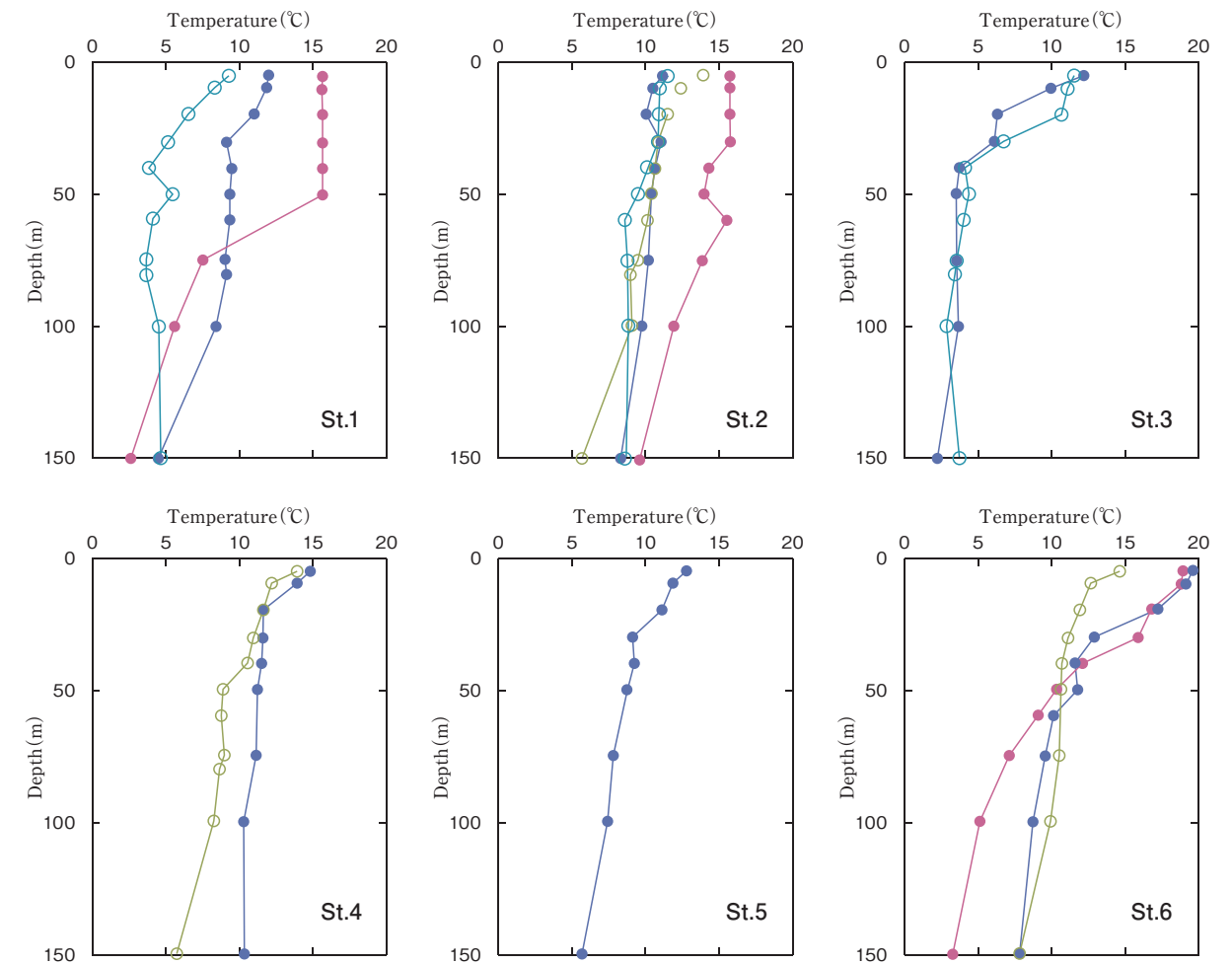


図7: 調査海域における海洋表層の水温分布: ●2005年6月、●2005年10月、○2006年6月、○2007年6月

### 4. 海洋観測の調査結果

2005年から2007年における表層から水深150mまでの水温の鉛直分布を図7に示した。同一測点で同じ時期に観測を行っても、年により水温の鉛直分布が同じ場合と異なる場合があった。日本周辺の海洋表層における主要な海流を図8に示した。それぞれの海流は固有の水温と塩分を有するために、これを水温-塩分ダイアグラムにすると図9の様に分類することができる<sup>8)</sup>。これを用いて調査毎の水温と塩分のデータをプロットしたものを図10に示した。塩分計の精度の関係で横幅が一部広がっている。さらに観測した時期の調査海域における表面水温の画像情報を図11に示した<sup>9)</sup>。2006年6月は衛星画像データから調査海域へ親潮の影響がないように見えるが、水温-塩分ダイアグラムから表層から水深50m付近における層が衛星画像に反映され、これより深い水深では親潮の流入が顕著であった。2007年は津軽暖流水の南下による影響が示唆された。夏に太平洋東北沖では春から夏にかけて大きな渦を形成すること<sup>10)</sup>が知られている。このような海洋構造

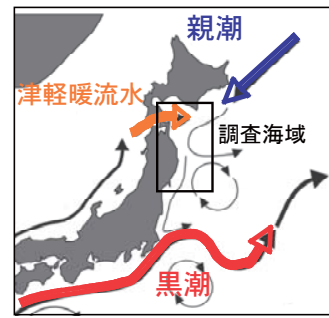


図8: 日本周辺海域における海流の動き  
枠線(黒ワク)は調査海域。

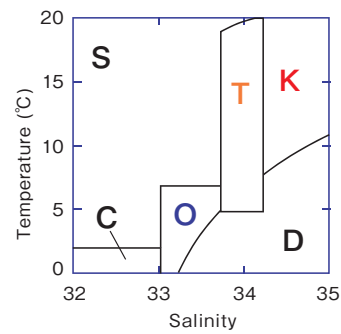


図9: 水温-塩分ダイアグラムから見た海水の特徴。  
T: 津軽暖流水、  
K: 黒潮、  
O: 親潮、  
S: 表面水、  
C: 親潮沿岸水、  
D: 深層水  
(Hanawa and Mitsudera(1987)を一部改変)

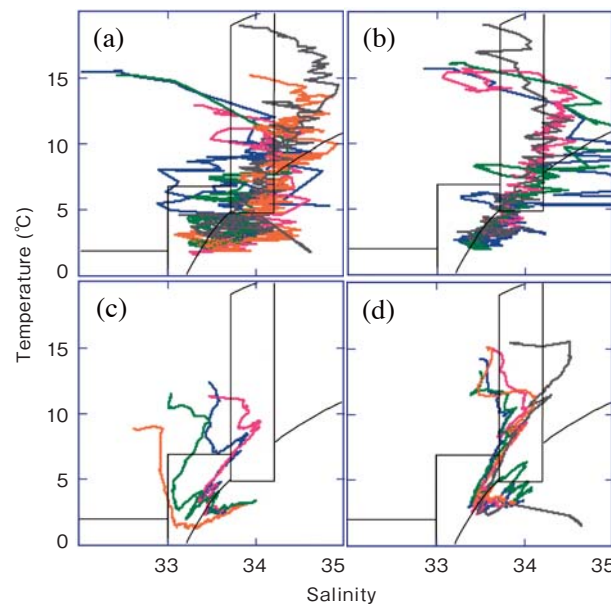


図10: 調査時における塩分-水温から見た水塊の特性;  
(a) 2005年6月、(b) 2005年10月、(c) 2006年6月、(d) 2007年6月;  
Stn.1(青)、Stn.2(桃)、Stn.3(緑)、Stn.4(橙)、Stn.5(水色)、Stn.7(灰)

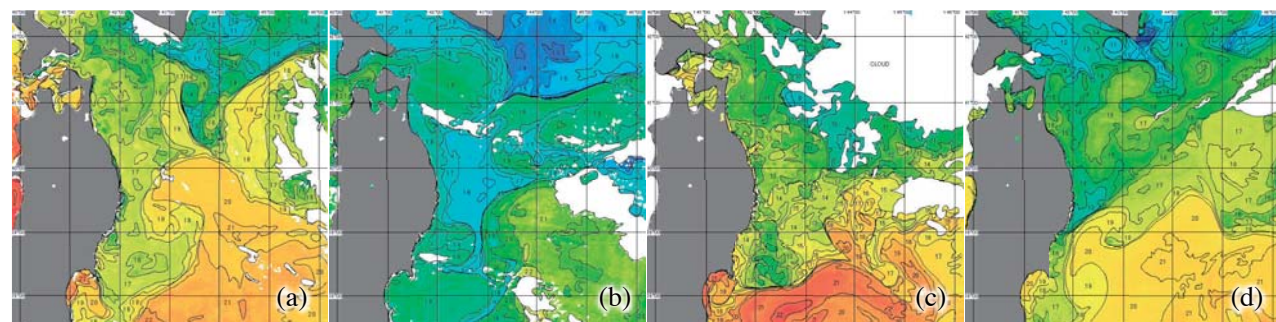


図11: 調査海域における表面水温の画像<sup>9)</sup>; (a) 2005年7月、(b) 2005年10月、(c) 2006年6月、(d) 2007年6月

の違いはプランクトンの存在量や組成に大きな影響を与えている。

調査海域における海水中の放射性核種に関しては本号の「太平洋東北沖における放射性核種の濃度分布と挙動」を、調査海域におけるプランクトンに関しては本号の「太平洋東北沖における放射性核種の挙動に果たすプランクトンの役割について」に詳細に記述されている。

### 5. 最後に

本事業は、陸上から隔離された洋上におけるフィールド調査が重要な位置にあった。不慣れた海洋観測に際し、サポートやご助言を頂きました(株)オフショア・オペレーション、(株)マリンワークジャパン、日油技研工業(株)、(株)OCC等の関係者の皆様に、そして本事業に携わった方々に、深く感謝を申し上げます。本事業は文部科学省エネルギー対策特別会計事業による委託業務として実施した。

### 参考文献

- 1) Stumm, W.: Chemical interaction in particle separation. *Environ. Sci. Technol.* 11:1066-1070, 1977.
- 2) Choi, M.S., Francois, R., Sims, K., Bacon, M. P., Brown-Leger, S., Fleer, A. P., Ball, L., Schneider, D., Pichat, S.: Rapid determination of  $^{230}\text{Th}$  and  $^{231}\text{Pa}$  in seawater by desolvated micro-nebulization Inductively Coupled Plasma magnetic sector mass spectrometry. *Mar. Chem.* 76:99-112, 2001.
- 3) Aono, T., Kusakabe, M., Nakanishi, T., Yamada, M., Kaneko, S., Nakamura, T., Hori, K., Bishop, J. K. B.: Large Volume in situ Filtration and Concentration System for Measurements of Low-level Radioactivity in Seawater. *J. Adv. Mar. Sci. Tech. Soci.* 14: 2009 (in press).

- 4) Bishop, J. K. B., Edmond, J. M.: A new large volume filtration system for the sampling of oceanic particulate matter. *J. Mar. Res.* 34:181-198, 1976.
- 5) Rutgers van der Loeff, M., Sarin, M. M., Baskaran, M., Benitez-Nelson, C., Buesseler, K. O., Charette, M., Dai, M., Gustafsson, Ö., Masque, P., Morris, P.J., Orlandini, K., Rodriguez y Baena, A., Savoye, N., Schmidt, S., Turnewitsch, R., Vöge, I., Waples, J. T.: A review of present techniques and methodological advances in analyzing  $^{234}\text{Th}$  in aquatic systems. *Mar. Chem.* 100:190-212, 2006.
- 6) Norisuye, K., Okamura, K., Sorin, Y., Hasegawa, H., Nakanishi, T.: Large volume preconcentration

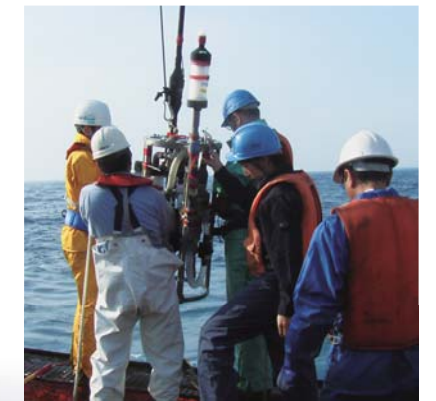
- and purification for determining the  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  isotopic ratio and  $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$  alpha-activity ratio in seawater. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 267:183-193, 2005.
- 7) 石井紀明, 桜木智史: 環境におけるテクネチウム. *Radioisotopes* 55(8), 2006
- 8) Hanawa, K., Mitsudera, H.: Variation of water system distribution in the Sanriku Coastal Area. *J. Oceanogr. Soc. Japan* 42:435-446, 1987.
- 9) 茨城県水産試験場漁業無線局人工衛星画情報、<http://www18.ocn.ne.jp/~gyomusen/index.htm>
- 10) 島茂樹: 青森県周辺海域における放射性核種の挙動に影響を与える海況について. *放射線科学* 52(3):40-47, 2009.



採水後の試料の配水



プランクトン採取



現場型超大容量海水濾過濃縮装置



## (2) 太平洋東北沖における放射性核種の濃度分布と変動

放射線防護研究センター 那珂湊支所 研究員  
中西 貴宏



中西 貴宏 (Takahiro Nakamishi)

### 1. はじめに

海洋にもたらされた人工放射性核種は、海水の混合によって水平・垂直方向に拡散・希釈されると同時に、粒子に吸着・除去され、沈降・堆積していく。原子力施設などから放出される放射性核種の海洋における動態を定量的に把握するためには、これらの過程の基礎データを収集し、放射性核種の挙動予測を行う収支モデルを構築する必要がある。そのためにはまず、海水中における放射性核種の存在状態別（溶存態・粒子態）の分布を明らかにしなければならない。

本調査で対象とした人工放射性核種は、セシウム-137 ( $^{137}\text{Cs}$ )、テクネチウム-99 ( $^{99}\text{Tc}$ )、プルトニウム-239,240 ( $^{239,240}\text{Pu}$ ) である。これらは大気圏核実験によるフォールアウトが主要な起源であるが、さらなる汚染防止の観点から現状の濃度レベルを把握しておくことは重要である。また、海洋の挙動を表すための有効なトレーサともなり得る。これらの放射性核種は、粒子への吸着の程度が異なることが知られている。国際原子力機関 (International Atomic Energy Agency, IAEA) が推奨している海洋における粒子-海水間分配係数 (粒子中濃度 (Bq/kg) / 海水中濃度 (Bq/kg)) では、 $^{99}\text{Tc}$  が 100、 $^{137}\text{Cs}$  が 2000、 $^{239,240}\text{Pu}$  が 100000、と大きな差がみられる<sup>1)</sup>。すなわち、フォールアウトで海洋にもたらされたこれらの放射性核種は、現在の海洋では異なる分布を示すことが予想される。

また、調査海域とした太平洋東北沖は、低温・低塩分の親潮と、高温・高塩分の津軽暖流が接する複雑な海洋構造を持つ。特に津軽暖流は、季節によりその振る舞いが大きく変動することが知られている<sup>2)</sup>。津軽暖流の盛衰が、海洋表層付近での人工放射性核種の挙動に影響を与え、水柱での分布をより複雑なものとしている可能性が考えられる。

我々が開発した現場型大容量海水濾過装置 (LV-FiCS) は、4-10 m<sup>3</sup> の海水に存在する放射性核種を、大粒子態 (> 70 μm)、小粒子態 (1 - 70 μm)、溶存態に分けて採取ができるため、極微量の放射性核種について、存在状態別の分析が可能である。また、同時に幾層 (最大 8 層) かつ密な間隔 (最小 10 m 間隔) での観測ができるため、短時間

に多数の試料を採取するとともに、表層付近における微細構造の変化を捉えることも可能である。

2004 年から 2007 年まで、太平洋東北沖において、5 回の調査航海を行なった (図 1)。これまでに、対象とした人工放射性核種の濃度分布が明らかになってきたので、ここに報告する。

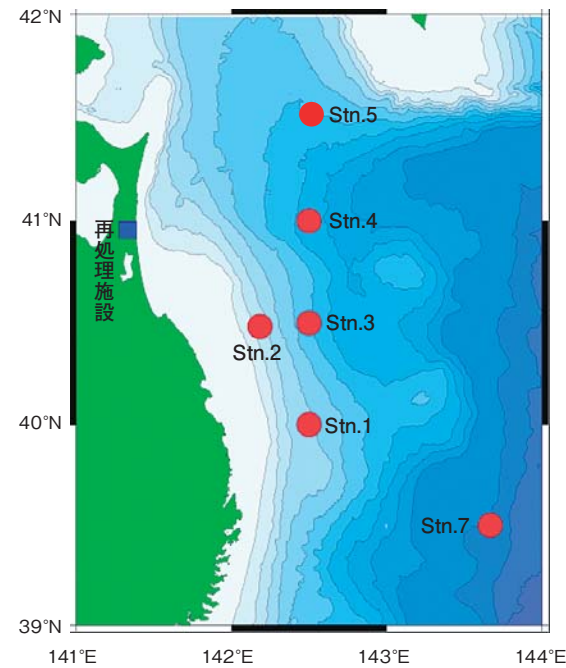


図 1: 太平洋東北沖調査海域。●: 調査測点

### 2. 海水中の $^{137}\text{Cs}$ の分布

溶存態  $^{137}\text{Cs}$  は、測定法が比較的簡便なため、1950 年代から観測を主とした研究が行なわれてきた。近年では、気象研究所により太平洋を中心としたデータベースがとりまとめられている<sup>3)</sup>。また、IAEA においても、データベース化が進められている。これらのデータベースは、ここ 50 年程度の 10 年スケールのトレーサとして非常に有効なものとなっており、海洋循環モデルのパラメータとしても利用されている。しかし、バックグラウンドレベルの海域で、数 10 m の採水間隔で定期的な観測が行なわれた例はあまりない。

本調査で得られた溶存態  $^{137}\text{Cs}$  の濃度分布とその変動を

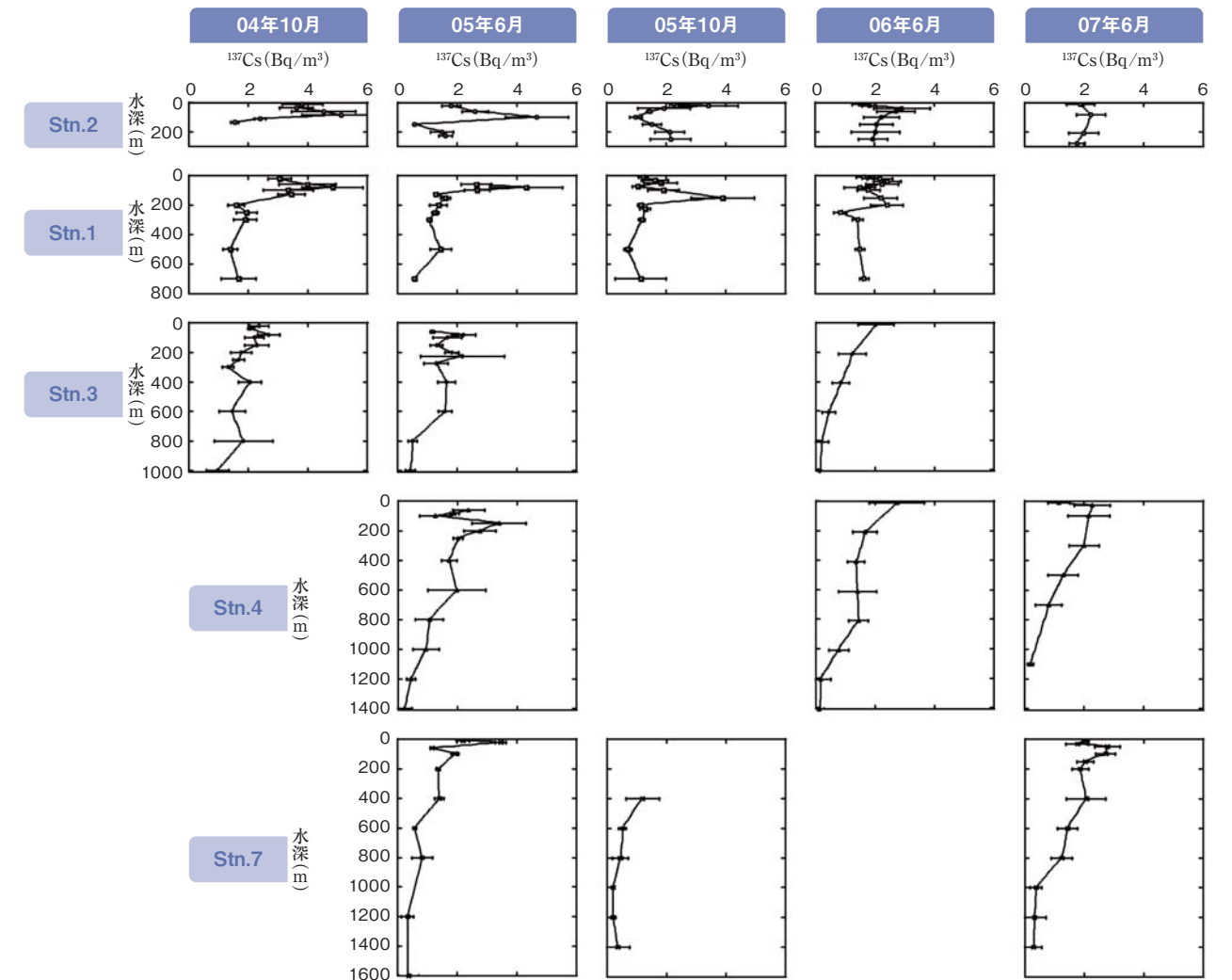


図 2: 太平洋東北沖調査海域における溶存態 $^{137}\text{Cs}$ の鉛直分布とその変動。

図 2 に示す。小粒子・大粒子ともに  $^{137}\text{Cs}$  は検出できず、調査海域では  $^{137}\text{Cs}$  のほとんど (> 98%) が溶存態として存在していることが明らかになった。つまり、本海域において  $^{137}\text{Cs}$  は海水の混合・拡散の指標として適用できる。溶存態  $^{137}\text{Cs}$  の分布は、全般的に表層で濃度が高く、下方に向かって減少する傾向が見られた。この分布は濃度とともにこれまでの多くの報告例と同様のものであり、フォールアウト由来の  $^{137}\text{Cs}$  が表層から深層に拡散したためと考えられる。外洋域の Stn.7 について、近隣海域で得られた文献と比較したものが図 3 である。1980 年当時には表層付近に多く存在した溶存態  $^{137}\text{Cs}$  が、時間経過とともに深層に向かって拡散移動していることが明らかである。

沿岸に近い観測点 (Stn.1, 2, 4) では、海洋表層付近の微細構造に変動が見られた。すなわち、亜表層 (60-200m) に極大が出現している時期と出現しない時期があった。従来の 100-200m 間隔で試料採取していた観測では見られなかった変動である。日本海でも似たような変動が

観測されており、表層水が強く沈み込んだ時に亜表層極大が出現すると考えられている<sup>7)</sup>。太平洋青森県沖では、津軽暖流が流れている観測点・時期にだけ亜表層極大が出現した。このことから、最大で水深数百 m にまで達する津軽暖流によって、溶存態  $^{137}\text{Cs}$  が亜表層に沈み込んでいくと推測された。

### 3. 海水中の $^{99}\text{Tc}$ の分布

テクネチウムは  $^{137}\text{Cs}$  と同様、ウランなどの核分裂で生成されるが、その中でも  $^{99}\text{Tc}$  は生成量の大きさとともに半減期が長い (約 21 万年) ことから、とくに使用済核燃料の再処理過程で環境放出が懸念される放射性核種の一つとされている。しかし、バックグラウンドレベルでの海水中的  $^{99}\text{Tc}$  は、濃度が極めて低いため、表面水でさえも測定例が少ない。本調査で、LV-FiCS を用いた試料採取法と、高分解能誘導結合プラズマ質量分析法 (HP-ICP-MS) を用いた測定法によって、初めて海水中における溶存態

<sup>99</sup>Tcの鉛直分布が明らかになった。

本調査で得られた溶存態<sup>99</sup>Tcの濃度分布の一例を図4に示す。上記の<sup>137</sup>Csと同様、小粒子態・大粒子態ともに検出できず、ほとんど(>99%)が溶存態として存在していた。また、海洋表層から200m付近までの濃度が高く、下方に向かって減少するという、溶存態<sup>137</sup>Csとよく似た分布を示した。しかし、<sup>99</sup>Tc/<sup>137</sup>Cs放射能比を調べてみると、水深300mまでは(0.85-1.2)×10<sup>-3</sup>の範囲で変動し、以深では次第に0.5×10<sup>-3</sup>程度まで低下していくという傾向が見られた。また、これらの値はフォールアウトの値(0.41×10<sup>-3</sup>)<sup>8)</sup>よりも有意に高かった。本調査で用いた試

料採取法および分析法では粒子態の<sup>137</sup>Csと<sup>99</sup>Tcが検出されなかったが、実際にはそれぞれの粒子との反応性に違いがあるのではないかと考えられる。本調査海域において、冒頭に示した分配係数が示すように、<sup>137</sup>Csが<sup>99</sup>Tcよりも粒子への吸着能が高いのであれば、<sup>99</sup>Tc/<sup>137</sup>Cs比の分布を容易に説明することができる。つまり、フォールアウトにより海洋にもたらされてから数10年の間に、<sup>137</sup>Csの方がより海水から除去されたのではないだろうか。その手がかりの一端を得るために、現在、プランクトンによる海水中の<sup>137</sup>Csと<sup>99</sup>Tcの取り込み・吸着実験を進めているところである。

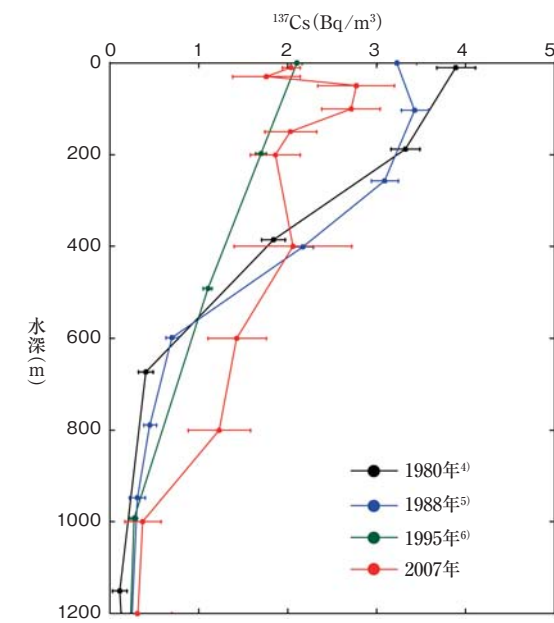


図3: 太平洋東北沖調査海域における溶存態<sup>137</sup>Csの文献値との比較。2007年为本調査結果 (Stn.7)

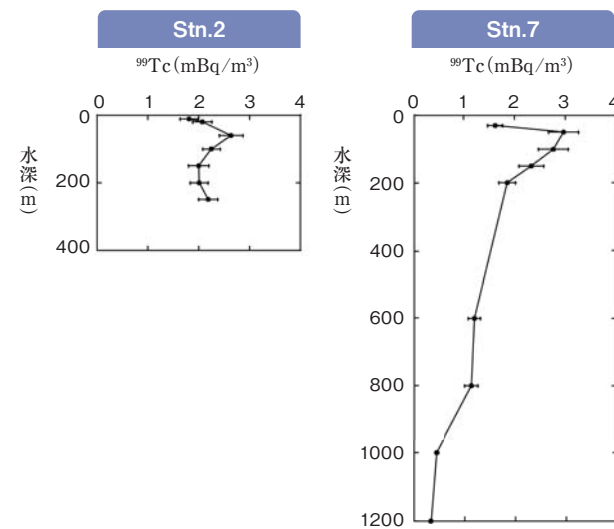


図4: 太平洋東北沖調査海域における溶存<sup>99</sup>Tcの鉛直分布。

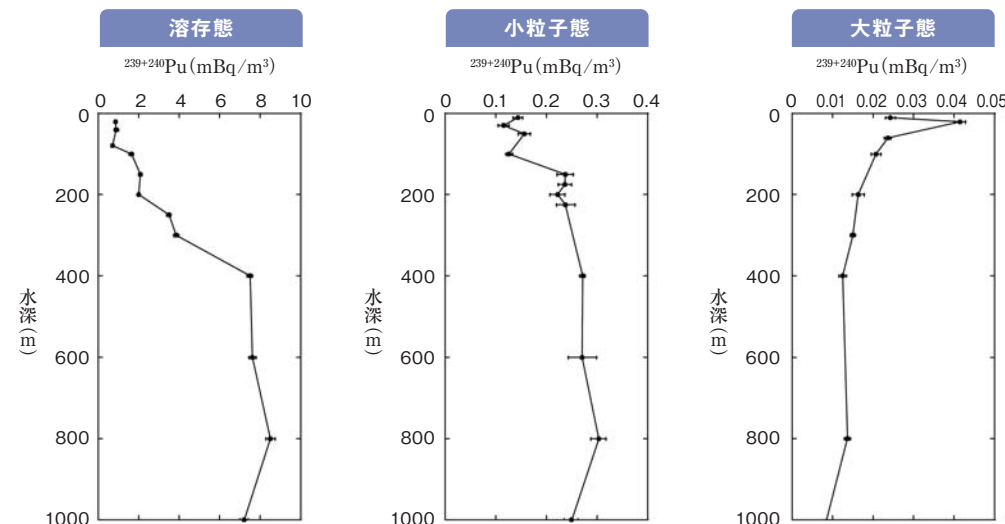


図5: 太平洋東北沖調査海域における<sup>239+240</sup>Puの鉛直分布。

#### 4. 海水中の<sup>239,240</sup>Puの分布

プルトニウムは、<sup>137</sup>Csと異なって、海水中の粒子との相互作用により深層や堆積物へ移動していくことが知られているが、その過程についての知見は十分に得られていない。LV-FiCSでは、溶存態だけではなく、粒子をサイズ別に採取することが可能なため、水柱でのプルトニウムの挙動を明らかにすることが期待できる。

本調査で得られた溶存態、小粒子態、大粒子態の<sup>239+240</sup>Pu鉛直分布の一例を図5に示す。溶存態<sup>239+240</sup>Puは表層から水深400mに向かって増加傾向にあり、水深1000mまで高濃度で分布している。このような鉛直分布はプルトニウムに特徴的なもので、海域によらず観測されている。この分布は、表層で粒子への吸着・沈降に伴う鉛直輸送と、深層での粒子の分解による溶存態プルトニウムの再生によって形成されると考えられている<sup>9)</sup>。大粒子態と小粒子態の鉛直分布は、その過程を示唆する結果が得られた。沈降粒子を示す大粒子態<sup>239+240</sup>Puの鉛直分布は、表層付近で濃度が高く、溶存態プルトニウムを吸着・除去する役割を果たしている。一方、小粒子態<sup>239+240</sup>Puは海水中に浮遊する懸濁粒子を示すものだが、溶存態<sup>239+240</sup>Puとの吸着・脱離が行なわれるこの粒子は、垂表層以深において高濃度で分布している。このように、<sup>137</sup>Csや<sup>99</sup>Tcに比べて粒子による除去過程が大きく影響する<sup>239+240</sup>Puの動態について、LV-FiCSを用いたサイズ別大量試料採取法により、その一端を明らかにすることができた。

#### 5. おわりに

今回の報告では、フォールアウト起源の人工放射性核種をターゲットにして、人為起源物質の海洋中における動態を「直接」的に明らかにした。一方で、我々が開発したLV-FiCSは、自然界に存在する天然放射性核種も採取・測定することが可能である<sup>10)</sup>。これらの中には、海洋における炭素循環の諸過程についての指標となるものがある(例えば<sup>32</sup>P、<sup>33</sup>Pや<sup>228</sup>Th、<sup>230</sup>Th、<sup>234</sup>Th)。すなわち、海洋に吸収される地球温暖化ガスである二酸化炭素の動態を、「間接」的に明らかにすることも可能なのである。今後も、このLV-FiCSというパワフルなツールを十二分に活用していきたい。

最後に、LV-FiCSに関しては日油技研工業株式会社の皆様に、試料採取に際しては、株式会社オフショア・オペレーションの皆様に、ご協力いただきました。心より感謝いたします。本事業は文部科学省エネルギー対策特別会計事業による委託業務として実施した。

#### 参考文献

- 1) International Atomic Energy Agency: Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment. In *Tech. Rep. Ser.* 422, 2004.
- 2) 菱田昌孝: 津軽暖流の南下と季節変動について. 海上保安庁水路部研究報告 22:1-22, 1987.
- 3) Aoyama, M., Hirose, K.: Artificial radionuclides database in the Pacific Ocean: HAM Database. *ScientificWorld* 4:200-215, 2004.
- 4) Nagaya, Y., Nakamura, K.: <sup>239,240</sup>Pu, <sup>137</sup>Cs and <sup>90</sup>Sr in the central North Pacific. *J. Oceanogr.* 40:410-424, 1984.
- 5) Nagaya, Y., Nakamura, K.: Distributions and mass-balance of <sup>239,240</sup>Pu and <sup>137</sup>Cs in the northern North Pacific. In: *Deep Ocean Circulation. Physical and Chemical Aspects.* (Ed., Teramoto, T.), pp.157-167, Elsevier, Amsterdam, 1993.
- 6) 海上保安庁水路部: 放射能調査報告書平成7年調査結果, 1997.
- 7) Ito, T., Aramaki, T., Otosaka, S., Suzuki, T., Togawa, O., Kobayashi, T., Kawamura, H., Amano, H., Senju, T., Chaykovskaya, EL., Lishavskaya, T. S., Karasev, E. V., Noichkov, V. P., Scherbinin, A. F., Tkalin, A. V., Volkov, Y. N.: Anthropogenic radionuclides in seawater of the Japan Sea: the results of recent observations and the temporal change of concentrations. *J. Nucl. Sci. Technol.* 42:90-100, 2005.
- 8) Momoshima, N., Sayad, M., Takashima, Y.: Determination of <sup>99</sup>Tc in coastal seawater collected in Fukuoka, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 197:245-251, 1995.
- 9) Bowen, V. T., Noshkin, V. E., Livingston, H. D., Volchok, H. L.: Fallout radionuclides in the Pacific Ocean: vertical and horizontal distributions, largely from GEOSECS stations. *Earth Planet. Sci. Lett.* 49:411-434, 1980.
- 10) Nakanishi, T., Kusakabe, M., Aono, T., Yamada, M.: Simultaneous measurements of cosmogenic radionuclides <sup>32</sup>P, <sup>33</sup>P and <sup>7</sup>Be in dissolved and particulate forms in the upper ocean. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 2009 (in press).



