

学位論文題名

ラドン-222とラジウム-226を用いた
海水流動と気体交換に関する研究

学位論文内容の要旨

ラドン-222 (^{222}Rn) とラジウム-226 (^{226}Ra) は、ウラン壊変系列に属する天然放射性核種である。 ^{222}Rn は、希ガス類に属するため化学的、生物学的影響を受けない。そのため、物理的過程を追跡するトレーサとして用いられてきた。また、その半減期が 3.8 日であることから、数日から 1 週間程度の事象を解明するのに適している。 ^{226}Ra は、アルカリ土類金属と同じ性質を示し、海水中ではイオンの状態で安定に存在するため、水の動きのトレーサとして注目されてきた。また、海水中のラジウムの分布は、水の混合だけでなく、生物起源粒子による循環に支配されていることが示された。そこで、本研究では、これらをトレーサとして用い、冬季荒天時の大気海洋境界面を通しての気体交換に関する研究と生物活動の活発な沿岸域での海水流動およびそれらの挙動に関する研究を行った。

大気海洋境界面を通しての気体交換は、近年地球温暖化問題で注目されている二酸化炭素の物質収支を見積もる上で非常に重要なファクターの一つである。大気海洋境界面を通しての物質のフラックスは、Liss and Slater(1974)の 2 層膜モデルから気体交換速度と大気と海洋の物質の濃度差との積で求められる。近年二酸化炭素の大気海洋間のフラックスを見積もる際の気体交換速度の決定に、Liss and Merlivat(1986)や Tans et al.(1990)などにより報告されている風速との関係式が多く用いられている。しかしながら、Liss and Merlivat(1986)の関係式を用いると放射性炭素の存在量から見積もった場合とで異なることが指摘されており、その原因の一つとしてその関係式に強風時の効果が十分に反映されていないことがあげられる (Siegenthaler and Sarmiento, 1993)。そこで、強風時の気体交換速度の決定が注目され盛んに行われているが、Watson et al.(1991)の結果は Liss and Merlivat(1986)の関係式を支持するにとどまった。しかし、Tsunogai and Tanaka(1980)や Wanninkhof and McGillis(1999)は、気体交換速度が風速の 2 乗から 3 乗に比例すると報告しており、Liss and Merlivat(1986)の関係式より、風速に強く依存していると述べている。今回観測を行った北西部北太平洋は、冬季に発達した低気圧が通過し、気体交換が活発に行われていることが予想される海域である。そこで、北西部北太平洋の 10 地点において、表層 300m 程度までの ^{226}Ra と ^{222}Rn の鉛直分布を 15 得、 ^{226}Ra に対する ^{222}Rn の不足量から、大気海洋境界面を通しての気体交換速度を見積もった。しかし、この方法は、計算の過程において定常状態を仮定しており、実際 ^{222}Rn の平均寿命の数倍の期間、風速が一定であることはあり得ず、得られた値が過大または過小評価されていることが予想される。よって、得られる気体交換速度が、どのような条件の時に過大または過小評価されるかについての検討も行った。

得られた気体交換速度は、2.1 から 30.2 m day⁻¹ と大きく変化していた。その平均値は、9.3±8.1 m day⁻¹ で、同海域の夏季の値 (2.1 m day⁻¹) に比べ約 5 倍大きな値であった。また、今回得られた最大値 (30.2 m day⁻¹) は、これまでで初めて得られた値である。この値について Liss and Merlivat(1986)の関係式を用い、風速を逆算すると 34.1 m sec⁻¹ となり、数日の平均風速としては現実的な値ではない。この原因としては、定常状態を仮定したラドン法での見積もりが過大評価しているか、Liss and Merlivat(1986)の関係式が過小評価しているためと考えられる。そこで、非定常に ²²²Rn の大気への放出が起こると仮定し、モデル計算を行った結果、非定常の放出直後が、定常状態で仮定した気体交換速度が最も過大評価されることがわかった。今回得られた最大値の観測 2 から 3 日前に風速 20 m sec⁻¹ 程度の強風が吹いており、荒天直後の観測であったことから、過大評価していると考えられる。そこで、非定常の交換モデルを適用したところ、約 15% 過大評価していた。しかし、まだこの値は大きい。ゆえに今回得られた結果の平均値が、冬季のこの海域の平均的な状態を表していると思われる。このことから、冬季の北部北太平洋は、気体交換において非常に重要な海域であるといえる。また、これまでの研究により報告されている気体交換速度と風速との関係式 (例えば Liss and Merlivat, 1986) は、外洋での風速の強い海面が非常に荒れた状況では気体交換速度を過小評価していると言える。