### (3) 太平洋東北沖における放射性核種の挙動に果たすプランクトンの役割について



帰山 秀樹 (Hidetsi Kiyama)

放射線防護研究センター 那珂湊支所 研究員  
帰山 秀樹

#### 1. はじめに

海洋に放出された放射性核種の挙動を定量的に把握することは、周囲を海に囲まれた我が国において原子力関連施設の安全性を科学的根拠に基づき担保する上で重要である。また、ICRP2007年勧告において放射線に対する「環境の防護」という概念が取り入れられたことを受け、海洋環境放射能研究においても、生態系を含む物質循環の視点から放射性核種の挙動を明らかにすることは今後の重要な研究課題であるといえる。これまでの海産生物を対象とした放射能研究は、その主な目的が漁獲物を消費することによるヒトの被曝線量の見積りであったため、研究対象が漁獲対象生物である魚類等高次栄養段階生物や海藻類等であった。最も研究対象とされてきた放射性核種の一つである<sup>137</sup>Csについても、海水から生態系へと移行する過程で起点となるプランクトンに関する先行研究は、バックグラウンドレベルの高い北極海域の研究<sup>1,2)</sup>、あるいはチェルノブイリ事故前後の地中海における研究<sup>3)</sup>などに限られ、バックグラウンドレベルの低い我が国周辺海域における報告例は極めて

少ない<sup>4)</sup>。那珂湊支所では平成15年度より、太平洋東北沖を対象海域に放射性核種の動態解明のための総合的な調査を行ってきた。本稿では、平成16年度より行ってきたプランクトンを対象とした研究の主な成果について紹介する。

#### 2. フィールド調査

平成16年度より平成19年度まで太平洋東北沖において採取器具（プランクトンネット）の性能試験、改良、微量元素分析試料の採取を目的に2回の調査航海（KK-04-10およびKT-05-12航海）、プランクトンの採取に4回の調査航海（KY-05-06、KK-05-10、KK-06-06およびKK-07-06）を行った。CTDロゼッタマルチサンプラーによる水深別採水試料を用い、植物プランクトン現存量の指標であるクロロフィルa濃度の測定、ならびに種別細胞数の計数を行った。動物プランクトン試料は、閉鎖式プランクトンネットを用いた鉛直区分採取により群集構造解析試料を、大型プランクトンネットを用いた放射性核種分析試料ならびに種別微量元素分析試料を採取した。

#### 3. 動植物プランクトンの群集構造

代表的な3地点（St.1、2および3）における植物プランクトン現存量（クロロフィルa濃度）の鉛直プロファイル、および最も水深の浅いSt.2における細胞数組成の経年変化を図1に示す。植物プランクトンは光が十分に届く水深50m以浅に分布しており、ピークは表層あるいは亜表層に認められた。また、St.2における細胞数組成の経年変化では、クロロフィルa濃度の高い2006年6月に珪藻類が優占した。これらの結果は当該海域を含む北太平洋亜寒帯域の特徴をよく表しており、2006年6月は春季珪藻ブルーム期、2005年および2007年6月は珪藻ブルームの終了後であったと考えられる。主に植物プランクトンを摂食する動物プランクトンも水深0-50m層にピークが認められるが、水深150m以深においても比較的豊富に出現する（図2）<sup>5)</sup>。また、珪藻類の優占した2006年のSt.2では昼間と夜間で分布深度のピークに違いが認められる。種別個体数の鉛直分布を詳しく見ると、夜間表層で活発に摂餌を行い、昼間は深層に移動する日周鉛直移動を行う植食性カイアシ類 *Eucalanus bungii* が優占しており、本種の出現が動物プランクトン群集全体の鉛直分布様式に反映されていることがわかる。このように、動物プランクトンは表層から深層まで幅広く出現し、一部の種（主に植食性カイアシ類）は鉛直方向に能動的に移動を行っているため、放射性核種の海洋における挙動、特に鉛直輸送において何らかの役割を担っていると考えられる。

#### 4. 動物プランクトン群集の<sup>137</sup>Csの濃度

現場型超大容量海水濾過濃縮装置を用いた観測で検出されなかった粒子と同様、プランクトンの<sup>137</sup>Cs濃度は非常に低濃度である（現場型超大容量海水濾過濃縮装置の詳細は本号の青野氏および中西氏の論文参照）。本研究では、大型のプランクトンネットを夜間に表層を集中的に曳網することにより大量の試料を採集し、灰化試料の長時間測定（Ge半導体検出器で500,000秒計数）により、太平洋東北沖に出現する動物プランクトン群集の<sup>137</sup>Cs濃度を明らかにした<sup>5)</sup>。本研究で得られた動物プランクトンの<sup>137</sup>Cs濃度と溶存態の<sup>137</sup>Cs濃度より、濃縮係数（湿重量ベース）を計算すると6-14の範囲であり文献値<sup>4)</sup>とよく一致した。図3に北極海域における文献値<sup>1,2)</sup>および本研究で得られた動物プランクトンの<sup>137</sup>Cs濃度と、溶存態の<sup>137</sup>Cs濃度の関係をプロットした。図3より明らかであるが、一般的に動物プランクトンの<sup>137</sup>Cs濃度は生息環境中の<sup>137</sup>Cs濃度（溶存態濃度）に依存し、湿重量ベースの濃縮係数は10程度である。しかしながら海域毎に見ると、プランクトンと溶存態の<sup>137</sup>Cs濃度の相関は認められない。各海域におけるプランクトンの<sup>137</sup>Cs濃度の変動について、塩分濃度との相関（河川水の影響の指標）<sup>1)</sup>、あるいは測定した動物プランクトンの種類が異なること<sup>2)</sup>に起因すると考察されている。太平洋東北沖におけるプランクトンの<sup>137</sup>Cs濃度は、ゼラチン質プランクトンの出現量と有意な正の相関が認められた（図4）<sup>6)</sup>。後述する種別安定Cs濃度を考慮

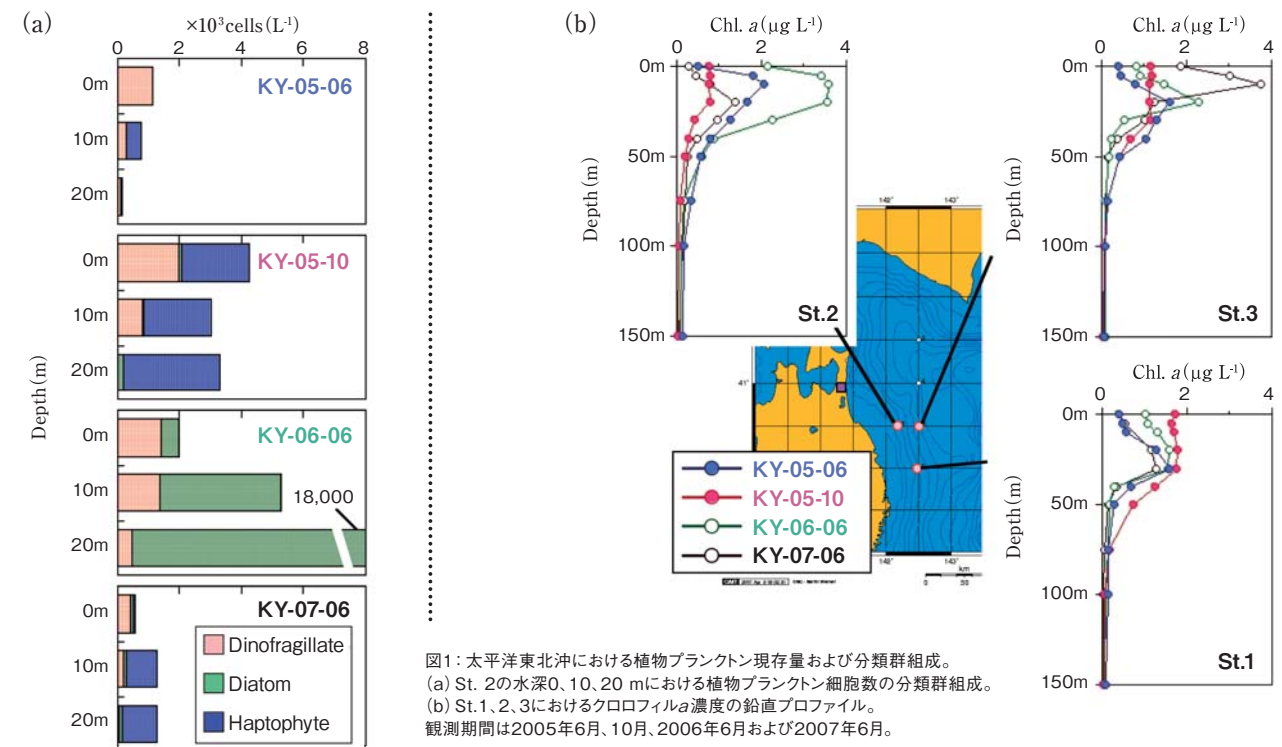


図1：太平洋東北沖における植物プランクトン現存量および分類群組成。  
(a) St. 2の水深0、10、20 mにおける植物プランクトン細胞数の分類群組成。  
(b) St. 1、2、3におけるクロロフィルa濃度の鉛直プロファイル。  
観測期間は2005年6月、10月、2006年6月および2007年6月。

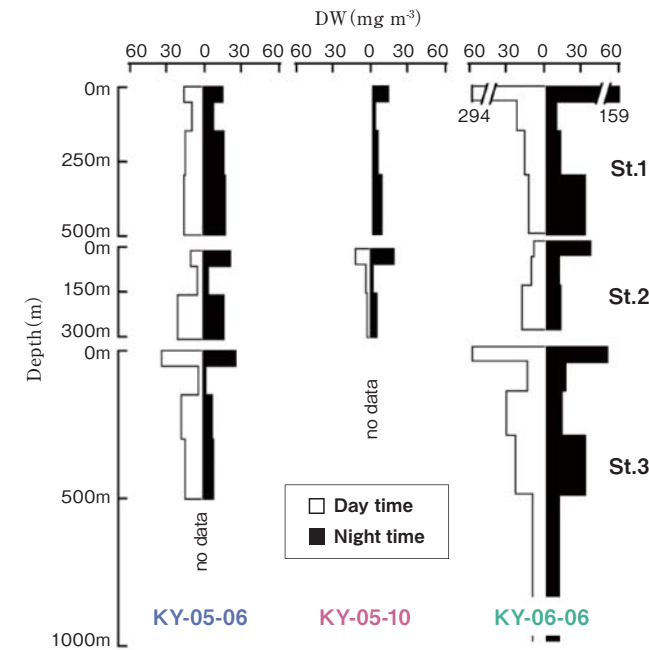


図2：2005年6月、10月、2006年6月のSt.1、2、3における動物プランクトン生物量（乾燥重量）の昼夜鉛直分布。DW: Dry weight.

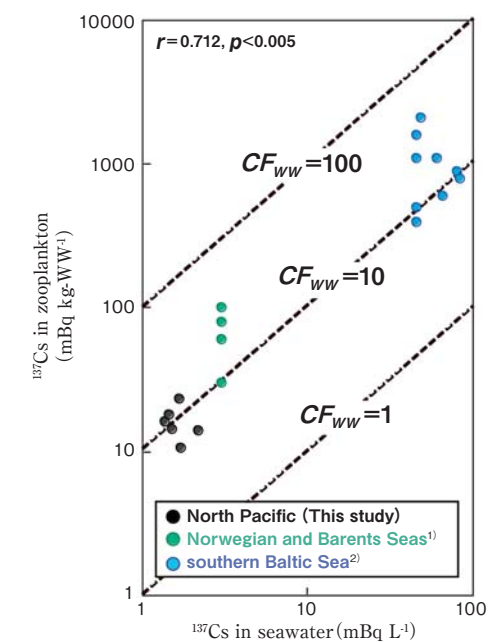


図3：動物プランクトンおよび溶存態<sup>137</sup>Cs濃度の海域間比較。破線は濃縮係数が1、10、100であることを示す。CF<sub>ww</sub>:湿重量ベース濃縮係数。

すると、肉食性ゼラチン質プランクトンである毛顎類の出現量が動物プランクトン群集全体の  $^{137}\text{Cs}$  濃度に大きな影響を与えていることが示唆された。また、 $^{137}\text{Cs}$  濃度は有意ではないものの、生息水温と高い正の相関が認められた。しかしながら、水温の変動は調査海域における水塊の交代によるものと考えられ、動物プランクトンの  $^{137}\text{Cs}$  濃度に直接影響を与えていないと考えられる（水理環境の詳細は本号の青野氏の論文参照）。

深度別動物プランクトンバイオマスデータ（図2）および動物プランクトン群集の  $^{137}\text{Cs}$  濃度より、水柱イベントリーを求め溶存態  $^{137}\text{Cs}$  のイベントリーと比較したところ、プランクトンへ移行した  $^{137}\text{Cs}$  の存在量は溶存態  $^{137}\text{Cs}$  の  $10^6$  と非常に小さな割合であった（表1）<sup>5)</sup>。一方、植食性カイアシ類の一部には、前述の日周鉛直移動を行う種や、生活史を通じ表層（水深150m以浅）から深層（水

深1000m以深）まで移動する種が報告されている（OVM: Ontogenetic vertical migration）。その代表種が *Neocalanus* 属カイアシ類3種（*N. cristatus*, *N. plumchnchrus* および *N. flemingeri*）<sup>7)</sup> であり、これら3種は太平洋東北沖においても6月に出現し、表層から深層まで発育段階別に分布深度が異なっていた<sup>8)</sup>。すなわち、6月の観測において本属カイアシ類が表層で成長し、深層へ移動しているタイミングを捉えたと判断できる。親潮海域における本属カイアシ類のOVMに伴う年間炭素輸送量は、セディメントトラップ観測で得られる沈降粒子による年間炭素輸送量に匹敵するとされている<sup>9)</sup>。そこで、動物プランクトンの平均的な体炭素重量と  $^{137}\text{Cs}$  濃度の比、および親潮海域と太平洋東北沖の動物プランクトン現存量の比を用い、太平洋東北沖の水深1000mにおける本属カイアシ類のOVMに伴う年間  $^{137}\text{Cs}$  輸送量を見積もると0.62 mBq/m<sup>2</sup>/yrとなった<sup>5)</sup>。現

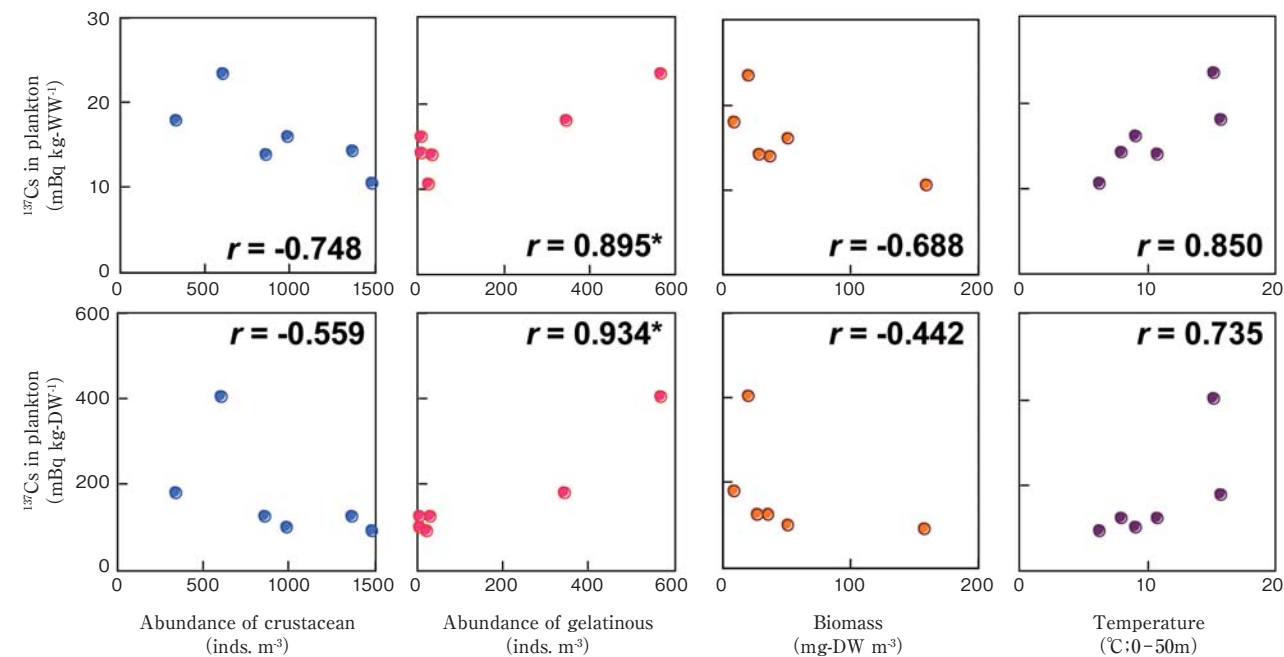


図4: 動物プランクトンの $^{137}\text{Cs}$ 濃度（上段:湿重量ベース、下段:乾燥重量ベース）と甲殻類プランクトン個体数、ゼラチン質プランクトン個体数、動物プランクトン生物量および水温の関係。 $p < 0.05$ 。

表1: 動物プランクトンおよび溶存態の $^{137}\text{Cs}$ イベントリー

Cruise	Station	Considered depth strata	$^{137}\text{Cs}$ in zooplankton (mBq m <sup>-2</sup> )	$^{137}\text{Cs}$ in seawater (Bq m <sup>-2</sup> )	Fraction of zooplankton $^{137}\text{Cs}$ to seawater $^{137}\text{Cs}$ ( $\times 10^{-6}$ )
KY-05-06	3	0-500 m	0.57	788	0.72
KK-05-10	1	0-500 m	0.58	835	0.7
	2	0-300 m	0.48	603	0.8
KK-06-06	1	0-500 m	0.87	828	1.05
	2	0-300 m	0.29	529	0.55
	3	0-1000 m	1.95	753	2.59

在のところ比較可能なデータがなく、本属カイアシ類のOVMに伴う $^{137}\text{Cs}$ の鉛直フラックスが海洋環境における $^{137}\text{Cs}$ の挙動に与えるインパクトについて議論を行うことはできないが、今後沈降粒子による $^{137}\text{Cs}$ の鉛直フラックスの実測、ならびに鉛直移動性カイアシ類の生理学的パラメータ（摂餌/排泄に伴う $^{137}\text{Cs}$ の移行など）の蓄積により、鉛直移動性カイアシ類が $^{137}\text{Cs}$ の鉛直輸送に果たす役割を定量的に議論できるであろう。

### 5. 動物プランクトンの微量元素の濃度

動物プランクトン群集の $^{137}\text{Cs}$ 濃度分析より、動物プランクトン群集の $^{137}\text{Cs}$ 濃度は種組成に強く影響を受けることが示唆された。そこで、太平洋東北沖における代表的なプランクトン種を対象に、種別に安定元素分析を行い、種特異的な濃縮の認められる元素の有無について検討を行った。分析対象としたプランクトン種は、植食性カイアシ類 (*Neocalanus spp.*)、植食性/雑食性オキアミ類 (*Euphausia pacifica*)、肉食性端脚類 (*Themisto spp.* および *Cyphocaris challengerii*) の甲殻類プランクトン4種、植食性（ろ過食性）ゼラチン質プランクトンサルパ類および肉食性ゼラチン質プランクトン毛顎類である。試料は湿式酸分解後、ICP-AES および ICP-MS を用い分析した。本研究で得られた微量元素濃度より求めた濃縮係数（乾燥重量ベース）について、既報の文献値<sup>10-12)</sup>と比較したとこ

ろ概ね一致したが、プランクトン種の違いにより1桁程度のバラツキが認められた（図5）。例えばオキアミ類および毛顎類は他のプランクトンに比べCsの、端脚類2種はSrの、サルパ類はNa、Ca、Mn、Fe、Znの濃縮係数が、それぞれ他のプランクトンに比べ高い値であった。特にサルパ類は、好条件が整うと無性生殖により短時間で大量に増殖し、植物プランクトン等に対して高い摂餌圧を示す。また、サイズが大きく沈降速度の速い糞粒を産出するため深層への沈降フラックスに与える影響も大きい<sup>13)</sup>。これらの生態学的特性を考慮すると、サルパ類の大増殖は数日単位における微量元素の循環に大きな影響（濃縮、表面吸着、再懸濁、沈降粒子の生産など）を与えられられる。このようにプランクトンの種別安定元素分析は、海洋における放射性核種（あるいは重金属など）の挙動に影響を与えうるプランクトン種を抽出し、生態学的特性をふまえた生理学的データの蓄積へと研究を進展させていく上で、有効なスクリーニング手法であると言える。さらにこれら微量元素について、動物プランクトンの濃縮係数と海洋における平均滞留時間を両対数軸上にプロットすると、両者に高い負の相関が認められる（図6）<sup>11, 12, 14)</sup>。これは生物と反応性が高い（濃縮係数が大きい）元素は海洋における平均滞留時間が短いことを表していると考えられ、海洋における微量元素の生物地球化学サイクルの解明という観点からも、今後更なる研究の発展が望まれる。

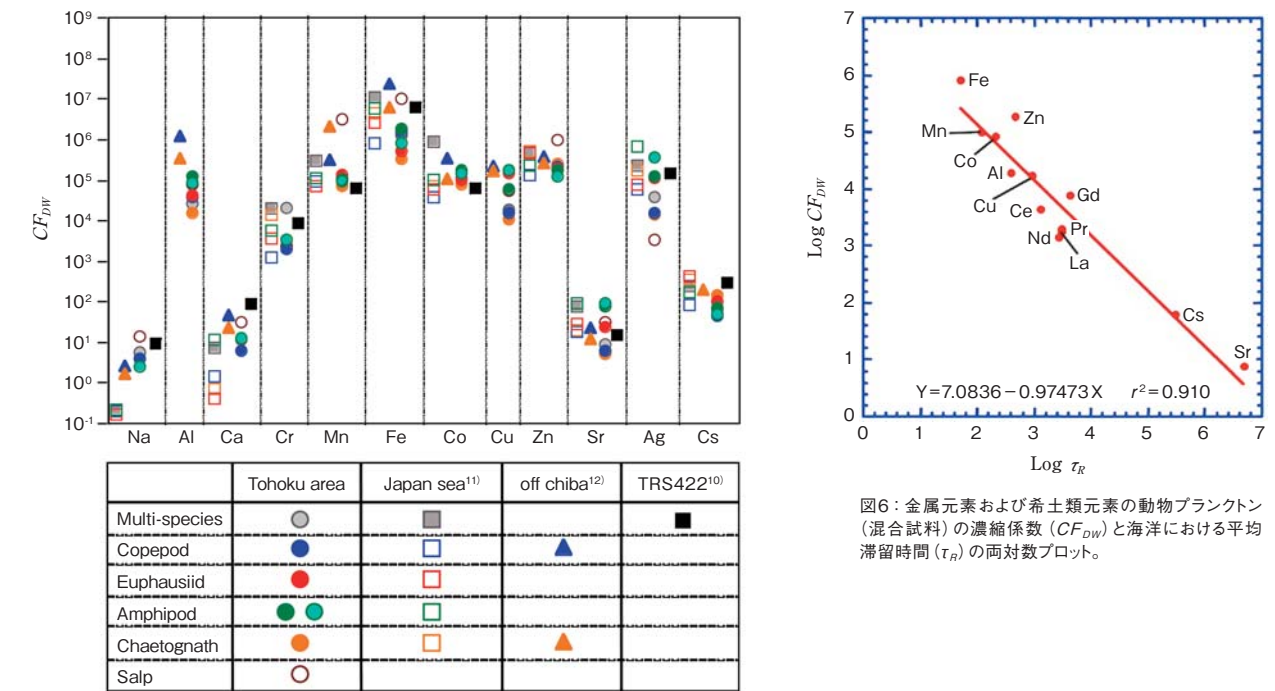


図5: 金属元素の種別動物プランクトンの濃縮係数の比較。 $CF_{DW}$ : 乾燥重量ベース濃縮係数

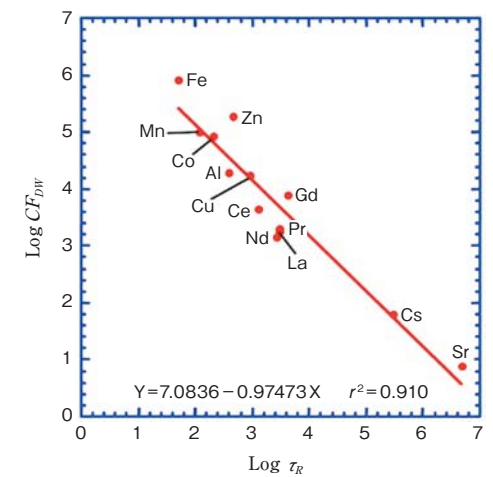


図6: 金属元素および希土類元素の動物プランクトン（混合試料）の濃縮係数 ( $CF_{DW}$ ) と海洋における平均滞留時間 ( $\tau_R$ ) の両対数プロット。

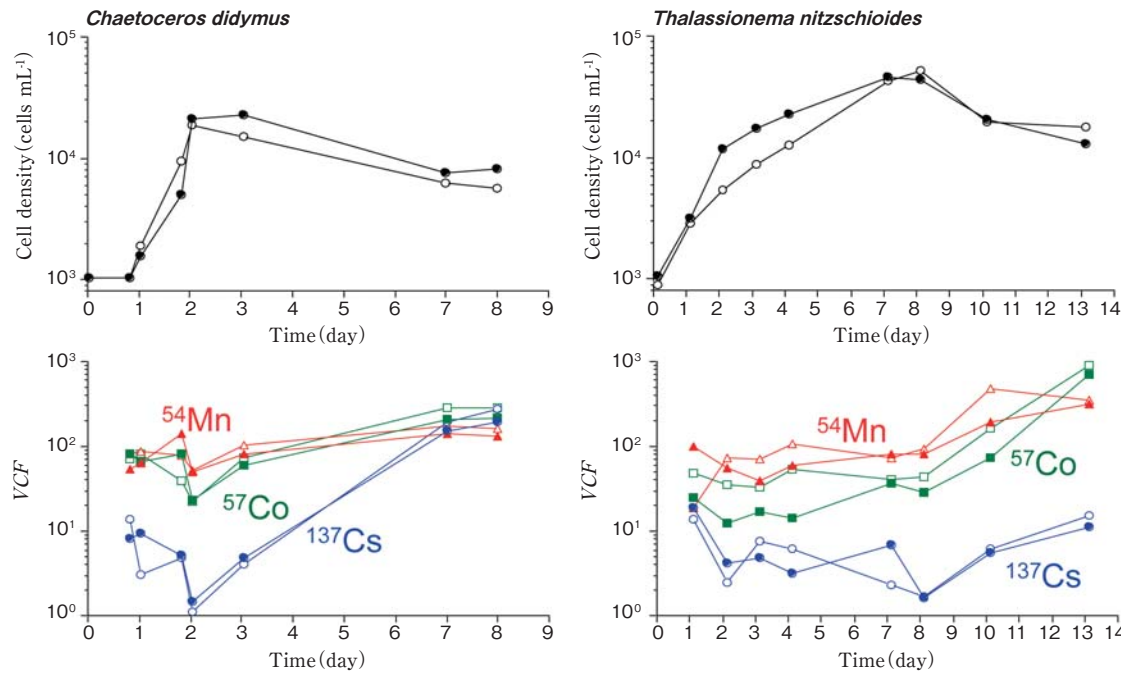


図7: 珪藻類2種の細胞数(上段)および<sup>54</sup>Mn、<sup>57</sup>Co、<sup>137</sup>Csの濃縮係数(下段)の経時変化。VCF: 体積換算濃縮係数。

## 6. 室内実験

動物プランクトンに比べ、さらにサイズの小さな植物プランクトンのフィールドデータを取得することは極めて困難なため、室内実験により基礎的データの収集を行った。また、動物プランクトンに関するフィールドデータは、観測を行った瞬間のスナップショットの情報であり、時間軸を含む情報を得ることができない。そこで、室内実験により時間軸を含むパラメータ(摂食による放射性核種の取り込み)を収集した。

## 7. 植物プランクトンによる海水からの放射性核種の取り込み・吸着

<sup>54</sup>Mn、<sup>57</sup>Coおよび<sup>137</sup>Csを添加した海水強化培地に珪藻類(*Chaetoceros didymus*および*Thalassionema nitzschioides*)を加え、温度、光強度、明暗周期の制御されたインキュベータ内で培養した。一定時間おきに細胞数の計数および放射能の測定を行い、植物プランクトンの増殖に伴う単位細胞あたりの放射性核種濃度の変化を明らかにした<sup>15)</sup>。図7に細胞数と濃縮係数の経時変化を示す。植物プランクトンの濃縮係数は体積換算濃縮係数(VCF: Volume concentration factor)を用いた。VCFは対数増殖期、定常期においてはほぼ一定の値であったが、死滅期に高くなる傾向が伺えた(特に*C. didymus*の<sup>137</sup>Cs)。死滅期におけるVCFの上昇は、放射性核種の細胞表面への吸着、

排泄機能の低下、バクテリアの影響等が考えられる。しかしながら*C. didymus*の細胞を加熱処理し、活性を失った細胞について同様の実験を行ったところ、死滅細胞の濃縮係数は対数増殖期と同程度であった(VCF:<sup>137</sup>Cs:4.1±2.5、<sup>57</sup>Co:236±81)<sup>16)</sup>。以上の結果より、植物プランクトンによる放射性核種の取り込みは非常に小さく、加熱処理細胞においても同程度であったことより、細胞に含まれる放射性核種の大部分が吸着によるものと考えられる。なお、死滅期に認められた放射性核種の濃度上昇については今後更なる検討が必要であろう。

## 8. 動物プランクトンによる海水および餌生物からの放射性核種の取り込み・吸着

動物プランクトン群集において、数・量ともに優占する甲殻類プランクトンに関する知見を得る目的で、トレーサー実験には*Artemia franciscana*を用いた。摂餌を行わないふ化直後のノープリウス幼生を、<sup>137</sup>Csおよび<sup>57</sup>Coを添加した人工海水で飼育、24-72時間後における放射性核種の濃度を測定することで、海水からの放射性核種の取り込みを明らかにした。*A. franciscana*の<sup>137</sup>Cs濃度は実験期間を通し一定であり、24時間以内に海水と*A. franciscana*の間で平衡状態になると考えられる。一方、<sup>57</sup>Coが平衡状態に達するには48時間を要すると考えられた(図8)<sup>16)</sup>。また、<sup>137</sup>Csを添加した培地にて増殖させた*T.*

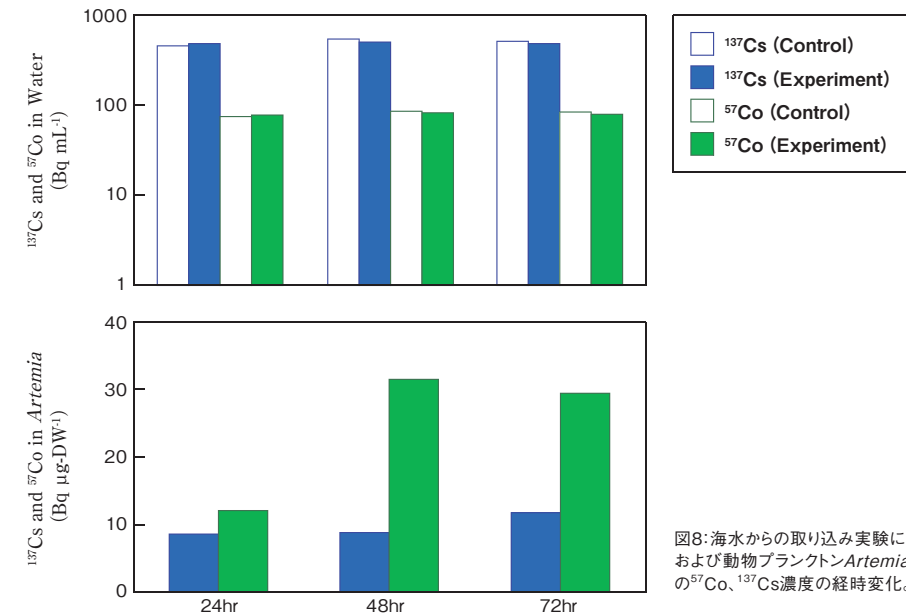


図8: 海水からの取り込み実験における飼育海水(上段)および動物プランクトン*Artemia franciscana*(下段)の<sup>57</sup>Co、<sup>137</sup>Cs濃度の経時変化。

表2: 摂食実験における餌生物(*Thalassionema nitzschioides*)および捕食者(*Artemia franciscana*)の体サイズ(細胞体積および乾燥重量)、<sup>137</sup>Cs濃度、および濃縮係数

	Body size	<sup>137</sup> Cs in organism	Concentration factor
<i>T. nitzschioides</i>		4 ± 0.9 μBq cell <sup>-1</sup>	
	1580 μm <sup>3</sup>	2530 ± 570 Bq mL <sup>-1</sup>	6 *
	0.6 ngDW	7140 ± 2700 Bq gDW <sup>-1</sup>	17 **
<i>A. sarina</i>		205 ± 64 mBq ind <sup>-1</sup>	
	16.8 μgDW	12070 ± 2560 Bq gDW <sup>-1</sup>	30 **

\*: 体積換算濃縮係数(VCF)、\*\*: 乾燥重量ベース濃縮係数(CF<sub>DW</sub>)。

*nitzschioides*を餌生物として、ふ化後5-6日目のノープリウス幼生に与え、24時間の摂食により餌および海水から取り込まれる<sup>137</sup>Csの濃度を明らかにした(表2)<sup>16)</sup>。<sup>137</sup>Csの乾燥重量ベースの濃縮係数は、海水からの取り込みで20±6、餌および海水からの取り込みで30±6であり、フィールド調査で得られた濃縮係数よりも若干低い値であった。また、摂食実験における*T. nitzschioides*の単位細胞あたりの<sup>137</sup>Cs濃度、および*A. franciscana*の摂食速度から、*A. franciscana*が摂食により一日に取り込む<sup>137</sup>Csの濃度を見積もり、*A. franciscana*一個体あたりの<sup>137</sup>Cs濃度と比較すると、餌の寄与は23%に相当した。海水のみからの取り込みによる濃縮係数と、海水および餌生物からの取り込みによる濃縮係数の比から餌の寄与率を計算すると33%になり、概ね一致すると考えられる。今後、摂食により取り込んだ<sup>137</sup>Csが、糞粒として排出される量を明らかにすることで、甲殻類プランクトンの摂食・排泄に伴う<sup>137</sup>Csの移行について時間軸を含めたパラメータとして表現する予定

である。また、粒子との反応性が高いPu、Amについての摂食実験を現在実施している(本原稿執筆時)。

## 9. おわりに

これまで、海産生物を対象にした放射能研究では扱われることの少なかった動・植物プランクトンを対象に、平成16年度より基礎的なデータを整備してきた。これらの成果を物理・化学的知見と組み合わせることで、海洋における放射性核種の物質循環を定量的に表現(あるいは予測)するためのモデルの構築に貢献できると考えている。しかしながら、室内実験データの不足、<sup>137</sup>Cs以外の核種についてのデータなど、今後の研究課題も多く残されており、地道に研究を続けていく必要がある。本事業は文部科学省エネルギー対策特別会計事業による委託業務として実施した。また平成18年度理事長調整費萌芽の研究および東京大学海洋研究所による学術研究船淡青丸共同利用(KT0512航海)による成果も含まれている。

## 参考文献

- 1) Heldal, H. E., Føyn, L., Varskog, P.: Bioaccumulation of  $^{137}\text{Cs}$  in pelagic food webs in the Norwegian and Barents Seas. *J. Environ. Radioact.* 65:177-185, 2003.
- 2) Knapinska-Skiba, D., Bojanowski, R., Piekos, R.: Activity concentration of cesium-137 in seawater and plankton of the Pomeranian Bay (the Southern Baltic Sea) before and after flood in 1997. *Mar. Pollut. Bull.* 46:1558-1562, 2003.
- 3) Fowler, S.W., Buat-Meard, P., Yokoyama, Y., Ballestra, S., Holm, E., Nguyen, H. V.: Rapid removal of Chernovyl fallout from Mediterranean surface waters by biological activity. *Nature* 329:56-58, 1987.
- 4) Tateda, Y.: Concentration factor of  $^{137}\text{Cs}$  for zooplankton collected from the Misaki coastal water. *Fish. Sci.* 64:176-177, 1998.
- 5) Kaeriyama, H., Watabe, T., Kusakabe, M.:  $^{137}\text{Cs}$  concentration in zooplankton and its relation to taxonomic composition in the western North Pacific Ocean. *J. Environ. Radioact.* 99:1838-1845, 2008.
- 6) Kaeriyama, H., Watabe, T., Kusakabe, M.: The concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  and stable Cs in zooplankton in the western North Pacific in relation to their taxonomic composition. *Proc. 16th Pacific Basin Nucl. Conf.*, Paper ID: P16P1197 (CD-ROM), 2008.
- 7) Tsuda, A., Saito, H., Kasai, H.: Life histories of *Neocalanus flemingeri* and *Neocalanus plumchrus* (Calanoida: Copepoda) in the western subarctic Pacific. *Mar. Biol.* 135:533-544, 1999.
- 8) 婦山秀樹, 日下部正志: 2005年春季および秋季の西部北太平洋における動物プランクトンの鉛直分布および群集構造. 2007年度日本海洋学会春季大会, 講演要旨集:239, 2007.
- 9) Kobari, T., Shinada, A., Tsuda, A.: Functional roles of interzoanal migrating mesozooplankton in the western subarctic Pacific. *Prog. Oceanogr.* 57:279-298, 2003.
- 10) International Atomic Energy Agency: Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment. In *Tech. Rep. Ser.* 422, 2004.
- 11) Masuzawa, T., Koyama, M., Terazaki, M.: A regularity in trace element contents of marine zooplankton species. *Mar. Biol.* 97:587-591, 1988.
- 12) Marumo, K., Ishii, T., Ishikawa, Y., Ueda, T.: Concentration of elements in marine zooplankton from coastal waters of Boso Peninsula, Japan. *Fish. Sci.* 64:185-190, 1998.
- 13) 西川淳: ゼラチン質動物プランクトン、その生物学的特性と生態学的重要性. 日本プランクトン学会報 50:158-163, 2004.
- 14) Kaeriyama, H., Ishii, T., Watabe, T., Kusakabe, M.: Concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  and trace elements in zooplankton, and their vertical distributions off Rokkasho, Japan. *Proc. Int. Symp. Environ. Modeling and Radioecol.* pp.101-108, 2007.
- 15) 婦山秀樹, 中原元和, 石井紀明, 日下部正志: 海産珪藻類による放射性核種 ( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{54}\text{Mn}$  および  $^{57}\text{Co}$ ) の濃縮. 2006年度日本海洋学会春季大会, 講演要旨集:325, 2006.
- 16) 婦山秀樹, 青野辰雄, 日下部正志: Cs および Co に対する動・植物プランクトンの濃縮・吸着特性について. 2008年度日本プランクトン学会・日本ベントス学会合同大会, 講演要旨集 161, 2008.

## (4) 沿岸域における放射性核種の海産生物への移行について

-沿岸域の海産生物への移行挙動予測モデル-



立田 稔 (Yutaka Tateda)

(財)電力中央研究所  
環境科学研究所 上席研究員  
立田 稔

## 1. 沿岸生物への放射性核種の移行挙動予測モデル

海産生物中放射性核種濃度の長期間における予測は、海水と生物の間の放射性核種の分配が定常状態にあることを前提とした濃縮係数を用いて行われてきた<sup>1)</sup>。我が国におけるこれまでの環境放射能の調査分析結果から、実測された海産生物中の放射性核種濃度は、濃縮係数を用いて予測された値の範囲内にあり、濃縮係数法の信頼性が極めて高いことが示されている<sup>2)</sup>。これに対して、チェルノブイリ事故のような放射性核種の環境への放出については、沿岸水などへの放射性核種の導入が短期間に起こり、かつ導入量も短時間に变化する。このような非定常状態における海産生物中の放射性核種濃度の予測には、濃縮係数法は適していないため、短期間の海産生物中放射性核種の濃度予測法の検討は、緊急時対応計画の策定のためにも重要である。沿岸域への放射性核種の短期間の導入条件における、海産生物中の放射性核種濃度の時間的変化の予測については、海水および、沿岸域の食物連鎖を想定した餌生物からの移行を含み、かつ最も移行係数の実験データの豊富な $^{137}\text{Cs}$ を用いた単純化されたモデルの構築から始められた<sup>3,4)</sup>。この移行挙動予測モデルは、植物・動物プランクトンおよび日本沿岸域に生息する典型的な底生生物を対象として、これまでの $^{137}\text{Cs}$ などの放射性トレーサー実験の蓄積データを元に、海水と生物相互の放射性核種の移行係数である取り込み速度係数・排泄速度係数・消化管吸収係数・摂餌率を用いて短期間の非定常状態における海産生物中の $^{137}\text{Cs}$ 濃度が計算できるように組み上げた生物移行計算モデルである<sup>5)</sup>。このような移行速度係数を用いた生物モデルによる、海産生物中の放射性核種濃度の短期間の予測はいくつか試みられてきたが、いずれも少ない移行経路と栄養段階に限られていた<sup>6-9)</sup>。

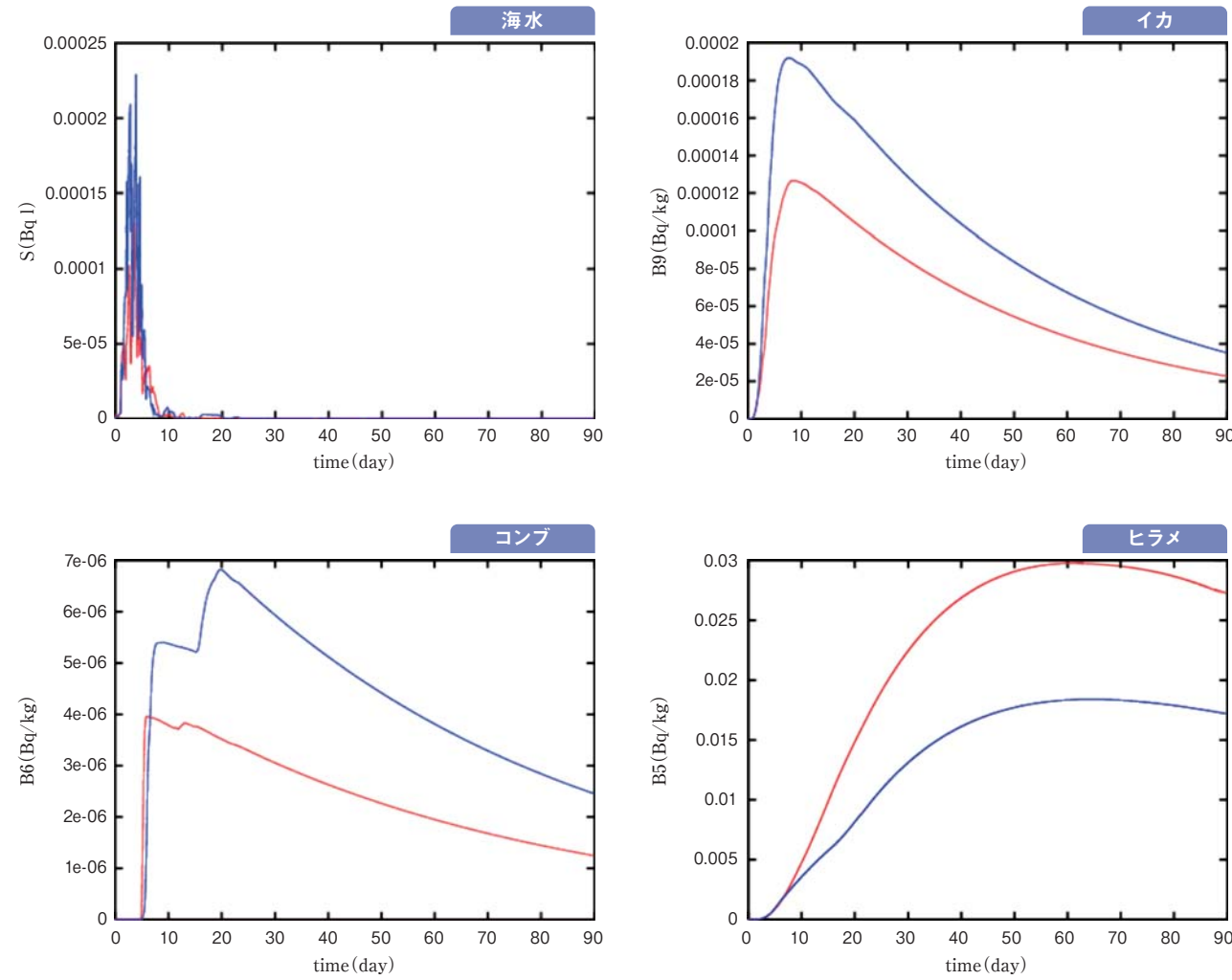
Tateda et al. (1998)<sup>10)</sup>では、この生物移行モデルと、沿岸域への放射性核種の導入後の拡散や流れによる移動、および植物・動物プランクトン・無機物・有機物懸濁粒子中の放射性核種と海水中の相互移行、さらに粒子の沈

降による放射性核種の堆積物への移行を含む拡散・移流と物理挙動モデルとを組み合わせ、同時に計算することで、沿岸域における短期間の放射性核種の導入に対する、海産生物中の $^{137}\text{Cs}$ 濃度の時間的変化を計算する手法とし、水平・鉛直方向における海水中の時間的変化とそれに応じた定着生物や遊泳生物中の放射性核種濃度の予測計算を可能にしている。ここでは、このような沿岸生物への放射性核種の移行予測モデルの理論的構造を概括し、予測された結果について整理する。

## 2. 移行挙動予測モデルの構造

生物移行挙動予測モデルは、日本の沿岸生物の食物連鎖における放射性核種の移行を想定したコンパートメントモデルであり、沿岸生物中の $^{137}\text{Cs}$ 濃度の時間的変化を模擬計算できるように構築されている。主要部分は、海水・植物プランクトン・動物プランクトン・デトリタス・デトリタス食者・プランクトン食無脊椎動物・底生魚・海藻・藻食無脊椎動物・プランクトン食魚・肉食無脊椎動物・肉食魚の12のコンパートメント、およびデトリタスのサブモデルとして、陸起源デトリタス・海藻起源デトリタス・動物プランクトン糞粒・外殻の4つのコンパートメントからなる。各コンパートメント間の関係は、日本沿岸の典型的な食物連鎖関係や、沿岸域における代表的な物質移行関係で決められている。沿岸域への放射性核種導入後の各コンパートメントにおける経時的 $^{137}\text{Cs}$ 濃度は、海水および餌生物の経時的 $^{137}\text{Cs}$ 濃度変化に応じて決まる。また、一般に餌生物は小型であるため代謝速度が速く、 $^{137}\text{Cs}$ 濃度の変化もこれに応じて速いため、餌生物の大きさの差による $^{137}\text{Cs}$ 濃度の違いが再現できるように餌生物における移行速度係数が与えられている。なお、予測は短期間を想定しているため、各コンパートメント生物の成長による変化はないものと仮定されている。

海水とデトリタスおよび海底土のコンパートメントでは、海水中の放射性核種濃度の低下に応じたデトリタスや海底土からの溶解が計算できるようにしてあり、また海



図：非定常・遷移常態における沿岸生物中の<sup>137</sup>Cs濃度の予測計算結果（上から：海水、イカ、コンブ、ヒラメ：赤は夏季、青は冬季環境条件で計算）。

水のコンパートメントは10m層の厚みで計算可能である。沿岸域における拡散係数や流れについては、予測したい海域におけるこれまでの観測値に応じて条件を与えることが可能であり、放射性核種の沿岸への導入は、大気から海表面への降下や、一地点への導入の設定が可能となっている。

構築されたモデルの構造やパラメータの組み合わせの正しさは、まず、計算時間を無限大に近くした場合の海産生物と海水中の<sup>137</sup>Cs濃度計算値に基づく予測濃縮係数と、実際に観測されている日本沿岸の海産生物および海水中の<sup>137</sup>Cs濃度による濃縮係数の経験的データセットとの、平衡状態での比較により検証することができる。平衡状態におけるモデルの検証結果では、計算値に基づく濃縮係数は、経験的濃縮係数の範囲とほぼ一致し、定常状態におけるモデル計算結果はほぼ正しいことが示された。また、この生物移行挙動予測モデルの本来の目的である遷移状態

あるいは非定常状態における計算結果の検証は、チェルノブイリ事故で日本沿岸に飛来・降下した<sup>137</sup>Csにより、経験的に得られている海藻・魚類・海水中の<sup>137</sup>Cs濃度の時間変化のデータセットを用いて行われ、同様に計算による予測値が、観測値にほぼ近いことで確認できた。

### 3. 模擬計算

沿岸域への<sup>137</sup>Csの一次的導入を模擬して、沿岸方向45km、沖合方向15km、水深10から200mの模擬海域を想定し、沿岸23km、沖合3km地点の水深30mに、10日間の期間で合計1.9TBqが導入された場合の、沿岸生物中<sup>137</sup>Cs濃度の時間的変化が模擬計算されている<sup>10)</sup>。ここでは、海藻、底生魚類、頭足類について、夏季と冬季の季節条件で模擬計算されている（図）。

### 4. 短期間の導入における放射性核種濃度の時間的変化

短期間の導入における沿岸の海藻・底生魚類・頭足類中の<sup>137</sup>Cs濃度の時間的変化を模擬計算した結果、以下のような事が示されている。沿岸域では、潮汐に伴う流れの方向の変化があり、当然ながら流向の頻度が高い沿岸域に生息する底生生物中の<sup>137</sup>Cs濃度は高くなる事が示されたが、底生魚類では<sup>137</sup>Cs濃度はきわめてゆっくりとしか高くない代わりに、海水への放射性核種の一次的な導入が止まっても、食物連鎖に伴う餌生物中からの<sup>137</sup>Csの移行により、ゆっくりと上昇することがモデル計算結果から示されている。沿岸域に生息する定着性の海藻や遊泳性の頭足類については、海水への放射性核種の一次的な導入が止まった後は、すみやかに<sup>137</sup>Cs濃度が低下することがモデル計算から模擬され、沿岸生物中の<sup>137</sup>Cs濃度の時間的変化は、放射性核種の各沿岸生物への移行速度や排出速度の差と、食物連鎖を通じた放射性核種の移行の寄与度の影響が大きいことが示されている。模擬計算結果では、10日間の一次的導入に対しては、定着性の沿岸底生魚類中の<sup>137</sup>Cs濃度は、50日後に最大になることが示されている。しかしながら、その濃度は、10日間の一次的導入が海水中の<sup>137</sup>Cs濃度を最大2mBq/L追加的に上昇させたとしても、これに対応して起こる沿岸魚類中の<sup>137</sup>Cs濃度の追加的上昇は30mBq/kg（生）にしか達せず、魚類の<sup>137</sup>Csの一般的な濃縮係数100に対して+15%しか寄与しないことがわかる。その他の海藻や頭足類については<sup>137</sup>Cs濃度は3~5 mBq/kg（生）上昇するだけであり、現在の日本の沿岸生物中の<sup>137</sup>Cs濃度の範囲20~30mBq/kg（生）に比較して、+10~25%の上昇しか寄与しないことが同様に示されている。

一方で、これらの模擬計算結果は、予期しない一次的導入がある場合の緊急時対応において、以下のような必要性があることを示している。すなわち、例え導入が短期間であっても、魚類中の<sup>137</sup>Csのような食物連鎖を通じた取り込みやゆっくりした排出速度係数をもつ放射性核種の場合は、1年間の期間内にその濃度が最大に達する可能性があることから、比較的短期間の定期的なモニタリングが必要であること、および、このような期間中は、海水と生物中の放射性核種濃度比は経過時間に応じて変化することから、海水中の放射性核種が検出されなくても、沿岸生物中の放射性核種濃度のモニタリングは必要であること、が示されている。

### 5. 今後の課題

実験で取得された放射性核種の移行係数、および検証のための沿岸環境と海産生物中の放射性核種濃度の観測値は、必ずしもすべての生物種あるいは様々な核種について、十分なデータと知見が蓄積されているわけではない。最もデータが整備されている<sup>137</sup>Csについても、植物プランクトン・動物プランクトン、および水中懸濁有機物・無機物粒子と海水との放射性核種の相互間の移行係数は、これまで必ずしも十分ではなかったが、Kaeriyamaら<sup>11)</sup>によって、プランクトンにおける<sup>137</sup>Csの観測データや移行係数が整備されつつあることは、非定常移行挙動予測モデルの完成に貢献すると期待される。一方、動植物プランクトンから生成する粒子状有機物や、沿岸の陸域から流入する陸起源有機物粒子、あるいは、無機懸濁粒子と海水中放射性核種の相互作用については、長期的な分配係数に関する観測データやラジオトレーサーを用いた評価に対して、非定常移行挙動計算に用いることが可能な移行係数パラメータのデータは多くはないことから、モデルを用いた挙動予測の精度向上のためには、これらに関する今後の研究の進展が待たれる。また、<sup>137</sup>Csに引き続いて、比較的観測データや移行係数に関する知見が少ない<sup>99</sup>Tcについても、モデルを用いた沿岸生物への挙動予測法の構築が望まれる。

非定常・遷移常態における放射性核種の移行挙動予測モデルは、放射性核種のみならず、沿岸の微量汚染物質（例えば、重金属など）について、対応するラジオトレーサーが存在する場合は、沿岸生物中汚染物質濃度の時間的変化の予測に应用が可能である。特に、近年経済発展の著しいアジア・インド沿岸では、原子力その他エネルギー利用の発展と呼応する環境保全対策の充実が実用であり、我が国においてこれまで蓄積・発展してきた環境放射能や沿岸汚染物質の移行挙動の科学的データ取得や評価法の知見の共有は、重要な国際的貢献となるであろう。

### 参考文献

- 1) International Atomic Energy Agency: Sediment distribution coefficients and concentration factors for biota in the marine environment. In *Tech. Rep. Ser.* 422, 2004.
- 2) 渡部輝久：海産生物と放射能—海産生物濃縮実験—。放射線科学 51(6):28-35, 2008.
- 3) Tateda, Y.: Development of Basic Model for

- Dynamic Prediction of <sup>137</sup>Cs Concentration in Marine Organism. in CRIEPI Rep. U94056. p. 57, 1997 (in Japanese).
- 4) Tateda, Y.: Basic Model for the prediction of <sup>137</sup>Cs Concentration in the Organisms of detritus Food Chain. in CRIEPI Rep. U97022. p.28, 1997 (in Japanese).
- 5) Tateda, Y. et al.: Modelling of <sup>137</sup>Cs concentration change in organisms of the Japanese coastal food chains. International Symposium on Marine Pollution, IAEA-SM354. IAEA, 1998.
- 6) Aoyama, I., Inoue, Y.: Estimation and evaluation of radioactive contamination through a food web in aquatic ecosystem (1). *J. Radiat. Res.* 14:375-381, 1973.
- 7) Nakamura R, Nakahata M, Suzuki Y, Ueda T: Relative importance of food and water in the accumulation of radionuclides by sea urchin *Strongylocentrotus nudus*. *Bull. Jap. Soc. Sci. Fish.* 52:703-710, 1986.
- 8) Wang, W-X., Ke, C., Yu, K. N., Lam, P. K. S.: Modelling radiocesium bioaccumulation in a marine food chain. *Mar. Ecor. Prog. Ser.* 208:41- 50, 2000.
- 9) Helling, R., Lepicard, S., Maderich, V., Shershakov, V., Mungov, G., Catsaros, N., Popov, A.: POSEIDON: Final Report A module to predict the effects of radioactive discharges in the coastal regions. NRG Report IC15-CT98-0210. p. 47, 2000.
- 10) Tateda, Y., Wada, A.: 3-D Modelling technique of time-series <sup>137</sup>Cs concentration in coastal organisms in case of short term introduction. In *Isotopes in environmental studies, Aquatic Forum 2004*, IAEA pp.465-469, 2006.
- 11) Kaeriyama, H., Ishii, T., Watabe, T., Kusakabe, M.: Concentrations of <sup>137</sup>Cs and trace elements in zooplankton, and their vertical distributions off Rokkasho, Japan. *Proc. International Symposium on Environmental Modelling and Radioecology*, Rokkasho, Aomori, Japan, pp.101-108, 2007.

## (5) 海水、懸濁粒子、沈降粒子および堆積物中のプルトニウム同位体の分布と挙動



山田 正俊 (Masatoshi Yamada)

放射線防護研究センター  
環境放射線影響研究グループ 海洋動態解析研究チーム チームリーダー  
山田 正俊

### 1.はじめに

プルトニウム (Pu) は、原子番号 94 番の元素で、13 の同位体がある。そのうち、環境中に存在する主な同位体は、<sup>238</sup>Pu (半減期: 87.7 年)、<sup>239</sup>Pu (半減期: 2.413 × 10<sup>4</sup> 年)、<sup>240</sup>Pu (半減期: 6.563 × 10<sup>3</sup> 年)、<sup>241</sup>Pu (半減期: 14.36 年) である。海洋、特に北太平洋におけるプルトニウムの主要な起源は、大気圏核実験によるグローバルフォールアウトとマーシャル諸島ビキニ環礁等での水爆実験による局地的フォールアウトである。これらの核実験は、主に 1950 年代から 1960 年代前半に行われ、50 年前後経過しているが、海水中では未だ定常状態に到達していない。そこで、海水中でのプルトニウム濃度、鉛直分布のパターンおよび同位体比の中・長期的変化を把握することにより、プルトニウムの海洋での循環過程や粒子によるスクヤベンジング過程

を解明することが期待できる。

<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 同位体比は、原子炉のタイプ、使用する核燃料の種類や燃焼時間、核兵器のタイプなどによって異なることが知られており<sup>1)-13)</sup> (表 1 参照)、環境試料中の同位体比の測定からその起源と輸送過程を推定するのに有効である。例えば、グローバルフォールアウト起源の <sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu 同位体比は 0.18<sup>1),2)</sup>、ビキニ水爆実験起源は 0.30 ~ 0.34<sup>3),4)</sup>、長崎に投下された核爆弾は 0.03 前後である<sup>3, 12, 13)</sup>。

本稿では、我々が行った日本周辺海域における海水・懸濁粒子・沈降粒子および海底堆積物中のプルトニウム濃度と同位体比の分布を紹介し、その起源と挙動について概説する。

表 1: いろいろな起源による<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比とPu濃度の違い

Source/Site	<sup>240</sup> Pu/ <sup>239</sup> Pu (同位体比)	<sup>239+240</sup> Pu 濃度 (Bq/kg)	参考文献
グローバルフォールアウト(土壌)	0.176 ± 0.014 0.173 - 0.185	- -	Krey et al. (1976) <sup>1)</sup> Kelley et al. (1999) <sup>2)</sup>
ビキニ環礁(土壌)	0.338 ± 0.051 0.306 ± 0.011	890 434	Komura et al. (1984) <sup>3)</sup> Muramatsu et al. (2001) <sup>4)</sup>
エネウエタック環礁(土壌)	0.065 ± 0.004	1,420	Muramatsu et al. (2001) <sup>4)</sup>
ムルロア環礁(堆積物)	0.035 - 0.05	-	Chiappini et al. (1999) <sup>5)</sup>
セミパラチンスク(土壌)	0.036 - 0.067	8,850 - 27,900	Yamamoto et al. (2001) <sup>6)</sup>
ネバダ核実験場(土壌)	0.042 - 0.063	-	Hardy et al. (1976) <sup>7)</sup>
セラフィールド <sup>®</sup> (表層堆積物) (堆積物鉛直分布)	0.22 0.05 - 0.25	- -	Kershaw et al. (1995) <sup>8)</sup> Kershaw et al. (1995) <sup>8)</sup>
ラ・アーグ(廃液)	0.34 ± 0.03	-	Oughton et al. (1999) <sup>9)</sup>
チェルノブイリ(核燃料) (土壌)	0.45 - 0.52 0.408 ± 0.004	- 172	Oughton et al. (2001) <sup>10)</sup> Muramatsu et al. (2000) <sup>11)</sup>
長崎西山(土壌) (土壌) (堆積物)	0.042 ± 0.014 0.037 ± 0.002 0.028	51 16.8 -	Komura et al. (1984) <sup>3)</sup> Muramatsu et al. (2003) <sup>12)</sup> Saito-Kokubu (2008) <sup>13)</sup>

## 2. 海水中の<sup>239+240</sup>Pu濃度と<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比

### 2.1. 西部北太平洋における表面水中の同位体比

西部北太平洋およびその縁辺海における表面水中の<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu比は、グローバルフォールアウト起源の比である0.18に比べ、有意に高い0.20～0.25であった(図1)。特に、南シナ海、スルー海、セレベス海などの東南アジアの海でも高い値が観測された。これは、マーシャル諸島ビキニ環礁等での水爆実験による局地的フォールアウト起源のプルトニウムが、北赤道海流によってフィリピンの東に運ばれ、さらに黒潮となりその一部がルソン海峡・インドロ海峡を越え流入したとインドネシア通過流によると推定される(Yamada et al., 2006)<sup>14)</sup>。また、日本海および青森県太平洋沿岸においてもグローバルフォールアウト比より高く、黒潮から枝分かれした対馬海流、津軽暖流によってビキニ起源のプルトニウムが輸送されている。なお、青森県の大型核燃料再処理施設本格稼働前のバックグラウンドの同位体比も、グローバルフォールアウト比より高い0.23を示した(Yamada and Zheng, 2008)<sup>15)</sup>。

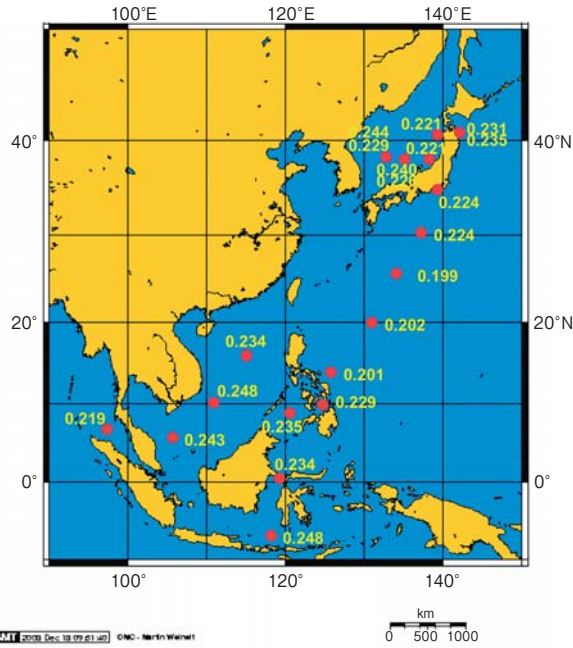


図1: 西部北太平洋およびその縁辺海における表面水中の<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比の分布

### 2.2. <sup>239+240</sup>Pu濃度と同位体比の鉛直分布

海水中のPu濃度と<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比の鉛直分布の一例として、相模湾における結果を図2に示す。Pu濃度は中層に極大がある分布を示し、海水柱中の全蓄積量は、41.1 Bq m<sup>-2</sup>であった。この値は、グローバルフォールアウト量の42.2 Bq m<sup>-2</sup>とほぼ同じである。また、<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比は、表層から海底直上まで一定の値を示し、その