²²⁶Ra は、海水中ではイオンの状態で安定に存在し、水の動きのトレーサとして用いられてきた。同時に、ケイ素やバリウムとの相関から生物起源粒子による循環に支配されていることが示された。Tsunogai and Harada(1980)は、生物生産が活発で底層で大きなケイ素の再生がみられるベーリング海において ²²⁶Ra の鉛直分布を得、ベーリング海外側の北部北太平洋での分布よりも底層近くで濃度が高くなっていることを示した。この原因として、ベーリング海の活発な生物生産が影響していると指摘した。北海道噴火湾は、春季に植物プランクトンブルームが発生する生物生産の活発な海域であると同時に、年 2 回春と秋に外洋水が流入する特異的な海域である。夏と冬には外洋水との交換が弱まるため、準閉鎖的な海域となり、湾内固有の特性を持つ。そこで、北海道噴火湾において、海水中の ²²⁶Ra 濃度の周年変動を測定し、生物活動との関わりについて検討を行った。

その結果、底層水において夏季に ²²⁶Ra 濃度が高くなるという変動が確認された。この原因として、河川水の流入、外洋水の流入、堆積物からの溶出、生物活動による影響、地下水等のしみ出しが考えられるが、海水中のケイ酸塩態ケイ素の周年変動が同じ傾向を示すこと、またケイ酸塩態ケイ素との間に強い相関が見られることから、植物プランクトンが増殖する際に ²²⁶Ra を取り込み、その後遺骸となり生物起源粒子として沈降する過程において分解され、表層で取り込まれた ²²⁶Ra が再び海水へと戻ってきたためと考えられる。ゆえに、海水中での ²²⁶Ra の挙動に生物活動が深くかかわっていることが確認された。

²²²Rn は、半減期が 3.8 日と比較的短いこと、希ガスであるため海水中で化学的、生物学的影響を受けないことから、数日から 1 週間程度の物理的過程を追跡するトレーサとして、注目されてきた。海水中の ²²²Rn は、海水中の ²²⁶Ra から生成されるものと海底堆積物中で ²²⁶Ra から生成し、海水へと移行してきたものからなる。水深の浅い沿岸域では、外洋域と異なり、大気への逃散、河川からの流入、海底堆積物からの溶出等、いくつかの過程が複合された結果を表している。そこで、北海道噴火湾において、底層での鉛直渦拡散係数と堆積物からの溶出速度を見積もった。

噴火湾底層水中の過剰ラドン (親核種の ²²⁶Ra に対し過剰に存在する ²²²Rn) の鉛直分布

から、定常状態を仮定し1次元で鉛直渦拡散係数を見積もったところ、夏季成層化した時期は、0.7 から $23.5 \text{ cm}^2 \text{ sec}^{-1}$ で、外洋域での結果に比べ小さく、鉛直方向の混合が活発には行われていないと思われる。また、水柱での過剰ラドン量から、堆積物からの ^{222}Rn の溶出速度を見積もったところ、23 から $146 \text{ atoms m}^{-2} \text{ sec}^{-1}$ で、季節的な変化は見られなかった。また、外洋域での結果と比較して、堆積物中の ^{230}Th 濃度から予想される ^{226}Ra 濃度が数分の一から数十分の一であるにもかかわらず、その溶出速度は、同程度か半分程度であった。

学位論文審査の要旨

主 査 教 授 角 皆 静 男
副 査 教 授 乗 木 新一郎
副 査 助 教 授 田 中 教 幸
副 査 助 教 授 渡 辺 豊
副 査 助 教 授 谷 本 陽 一
副 査 教 授 蒲 生 俊 敬 (北海道大学大学院理学研究科)
副 査 主 任 研 究 員 原 田 晃
(独立行政法人 産業技術総合研究所)