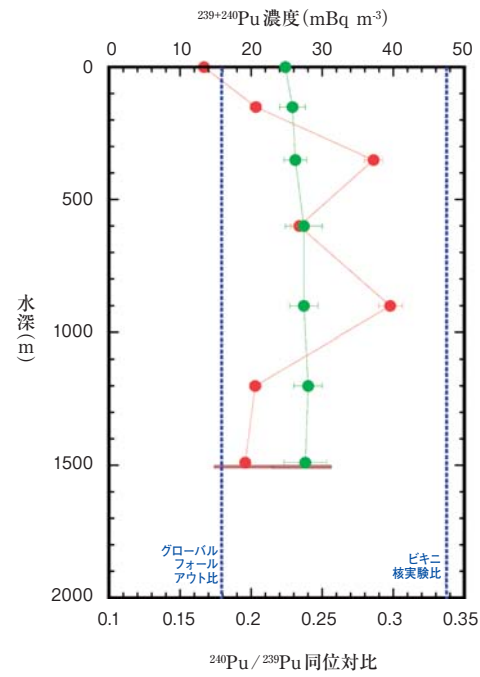


図2: 相模湾における海水中のPu濃度(赤丸)と<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比(緑丸)の鉛直分布。点線は、グローバルフォールアウト比の0.18<sup>12)</sup>とビキニ核実験プルトニウムの0.338<sup>3)</sup>を示す。

平均は $0.234 \pm 0.004$ であった。相模湾には、黒潮・北太平洋中層水・太平洋深層水の3つの水塊が存在するが、30～40年の時間が経過して、起源の異なるプルトニウムがこれらの水塊の中で均一化していることが分かった。海水が表層から海底直上まで短期間に一気に混合したとは考えられないから、相模湾表層で粒子によってプルトニウムが取り込まれ、中層で再生したことによるといえる。グローバルフォールアウト起源とビキニ起源の2つのエンドメンバーの混合によるとして、それぞれの寄与率を求めると、海水柱中の全蓄積量の37%にあたる15.2 Bq m<sup>-2</sup>がビキニ起源であった。また、残りの25.9 Bq m<sup>-2</sup>がグローバルフォールアウト起源となり、これはグローバルフォールアウト量(42.2 Bq m<sup>-2</sup>)の約60%に相当する(Yamada et al., 2007)<sup>16)</sup>。相模湾の海底堆積物柱中の全蓄積量は191 Bq m<sup>-2</sup>であり(Yamada and Nagaya, 2000)<sup>17)</sup>、グローバルフォールアウト量(42.2 Bq m<sup>-2</sup>)の4.5倍に当たる量がすでに堆積していることになる。

### 3. 懸濁粒子中の<sup>239+240</sup>Pu濃度と<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比

「沿岸・外洋域における放射性核種の動態の総合的調査研究」において得られた懸濁粒子中のPu濃度と<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比の結果を紹介する。全体の概要は、本号の青野辰雄、日下部正志の論文を参照されたい。本稿では、2005年6月下旬～7月上旬にかけて、青森県と岩手県の沖合海域で行った調査航海(図3)の結果を示す

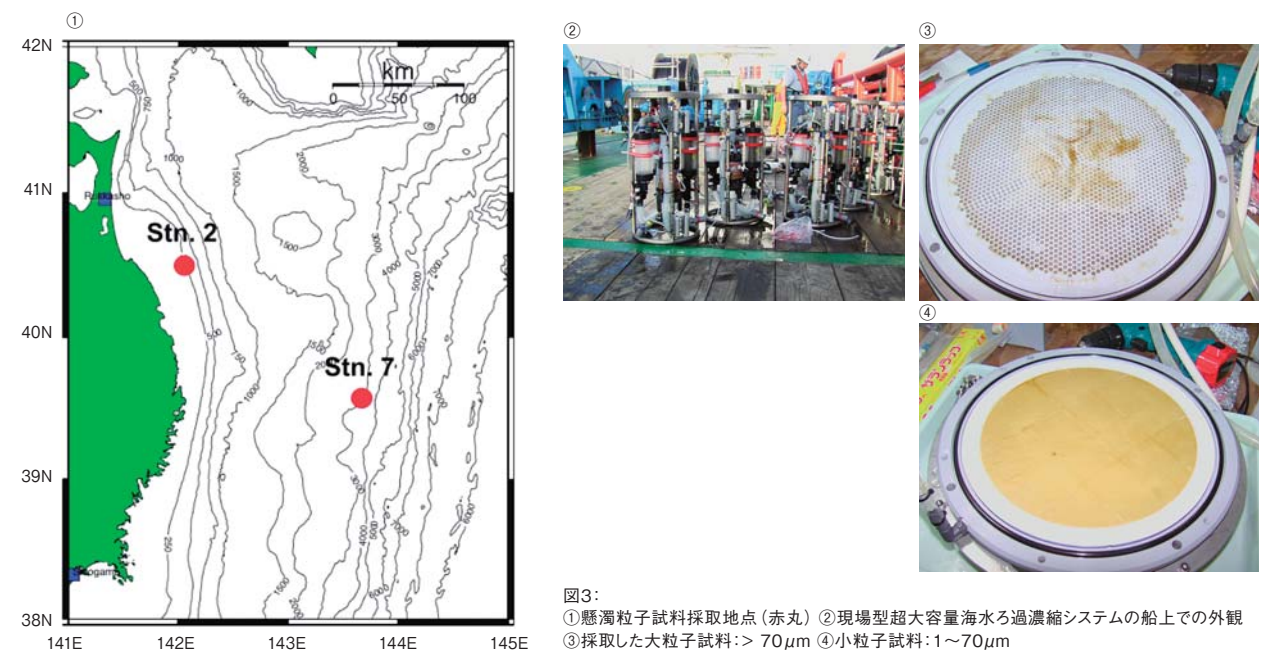


図3: ①懸濁粒子試料採取地点(赤丸) ②現場型大容量海水ろ過濃縮システムの船上での外観 ③採取した大粒子試料:> 70μm ④小粒子試料:1~70μm

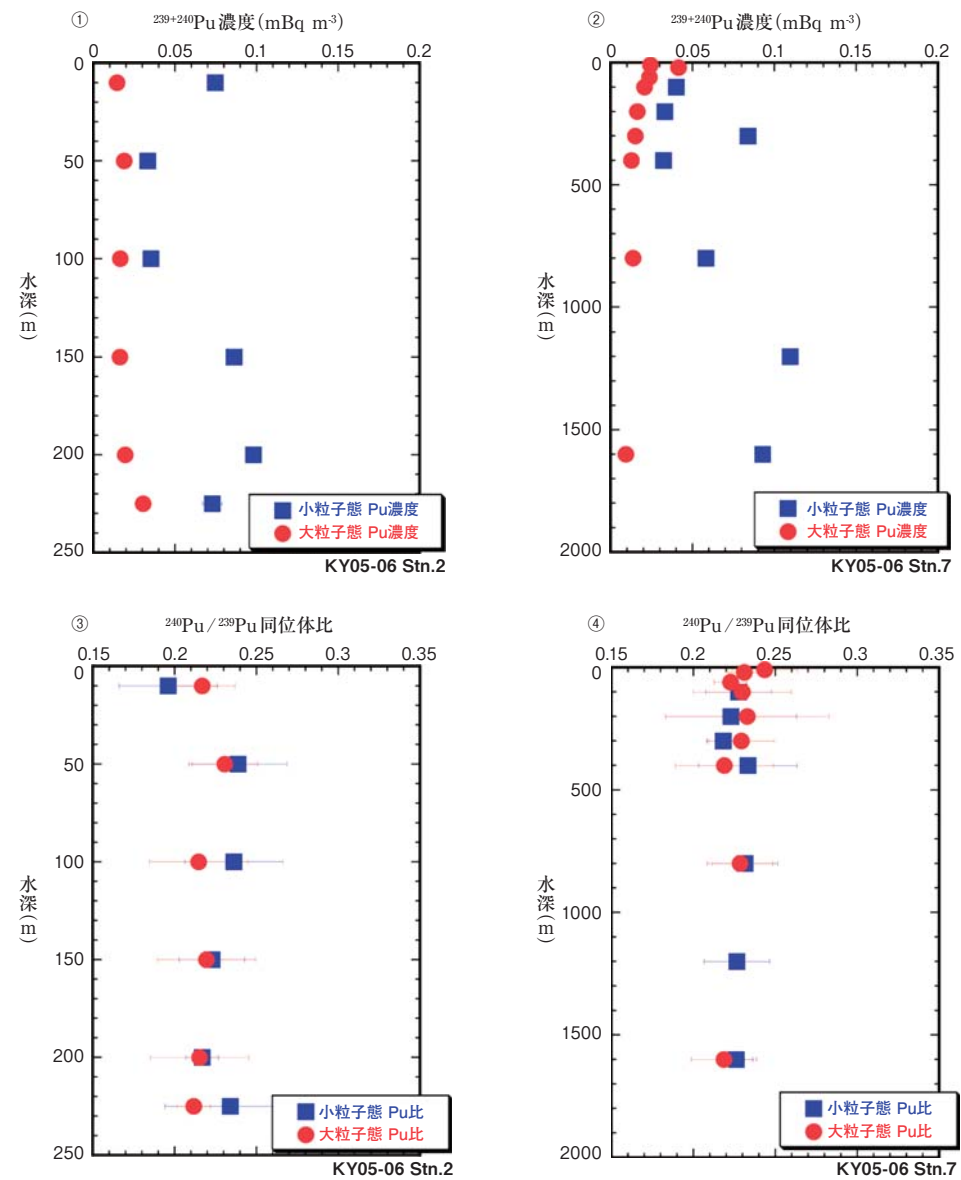


図4: ①沿岸域のStn.2における小粒子態(青)および大粒子態(赤)Pu濃度(mBq/m<sup>3</sup>)の鉛直分布 ②沖合域のStn.7における小粒子態(青)および大粒子態(赤)Pu濃度(mBq/m<sup>3</sup>)の鉛直分布 ③Stn.2における小粒子態(青)および大粒子態(赤)<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比の鉛直分布 ④Stn.7における小粒子態(青)および大粒子態(赤)<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比の鉛直分布

(Okubo et al.,2008)<sup>18</sup>)。Pu用の懸濁粒子試料は、現場型超大容量海水ろ過濃縮システムを用いて、サイズ別(大粒子:>70 $\mu$ m、小粒子:1~70 $\mu$ m)に採取した。

沿岸域のStn.2におけるPu濃度は、小粒子態で0.033~0.098 mBq/m<sup>3</sup>(平均:0.067 $\pm$ 0.020 mBq/m<sup>3</sup>)、大粒子態で0.016~0.030 mBq/m<sup>3</sup>(平均:0.019 $\pm$ 0.004 mBq/m<sup>3</sup>)であった(図4)。また、沖合のStn.7では、小粒子態で0.032~0.093 mBq/m<sup>3</sup>(平均:0.064 $\pm$ 0.022 mBq/m<sup>3</sup>)、大粒子態で0.009~0.042 mBq/m<sup>3</sup>(平均:0.020 $\pm$ 0.006 mBq/m<sup>3</sup>)であり、両測点間に有意の差はなく、小粒子態Puの方が、大粒子態に比べ高い濃度であった。この海域における海水中の全Pu濃度は、表層で約5 mBq/m<sup>3</sup>、水深500m~1000mで20~25 mBq/m<sup>3</sup>であることから(Shima et al.,2006)<sup>19</sup>)、粒子態Pu(小粒子態Pu+大粒子態Pu)の占める割合は、表層で約2%、深層では0.3~0.4%と小

さい。ポンプの吸引力が強すぎて粒子がろ紙の目を抜けているのかもしれないが、詳細は不明である。

<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比は、沿岸域および沖合域ともに、ほぼ一定の鉛直分布を示した(図4)。Stn.2では、小粒子態で0.196~0.239(平均:0.224 $\pm$ 0.012)、大粒子態で0.212~0.231(平均:0.218 $\pm$ 0.002)であった。また、Stn.7では、小粒子態で0.218~0.233(平均:0.227 $\pm$ 0.003)、大粒子態で0.219~0.244(平均:0.228 $\pm$ 0.005)であり、測点間およびサイズの違いによる有意の差はなかった。

小粒子態および大粒子態のPu濃度(比放射能、mBq/g)と懸濁粒子濃度の鉛直分布を図5に示す。沿岸域においては、小粒子態Pu(平均、2.08 $\pm$ 1.04 mBq/g)の方が大粒子態Pu(平均、1.34 $\pm$ 0.35 mBq/g)に比べ高い比放射能を示したが、沖合域においては逆に大粒子態Pu(平均、3.54 $\pm$ 0.76 mBq/g)が小粒子態Pu(平均、1.67 $\pm$ 0.92 mBq/g)

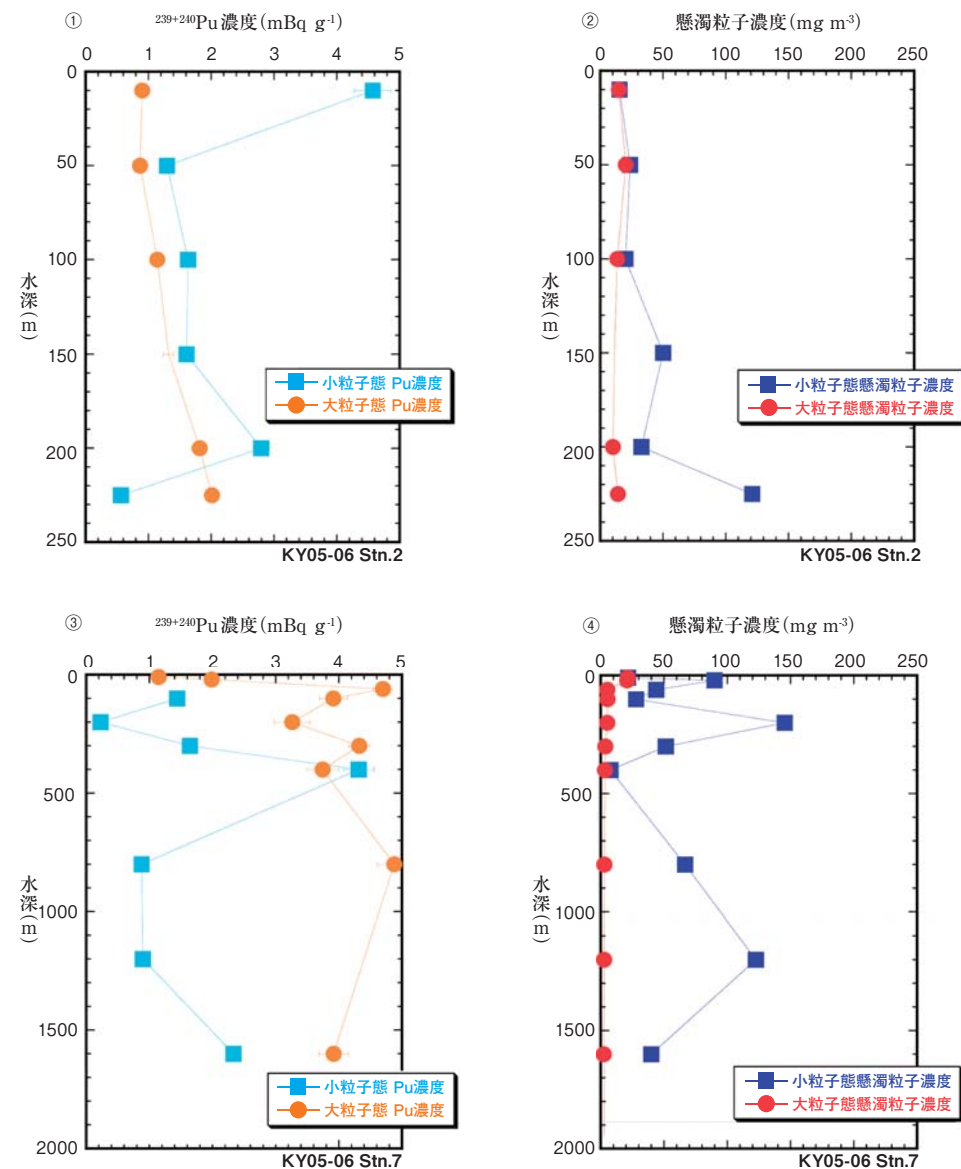


図5:  
①Stn.2における小粒子態(コバルトブルー)および大粒子態(オレンジ色)Pu濃度(比放射能:mBq/g)の鉛直分布  
②Stn.2における小粒子態(青)および大粒子態(赤)の懸濁粒子濃度の鉛直分布  
③Stn.7における小粒子態(コバルトブルー)および大粒子態(オレンジ色)Pu濃度(mBq/g)の鉛直分布  
④Stn.7における小粒子態(青)および大粒子態(赤)の懸濁粒子濃度の鉛直分布

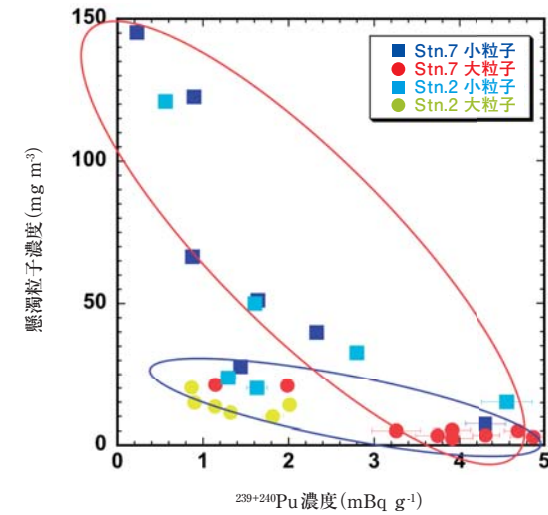


図6: 懸濁粒子濃度とPu濃度(mBq/g)の相関図

より高く、生物生産がより活発な沿岸域においてプランクトンの寄与により、大粒子態Puが希釈されている。さらに、懸濁粒子濃度とPu濃度には逆相関がみられ(図6)、小粒子態と大粒子態では、粒子の比表面積の違いにより、粒子によるPu濃度の希釈の割合が異なり、大粒子態の方がより顕著であることが分かった。

#### 4. 沈降粒子中の<sup>239+240</sup>Pu濃度と<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比

海洋におけるプルトニウムの移行メカニズムを解明するために、沈降粒子中のPu濃度と<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比を測定し、粒子による沈降除去過程を研究した。ここでは、南西諸島東方海域で行ったセジメントトラップ実験の結果を紹介する(Zheng and Yamada, 2006a)<sup>20</sup>)。セジメントトラップとは、ロート型の捕集容器を海中の一定水深に係留設置し、捕集瓶を取り付けたターンテーブルを任意の時間毎に回転し、その設定期間毎に海水中の沈降粒子を捕集する装置である(図7)。

沈降粒子中のPu濃度は、設置した水深および季節によ



図7:(上)セジメントトラップ(沈降粒子捕集装置)の外観  
(下)採取した沈降粒子試料

ても異なり(図8)、水深1373mで5.41 $\pm$ 0.17 mBq/g、水深1779mで3.38 $\pm$ 0.08 mBq/gの平均値であった。また、Puの粒子束は大きな季節変動がみられ、特に水深1779mで顕著であった。Puの平均粒子束は、667mで0.03 mBq/m<sup>2</sup>/day(図は示していない)、1373mで0.36 mBq/m<sup>2</sup>/day、1779mで0.62 mBq/m<sup>2</sup>/dayと水深が深くなるにつれて増加した。さらに、Pu粒子束と全粒子束との間に相関がみられた( $r^2=0.973$ )。これらのことからPuの沈降除去は、全粒子束に強く支配されていることが明らかになった。

沈降粒子中の<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比は、設置した水深および季節によらずほぼ一定の比を示し、水深1373mで0.226

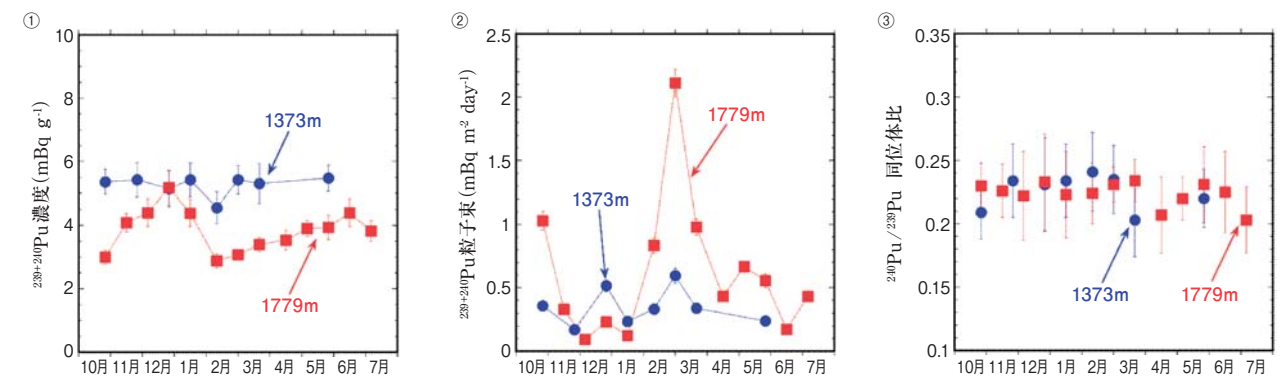


図8: ①南西諸島東方海域における沈降粒子中のPu濃度の時系列変動 ②Pu粒子束の時系列変動 ③<sup>240</sup>Pu/<sup>239</sup>Pu同位体比の時系列変動。  
青は水深1373 m、赤は水深1779 mを示す。



± 0.010、水深 1779m で 0.227 ± 0.007 の平均値であった。グローバルフォールアウトとビキニ核実験という 2 つの起源をもつ Pu が、水深や季節、全粒子束に関係なく、一様に沈降していることになる。

### 5. 海底堆積物中の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比

海底堆積物を調べることの利点は、その中に記録されている過去の情報を得ることができることである。そこで、東シナ海、日本海、オホーツク海、相模湾、西部北太平洋等の日本周辺海域から採取した海底堆積物柱状試料 30 本について、Pu 濃度と  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比の測定を行った (Zheng and Yamada, 2004<sup>21)</sup>, 2005<sup>22)</sup>, 2006b<sup>23)</sup>: Wang and Yamada, 2005<sup>24)</sup>)。一例として、東シナ海と沖縄トラフにおける平均  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比、堆積物柱中の全蓄積量およびビキニ核実験起源の Pu の割合 (%) を表 2 に示す。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比は、0.248 ~ 0.290 と高い値を示し、堆積物柱中の全蓄積量のデータからグローバルフォールアウトによる量以上の Pu が堆積していることが分かり、ビキニ核実験起源が 46% ~ 67% 含まれていた<sup>24)</sup>。日本周辺海域全体の結果から、海域により  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度と  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比が異なり、東シナ海や相模湾では堆積しているプルトニウムのうち、約 50% がビキニ核実験起源であった。また、日本海で約 20%、オホーツク海では約 10% であった。西部北太平洋 (釧路沖) は、グローバルフォールアウト起源のみであった。相模湾から採取した海底堆積物では、1950 年代に堆積したところに高い  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比がみられ、ビキニ核実験の汚染の跡が記録されていることを特定し、ビキニ環礁付近から北赤道海流・黒潮によってプルトニウムが運ばれ、比較的速やかに堆積したことを明らかにした<sup>21)</sup>。日本周辺海域におけるプルトニウムの汚染源推定にプルトニウム同位体比が

表2: 東シナ海と沖縄トラフの堆積物における平均  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  比、全蓄積量とビキニ核実験起源の割合 (%)<sup>24)</sup>

観測点	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ (同位体比)	$^{239+240}\text{Pu}$ 蓄積量 (Bq/m <sup>2</sup> )	ビキニ割合 (%)
K95-09 G2	0.262±0.012	32.5±1.4	53±4
K93-05 PN3	0.290±0.025	47.2±1.2	67±6
K92-09 SST1	0.255±0.017	47.0±1.2	49±6
K92-09 PN5	0.268±0.004	>101±2	57±1
K92-09 PN8	0.262±0.006	60.9±1.7	54±2
K92-09 PN12	0.248±0.003	>81.5±1.0	46±1

有効であること、海洋におけるビキニ起源のプルトニウムの移行に北赤道海流・黒潮・対馬海流などの海流が重要であることが明らかになった。

### 6. おわりに

日本周辺海域における海水・懸濁粒子・沈降粒子および海底堆積物中の  $^{239+240}\text{Pu}$  濃度と同位体比の分布を紹介したが、懸濁粒子と沈降粒子中の  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  同位体比のデータは世界で初めてのものである。海洋における Pu のダイナミクスを定量的に示すために、外洋のデータを含め、今後さらにデータの蓄積が必要である。

### 参考文献

- 1) Krey, P. W., Hardy, E. P., Pachucki, C., Rourke, F., Coluzza, J., Benson, W. K.: Mass isotopic composition of global fall-out plutonium in soil. In *Transuranium nuclides in the Environment*, IAEA-SM-199/39, IAEA, Vienna, pp.671-678, 1976.
- 2) Kelley, J. M., Bond, L. A., Beasley, T. M.: Global distribution of Pu isotopes and  $^{237}\text{Np}$ . *Sci. Total Environ.* 237/238:483-500, 1999.
- 3) Komura, K., Sakanoue, M., Yamamoto, M.: Determination of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  ratio in environmental samples based on the measurement of Lx/  $\alpha$  -ray activity ratio. *Health Phys.* 46:1213-1219, 1984.
- 4) Muramatsu, Y., Hamilton, T., Uchida, S., Tagami, K., Yoshida, S.: Measurement of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  isotopic ratios in soils from the Marshall Islands using ICP-MS. *Sci. Total Environ.* 278:151-159, 2001.
- 5) Chiappini, R., Pointurier, F., Millies-Lacroix, J. C., Lepetit, G., Hemet, P.:  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  isotopic ratios and  $^{239+240}\text{Pu}$  total measurements in surface and deep waters around Mururoa and Fangataufa atolls compared with Rangiroa atoll (French Polynesia). *Sci. Total Environ.* 237/238:269-276, 1999.
- 6) Yamamoto, M., Hoshi, M., Takada, J., Tsukatani, T., Oikawa, S., Yoshikawa, I., Takatsuji, T., Sekerbaev, A. K., Gusev, B. I.: Some aspects of plutonium in and around the former Soviet Union's Semipalatinsk nuclear test site. In *Radioactivity in the Environment, vol. 1, Plutonium in the Environment*. (Ed., Kudo, A.), Elsevier, Amsterdam, pp. 375-399, 2001.

- 7) Hardy, E. P.: Plutonium in soil northeast of the Nevada test site. In HASL-306, pp. 1.51-1.85, 1976.
- 8) Kershaw, P. J., Sampson, K. E., McCarthy, W., Scott, R. D.: The measurement of the isotopic composition of plutonium in an Irish Sea sediment by mass spectrometry. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 198:113-124, 1995.
- 9) Oughton, D. H., Skipperud, L., Salbu, B., Fifield, L. K., Cresswell, R. C., Day, J. P.: Determination of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  isotope ratios in Kara Sea and Novaya Zemlya sediments using accelerator mass spectrometry. In *Marine Pollution*, IAEA-SM-354/59, IAEA, Vienna, pp.123-128, 1999.
- 10) Oughton, D. H., Day, J. P., Fifield, L. K.: Plutonium measurement using accelerator mass spectrometry: methodology and applications. In *Radioactivity in the Environment, vol. 1, Plutonium in the Environment*. (Ed., Kudo, A.), Elsevier, Amsterdam, pp.47-62, 2001.
- 11) Muramatsu, Y., Ruhm, W., Yoshida, S., Tagami, K., Ushida, S., Wirth, E.: Concentrations of  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}$  and their isotopic ratios determined by ICP-MS in soils collected from the Chernobyl 30-km zone. *Environ. Sci. Tech.* 34:2913-2917, 2000.
- 12) Muramatsu, Y., Yoshida, S., Tanaka, A.: Determination of Pu concentration and its isotope ratio in Japanese soils by HR-ICP-MS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 255:477-480, 2003.
- 13) Saito-Kokubu, Y.: Identification of plutonium released from Nagasaki atomic bomb -Approach of measurement of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  isotopic ratio by HR-ICP-MS. *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 9, suppl. p.24, 2008 (in Japanese).
- 14) Yamada, M., Zheng, J., Wang, Z. L.:  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in the surface waters of the western North Pacific Ocean, eastern Indian Ocean and their adjacent seas. *Sci. Total Environ.* 366(1):242-252, 2006.
- 15) Yamada, M., Zheng, J.: Determination of  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratio in coastal surface seawaters from the western North Pacific Ocean and Japan Sea. *Appl. Radiat. Isot.* 66(1):103-107, 2008.
- 16) Yamada, M., Zheng, J., Wang, Z. L.:  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in seawater from Sagami Bay, western Northwest Pacific Ocean: sources and scavenging. *J. Environ. Radioact.* 98(3):274-284, 2007.
- 17) Yamada, M., Nagaya, Y.: Vertical profiles, inventories, and activity ratios of  $^{239+240}\text{Pu}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in sediments from Sagami Bay, western Northwest Pacific margin. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 246(2):369-378, 2000.
- 18) Okubo, A., Zheng, J., Yamada, M., Aono, T., Nakanishi, T., Kaeriyama, H., Kusakabe, M.: Determination of plutonium isotopes in marine particle samples collected by the large volume in situ filtration and concentration system. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 275(2):291-297, 2008.
- 19) Shima, S., Gasa, S., Iseda, K., Nakayama, T., Kawamura, H.: Distribution of anthropogenic radionuclides in the water column off Rokkasho, Japan. In *Radioactivity in the Environment, vol. 8, Radionuclides in the Environment*. (Eds., Povinec, P. P. and Sanchez-Cabeza, J. A.), Elsevier Ltd, Oxford, pp.83-95, 2006.
- 20) Zheng, J., Yamada, M.: Plutonium isotopes in settling particles: Transport and scavenging of Pu in the western Northwest Pacific. *Environ. Sci. Tech.* 40(13):4103-4108, 2006a.
- 21) Zheng, J., Yamada, M.: Sediment core record of global fallout and Bikini close-in fallout Pu in Sagami Bay, western Northwest Pacific margin. *Environ. Sci. Tech.* 38(13):3498-3504, 2004.
- 22) Zheng, J., Yamada, M.: Vertical distributions of  $^{239+240}\text{Pu}$  activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in sediment cores: implications for the sources of Pu in the Japan Sea. *Sci. Total Environ.* 340(1-3):199-211, 2005.
- 23) Zheng, J., Yamada, M.: Determination of Pu isotopes in sediment cores in the Sea of Okhotsk and the NW Pacific by sector field ICP-MS. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 267(1):73-83, 2006b.
- 24) Wang, Z.L., Yamada, M.: Plutonium activities and  $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$  atom ratios in sediment cores from the East China Sea and Okinawa Trough: Sources and inventories. *Earth Planet. Sci. Lett.* 233(3-4):441-453, 2005.

## (6)日本周辺海域における人工放射性核種の濃度分布と経年変化について

(財)海洋生物環境研究所 中央研究所 海洋生物グループ 主査研究員  
 稲富 直彦  
 (財)海洋生物環境研究所 鈴木 千吉、御園生 淳、原 猛也、城戸 勝利  
 (財)日本分析センター 太田 博、小島 健治



稲富 直彦 (Naohiko Inatomi)

### 1.はじめに

今回のワークショップでは日本沿岸から外洋域における放射性核種の挙動を説明するモデル構築を念頭に置き、放射線医学総合研究所(放医研)が行ってきた観測結果をどのように活用すべきか、また今後の観測へ反映させてゆくか等の議論がなされた。本報では(財)海洋生物環境研究所(海生研)がこれまで実施してきた海水・海底土の観測結果について紹介するとともに、モデルの構築へどのような示唆をもつか考察する。

### 2.原子力施設沖合調査の概要

海生研では1984年より、全国の原子力施設立地県沖合に設けた15個所の調査海域(図1)にて、毎年春に(青森海域では秋にも)海面下1mと海底直上(10~20m)の海水および、海底土を採取している(以後、モニタリング調査と呼ぶ)。モニタリングの対象核種は過去の核実験で環境中に導入され、現在も検出されるレベルで存在する<sup>90</sup>Sr(半減期28.7年)、<sup>137</sup>Cs(半減期30.0年)、<sup>239+240</sup>Pu(半減期<sup>239</sup>Pu、24.1千年、<sup>240</sup>Pu、6.5千年)等(これらは原子炉内で

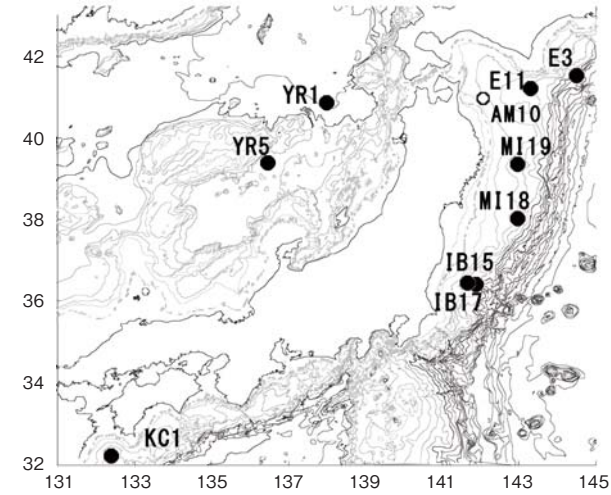


図2: 支援調査測点

も生成される)であり、物理的半減期が比較的長く、環境影響が長く継続するとされる物質である。また、モニタリング調査結果を解釈する上で必要な補完データを得るため、後述する海流の影響等を考慮し対照測点を設け(図2)、鉛直多層採水等を実施している(以下、支援調査とよぶ)。

採取試料は日本分析センターにて、それぞれ文部科学省放射能測定法シリーズに基づいて分析されている。モニタリング調査では環境中の濃度推移を把握することを基本目的とし、分析供試量、計測方法・時間等を選定している(表1参照)。また、支援調査では、より濃度レベルの低い深部の試料を対象に供試量、計測時間を増加するなどの措置をとり、検出目標レベルをさらに下げる試みを行っている。

### 3.海流によって異なる<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr濃度

核燃料サイクル施設の沖合い(図1\_No.02:青森海域)では、水温・塩分の変動とともに<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr濃度が変動する現象が認められている。当該海域には黒潮系の海流である津軽暖流(高温、高塩分)と、北方に起源をもつ親潮(低温、低塩分)が影響を及ぼすことが知られており、各海流の影響を評価するため津軽海域、と襟裳海域を設定し、それぞれに支援調査海域を設けている(図1)。

図3では津軽、襟裳各海域内と、青森海域の測点10(図

表1: 分析対象核種の分析方法および検出目標レベル

試料名	分析方法				検出目標レベル				
	核種名	供試量	前処理	放射線計測(計測時間)	<sup>137</sup> Cs	<sup>90</sup> Sr	<sup>239+240</sup> Pu	<sup>3</sup> H	単位
海底土	<sup>90</sup> Sr	乾燥土約150g	乾燥後、化学分離	β線計測(3,600秒)	-	0.2	-	-	Bq/kg 乾燥土
	<sup>239+240</sup> Pu	乾燥土約50g	乾燥後、化学分離	α線スペクトロメトリー(80,000秒)	-	-	0.03	-	
	γ線放出核種	乾燥土約100g	乾燥	γ線スペクトロメトリー(70,000秒)	0.7	-	-	-	
海水	<sup>3</sup> H	0.6L	電解濃縮	液体シンチレーション計測(30,000秒)	-	-	-	0.1	Bq/L
	<sup>90</sup> Sr	50L	化学分離	β線計測(3,600~7,200秒)	-	0.4	-	-	mBq/L
	<sup>239+240</sup> Pu	100L	化学分離	α線スペクトロメトリー(160,000秒)	-	-	0.007	-	
	γ線放出核種	50L	化学分離	γ線スペクトロメトリー(70,000秒)	0.6	-	-	-	

2参照)の鉛直多層から採取した海水(深度500m以浅を上層、以深を下層と呼ぶ)について、塩分と<sup>90</sup>Sr濃度の関係を示した。また、比較のため他のモニタリング海域(以下、14海域とよぶ)の表層水(ここでは100m以浅を表層としている)の値を併記した。上層水以浅に着目すると、<sup>90</sup>Srの濃度および塩分は津軽海域と、14周辺海域表層水では同程度であるが、襟裳海域では何れもそれより低かった。襟裳海域上層水では、塩分の低い親潮の影響が強く及んでおり、同時に<sup>90</sup>Sr(<sup>137</sup>Csでも同様)の濃度が低い。また、津軽海域で採取した試料の一部に塩分と<sup>90</sup>Sr濃度が同時に低くなる結果を得ており(図中↓)、これは親潮の影響が津軽海域にも及んだ例と解釈される。従って、津軽、襟裳両海域に挟まれた青森海域の上層では、

両海流の影響度合いにより、塩分と<sup>90</sup>Sr濃度が変動することがあり、図3中に併記した青森海域の測点AM10(位置は図2)の観測例では、上層水の配置が5月に親潮寄り、9月に津軽暖流寄りに変化しており、各海流の影響の状況を示唆している。

### 4.表層水の<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr濃度の経年変動

図4、5に1984年から2004年に至るまで実施されたモニタリング調査結果から日本周辺海域および青森海域表層水(100m以浅)の<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr濃度の経年変化を示した。図中、1986年にチェルノブイリ事故にともなう<sup>137</sup>Cs濃度の一時的な跳躍が認められるが、これを除けば、<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Srいずれの濃度も指数関数的な下降傾向が認められる。指数関数近似から推定した半減期(以下、見かけの半減期とよぶ)は、<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Srともに16~17年であり、何れも物理的崩壊にともなう半減期より短く、実際の海洋中では、拡散や粒状物への吸着など、物理的崩壊以外の除去効果が付加されることを反映したものと考えられている。

### 5.<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比

#### 日本周辺表層水(100m以浅)中の<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比

図6は4節と同様、1984年から2004年に至るまで実施されたモニタリング調査結果から日本周辺海域(14海域および青森海域表層水(100m以浅))のデータを元に求めた<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Srの関係を示している。両者の間には明らかに直線性が認められ、その勾配は約1.4となっている。この結果は、日本周辺海域の100m以浅における<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比は調査時期、場所によらず概ね一定(約1.4)であることを示

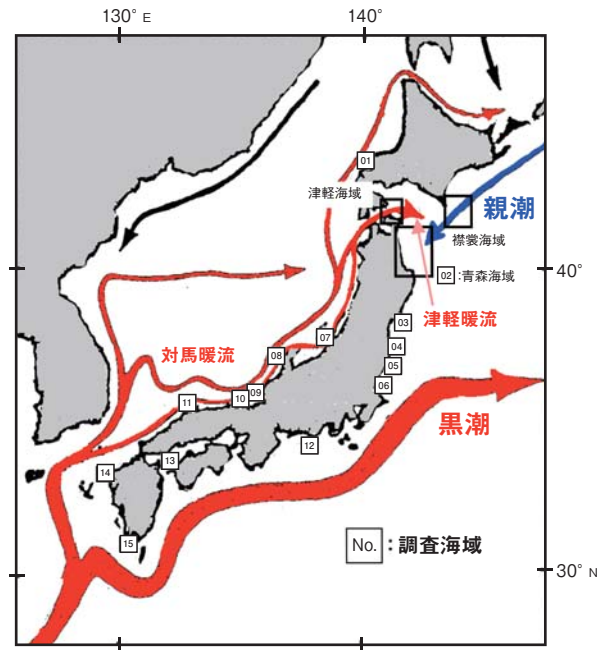


図1: 日本周辺海域の海流と調査海域

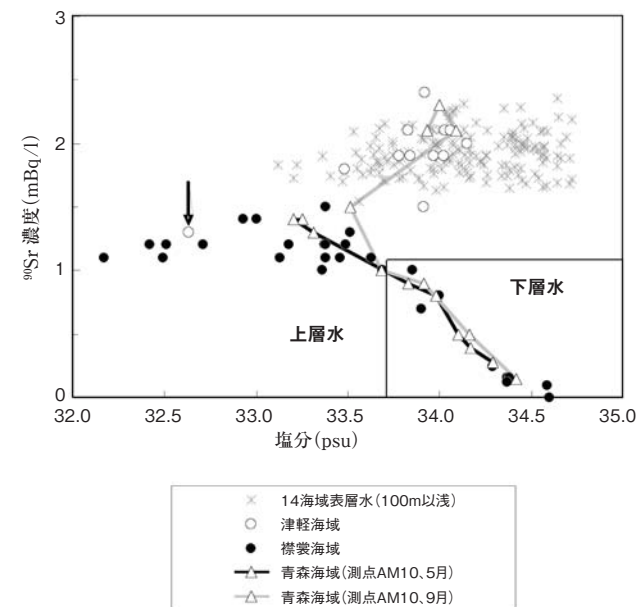


図3: 塩分と<sup>90</sup>Sr濃度の関係

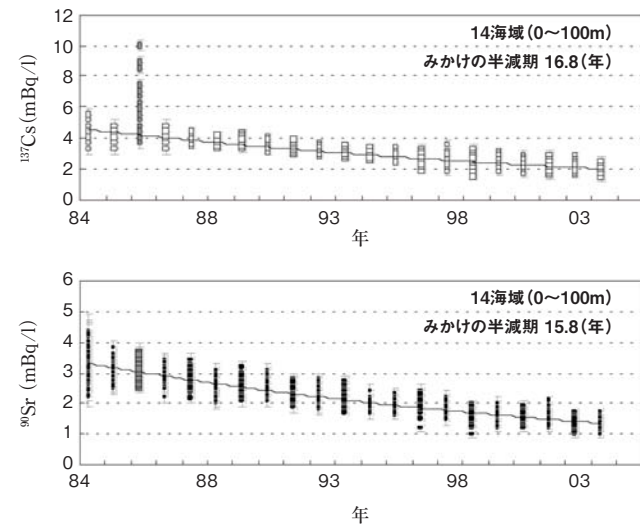


図4: 日本周辺海域表層水中の<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr濃度の経年変化(1984~2004年)

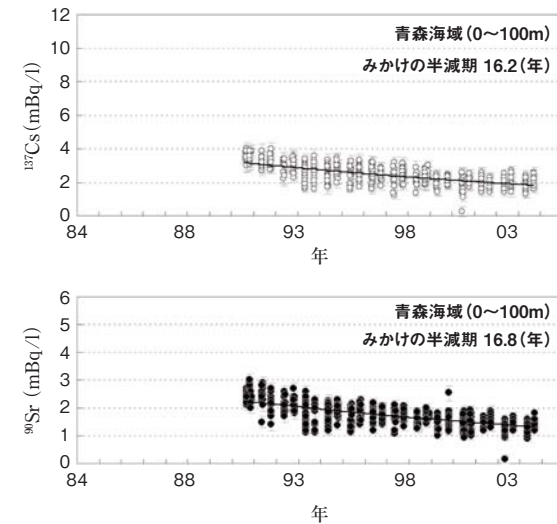


図5: 青森海域表層水中の<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr濃度の経年変化(1991~2004年)

している。また、チェルノブイリ事故の起った1986年のデータは直線関係から大きく逸脱していることが確認できる。

以上のように<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比は広域ではほぼ一定の値(1.4)である事などから、現在日本周辺で検出される<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Srの起源は同一(大気圏核実験由来)であると解釈される。さらに、日本周辺海域の表層水中の<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比は過去より今に至るまで概ね一定の値を維持しつつ、両核種は4節の結果が示す様に、同様のスピードで減衰している状況などから、一般に、表層水中の両核種はグローバルフォールアウトにて海面に到達して以降、ほぼ同様に挙動していると解釈されている。

一方、「<sup>137</sup>Csと<sup>90</sup>Srの挙動はほぼ同様」に矛盾する結果も得られている。参考に、青森沖において、1991年~

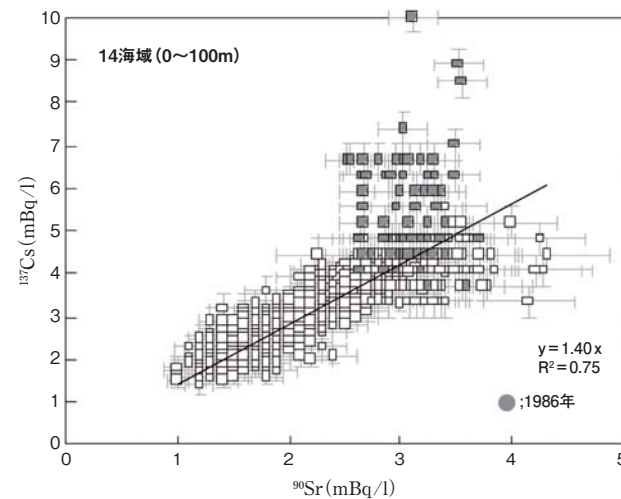


図6: 表層海水中の<sup>137</sup>Csと<sup>90</sup>Sr濃度の関係

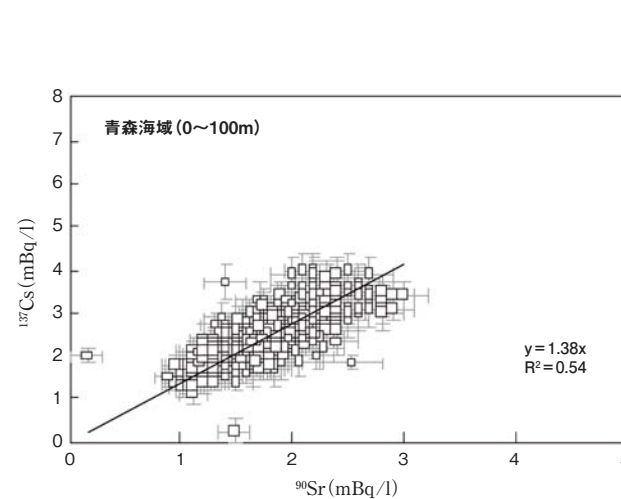


図7: 海底土中の<sup>137</sup>Csと<sup>90</sup>Sr濃度の関係(青森海域、1991~2004年)

2004年までに施されたモニタリング調査結果から、海底土中の<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Srの関係を図7に示した。青森沖の海底土中では<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比は約5となっており、表層水中にくらべ、<sup>90</sup>Srの存在割合が少ないことを示している。このような傾向は、日本周辺の他海域でも多く認められている。海底は海水中の放射性核種の到達先の一つと考えられているが、<sup>90</sup>Srは海底土中にあまり到達しておらず、どこか途中で滞留している可能性を示唆する結果と言える。

#### 深度500m以深の<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比

表層から減衰した<sup>90</sup>Srのもう一つの行き先として、下層水に着目し、支援測点(図2)において鉛直多層から採水をおこない、深部の<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比を明らかにする試みを行っている。深度500m以深では試料の供試量をモニタリ

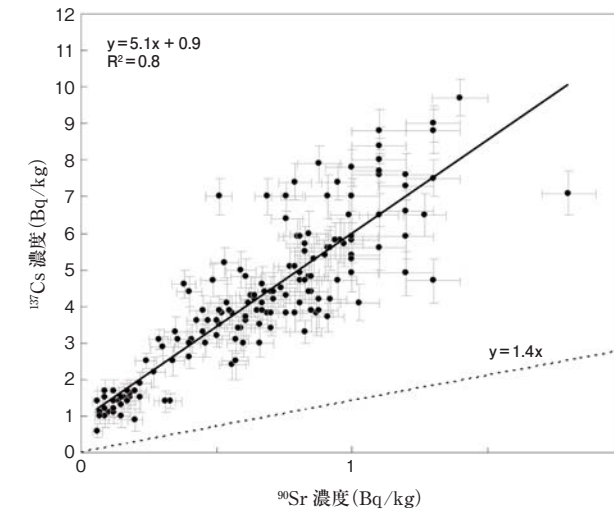


図7: 海底土中の<sup>137</sup>Csと<sup>90</sup>Sr濃度の関係(青森海域、1991~2004年)

ング調査の2倍に増量し、検出器による検出時間を可能な限り延長するなどにより、<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr分析精度を向上させている。

図8は支援測点における、表層から海底直上に至るまでの<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比の鉛直分布を示している。青森沖~茨城沖、および四国沖の太平洋岸に配置した測点の深度1000m以深では、<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比が1以下になっており、一方、日本海に配置した測点では太平洋岸配置測点に認められた<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比の減少は明確では無いことがわかる。

この結果から、移行のメカニズムは明らかではないが、太平洋岸の深度1000m以深では、<sup>90</sup>Srが<sup>137</sup>Csよりも多く存在している可能性が示唆されている。

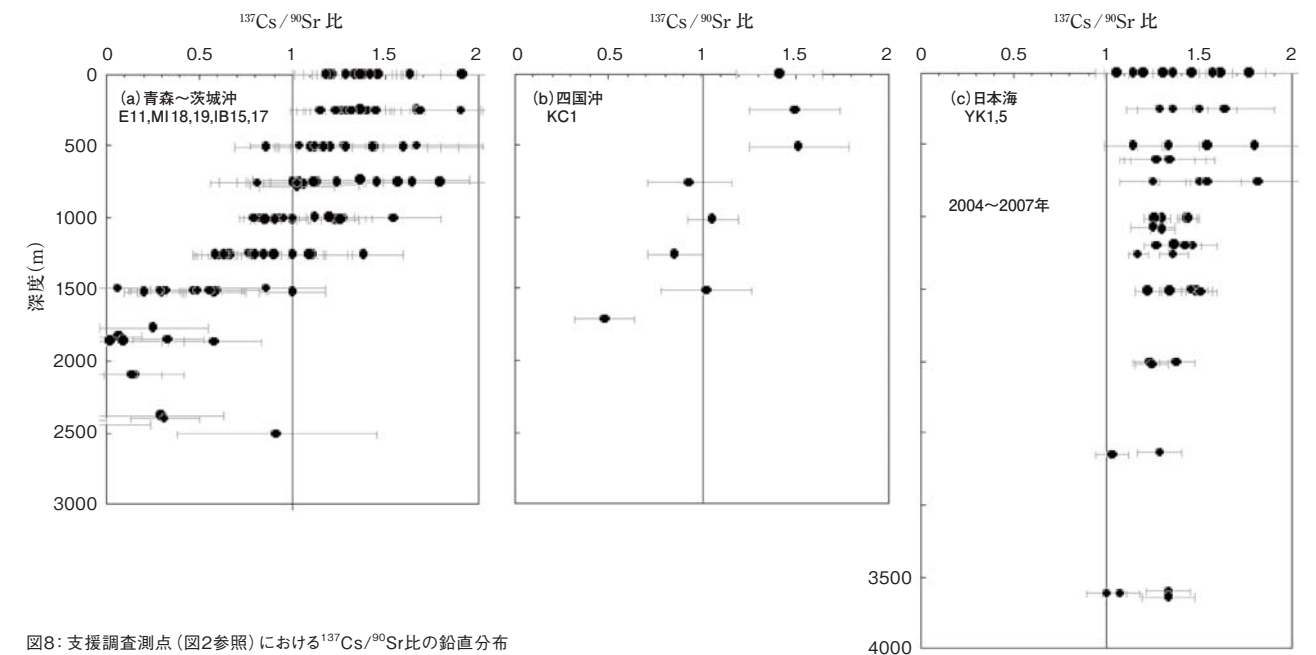


図8: 支援調査測点(図2参照)における<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比の鉛直分布

## 6. <sup>239+240</sup>Pu

<sup>239+240</sup>Puの鉛直分布は<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Csと大きく異なっており、表層近傍では濃度が低く、亜表層に濃度極大層(以下、Pu極大層と呼ぶ)が存在する栄養塩類型の分布を示している。これは、海洋中での移行プロセスにおいて<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Csに比べ生物起源粒子との相互作用(取り込み、吸着および粒子分解に伴う溶解)による鉛直輸送効果が大きいことが主因と考えられる。

以下、1994年以降、襟裳海域から開始された鉛直分布調査結果から、<sup>239+240</sup>Pu濃度分布と経年変化を紹介する。

### <sup>239+240</sup>Pu濃度の鉛直分布と経年変動

図9に支援測点(図2)にて観測された<sup>239+240</sup>Pu濃度の鉛直分布を示した。何れの海域も<sup>239+240</sup>Pu独特の鉛直分布が認められ、Pu極大層は深度500~1000mに存在している。茨城海域では深度500m以浅に時折突出した値(Puジャンプと呼ぶ)が現れる場合もある。

襟裳海域では、1994年から継続的に調査が行われており、2007年現在14年間の経過が蓄積されている。図10に襟裳海域におけるPu極大層の深度と濃度を時系列に示した。やや変動は認められるものの、観測を開始した1994年以降、Pu極大層は一定の深度、濃度が維持されている状況が認められる。

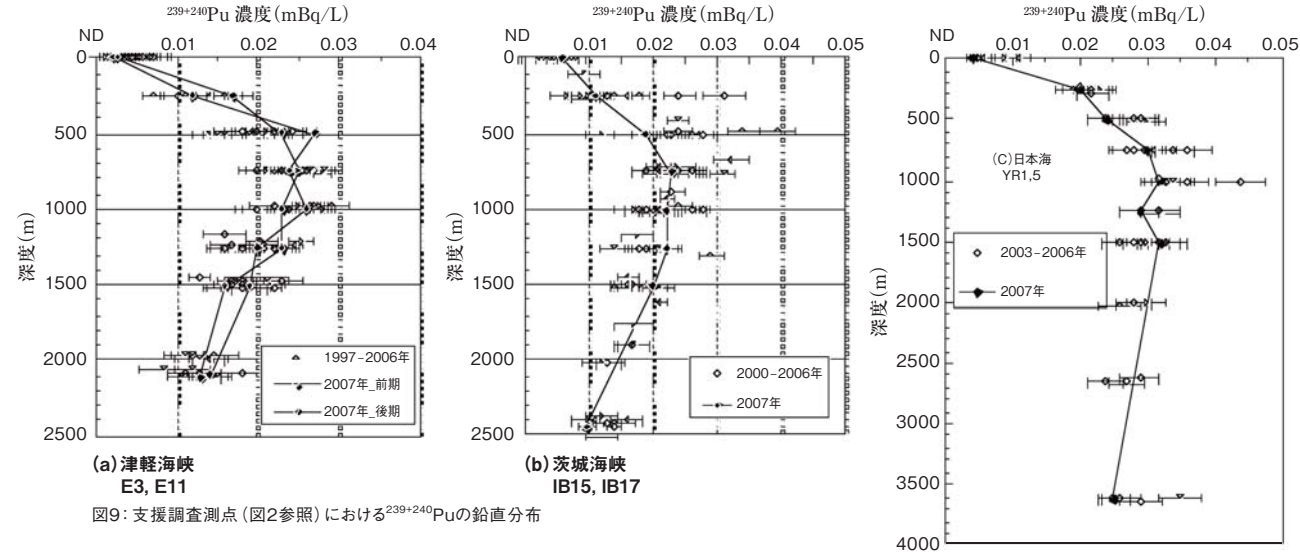


図9: 支援調査測点 (図2参照) における<sup>239+240</sup>Puの鉛直分布

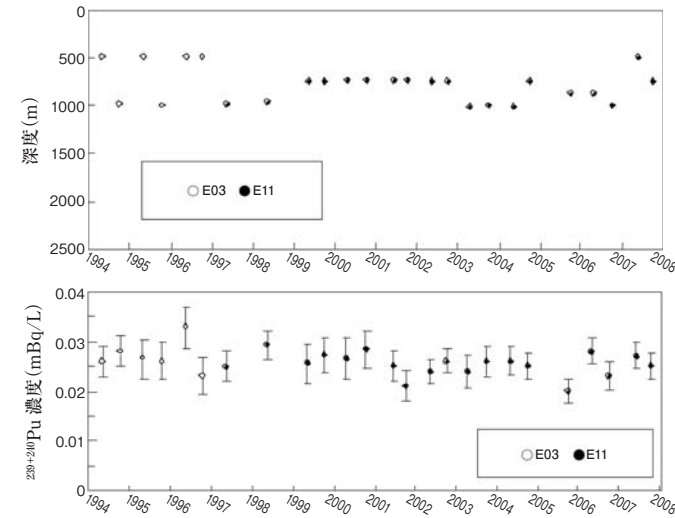


図10: 襟裳海域 (測点E3,11) における<sup>239+240</sup>Pu極大層の濃度と深度の経年変化

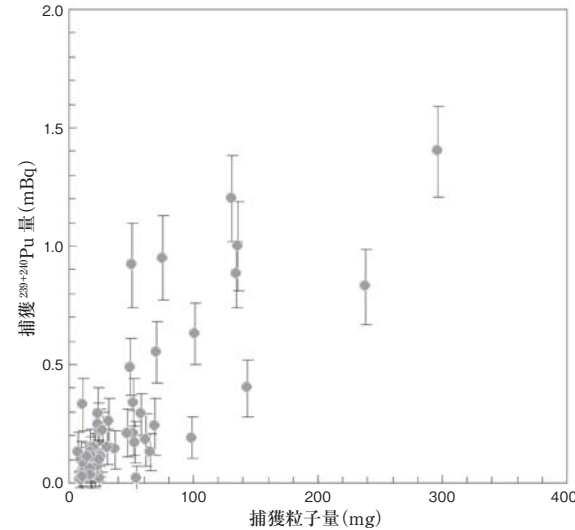


図11: SSと<sup>239+240</sup>Pu濃度の関係

懸濁粒子中の<sup>239+240</sup>Pu

海水とは独立な挙動をされると考えられている懸濁粒子中の<sup>239+240</sup>Pu量を明らかにするため、青森沖海域および襟裳海域において、海底直上またはいくつかの中間層において、現場ろ過装置を約1時間係留し、ミリポア社製、φ142mm、孔径0.45μmのフィルタにより、100L~1tの海水をろ過し、懸濁物質を捕集し、その<sup>239+240</sup>Pu濃度の分析を行っている。

図11は捕獲されたSS量とSS中の<sup>239+240</sup>Pu濃度の関係を示している。かなりばらつきは認められるものの、捕獲粒子量に対し、概ね正の相関が認められ、SS中に一定量の<sup>239+240</sup>Puが存在していることを示している。

図12にSS中に捕獲された<sup>239+240</sup>Pu濃度を海水全量に対する割合で表し、その鉛直分布を示した。海底近傍では数%~数十%の広範な値を示しているが、これには海底

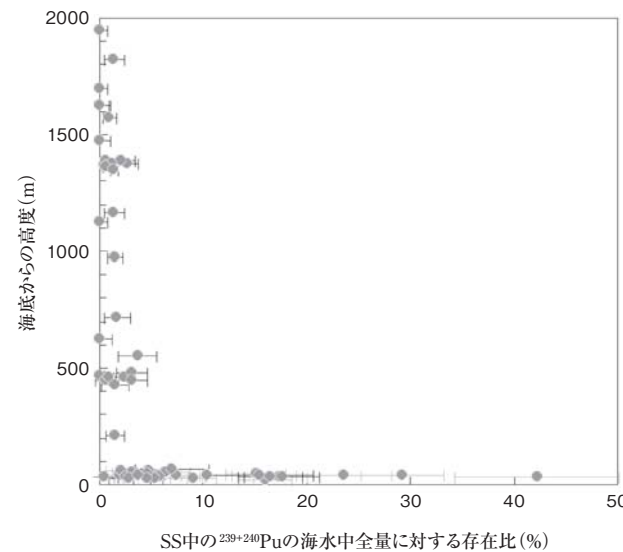


図12: SS中<sup>239+240</sup>Puの鉛直分布

土の影響が否定出来ない。それ以外の中間層では、検出下限値~5%以下の値であり、海水中の<sup>239+240</sup>Puは、95%以上が溶存状(0.45μmのフィルタを通過する)であることを示している。

7.おわりに

今回のワークショップでは、放射性核種の移行を説明するモデルの設計段階において、再現しようとしている現象の時間、空間スケールを明確にしておく必要性が指摘された。放射性核種の移行に係わる様々な因子の影響は、スケールによって異なってくることを理由の一つに上げることができるであろう。

仮に、日本周辺海域における人工放射性核種の濃度変動を予測する場合、上で紹介して来た海生研の調査結果から、どのような移行機構が考えられるか、大胆に推察してみることにする。

<sup>137</sup>Cs、<sup>90</sup>Sr

日本周辺海域の表層100m以浅の濃度予測では、両核種の環境中の濃度レベルは全国的にほぼ一様(黒潮系の濃度レベル)と見なしてよいであろう。ただし、親潮の影響域では3割程度低い値である。

両核種の海水中の挙動は、表層での減衰傾向が同様であることから、表層では同一とみなせる。しかし、<sup>137</sup>Csと異なり<sup>90</sup>Srの多くは海底に到達せず中深層に滞留している可能性があり、両核種の鉛直輸送における粒子の関与に差異があると推察される。日本海と太平洋岸における<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比の鉛直分布の違いは、太平洋岸と日本海それぞれの下層水の滞留時間の差に起因しており、日本海より滞留時間の長い太平洋岸では、粒子の分解負荷の効果が多く蓄積された結果を反映していると推察される。

<sup>239+240</sup>Pu

海水中の<sup>239+240</sup>Puは、95%以上が溶存と見なせるが、1~5%程度SS中に存在している可能性がある。これらが、せつせと<sup>239+240</sup>Puを海底に運んでいるとすれば、Pu極大層はもっと早く、濃度も深度も下降すると推察されるが、少なくとも襟裳海域での14年間の推移は安定している様に見える。これは、<sup>239+240</sup>Puと粒子の間の取り込みと放出のプロセスは、表層~亜表層においては活発に行われているが、亜表層以深では、表層よりもはるかに緩慢で、粒子の沈降速度も非常に遅いことに因ると解釈される。

8. 今後

以上の解釈について、現状利用されているモデルとの整合性を考えると、恐らく、(調査結果とモデルの計算を一致させるために) スキャベンジング効果(鉛直輸送効果)のパラメータに調節が必要であり、その根拠を別途補完する必要があると思われる。

スキャベンジング効果の主役は、海水中の生物起源の粒状物質であり、これと放射性核種の係わりと、沈降速度、分解速度等の根拠となる情報が望まれる。今回のワークショップでは、放医研にて正に、この部分を補完する研究を展開しており、現場における詳細なプランクトン組成の調査と種類毎の安定元素分析、パワフルな現場濾過装置を用いた粒子サイズ毎の分離捕集と複数の核種の分析、また、一部のプランクトンにつてRIを用いた蓄積実験、等多くの成果を蓄積していることが紹介された。今後さらに解析が進み、放射性核種の鉛直輸送に係わる粒状物質の役割解明と、その応用へとつながる進展が期待される。また、日本海にて同様の調査が行われ、我々が観てきたような、太平洋岸と日本海の違いを説明するための布石を得られればと考える。

参考文献

- 1) 稲富直彦: 青森県沖合太平洋海域における水系と放射性核種(<sup>137</sup>Cs,<sup>90</sup>Sr)濃度について. 海と空 73(4):131-142, 1997.
- 2) 稲富直彦, 城戸勝利: 道南~常磐沖海域における人工放射性核種濃度(<sup>90</sup>Sr,<sup>137</sup>Cs,<sup>239+240</sup>Pu)分布と挙動について. 月刊海洋 号外 43:73-81, 2006.
- 3) 稲富直彦: 日本沿岸における海水中的人工放射性核種(<sup>137</sup>Cs,<sup>90</sup>Sr)濃度について. 電気評論 87(8):46-47, 2002.
- 4) 稲富直彦ほか: 日本周辺海域、深度500m以深の<sup>137</sup>Cs/<sup>90</sup>Sr比について3. 第50回環境放射能調査研究成果論文抄録集 75-76, 2008.
- 5) 稲富直彦ほか: 日本周辺海域における<sup>239+240</sup>Pu濃度の鉛直分布. 第50回環境放射能調査研究成果論文抄録集, 77-78, 2008.
- 6) 広瀬勝巳: 海洋におけるプルトニウム. 月刊海洋 号外 25:169-174, 2001.
- 7) 山田正俊: 世界の海を巡る放射性核種. 放射線科学 51(6):36-44, 2008.
- 8) 日下部正志ほか: 海の放射性核種: 溶存、粒子、プランクトン. 放射線科学 51(6):45-51, 2008.