学 位 論 文 題 名

ラドン-222とラジウム-226を用いた 海水流動と気体交換に関する研究

ラドン-222 (^{222}Rn) およびラジウム-226 (^{226}Ra) は、天然に存在する放射性核種である。これら放射性核種は、固有の半減期を持つことから、時間を与える有効なトレーサとして用いることができる。また、 ^{222}Rn は、 ^{226}Ra の放射壊変により生成され、半減期が ^{226}Ra に比べ非常に短いことから、他の系から付加されたり、他の系へ除去されたりしなければ、約1ヶ月程度で放射平衡に達し同じ濃度となる。この放射平衡からのずれを読みとることにより、地球化学的な諸現象を解明することができる。申請者は、これらのトレーサを二つの項目に適用した。これら核種を用いての諸現象を解明するにあたり、分析法の改良を行っている。それは、半減期が3.8日と短い ^{222}Rn は、試料採取後短時間のうちに親核種である ^{226}Ra から分離する必要があるため、多くの試料を処理するためには、多くのシステムを必要とした。しかし、船上など限られた空間では限界がある。そこで、海水試料から ^{222}Rn を脱気し吸着剤に濃縮捕集する部分と、吸着剤から α シンチレーションセルに移す部分とを分離することによって、効率よく多量の試料を短時間に親核種から分離、処理することを可能とした。

まず一つは、北西部北太平洋の表層水において、冬季に鉛直分布を得、 ^{226}Ra に対する ^{222}Rn の不足量から気体交換速度を見積もった。その結果、得られた気体交換速度は、2.1~30.2 m/day と大きく変化しており、その平均値は、10.4 m/day であった。最大値の30.2 m/day は、これまでの観測では初めてのものであった。また、平均値も同海域の夏季の値に比べ、5倍も大きな値であった。荒天時の気体交換速度の実測例は、非常に希であり、気体交換が活発に行われている様を捉えた貴重な知見である。しかし、気体交換速度を求めるのに用いた ^{226}Ra に対する

^{222}Rn の不足量から計算法は、定常状態を仮定していることから、時には過大・過小評価することが指摘されていた。その点についても、非定常で気体交換が行われたことを想定してのモデル計算を行い、荒天直後に観測を実施すると最も過大評価することを指摘した。実測で得られた最大値について、その計算を適用し、再見積を行った結果、15%程度過大評価していることを示した。しかし、再見積を行った結果もまだ大きな値であること、また、過大評価だけではなく過小評価している場合もあり、多くの結果を平均することにより、キャンセルされる部分もあることから、今回得られた結果は、今後の大気海洋境界面を通して物質収支を見積もる上で、有益な結果であると言える。

もう一つは、生物活動の活発な沿岸域の北海道噴火湾において、約一年間にわたり、 ^{226}Ra と ^{222}Rn の鉛直分布を得、それら核種の挙動と生物活動との係わり及び海水流動の様子について評価した。

その結果、 ^{226}Ra については、夏季に底層水で高濃度になる現象を捉えた。 ^{226}Ra は、一般的にはアルカリ土類金属と同じ性質を有することから、海水中ではイオンで安定に存在すると言われている。しかし、同時に生物活動の影響についても指摘されてきた。夏季の底層水で高濃度になる原因として、5つの項目をあげ検討し、春季に発生するプランクトンブルームにより生成される沈降粒子が海底へと運ばれる過程において、海水へと再生したためであることを明確にし、海水中での ^{226}Ra の挙動に生物活動が影響していることをより鮮明に示した。また、 ^{222}Rn については、得られた鉛直分布から水平拡散や鉛直渦拡散の様子が見て取れる。夏季で噴火湾水が停滞すると言われている時期は、 ^{226}Ra に対して過剰に存在する ^{222}Rn 濃度が海底から離れるに従い指数関数的に減少していた。その鉛直分布から一次元で鉛直渦拡散係数を計算したら、外洋に比べ小さく、鉛直混合があまり活発でないことを捉えた。また、海水中の ^{226}Ra に対して過剰に存在する ^{222}Rn 存在量から、海底からの ^{222}Rn の放出速度を計算している。その放出速度は外洋域に比べ小さいものの、堆積物中の親核種である ^{226}Ra 濃度の差に比べ、放出速度の差は小さいことから、放出効率が高いと予想される。その原因としては、生物攪乱による影響が考えられる。今回得られた結果から、生物活動の活発な沿岸域での ^{226}Ra および ^{222}Rn の挙動に、生物活動の影響が大きいことを明らかにした。

審査員一同は、これらの成果を高く評価し、また研究者として誠実かつ熱心であり、大学院課程における研鑽や取得単位なども併せ申請者が博士（地球環境科学）の学位を受けるのに十分な資格を有するものと判定した。