## (7)「青森県周辺における放射性核種の挙動に影響を与える海況について」

—海洋観測結果とモデルシミュレーション—

(財)日本海洋科学振興財団  
むつ海洋研究所 海洋研究部長  
島 茂樹



島 茂樹 (Shigeaki Shima)

### 1. はじめに

青森県の太平洋側に位置する下北半島では大型再処理施設が本格操業を迎える予定であり、僅かではあるが放射性核種を含む廃液が沿岸海域へ定期的放出される。しかし、放出口の周辺海域は外洋に面した開放性の沿岸海域であり、さらに沖合では、亜熱帯循環系に属する黒潮を起源とし奄美諸島付近でそれから分岐して日本海に流れ込んだあとに津軽海峡から太平洋に流出する津軽暖流、北海道東沿岸に沿って流入する亜寒帯循環系に属する親潮、本州の太平洋側に沿って東進し本州から離岸した黒潮統流域から分離した暖水渦の三つの異なる水塊が共存する<sup>1)</sup>。一方、Colon によって<sup>2)</sup>、津軽から流出する津軽暖流は、夏・秋には津軽海峡東方沖で渦を形成すること、冬・春では下北半島沿岸に沿って流れる挙動を取ることが報告されている。また三陸沿岸では親潮の接岸による海水温の異常低下のような現象がしばしば観測される<sup>3)</sup>。このことから、再処理施設からの海洋放出口が位置する海域の海況は、これらの異なる起源の水塊の挙動によって大きく影響を受けることが考えられ、再処理事業の許認可申請書において記載されているような海水の流れの状況が出現するものと推測される。

一方、海洋環境における放射性核種の移流拡散を支配する主要な駆動力は海水の流れ場であるが、海洋ではアメダスのような連続観測網による現況データあるいは大気のように3時間毎の再解析及び予報値を利用できることは皆無に等しく、海洋放出に伴う海洋環境への放射性核種の影響を見積もるにはコンピュータシミュレーションが必要とされる。そのため、当海域での海況の時空間的な特徴を詳細に把握するとともに、海況を再現するコンピュータシミュレーションモデルを構築することを目指した。

### 2. 沖合海域での海況の特徴

初夏から夏への津軽海峡から流出する津軽暖流の挙動は、図1に示すようである。経度方向に約5分間隔、緯度方向には約20分間隔で設定した観測点で、かつ観測結果が長期的な変動を受けないようにできる限り短時間(数日以内)でこれらの海域での観測を行った。図には2002年に実施したCTD観測による100m深での水温分布とともに、この測線上で船舶に搭載されたADCPあるいは船舶で曳航した曳航式ADCPによる測流結果も併せて示した。ここで津軽暖流はこの水深で一定水温以上のものとした。なお、

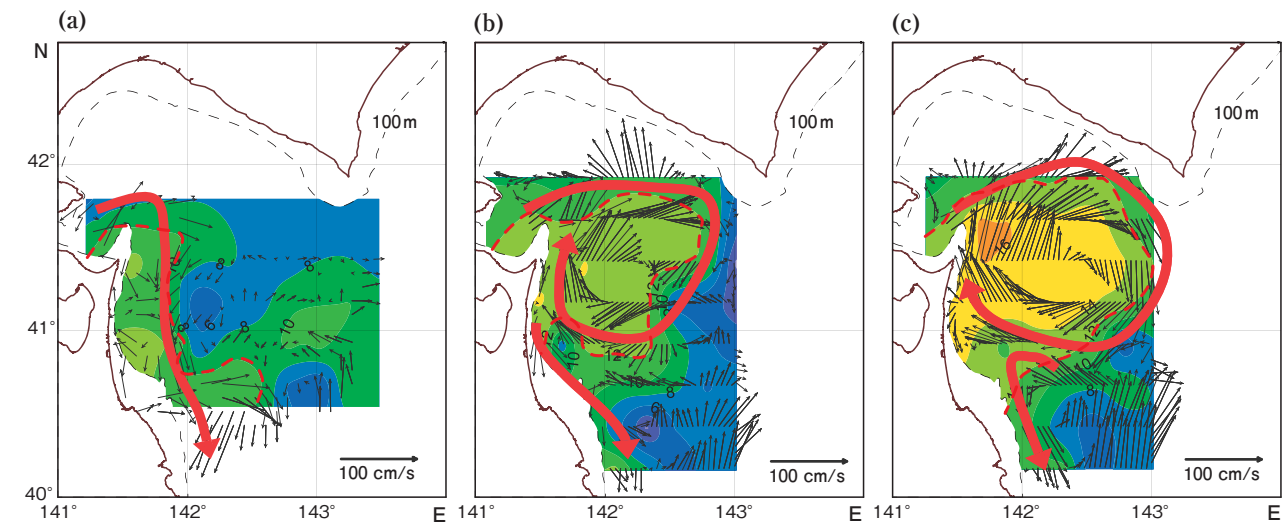


図1: 初夏から夏にかけての水深100 mにおける津軽暖流の分布と流速ベクトル図。  
(a) 6月の結果(流速は船底設置型ADCPによる) (b) 7月の結果(流速は曳航式ADCPによる) (c) 8月の結果(流速は曳航式ADCPによる)  
赤線は推定流線、赤点線は津軽暖流の分布範囲を示す。津軽暖流は水温12℃以上(6月は10℃)とした。

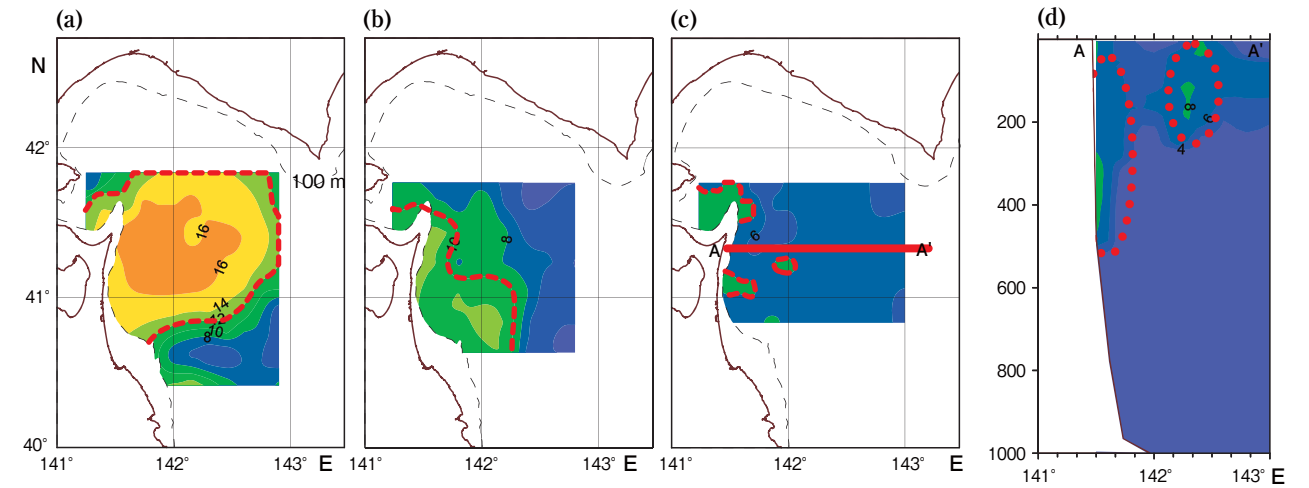


図2: 秋から冬にかけての津軽暖流の分布  
(a) 9月の結果、(b) 12月の結果、(c) 1月の結果、(d) (c)中の赤線上の水温の鉛直プロファイル赤点線は津軽暖流の分布範囲を示す。  
津軽暖流は各月での水温12℃、10℃、8℃以上とした。

流速ベクトルの頻度が異なるのは用いた計測機器(古野電気あるいはRD社)の計測の感度と精度の違いによる。

2002年6月では津軽暖流はまだ下北半島に沿って流れているが、7月になると津軽暖流は襟裳岬付近まで広がり、それに伴い低温の水塊が取り込まれるように沿岸部に存在していた。さらに8月になるとそれは円形に近づくきれいな渦となっていた。図に示すように津軽暖流の分布の境界部に強い流れが生じており、渦構造が顕著になると最強流部では約100cm/s(2ノット)近くに達していた。放出口沖合では北西方向への速い流れが観測されているが、この流れが下北半島で反射後、半島に沿って南に向かって流下しているため、夏季において放出口周辺での著しい南向きの流れの発現に寄与していることが伺える。

一方、渦モードから沿岸モードに至るとされる2005年9月から2006年1月にかけての観測結果は、図2に示すようであった。CTD観測の観測点間隔は図1と同じであるが、冬季における当海域の海況から観測できる日数が限られ観測可能な範囲は狭まる。9月には渦モードであった津軽暖流は12月にはその渦構造が崩れ、半島に沿って分布し始めており、1月にはほとんど半島沿岸部に沿っていた。しかも津軽海峡での最深部が約420mにも関わらず、流出先の太平洋側では水深500mを越えて潜り込んでいるような分布を示していた(図2-d参照)。

さらに、冬季における津軽暖流のこれまでの一般的なイメージでは半島沿岸に沿ってのみ分布するとされているが、図2-dに示すように尻屋岬東方の測線上では冬季においても津軽暖流起源と考えられる水塊が渦状に存在することが明らかとなった。同様な水塊分布と渦構造は2000年1月末にこの海域を通過したAPEXと呼ばれる中

層フロートによる水温プロファイル及びその軌跡においても観測された<sup>4)</sup>。

放出口周辺と沖合での流れの関係を検討するために、水深300mまで5m毎に同時に測流できる曳航式のADCP(超音波多層流向流速計、RD社製、150kHz)による観測を行った。一例として2005年4月27日に実施した観測結果を図3に示す。図には水深25mと50mでの水平流速ベクトル分布並びに二つの測線上での東西及び南北成分流速のカラー等値鉛直プロファイルを示した。なお、ここで示した流れは潮流成分を除去していないが、松本ら<sup>5)</sup>による海面高度を同化したモデルによる結果ではその成分は小さく、また定点での測流による調和解析結果<sup>6)</sup>からは潮流成分が不規則に変動するため、スナップショットとしての流れの場合はここに示したようであろう。放出口から約2km北側の測線(Aライン)では岸から約6km沖では北に向う流れであり、岸近く(放出口付近)では南に向う流れが観測されているが、放出口から約2km南側の測線(Cライン)では流れの方向が反転する地点がさらに約2km沖合に離れていた。これは水平図中に示すように放出口の南側では水深が北側に比べて浅くなっていることに起因する。また鉛直プロファイルから水深300m近くまでが一団となって同一方向に流れていた。この時期、津軽暖流は沿岸モードであり下北半島に沿って分布していた<sup>7)</sup>。半島に沿って流れる津軽暖流は放出口の南側にある沖合に向って発達した陸棚にその行く手を阻まれる形となり、その一部がこのような小さな渦を形成したものと考えられる。放出口沖合での北向きの流れは太平洋に対して凹に湾曲した半島に再び行く手を阻まれ、その一部が再び放出口に向う結果、より岸側では南向きの流れとして観測されたと考えられる。

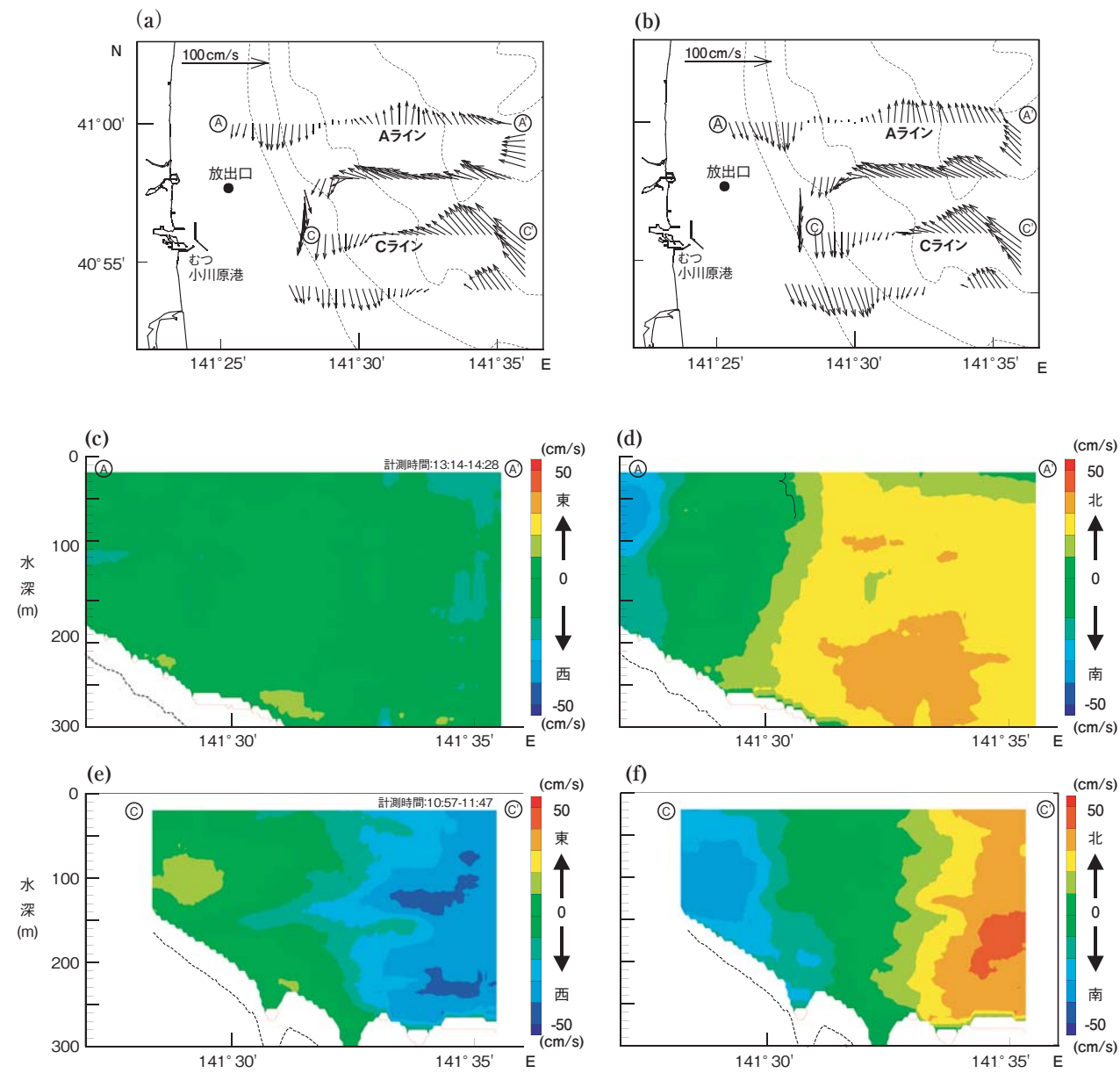


図3: 放出口周辺における流れの場の水平及び鉛直分布。図中の点線は水深を表し、ラインは計測測線を示す。(a) 水深25 mにおける流れの水平分布、(b) 水深50 mにおける流れの水平分布、(c) Aライン上での東西流速成分の鉛直プロファイル、(d) Aライン上での南北流速成分の鉛直プロファイル、(e) Dライン上での東西流速成分の鉛直プロファイル、(f) Dライン上での南北流速成分の鉛直プロファイル。

### 3. 放出口周辺での海況の時系列変動

これまでの観測結果などから断片的な流れの場が明らかになってきたが、放出口周辺での海況変動をより詳細にするために、海洋観測機器を搭載したブイによる連続観測を開始した。ブイは当海域の海況特性、海上交通、観測データの転送方式などを考慮し、太陽光発電によって必要な電力を供給する直径3.5m高さ約8mの大型のものを2003年秋から2年おきに、計3基のブイを放出口近傍に設置した。それぞれのブイでの観測項目は異なるが、表層及び表層・中層の水温・塩分、海上気象、鉛直方向でのADCPによる流向流速、水平方向でのADCPによる流向流速な

どの計測を行っている。これらのデータは採水した海水試料の分析結果の解析あるいは後述するコンピュータシミュレーションモデルでのサブグリッドパラメータの取得と評価、数値モデルの改良のための基礎情報の収集などを目的としている。

観測結果の一例として、2007年4月から11月までの水深約12mでの流れの場を図4に示す。ここで示したベクトルは5分間隔で計測されたデータの25時間移動平均値であり潮流成分は除去されている。なお、移動平均値であるため、5分毎の瞬間流速はこれより大きい。潮流成分が除去されているにもかかわらず、平均流は不規則に変動して

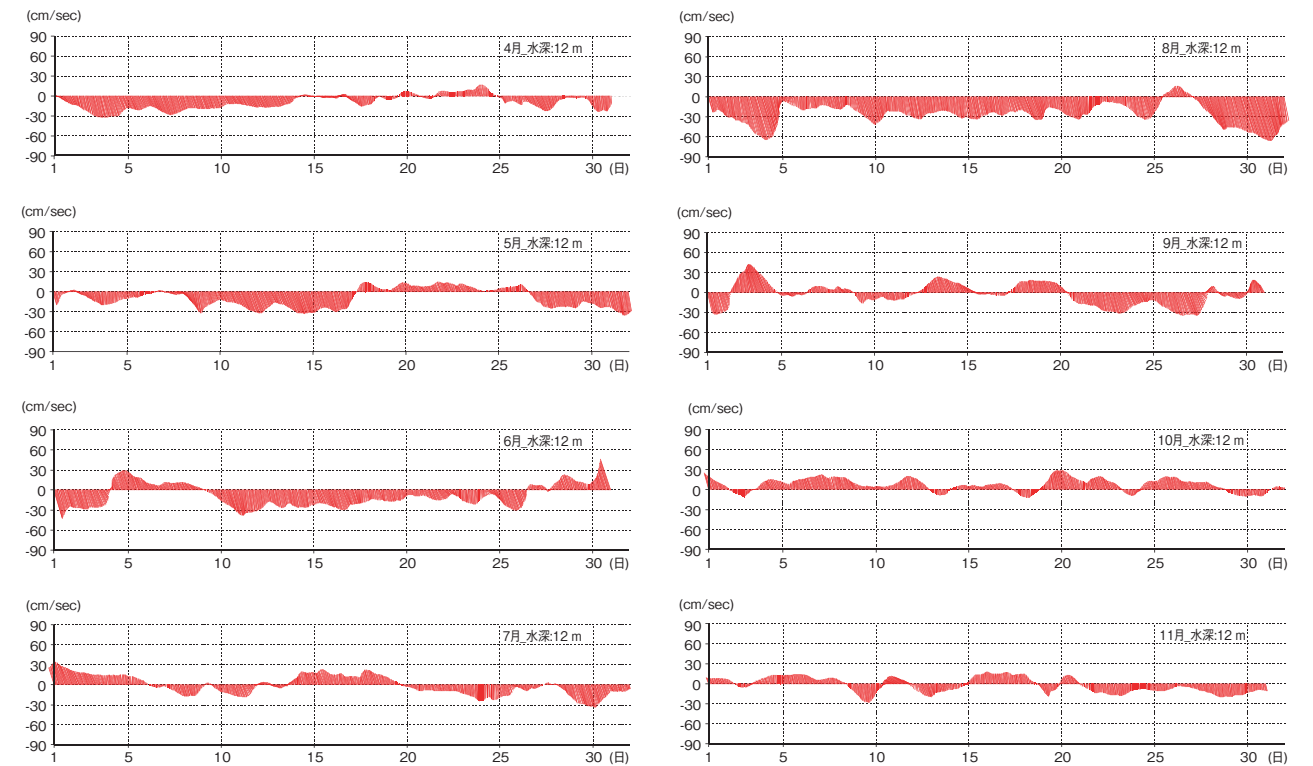


図4: 放出口近傍での流れの時系列変動。24時間移動平均処理を施したものである。

いる。一般的な傾向として津軽暖流が渦モードに移行する初夏から南向きの流れが多くなり、8月ではほぼ南向きの流れとなり、渦が安定する10月では北向きの流れが主体となる傾向にある。したがって月平均値で見ると、通年では南向きの流れであるが6月から南向きの流れが顕著になり8月に最も強くなり、10月では北向きの流れとなる年もあった。

冬季には時として親潮の接岸も観測された。例えば、2008年2月5日には3基の係留式ブイの表層水温が異常に低温化し約6日間継続した(塩分も同様に低下した)。この現象は3つのブイでの表層水温が計測時間間隔内で(5分間)一挙に数度近く低下し、3基のブイでの現象の出現順序もブイで計測された流れに対応したものであった。さらに水深20m付近でのCTD観測でも同様な水温・塩分の低下現象が観測された。2月7日に仙台から苫小牧間のフェリー航路上でのXCTD(投棄型)による水温・塩分観測によると放出口の東方沖及び尻屋崎の東方沖から日高沖にかけては水温と塩分の低い水塊の存在が確認され、また2月上旬の人工衛星によるSST(海面水温)観測でも親潮(あるいは沿岸親潮)と考えられる低温水が、同海域に存在していた。この現象は沖からの影響が放出口周辺海域に及んでいる顕著な一例である。なお、急激な水温低下の出現時には約10 cm/sであった南向きの流れが

50 cm/sまでスピードアップしており、なんらかの原因がトリガーとなり親潮が沿岸域に接岸したものと考えられる。その間流れの南北成分流速は1から1.5日周期で流れの向きを反転しており、それに対応した水温の変動が観察された。

2007年秋に配備した係留式ブイには表層付近で水平方向最大300mまで計測可能なADCPが搭載されている。この観測機器は、本来河川などの流量を測るために開発されたものであり、計測器が設置されたプラットフォームが海中に強固に固定されていないために、ブイの動揺によって計測器の送受波面から発射された超音波が途中で海面上に出てしまい計測可能範囲が狭まる。しかし、放出口の直径が7.5 cmと放出される海洋環境の代表的な長さスケールに比べて極端に短いため、その狭い領域での流れの変動についての情報を得ることは放射性核種の移行拡散評価のためのソースターム情報あるいはそのモデル化の基礎資料として重要である。現状では荒天時を除き計測範囲は概ね200m程度であり、その範囲内ではほぼ一樣な流れ場が形成されている場合が多い。しかし、時として僅か200mの範囲内の水平方向で流れの変動現象が観測されており、これは放射性核種の拡散に対して大きく寄与するため、このような現象の出現頻度及びその機構などを明らかにする必要がある。

#### 4. 海況などのコンピュータシミュレーション

コンピュータシミュレーションを行うためには初期条件及び境界条件を正しく設定する必要がある。しかし、前節で述べたように対象とする青森県太平洋沿岸は外洋からの影響を強く受ける開けた沿岸海域であり境界の設定とその値の取得が問題となるとともに、対象となる六ヶ所沖海域を高い解像度で再現する必要がある。六ヶ所沖海域の循環を高い精度で再現するために必要な解像度で、北太平洋の循環を計算することは、現在の計算機の能力では不可能である。このため、広い範囲では中解像度のモデルで計算し、その結果を両方向の境界条件として、より狭い範囲を高解像度で計算するネスティング手法<sup>8)</sup>を採用する。さらに、高精度で循環を再現する、もしくは、予報を行うための初期条件を推定するためには、数値モデルに観測結果を組み合わせるデータ同化<sup>9)</sup>を行う必要がある。このデータ同化も多くの計算機資源を必要とするため、北太平洋全域に適用することが出来ない。以上の要件からいくつかのモデルを組み合わせることを考え、この方針のもとにベースとなる海水循環モデルとして京都大学の大循環モデルを採用した<sup>10)</sup>。このモデルは最新のデータ同化手法を採用しており<sup>11)</sup>、その計算結果を再利用することが可能であった。

一方、放射性核種移行は、日本原子力研究開発機構のSEA-GEARNをベースに当海域にチューニングした計算

コードによって核種移行の解析を行う。これは本モデルの実績と廃液の放出現象を簡易に取り扱えるようにするためである。なおSEA-GEARNの詳細とその性能については後段の日本原子力機構の小林卓也博士の報告を参照されたい。

海況の再現・予測のために整備したモデルは次の4つからなる(図5参照)。最初のモデル(気候学的北太平洋モデル)は気候値<sup>12)</sup>と呼ばれる海洋観測データの統計値を用いて計算を行い、この結果は二番目のモデル(日本近海データ同化モデル)の外部境界及び初期値を与える。したがって、この計算は気候値が更新されない限り再計算されることはない。一番目と二番目のモデルは同解像度であり(東西1/6度、南北1/8度)、二番目のモデルではデータ同化手法<sup>12)</sup>を用いて後述する観測データを計算の際に取り込み計算結果と現況との融合を図る。三番目のモデル(日本近海高解像度モデル)は、前二者より高解像度であり(東西1/18度、南北1/24度)、さらに、最後の四番目のモデル(六ヶ所村沖合モデル)では前者のモデルよりもさらに高解像度化し、東西1/54度、南北1/72度で、距離に換算すると、東西南北とも約1.5 kmのグリッドサイズで六ヶ所村沖合を解析する。このモデルによって計算される流向流速および海況などの結果を、放射性核種の移行モデルの入力とする。

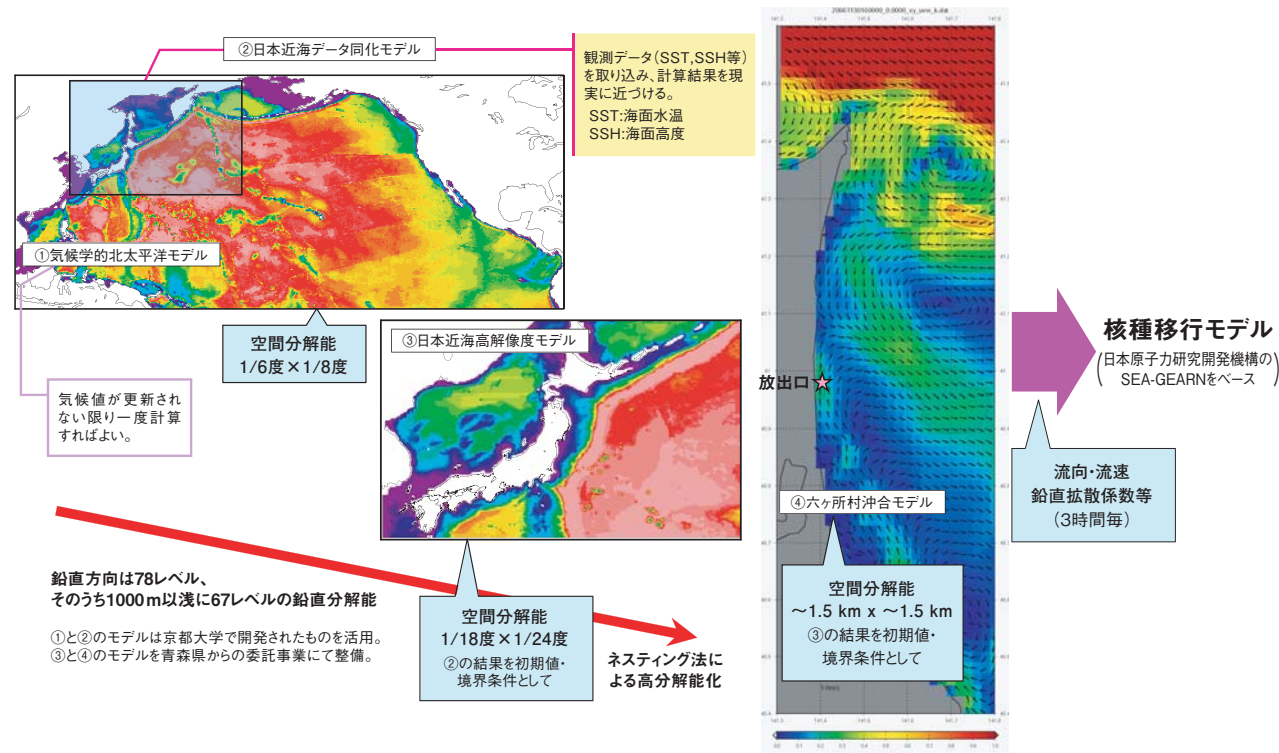


図5: 青森県太平洋沿岸海域のモデルシミュレーションのための計算領域の設定。六ヶ所村沖モデルでは計算された流れの場(流速はカラーで流向は矢印で)をそれ以外の地図は水深を示す。

#### 5. データ同化手法<sup>9)</sup>

データ同化手法は4次元変分法データ同化手法と呼ばれるもので、数値モデルの方程式系を制約条件としながら、以下で表される評価関数を最小にする最適解を求める。

$$J = (x^0 - x_{init}^0)^T P^{-1} (x^0 - x_{init}^0) + (Hx - x_{obs})^T R^{-1} (Hx - x_{obs})$$

ここで、 $x$ 、 $x^0$  はモデル変数とその初期条件、 $x_{init}^0$  はモデル初期条件の初期推定値、 $x_{obs}$  は観測データであり、 $P$ 、 $R$  はそれぞれ初期推定値、観測データの誤差共分散行列である。4次元変分法データ同化手法の最大の利点は、モデルの方程式系に完全に従いつつ、観測データの時系列に最もフィットする best time trajectory を得ることができる点にある。そのため、得られた流動場はたとえばトレーサなどの追跡に対しても十分に利用することが可能である。また、得られる解析値を用いて変動場の予測を行う際にも、期間にわたる最適化は大きな利点となる。これにより、間欠的にデータを取り込む場合には不可避な初期値化ノイズの発生が回避できる。

海洋大循環モデルの水平方向は球面座標系であり、鉛直方向は海面から鉛直下方の数グリッドを等間隔に分割し( $\sigma$ 座標系)、それより深いグリッドは、深さごとに分割する( $z$ 座標系)  $z$ - $\sigma$ ハイブリッド座標系である。これは、海面変位の大きさが鉛直方向第1層の厚さによって制限されることを防ぐ。また海底に接しているグリッドはその厚さによって制限されることなく、自由に取り出ることが出来るようにしてある(パーシャルセル)。移流項の計算には高精度移流スキームであるQUICKEST<sup>13)</sup>(鉛直方向)とUTOPIA<sup>14)</sup>(水平方向)を用いており、物理スキームとしては、等密度面拡散・GMスキーム<sup>15,16)</sup>、混合層モデル、海水モデル、biharmonic-Smagorinsky粘性<sup>17)</sup>が組み込まれている。混合層モデルとしてNoh<sup>18,19)</sup>のモデルが用いられている。さらに、海水モデル<sup>20,21)</sup>を用い海水の影響も考慮されている。また、渦を再現するためのスキームも組み込まれている。熱フラックスは、バルク型の熱フラックスであり海面水温と大気側の条件(日射、風の強さ、露点温度等)から熱の収支を計算する。淡水フラックスは、降水と蒸発の収支をそのまま与える<sup>22)</sup>。

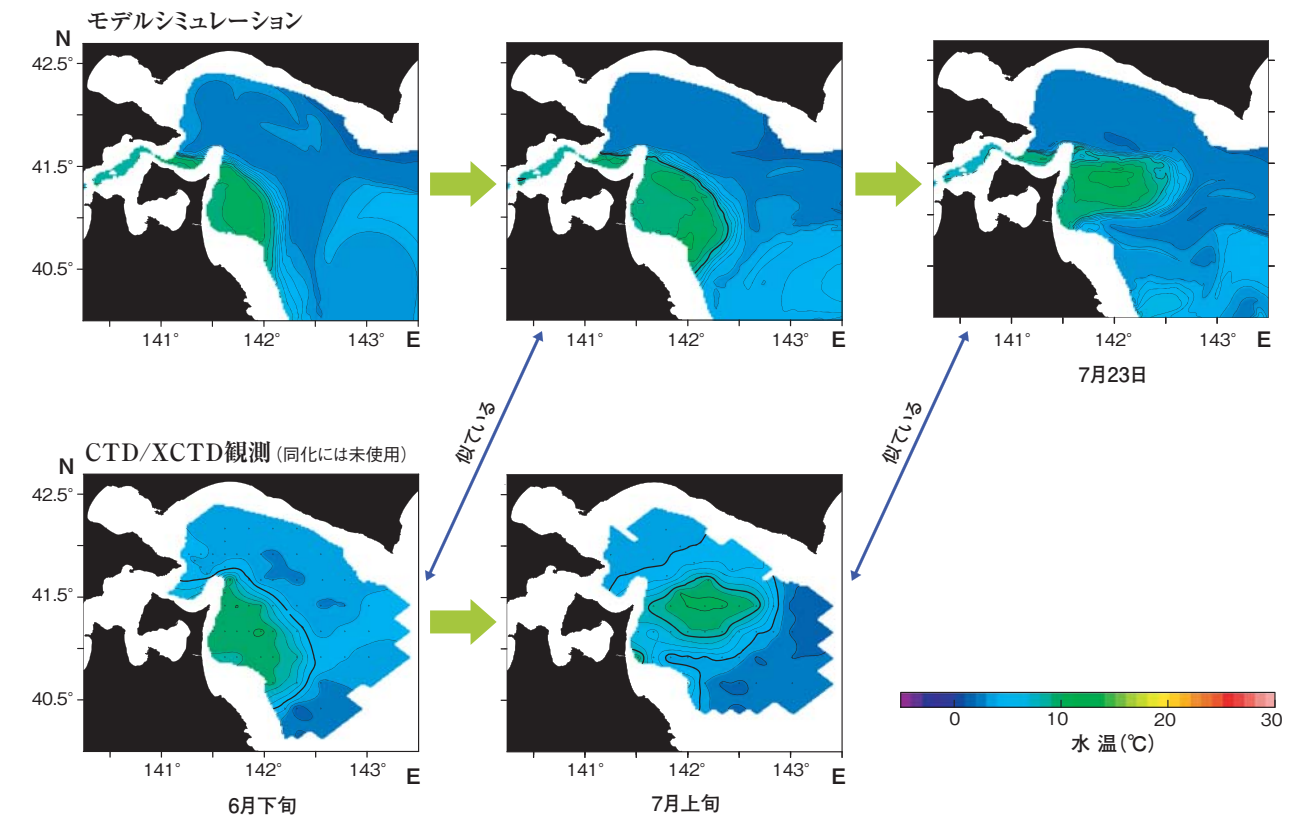


図6: 水深200 mでの水温分布のモデルシミュレーション(上段)と観測結果(下段)の比較。モデルの結果は観測期間内の平均値とした。

## 6. 観測データ

本データ同化システムでは海洋大循環モデルと4次元変分法を用いるので、ほぼすべての物理観測データを同化することができる。一般に現況解析値は（従って予測値も）モデルの品質と同化する観測データの量と質に依存する事を考えると、これは大きな利点である。利用可能な観測データとしては、人工衛星計測による海面高度および海面水温が主であり、これらのリモートセンシングデータに加えて現場観測値としての水温・塩分データを補完的に利用する。

## 7. ネスティング手法<sup>8)</sup>

ネスティング手法とは、広い領域を比較的解像度のモデルで計算し、その結果をより高解像度の狭い領域の水平方向境界条件として用いるものである。この際、水平境界条件を後段のモデルの解像度に合わせて補間するために、2次元のスプライン補間を用いる。この補間は2次の微分量に対して連続性を保証しており、モデル内で水平微分を計算する際に破綻しない。水平境界条件として用いるデータは、ポテンシャル水温、塩分、順圧流量、擾乱の運動エネルギー、海水の体積、グリッド内の海水の密接度、海水の移動速度である。境界の流速については、境界のポテンシャル水温・塩分から温度風関係式より傾圧流速を計算し、順圧流量から計算して得られる順圧流速と足し合わせる。また、後段の初期条件としても、低解像度モデルを補間した値を用いる。

## 8. 海況の再現

海況の再現実験として、対比できる海洋観測データがある2003年を対象に行った。なお、六ヶ所村沖モデルでの海面条件の一つとして気象庁のメソスケールモデルの解析値を用いた。図6には、水深200mにおける水温のモデルシミュレーションと観測結果の対比を示し、緑色で示された領域が津軽暖流に対応する。なお、モデルの結果は観測時間に対応する期間で平均化したものである。ここで示した観測結果はデータ同化法には使用されておらず、モデルシミュレーション結果とは独立なものである。6月末では津軽暖流はモデルと観測の両方で沿岸モードから広がりがつつある。7月始めのモデルによる結果では津軽暖流はまだ岸近くに広がっているが、観測結果では津軽暖流は下北半島から離れて北東に移動し、渦構造を呈している。7月始め時点でのモデル計算の結果は、どちらかというとも6月下旬の観測結果に似ており、観測結果に比べて約2週間の遅れが見られる。ちなみに、7月23日時点でのモデル

計算結果と7月初めの観測結果における津軽暖流の形を比較すると、両者は良く似たものとなっていた。なぜ、このような時間遅れが生じたか検討する必要があるが、津軽暖流の沿岸モードから渦モードへの遷移過程は良く表現されている。

一方、冬季における津軽暖流の渦モードから沿岸モードへの遷移は、沖合に存在していた渦が南側に移動し、形が崩れるとともに、渦の大きさが小さくなるようであり、その時間は約2週間程度であった。残念ながら、短期間に繰り返された海洋観測データあるいは人工衛星による鮮명한時系列SSTデータが得られていないため、モデルシミュレーションで再現された遷移過程がどの程度現実を表現しているかは定かではなく、検証用データの収集あるいはその代替データの検討が必要である。

## 9. おわりに

再処理施設から海洋へ放出される放射性核種の挙動を明らかにするために、周辺海域での海洋観測を行いその特性を明らかにするとともに、海況を再現・予測するコンピュータシミュレーションモデルを構築し、全体像としての当海域を再現できた。しかし、スポット的な観測・測定データとの整合性に関しては不十分な面もある<sup>23)</sup>。これは再現すべき現象の空間及び時間スケールが大きく異なるためであり、すべてを網羅したモデルを構築することは計算資源上困難である。このため、放射性核種の挙動に大きく影響を与える現象の把握、その発生メカニズムとその数学モデルの開発を含めて検討すべき課題は多いと考える。

## 10. 謝辞

本発表の一部は青森県からの受託調査として実施されたものであり、ここに記して謝意を表します。また、データ同化手法及びそのソフトウェアの利用、並びにその計算結果の利用に関しては京都大学理学研究科地球物理学教室（淡路俊之教授）のご指導・ご協力を承りました。ここに記して謝意を表します。

## 参考文献

- 1) Yasuda, I.: Hydrographic Structure and Variability in the Kuroshio-Oyashio Transition Area. *J. Oceanogr.* 59:389-402, 2003.
- 2) Conlon, D. M.: On the outflow modes of the Tsugaru warm current. *La Mer.* 20:60-64, 1982.

- 3) 武藤清一郎：三陸常磐沿岸の異常冷水．水産海洋研究会報 26:69-78, 1975.
- 4) (財)日本海洋振興科学財団：平成11年度科学技術振興調整費「21世紀型海洋自働観測システムの最適設計に関する調査」成果報告書，2000.
- 5) Matsumoto, K., Takanezawa, T., Ooe, M.: Ocean Tide Models Developed by Assimilating TOPEX/POSEIDON Altimeter Data into Hydrodynamical Model: A Global Model and a Regional Model around Japan. *J. Oceanogr.* 56: 567-581, 2000.
- 6) Shima, S., Nakayama, T., Iseda, K., Nishizawa, K., Suto, K., Sakurai, S., Oguri, K., Kouzuma, K.: Distribution and seasonal change of the Tsugaru warm current water off Rokkasho. *Proc. The international workshop on Distribution and Speciation of Radionuclides in the Environment*, pp.289-296, 2000.
- 7) 独立行政法人水産総合研究センター東北海区水産研究所混合域海洋環境部，東北海区水温図，<http://tnfri.fra.affrc.go.jp/kaiyo/temp/temp.html>
- 8) Oey, L. Y., Chen, P.: A nested-grid ocean model: with application to the simulation of meanders and eddies in the Norwegian coastal current. *J. Geophys. Res.* 97:20063-20086, 1992.
- 9) 例えば、蒲地政文：変分法による随伴方程式を用いたデータ同化作用について．ながれ 13:440-451, 1994.
- 10) 豊田隆寛：北太平洋亜熱帯モード水及び亜寒帯中暖水の海洋モデリング研究．京都大学修士論文，2002.
- 11) 石川洋一，淡路敏之，豊田隆寛，小守正信，杉浦望実，増田周平，馬場金司：全球海洋大循環データ同化システムを用いた水・熱エネルギーフローの4次元解析（II）．2002年度春季海洋学会予稿集，2002.
- 12) Conkright, M., Levitus, S., O'Brien, T., Boyer, T., Antonov, G., Stephens, C.: World Ocean Atlas 1998: CD-ROM Data Set Documentation. Tech. Rep. 15, NODC Internal Report, p.16, 1998.
- 13) Leonard, B. P., MacVean, M. K., Lock, A. P.: Positivity preserving numerical schemes for multidimensional advection. NASA Tech. Memo. 106055, ICOMP-93-05, p.62, 1993.
- 14) Leonard, B. P., MacVean, M. K., Lock, A. P. The flux-integral method for multidimensional convection and diffusion. NASA Tech. Memo.

- 106679, ICOMP-94-13, p.30, 1994.
- 15) Gent, P. R., McWilliams JC: Isopycnal mixing in ocean circulation model. *J. Phys. Oceanogr.* 20:150-155, 1990.
- 16) Griffies, S. M.: The Gent-McWilliams skew flux. *J. Phys. Oceanogr.* 28:831-841, 1998.
- 17) Smagorinsky, J.: Some historical remarks on the use of nonlinear viscosities. In *Large eddy simulation of complex engineering and geophysical flows*: (Eds., Galperin, B. and Orszag, S. A.), Cambridge University Press, pp.3-36, 1993.
- 18) Noh, Y.: Dynamics of diurnal thermocline formulation of the oceanic mixed layer. *J. Geophys. Res. Oceanogr.* 26:2183-2195, 1996.
- 19) Noh, Y., Kim, H. J.: Simulation of temperature and turbulence structure of the oceanic boundary layer with the improved near-surface process. *J. Geophys. Res.* 104:15621-15634, 1999.
- 20) Ikeda, M.: A coupled ice-ocean mixed layer model of the marginal ice zone to wind forcing. *J. Geophys. Res.* 94:9699-9709, 1989.
- 21) Ikeda, M.: Snow cover detected diurnal warming of sea ice/snow surface off Labrador in NOAA imagery. *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* 27:552-560, 1989.
- 22) Röske, F.: An atlas surface of fluxes based on the ECMWF re-analysis - a climatological dataset of force global ocean general circulation model models. *Max-Planck-Institut für Meteorologie* 323, pp. 26, 2001.
- 23) 小林卓也，印貞治，石川洋一，松浦康孝，島茂樹，中山智治，淡路敏之，川村英之，外川織彦：下北沖海域における海洋中放射性核種移行予測システムの構築とケーススタディ．日本原子力学会和文論文誌 7:112-126, 2008.



## (8) 六ヶ所村大型再処理施設周辺の水圏環境における放射性核種移行モデルの構築

(財)環境科学技術研究所 環境動態研究部 副主任研究員  
 植田 真司  
 (財)環境科学技術研究所 環境動態研究部  
 近藤 邦男、久松 俊一



植田 真司 (Shinji Ueda)

### 1. はじめに

青森県六ヶ所村における使用済み核燃料再処理施設の操業に伴い、微量ではあるが<sup>85</sup>Kr、<sup>3</sup>H、<sup>14</sup>C及び<sup>129</sup>I等を主体とする放射性核種が当該施設の排気筒から大気中に、また沿岸より2.5km沖の海洋放出管から海水中に排出される。これら排出放射性核種の一部は、様々な過程を経て当該施設に隣接する汽水湖尾駱沼に供給される(図1)。湖沼内に供給された放射性核種の移行過程、生態系内における挙動を評価するためには、数学モデルを用いて予測することが有効である<sup>1, 2)</sup>。

本研究では、尾駱沼における放射性核種の移行・分配・蓄積過程を評価することを目的に、尾駱沼放射性核種移行モデルを構築し、モデルの計算結果と実測値を比較することによりモデルの検証を行った。

### 2. モデルの概要

#### 2.1. 尾駱沼の概要

尾駱沼は、湖面積3.7km<sup>2</sup>、平均水深2.5m(最大水深4.5m)の比較的浅く、小さな汽水湖である(図1)。主な流入河川は、西端から流入する二又川(淡水河川)と太平洋とつながる尾駱川の2つである。湖水と海水の交換は、尾駱川を介して行われている。湖岸部等の水深が浅い水域は海水の浸入や強風の影響を受けて湖流は比較的早く、水の上下混合が起こり易いが、水深3.5m以深の主湖盆における湖流は比較的遅く、湖水が比較的滞留し易い状況下にある。従って、主湖盆ではほぼ年間を通して深度1~3m間に安定した塩分躍層が形成され、汽水域特有の水質構造を呈している<sup>3)</sup>。

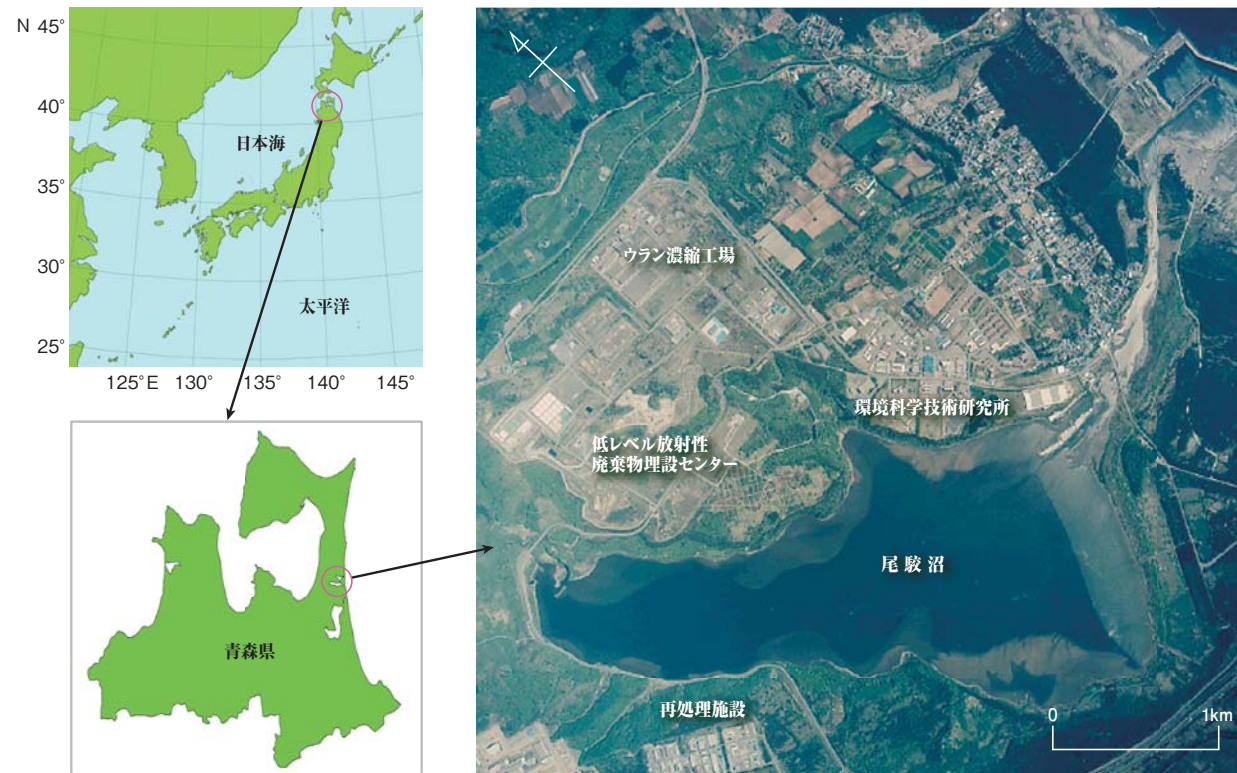


図1: 六ヶ所村に立地する大型再処理施設と尾駱沼

### 2.2. モデルの構築

尾駱沼放射性核種移行モデルの構築に当たって、汽水湖特有の水質環境及び生態系構造を十分考慮した。モデルは、流動場を決定するための3次元流動モデルと生態系内における物質の移行・挙動を予測する生態系モデルで構成されている。3次元流動モデルは、流動場の変化と鉛直循環を表現することの可能な多層レベルモデル<sup>4, 5)</sup>を基本とし、連続の方程式、運動方程式及び水温・塩分の保存式を連立させて差分法により、時間ステップで格子毎に計算を行う<sup>6)</sup>。対象水域における格子間隔は、水平方向50×50m、鉛直方向0.5~1m(最大7層)とした(図2)。生態系モデルに関しては、図3に示すように湖内生態系内の生物群集の中で植物及び動物プランクトン(低次栄養段階生物)に着目して構築した<sup>7)</sup>。これら二つのモデルを統合して、そこに放射性核種の分配係数、半減期等をはじめ各種の物理・化学・生物学的パラメータを導入した<sup>8)</sup>。本稿では、トリチウム(<sup>3</sup>H)及び放射性セシウム(<sup>137</sup>Cs)の計算結果について紹介する。データの検証については、図2に示す二又川流入部(St.1)、湖心部(St.2)及び沿岸部(St.3)の3地点における湖水及び湖底堆積物中の放射性核種の実測値を用いた。

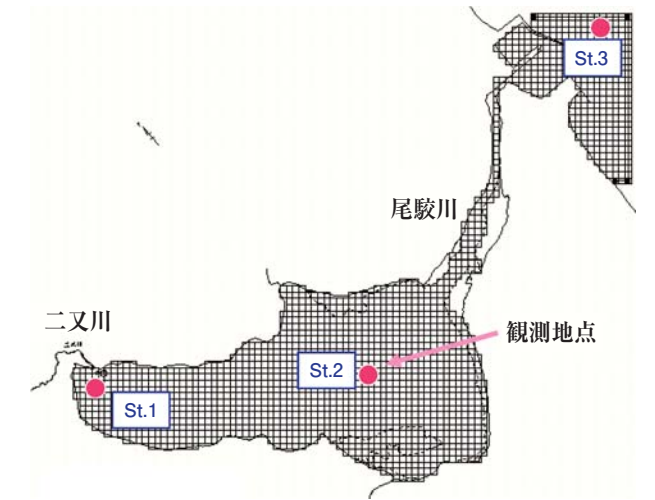


図2: モデルの格子と計算範囲(番号は、観測地点)

### 3. モデルの計算結果

#### 3.1. 短期予測(拡散)

<sup>137</sup>Csが二又川河口付近に一時的に供給された場合を仮定して、短期間における拡散状況を放射性核種移行モデルを用いて予測した(設定条件: 期日は2004年3月9日10時に<sup>137</sup>Csが10<sup>4</sup>kBq瞬間供給)。気象及び海象等に関するデータは設定日における観測値を使用した。経過時間に

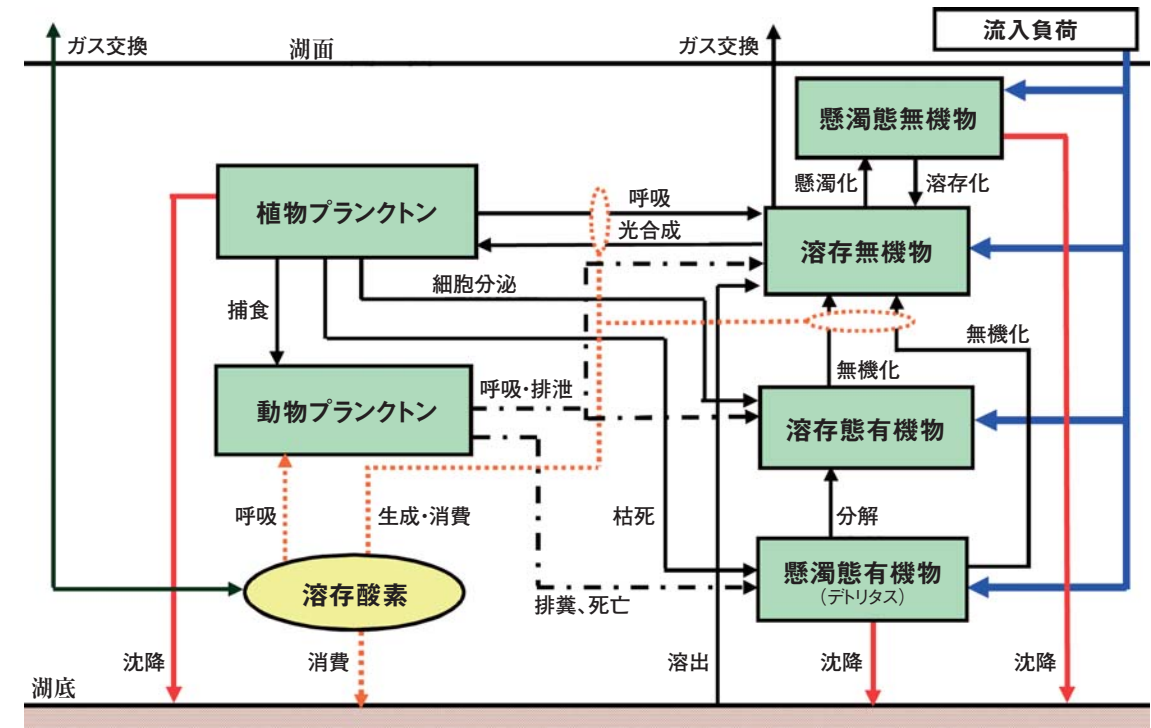


図3: 生態系モデルの構造図

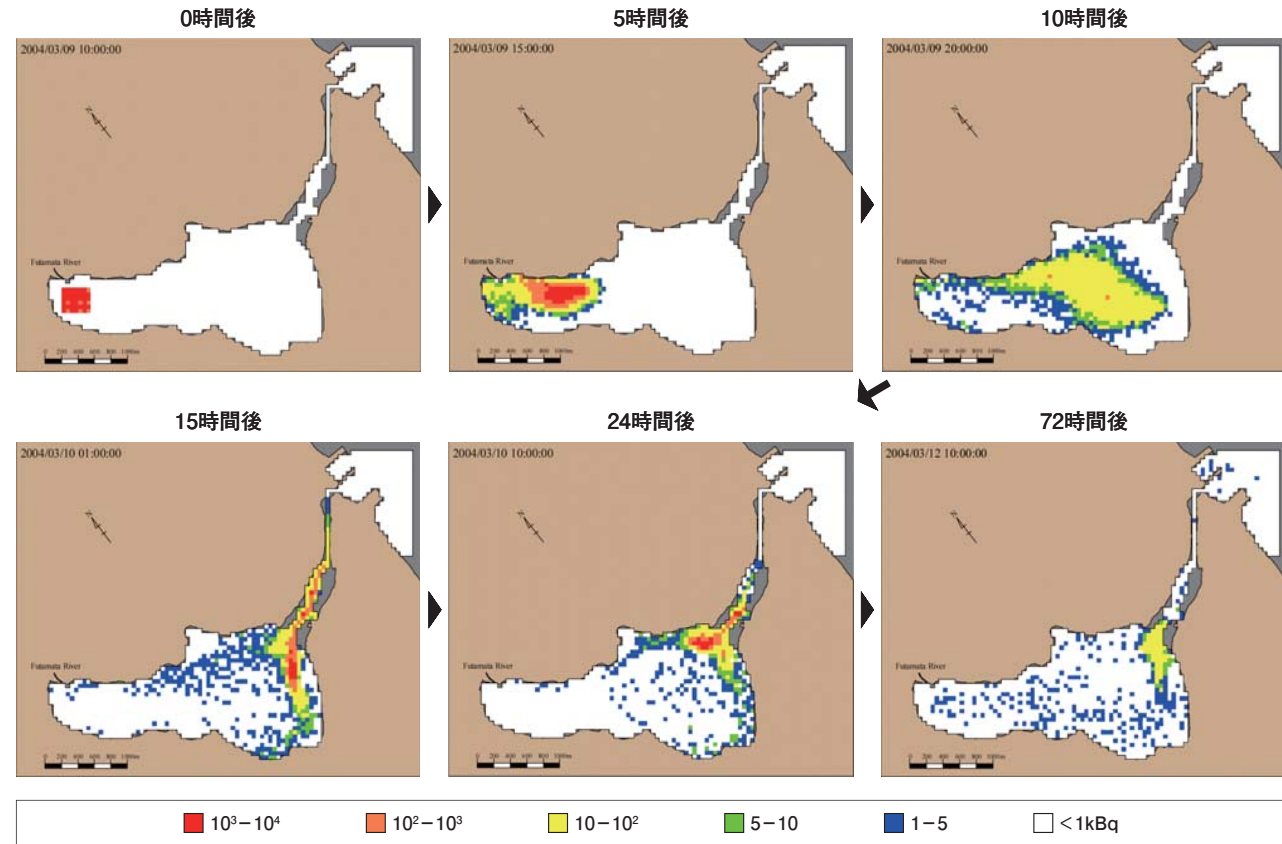


図4: 尾駱沼放射性核種移行モデルを使用した湖水中<sup>137</sup>Csの短期拡散シミュレーション(表層水深0-1 m)

沿って拡散状況を見ると(図4)、スポット供給後5時間では、西部水域に高濃度のパッチが認められたが、湖心部までは拡散していなかった。10時間後にはほぼ湖沼全域に拡散し、とくに湖心部で高い濃度が示された。15時間後には尾駱川河口付近で高い濃度が分布し、尾駱川から海洋に流出している状況が示された。72時間後には、湖外への流出と希釈により、湖沼全域において低濃度化した。このように、水平分布を可視化させて表現することによって、湖外から供給された放射性核種等の濃度分布が時々刻々変化する状況を視覚的に容易に把握することが可能となった。

### 3.2. 中長期予測

#### 1) 湖水中の<sup>3</sup>H及び<sup>137</sup>Cs濃度変動

図5に、尾駱沼放射性核種移行モデルを使用して計算した二又川流入部(St.1)、湖心部(St.2)及び沿岸部(St.3)における表層水中<sup>3</sup>H及び<sup>137</sup>Cs濃度と実測値を示す。モデルを用いた<sup>3</sup>H濃度の計算結果は二又川流入部において100~800mBq L<sup>-1</sup>の範囲で変動を示し、実測値(変動範囲200~800 mBq L<sup>-1</sup>)を良好に再現することができた。湖心部及び沿岸部における計算結果は二又川流入部よりも変動は小さいが、濃度レベル及び変動傾向は、実測値を再現す

ることができた。次に、二又川流入部における<sup>137</sup>Csの計算結果は、濃度レベル及び変動傾向共に実測値と概ね一致した結果が得られた。湖心部及び沿岸部の計算結果は、河口部ほど変動は大きくないが、実測値を良好に再現できた。

#### 2) 湖底への蓄積過程

過去における核実験によって放出された<sup>137</sup>Csが、大気から流域を通して尾駱沼の湖底堆積物に蓄積されている<sup>9)</sup>。そこで、実測した柱状堆積物における<sup>137</sup>Cs濃度の鉛直プロフィールを利用して、年間に堆積する<sup>137</sup>Cs量の計算結果と比較することで、長期的な湖底への蓄積の検証を行った。

柱状堆積物における<sup>137</sup>Cs濃度の計算結果と実測値を比較すると、1963年のピークのあと、計算結果は急激な減少を示したのに対し、実測値はなだらかな減少であった(図6)。実際のフィールドにおいては湖面にフォールアウトしたものは直接流入であるが、沼の集水域に降下した<sup>137</sup>Csは降雨等によって瞬時に流出するものもあれば、土壌や植物等に沈着・保持され、徐々に湖内に流出するものもある。本モデルでは、集水域に関しては二又川からの降水量に対応した物質負荷量を考慮しており、集水域自体に

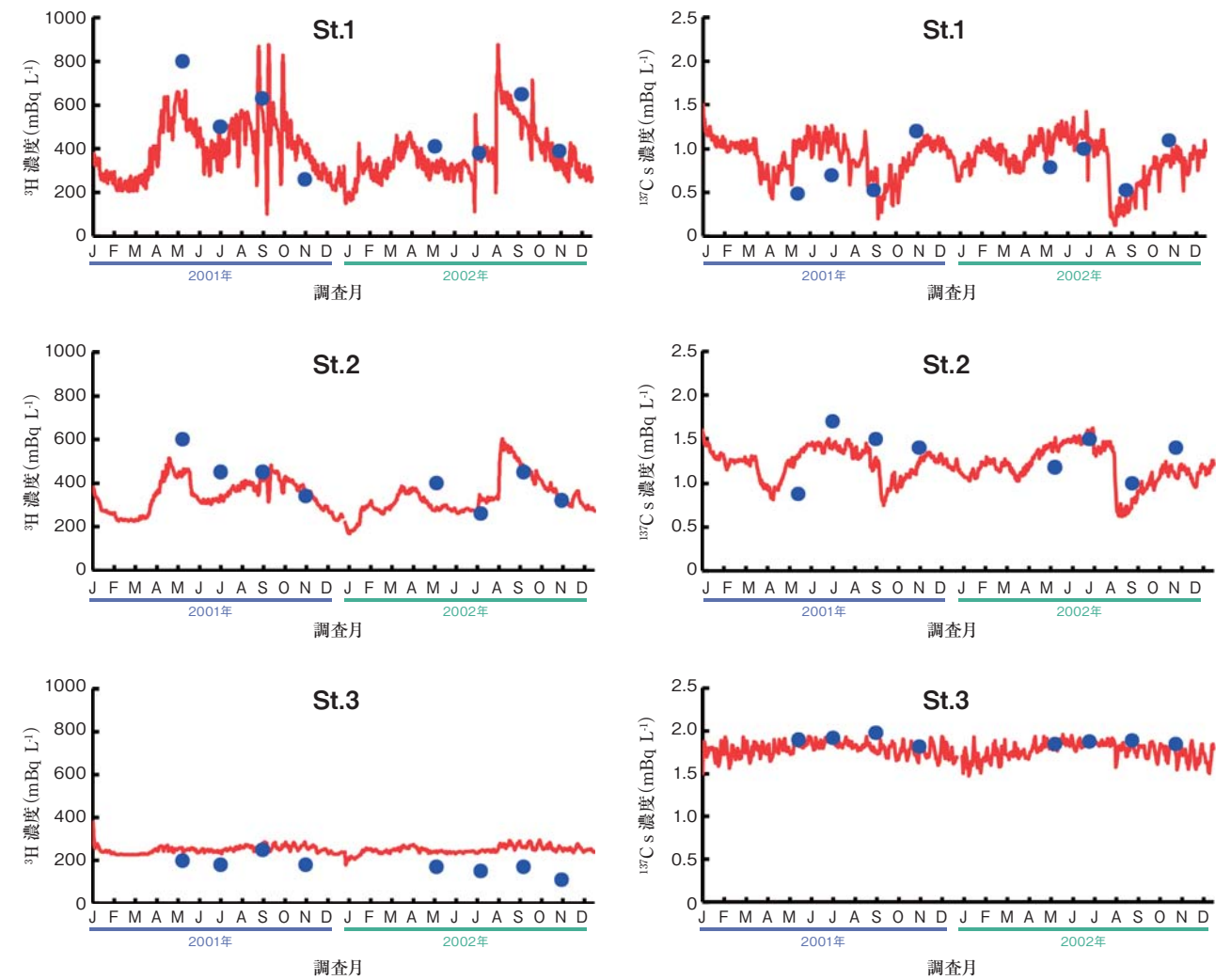


図5: 尾駱沼放射性核種移行モデルを使用して計算した二又川流入部(St.1)、湖心部(St.2)、沿岸海域(St.3)における表層水中<sup>3</sup>H及び<sup>137</sup>Cs濃度(実線)と実測値(丸)

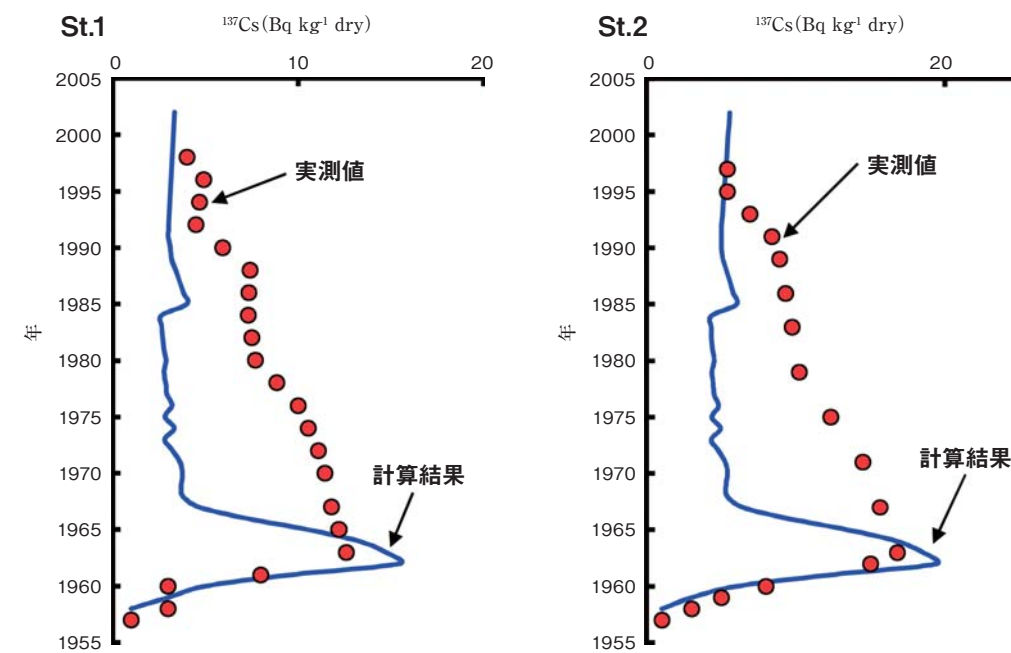


図6: 尾駱沼放射性核種移行モデルを使用して計算した二又川流入部(St.1)、湖心部(St.2)における柱状堆積物中の<sup>137</sup>Cs濃度(実線)と実測値(丸)

滞留時間やそれに伴う放射性崩壊等を考慮してはいない。従って、堆積物中の<sup>137</sup>Csの鉛直パターンを改善するためには、集水域からの放射性核種の流入量を精査することが必要である。

また、堆積物中の<sup>137</sup>Cs蓄積量(インベントリー)の計算結果が実測値と比較して小さく見積もられた。これについては、湖内における粒子状物質の沈降速度を過小評価している可能性があるため、粒子沈降フラックスに関するパラメータを精査する必要がある。

#### 4. まとめ

本研究では、大型再処理施設に隣接する尾駮沼の生態系内における放射性核種の移行・分配・蓄積過程を予測し、評価することを目的に放射性核種移行モデルを構築した。本モデルを用いて、湖流、水質、生物量及び放射性核種濃度の変動に関する検証を行った結果、概ね実測値を再現することが確認された。しかし、湖底環境への放射性核種の蓄積過程の場合のように、一部モデルの精度に問題があり、モデル精度の高度化を目指して、尾駮沼の集水域における物質の残留時間や河川への流出特性等を加味したモデルの構築を進めている。また、アマモ場、魚類やベントス等の高次栄養段階生物や湿地生態系に関するパラメータを導入すると共に、六ヶ所沿岸海域からの移行や大気からの供給に関するモデルを構築し、これらを放射性核種移行モデルと結合することによって、モデルの高度化を図る予定である。

\*本記載事項は、青森県からの受託事業により得られた成果の一部である。

#### 5. 参考文献

- 1) 飯島敏哲: 被曝線量評価の手順と評価モデル, 環境放射能, p.480, 1984.
- 2) 外川織彦: 生態圏核種移行モデルの妥当性検証 - BIOMOVs 計画の成果と展望 -, 保健物理 29:55-64, 1994.
- 3) 植田真司, 川端一史, 久松俊一, 稲葉次郎, 細田昌広, 横山瑞江, 近藤邦男: 浅い汽水湖尾駮沼における塩分躍層の構造特性に関する研究. 陸水学雑誌 63:125-134, 2002.
- 4) 中田喜三郎, 堀口文男, 田口浩一, 瀬戸口泰史: 沿岸海域の三次元生態-流体力学モデル. 公害資源研究所彙報 13:119-134, 1983.

- 5) Taguchi, K., Nakata, K.: Analysis of water quality in Lake Hamana using a coupled physical and biochemical model. *J. Mar. Sys.* 16:107-132, 1998.
- 6) 植田真司, 近藤邦男, 稲葉次郎, 細田昌広, 横山瑞江, 中田喜三郎: 核燃料サイクル施設に隣接する汽水湖尾駮沼における流動モデルの開発. 海洋理工学会誌 9:81-97, 2004.
- 7) Ueda, S., Kondo, K., Inaba, J., Hosoda, M., Kutsukake, H. Seike, Y., Nakata, K. Development and application of the ecosystem model in brackish Lake Obuchi, Japan. *Korean J. Limnol.* 37:448-454, 2004.
- 8) Ueda, S., Kondo, K., Inaba, J., Kutsukake, H., Nakata, K.: Development and application of an eco-hydrodynamic model for radionuclides in brackish lake- Case study of Lake Obuchi, Japan, bordered by nuclear fuel cycling facilities -. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 268:261-273, 2006.
- 9) Ueda, S., Ohtsuka, Y., Kondo, K., Inaba, J. Sedimentation rate in brackish Lake Obuchi, Rokkasho Village, Japan, bordered by nuclear fuel cycle facilities. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 264:343-349, 2005.

## (9) 海洋における放射性核種の挙動モデルについて



小林 卓也 (Takuya Kobayashi)

(独)日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門  
環境動態研究グループ 研究副主幹  
小林 卓也

### 1. はじめに

使用済燃料再処理施設の平常運転時には、施設から放射性核種が海洋へ計画的に放出される。また、施設で何らかの異常事態が発生した時には、大量の放射性核種が海洋へ放出される恐れがないとは言えない。

使用済燃料再処理施設から平常時に海洋へ放出される放射性核種に起因する環境影響を把握し、また異常時における環境影響を予測することは、施設の安全性を確保し周辺住民及び海洋環境への影響を評価する上で極めて重要である。

海洋環境中に放出された人工放射性核種の移行過程を把握するためにはモニタリングや海洋調査によって得られる観測値から海流場を推定し、核種濃度分布や堆積状況を予測することが可能であるが、観測値のみに依存した推定手法ではデータが存在しない海域に適用することが不可能である。このような場合、数値計算による予測結果は不確かさを伴うものの全体像を把握することが可能であり、数値計算を用いた放射性核種の予測システムは重要なツールと成り得る。従って、観測と数値計算を組み合わせることにより、高精度の推定が可能となる。

本稿では使用済燃料再処理施設周辺海域における数値計算研究の歴史と著者が現在開発を進めている放射性核種の移行モデルの概説及び適用例について紹介する。

### 2. 既往の研究

海洋環境において使用済燃料再処理施設を対象とした数値計算を用いた研究は、1970年代に欧州の使用済燃料再処理施設周辺地域において健康被害が多数報告されたこと及び海水中に高濃度の放射性核種が検出されたことが契機となった。流体力学モデルを用いた研究例としてイギリスでは、アイリッシュ海沿岸域に立地する使用済燃料再処理施設から放出された排液に含まれる放射性核種の分布を詳細に見積もるモデルの開発が Onishi and Thompson<sup>1)</sup> や Howorth and Kirby<sup>2)</sup> によって行われた。これらのモデルは放射性核種が溶存状態、粒子状物質に吸着した状態、そして海底に堆積した粒子状物質に吸着した状態、の

3相間に存在するものとし、それぞれの間の放射性核種の分配が平衡状態にあることを仮定している。Onishi and Thompson<sup>1)</sup> のモデルは鉛直方向を一様とした空間解像度の粗い2次元有限要素モデルを用いていたため、濃度分布が一致するまでには至らなかった。一方、Howorth and Kirby<sup>2)</sup> のモデルは放出口近傍の放射性核種の移行過程を詳細に把握するために2次元差分モデルを放出口近傍のみを高解像度で解く可変格子を採用し、観測値とほぼ一致する濃度分布を再現した。しかしながら計算領域がアイリッシュ海東側海域の中央部のみであり、アイリッシュ海全体を評価することはできなかった。

周辺地域での健康被害の報告後、各国の原子燃料会社は放射性核種の環境への放出量を低減させるプラントの整備に着手し、現在では1970年代と比較して核種放出量が1000分の1以下にまで抑えられるようになった。しかしながら、施設周辺海域では海底に大量に堆積した核種が再溶出することが問題となった。そこで、堆積物と海水との間における核種の交換過程を考慮した詳細な数値モデルの開発が実施された。Perianez<sup>3)</sup> はフランスのラ・アーグ使用済燃料再処理施設周辺海域である英国海峡において、2次元海水循環モデルにより計算された潮汐残差流を入力として、Onishi and Thompson<sup>1)</sup> や Howorth and Kirby<sup>2)</sup> と同様に3相間の放射性核種の移行過程を用いて、それぞれの間の放射性核種が非平衡状態で分配されることを仮定した2次元放射性核種移行モデルを<sup>137</sup>Cs及び<sup>239+240</sup>Puの放出計算に適用し、現実的な予測結果を得るとともに放射性核種の放出点であるラ・アーグからドーバー海峡までの放射性核種の輸送時間を推定した。Aldridge *et al.*<sup>4)</sup> はアイリッシュ海全体を対象海域とした3次元海水循環モデルを用いて潮流場を計算し、波浪推算モデルを用いて堆積物の再浮遊を計算した。これらの結果を入力として、Perianez<sup>3)</sup> と同様の非平衡状態における3相間の核種濃度交換に加えて間隙水中の移行も考慮した2次元放射性核種移行モデルを<sup>137</sup>Cs及び<sup>239+240</sup>Puの放出計算に適用し、30年間の期間にわたり実施した。一連の計算は観測値を良好に再現することに成功した。

国内では使用済燃料再処理施設建設のための事前評価として片野ら<sup>5)</sup>は、再処理施設周辺海域で観測された代表的な流動パターンとして南流・北流・憩流、そして成層・非成層条件を様々に組み合わせた12種類の流動パターンについて平面2次元モデルを用いて現地の流動場を再現した。仮想放出口から放出される放射性核種の挙動を粒子状物質に吸着して沈降する内部スキベンジングと、海水中の核種が直接海底に移行する境界スキベンジングの2種類のモデルを考慮し、核種の移行過程を詳細に評価したが、当時の計算機資源の制約から比較的単純な物理・化学モデルを用いていた。

ボックスモデルを用いた長期影響評価研究としては、使用済燃料再処理施設からヨーロッパ海域に放出される放射性核種による影響を調査するために、英国国立放射線防護庁(NRPB)は北太平洋を対象海域として、海域を17個のコンパートメントに分割し、海産物の摂取による北ヨーロッパの集団線量を評価するモデルを開発した<sup>6)</sup>。一方、国内では日本原子力研究所(現在の日本原子力研究開発機構)が開発した計算コードシステムDSOCEAN<sup>7)</sup>の適用計算として、仮想した使用済燃料再処理施設から海洋へ放出される放射性液体廃棄物に起因する日本全体への集団線量を評価した。

### 3. 海洋中放射性核種移行モデル

日本原子力研究開発機構では日本の沿岸域及び近海域における海水循環と物質移行挙動を明らかにするとともに、海洋中の物質移行を予測するために、海水循環予測コード(POM, RIAMOM)、海水中物質移行予測コード(SEA-GEARN)から構成される海洋環境評価システムの開発・検証を進めている。SEA-GEARN<sup>8)</sup>は多数の粒子群をランダムウォークモデルで追跡することで、放射性核種の移流・拡散を計算するモデルであり、海水循環モデルによって計算される3次元流速値を指定したタイムステップにおいて入力し、放射性核種濃度を予測する。

SEA-GEARNでは海水中に存在する放射性核種が堆積物に除去される機能を導入し、海水中放射性核種濃度の予測精度を向上させている。放射性核種が堆積物へ除去されるためには放射性核種が海水中の粒子状物質に吸着し、それらの沈降速度によって堆積物へ移行する過程を考慮する必要がある。本モデルでは放射性核種の交換過程を図1に示すように定義する。すなわち、溶存放射性核種及び現場濾過器で使用する0.8 μmのフィルターを通過する沈降速度を持たない微小粒子に吸着した放射性核種を溶存

相、沈降速度を持つ大粒子に吸着した放射性核種を大粒子相、海底に堆積した粒子状物質に吸着した放射性核種を堆積物相とする。溶存相は移流と拡散によって、大粒子相は移流、拡散及び粒子の沈降によってそれぞれ移動する。溶存相と大粒子相の間では吸着及び脱着過程により放射性核種がそれぞれの相へ移行する。海底境界条件としては、溶存相と堆積物相は吸着・脱着過程を、大粒子相と堆積物相は堆積・再浮遊過程を考慮する。各相間における放射性核種の移行は速度定数を用いた吸着及び脱着によって可逆的に行われる。

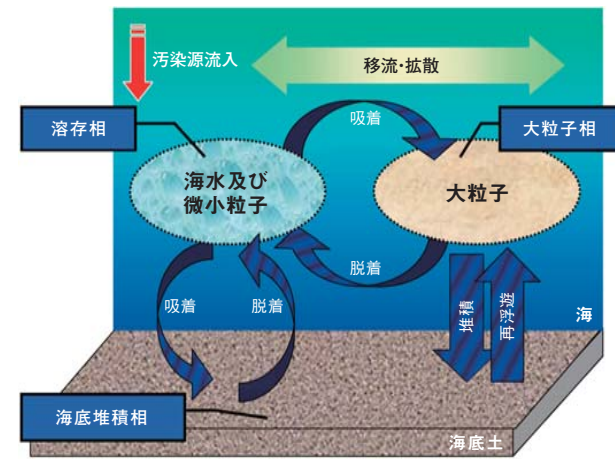


図1: 3相間交換過程の模式図

### 4. 青森県下北沖海域への適用

#### 使用モデルの概要

日本原子力研究開発機構は、日本海洋科学振興財団からの受託研究として、再処理施設から下北沖海域へ放出される放射性核種の移行を予測するシステムの構築を京都大学の協力の下に平成15年度から開始した。このシステムの海洋中放射性核種移行モデルとしてSEA-GEARNが採用された。

対象海域となる下北沖海域は、親潮系水、津軽暖水そして黒潮を起源とする暖水塊の影響を受ける混合水域であり、複雑な海洋構造を持つ海域の流動場及び密度場を正確に再現するためには、高精度な海水循環モデルが必要である。そのため、京都大学が開発した海洋大循環モデル(以下、京大海洋モデル)を用いた。

京大海洋モデル<sup>9)</sup>は、球座標系において静水圧近似、ブシネスク近似を仮定し、有限差分法により数値的に解く。鉛直方向には自由表面を扱うために上層数レベルにσ座標系、下層にz座標系を用いたσ-zハイブリッド座標系を採用している。放射性核種等のトレーサーの移行を精度良く再現するために拡散係数のパラメタリゼーションに関し

て、水平方向には等密度面拡散スキーム<sup>10,11)</sup>を、鉛直方向にはNoh<sup>12)</sup>の乱流クロージャスキームを採用し、海表面の混合層の再現性を向上させている。また、海水モデル<sup>13,14)</sup>を導入し、冬季に海水で覆われるオホーツク海の再現性を向上させている。

京大モデルには実時間予測または過去の事象の再解析を実施することを目的として、観測データと数値モデルを融合するデータ同化手法である4次元変分法を用いている。4次元変分法は、空間3次元と時間1次元の4次元場において、京大海洋モデルで用いる方程式群を制約条件として、設定された対象期間において観測値を同化するものであり、数値モデルの順方向計算と、アジョイント方程式(数値モデルの結果と観測値との差異を計算する)の逆計算を繰り返すことにより最適解を求める。データ同化手法の詳細に関しては、蒲地<sup>15)</sup>、印ら<sup>16)</sup>、In et al.<sup>17)</sup>、Ishikawa et al.<sup>18)</sup>などを参照されたい。

### 5. 適用例

下北沖海域における海水中及び海産物中放射性核種のモニタリングは、日本原燃株式会社をはじめ複数の機関によって実施され、モニタリングデータは定期的に公開されている。図2に海洋生物環境研究所が下北沖海域で収集し、分析した海産物の組織自由水型<sup>3</sup>H濃度(平成16~18年)<sup>19-21)</sup>を示す。図を見ると2006年11月30日に漁獲されたクロソイの<sup>3</sup>H濃度は公衆の被ばく線量に影響を与えるものではないが他に比べて高い<sup>21)</sup>。

クロソイは水深100m以浅の岩礁域に生息することが知られているためクロソイが沿岸域で漁獲されたと仮定し、本システムを用いて再解析計算を行い、該当期間において再処理施設起因の<sup>3</sup>Hが沿岸に到達する可能性について検討した。

京大海洋モデル及びSEA-GEARNの計算条件は小林ら<sup>22)</sup>による下北沖海域におけるケーススタディと同様である。即ち、データ同化計算及び2段のネスティング計算を経た下北近海モデルの流動場をSEA-GEARNの計算に使用した。計算領域は東経138.5-145.6度、北緯38.5-43.3度である。水平解像度は北緯41度付近で東西約1.55km、南北約1.54km、鉛直78層に分割した。

再処理施設からの放出濃度は、再処理事業変更許可申請書<sup>23)</sup>に記載されている放出

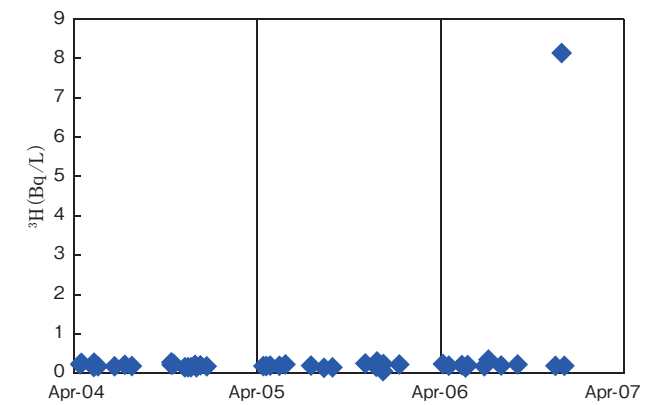


図2: 六ヶ所沖海産物の組織自由水型<sup>3</sup>H濃度(2004-2006)(御園生ら<sup>19-21)</sup>より作成)

管理目標値(約 $1.8 \times 10^{16}$  Bq yr<sup>-1</sup>)を参考にした。放出条件は、一定濃度で6時間継続する放出を毎日繰り返す間欠放出とし、放出期間は2006年10月1日1時~12月4日1時とした。放出濃度は、間欠放出を毎日継続した時の年間積算濃度が放出管理目標値に一致すると考え、 $8.2 \times 10^{12}$  Bq h<sup>-1</sup>とした。放出位置は海岸から沖合約3km(北緯141.4度、東経40.96度)、水深0mとした。

図3にSEA-GEARNによって計算された2006年11月7日16時における表層<sup>3</sup>H濃度分布を示す。<sup>3</sup>Hは溶存態として海水と同様の移行挙動を示すため、海流によって輸送される。放出された<sup>3</sup>Hの多くは沿岸に沿って南下するが、北上して尻屋崎で離岸し、夏から秋に卓越する渦モードに取り込まれる<sup>3</sup>Hも存在する。

次に図3に示す尻屋沖、小田野沢沖、平沼沖、三沢沖に

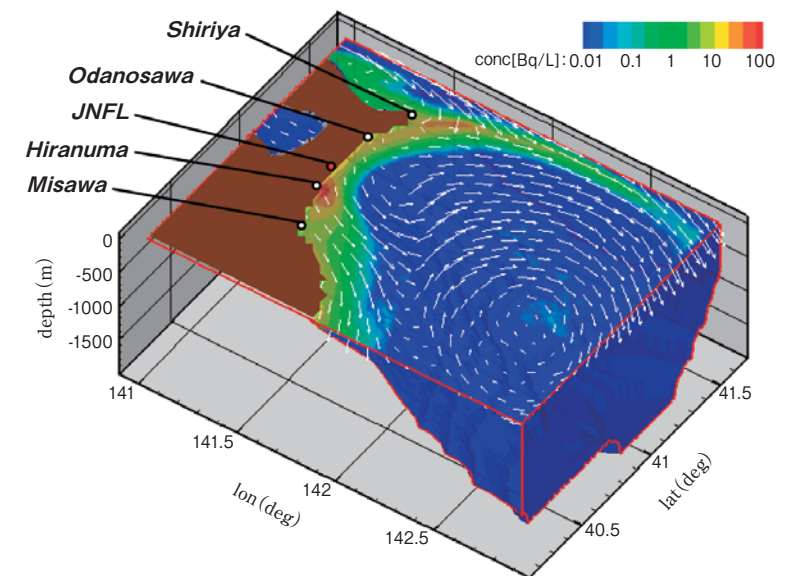


図3: 表層<sup>3</sup>H濃度分布(2006/11/7 16:00)

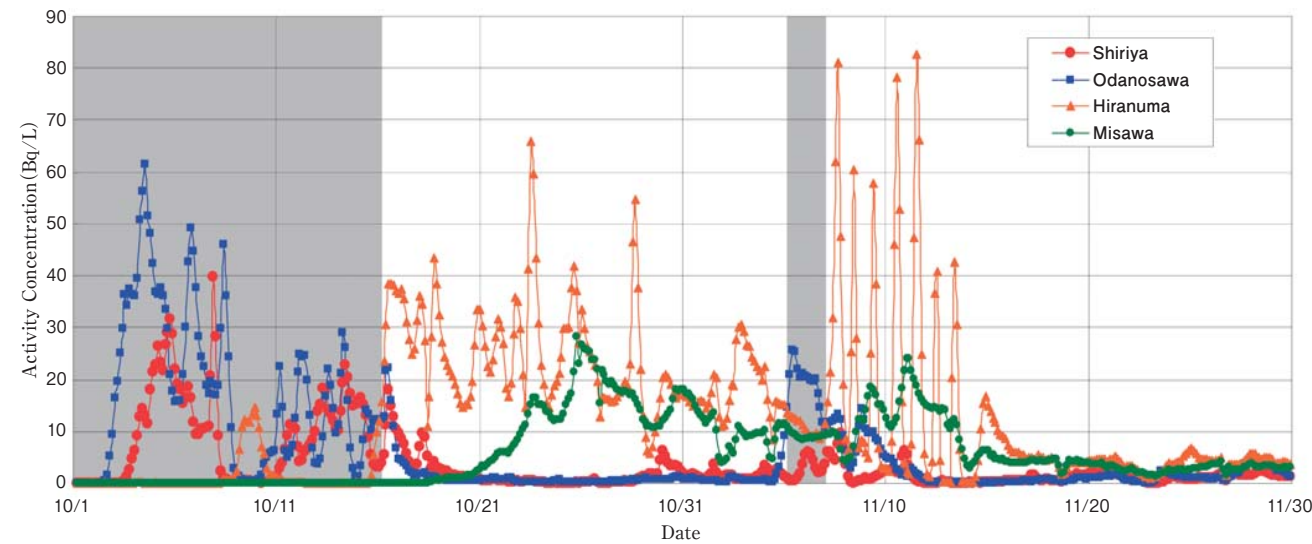


図4: 表層における<sup>3</sup>H濃度の経時変化

対応するグリッドにおける表層<sup>3</sup>H濃度の経時変化を図4に示す。10月1日から16日及び11月5日から7日までの期間（ハッチ部分）は放出口よりも北で高濃度域が分布し、それ以外の期間では放出口よりも南で高濃度域が分布する。特に放出口に最も近い平沼沖では高濃度のピークが出現し、最大濃度は平沼沖で11月11日に82.6 Bq L<sup>-1</sup>であった。再処理施設の運転開始前の下北沖海域の表層<sup>3</sup>H濃度は100–240 mBq L<sup>-1</sup>であり<sup>24)</sup>、放出管理目標値を用いた平常運転時の沿岸域における<sup>3</sup>H濃度は最大で約800倍上昇する可能性がある。このように、下北沖海域の流動場は絶えず変化するため再処理施設から放出される液体放射性核種は複雑な分布を示すことがわかる。今回の計算結果から再処理施設起因の<sup>3</sup>Hが沿岸に到達することは明らかであり、今後バックグラウンド値の800倍の濃度の<sup>3</sup>Hが検出される可能性がある。ただし、青森県<sup>25)</sup>は、再処理施設の操業に伴う環境モニタリングへの影響として、海水中<sup>3</sup>Hの施設寄与分（増分）として300 Bq L<sup>-1</sup>を予測している。図4で示した<sup>3</sup>H濃度の変動範囲は0–82.6 Bq L<sup>-1</sup>であり、青森県による想定範囲内である。

## 6. 今後の予定

今後は実運用を目指したシステムの軽量化・高速化を検討するとともに、様々な条件を想定した計算を実施し、信頼性の高いシステムの構築を目指す。

## 7. 謝辞

本研究の成果の一部は、青森県の大型再処理施設等放射能影響調査交付金による「六ヶ所村沖合海洋放射能等調査」によって行われたものである。ここに記して謝意を表す。

## 参考文献

- 1) Onishi Y., Thompson F.L.: Mathematical simulation of sediment and radionuclide transport in coastal waters, NUREG/CR-2424, Richland, Pacific Northwest Lab., 1984.
- 2) Howorth J.M., Kirby C.R.: Studies of environmental radioactivity in Cumbria. Part II: Modelling the Dispersion of Radionuclides in the Irish Sea, AERE/R-11734, Oxfordshire, Harwell Laboratory, 1988.
- 3) Periáñez, R.: Modelling the tidal dispersion of <sup>137</sup>Cs and <sup>239,240</sup>Pu in the English Channel. *J. Environ. Radioact.* 49(3):259-277, 2000.
- 4) Aldridge, J. N., Kershaw, P., Brown, J., McCubbin, D., Leonard, K. S., Young, E. F.: Transport of plutonium (<sup>239,240</sup>Pu) and caesium (<sup>137</sup>Cs) in the Irish Sea: comparison between observations and results from sediment and contaminant transport modelling. *Cont. Shelf Res.* 23: 869-899, 2003.
- 5) 片野尚明, 水島雅文, 仲敷憲和, 和田明: 排液海洋拡散予測モデルの開発, 電力中央研究所研究報告, U88070, pp.64, 1989.
- 6) Clark, M., Grimwood, P., Camplin, W.: A model to calculate exposure from radioactive discharges into the coastal waters of northern Europe, NRPB-R109, Harwell, NRPB, p.52, 1980.
- 7) Togawa O.: Computer code system DSOCEAN for assessing the collective dose of Japanese due to radionuclides released to the ocean from

a reprocessing plant, *J. Nucl. Sci. Technol.* 33: 792-803, 1996.

- 8) Kobayashi, T., Ootosaka, S., Togawa, O., Hayashi, K.: Development of a non-conservative radionuclides dispersion model in the ocean and its application to surface cesium-137 dispersion in the Irish Sea, *J. Nucl. Sci. Technol.* 44: 238-247, 2007.
- 9) 豊田隆寛: 北太平洋亜熱帯モード水及び亜寒帯中暖水の海洋モデリング研究, 京都大学修士論文, 2002.
- 10) Gent P.R., McWilliams J.C.: Isopycnal mixing in the ocean circulation model, *J. Phys. Oceanogr.* 20: 50-155, 1990.
- 11) Griffies S.M.: The Gent-McWilliams skew flux, *J. Phys. Oceanogr.* 28: 831-841, 1998.
- 12) Noh Y., Sensitivity to wave breaking and the Prandtl number in the ocean mixed layer model and its dependence on latitude, *Geophys. Res. Lett.* 31: Art. No. L23305, 2005.
- 13) Ikeda M.: A coupled ice-ocean mixed layer model of the marginal ice zone responding to wind forcing, *J. Geophys. Res.* 94: 9699-9709, 1989.
- 14) Ikeda M.: Snow cover detected by diurnal warming of sea ice/snow surface off Labrador in NOAA imagery, *IEEE Trans. Geosci. Remote Sens.* 27: 552-560, 1989.
- 15) 蒲地政文: 変分法による随伴方程式を用いたデータ同化作用について, *ながれ* 13: 440-451, 1994.
- 16) 印貞治, 島茂樹, 中山智治, 石川洋一, 外川織彦, 小林卓也, 川村英之, 下北沖海域における海況予測システムの構築, *月刊海洋* 37: pp.674-680, 2005.
- 17) In T., Nakayama T., Matsuura Y., Shima S., Ishikawa Y., Awaji T., Kobayashi T., Kawamura H., Togawa O., Toyoda T.: The oceanic forecasting system near the Shimokita Peninsula, Japan, *International Symposium on Environmental Modeling and Radioecology.* Aomori, Japan, pp. 58-64, 2007.
- 18) Ishikawa, Y., Awaji, T., Toyoda, T., In, T., Nishina, K., Nakayama, T., Shima, S.: High-resolution synthetic monitoring by a 4-dimensional variational data assimilation system in the northwestern North Pacific. *J. Mar. Sys.*, 2009(in press).
- 19) 御園生淳, 小島健治: 海産生物の<sup>3</sup>H濃度レベル, 第

47回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成16年度）, 文部科学省, pp.73-74, 2005.

- 20) 御園生淳, 太田博, 佐藤肇, 原猛也, 鈴木千吉: 海産生物の<sup>3</sup>H濃度レベル, 第48回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成17年度）, 文部科学省, pp.69-70, 2006.
- 21) 御園生淳, 太田博, 川辺勝也, 鈴木千吉, 原猛也, 佐藤肇: 海産生物の<sup>3</sup>H濃度レベル, 第49回環境放射能調査研究成果論文抄録集（平成18年度）, 文部科学省, pp.67-68, 2007.
- 22) 小林卓也, 印貞治, 石川洋一, 松浦康孝, 島茂樹, 中山智治, 淡路敏之, 川村英之, 外川織彦: 下北沖海域における海洋中放射性核種移行予測システムの構築とケーススタディ. *日本原子力学会和文論文誌* 7: 112-126, 2008.
- 23) 日本原燃株式会社: 再処理事業変更許可申請書, 日本原燃株式会社, 1996.
- 24) Misonoh J., Inatomi N.: The level of radioactivities in marine environment off the pacific coast of Aomori Prefecture, Japan, *International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry.* Aomori, Japan, pp.372-376, 2004.
- 25) 青森県, 原子力施設環境放射線調査報告書（平成17年度報）, 青森県原子力センター, p.289, 2006.



## 弘前高校生津島修治の学習ノート 市川龍資

青森県立近代文学館（青森市）は、太宰治（本名津島修治）が旧制弘前高等学校に昭和2年入学し勉強した頃のノートを所蔵していて、平成20年初め頃、「英語」と「修身」のノートを全ページ写真にとったものを一冊にまとめ、資料集として発行した。

ぼくは興味をそそられてこれ入手し、読んでみた。ところが残念なことに、ぼくにはほとんど読めないのである。悪筆というわけではなく、よほどあわてて書いたとみえて、字がぐずれたり抜けたりして判読が困難なのである。思うに、たとえば英語の場合、前日に真面目に予習して、つたない訳であってももしっかり記述してあれば読める筈である。

しかし彼は予習をしていないとみえ、先生が教科書を訳して行くのを急いでノートに記述したためこのような難解な文字で訳文が書かれてしまったと想像される。先生の訳読が速くて、記述がなかなか追いつかなかったのであろう。そんなに速く訳されては生徒は可哀そうである。

英語のノートの表紙の左上に弘前高校のマークが印刷されているから、これはこの学校の指定のノートであることがわかる。表紙上方には教わったテキストの題名である「Johnson&Goldsmith Essays by T.B.Macaulay」とやや読める字で書かれており、下方にThe Hirosaki High School L.1.1 S.Tsushimaと書かれている。L.1.1は文科1年1組の意味であろう。

英語ノートの或るページの一部分に、英語テキストとは関係のない余計な文章が斜め縦書きに記されている。ぼくは気づかなかったが、資料集の末尾についている東京大学の安藤宏先生の解説文の中にこれが指摘されていた。それは詩のようなもので、安藤先生が読みとったところによると、次のように書かれているという。

「橄欖の実が ほろほろと 月の光に散って行く  
TaRanTuLa! 蜘蛛に咬まれた若者は 空をみつめて  
舞い狂ふ 哀れ悲しく舞い狂ふ」

ここにでてくる Tarantula というのは西洋の毒ぐもの名である。津島修治の繊細な感覚を持つ文才がこの頃か

ら現われていることを推測させる作品である。

弘前高校生時代から青森市の花柳界に通っていた津島修治と「修身」とは余りにも似つかわしくない組合せであるが、「修身」のノートが残っているので、この講義に出席していたことは確かである。今は修身などという科目は小中学校にも無いと思うが、ぼく達の時代（昭和初期）は小学校6年間と中学1および2年にはこの科目があったと記憶する。何を教わったのか忘れてしまったが、二宮金次郎とか、明治天皇のこととかそのようなことを教わったような気がする。

弘前高校で修身の科目があったとはぼくには初耳だった。推測するに、大正から昭和の初め頃にかけて、社会主義思想が西洋から日本に伝えられ、多くの学生や若者たちが、その頃いわゆる左翼思想と言われる考え方に新鮮な魅力を感じた時代だったことから、これに対処べく国家のあり方とか天皇制などについて教えていたのではないだろうか。

津島修治の修身のノートも先生の話の口述筆記なので急いで書く必要から読みづらい文章になっている。そして、英語のノートもそうであったが、ノートの余白に講義とは無関係の言葉や人間の顔が多数描かれている。先生の顔や津島修治自身の自画像と思われる。顔絵のそばに my father という語句がいくつも記されているので、それは彼の父親の顔を描いたものだったのだろうか。よくわからないが。

「修身」のノートの特徴は、文章が漢字と片仮名で記述されていることである。「英語」のノートは漢字と平仮名で書かれており、何故「修身」のノートに片仮名が使われているのか、謎である。

両ノートとも多数の絵や勉強以外の言葉の記述が余白部分に見られることから、津島修治は授業中、別の世界に入りこむことがしばしばあったと思われる。そのことが反映して興味深いノートになっている。

ICHIKAWA RYUSHI(元放医研科学研究官)

## 編集後記

桜の開花の便りが北上する季節を迎え、目でも春を満喫できる頃になりました。海にも春の訪れを知るものがあります。立春の頃より、磯では海藻の種子が岩場に付着し成長が始まります。また沖では海面が変色するほどのプランクトンブルーム（大発生）がおきます。現在、人工衛星に搭載されているセンサーから全海域の水温や植物プランクトンの存在量等の情報を、ほぼリアルタイムで知ることができます。ただ、これは海洋の表面だけの情報です。海の中の物質の動きまで知ることはできません。海の中の情報は、ほとんど現場調査から得たものです。しかし大海原を相手に調査船で行った観測点を海図にプロットすると、わずかな点にしか過ぎません。でも確たる証拠を得るには、この積み重ねが大切です。

今月号は、昨年12月に放医研で開催しました「海洋環境放射能ワークショップ」の内容をまとめたものです。那珂湊支所で行われている研究ハイライトと関連する研究機関の研究結果が紹介されております。「海洋」という現場で行われている研究の現状について、ご理解をいただければ幸いです。ご存知のように、那珂湊支所は平成22年度で廃止されます。しかし、放医研では、人間を含む海洋環境の安全を担保するため、千葉本所においても海洋環境放射能の研究は継続いたします。今後とも宜しくお願いいたします。(TA)

## 次号予告

### 特集 国際機関活動報告

- 1)「核医学科医の国際活動」  
—国際原子力機関—  
企画部 渡邊 直行
- 2) IAEAによる原子力文献情報提供活動  
—国際原子力情報システム—  
日本原子力研究開発機構 研究技術情報部  
長屋 俊、倉上 順一、峯尾 幸信、米澤 稔

### 最近の成果 両親由来の染色体DNA断片を1分子レベルで個別に増幅する技術

重粒子医学センター ゲノム診断研究グループ  
\*東京歯科大学 口腔外科学  
道川祐市、菅原圭亮\*、菅 智、莊司好美、石川顕一、石川敦子、塩見尚子、塩見忠博、岩川眞由美、今井高志

### 編集委員会

委員長	酒井 一夫		
委員	内堀 幸夫	金澤 光隆	石井 伸昌
	白川 芳幸	小橋 元	立崎 英夫
	高田 真志	菊池 達矢	鈴木 敏和
	玉手 和彦	長谷川純崇	杉森 裕樹
	加藤 博敏	神田 玲子	
事務局	岡本 正則		



水生動物舎前に咲いている2種類の桜

# 放射線科学

## 第52巻 第3号

2009年3月15日発行

### 編集・発行

独立行政法人 放射線医学総合研究所  
〒263-8555 千葉市稲毛区穴川4-9-1  
電話 043(206) 3026 Fax.043(206) 4062 Eメール info@nirs.go.jp  
本誌 URL:http://www.nirs.go.jp/info/report/rs-sci/index.shtml  
(禁無断転載)



<http://www.nirs.go.jp>