

岡山県児島湾における密度流拡散装置周辺の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の深度別変化

野村律夫¹・辻本 彰¹・福田賢一²・石黒貴裕³

Depth difference of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios around density current generator installed in Kojima Bay, Okayama, Japan

Ritsuo Nomura¹, Akira Tsujimoto¹, Kenichi Fukuda² and Takahiro Ishiguro³

Abstract: Radium isotope is useful to distinguish water masses in coastal water. In Kojima Bay we measured $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios to understand the influence of mixed water using a density current generator. Mn-impregnated fiber was used to collect dissolved Ra from upper (1.2-1.3 m), middle (2.9-3.0 m) and lower water (1.0 m above the bottom floor) at three locations distributed in 400 m apart each. The monthly variations of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios were partly related to salinity and to oxygen content of the water. Except for the lower water, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios in the upper and middle water indicate a 3.7-7.9 with little variation at each location. A clear seasonal variation of the ratios was not indicated, but a monthly variation was conspicuous in Winter and Spring. The monthly variation was clearly indicated in the locations near the density current generator and was more distinct when the density current generator was working. The location most far from the generator indicates that the monthly $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios little varied. Euclidean distance suggests the close relation of the upper and middle water near the generator, but the lower water was not closely related to the upper and middle waters even in the same location.

Key words: $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio, tracer of water mixing, environmental radioactivity, Kojima Bay, density current generator

¹ 島根大学 教育学部 地学研究室 Lab of Geology, Fac. of Education, Shimane University, Matsue 690-8504, Japan.

² ナカシマプロペラ (株) Nakashima Propeller Co. Ltd., Okayama 709-0625, Japan.

³ 岡山県農林水産総合センター Okayama Prefectural Technology Center for Agriculture, Forestry and Fisheries, Setouchi 701-4303, Japan.

はじめに

瀬戸内海では、長年にわたる自然海岸の埋め立てや護岸工事によって浅場が大きく減少し、魚貝類の生育場の減少と環境の悪化が問題となっている。また、河川環境の人為的改変は、河川内ばかりでなく、沿岸生態系のバランスの崩壊へと繋がり、漁業資源へも深刻な影響を及ぼしている。瀬戸内海の沿岸漁業の経済的基盤となっているノリ養殖で起こっているノリの色落ち現象は、これら瀬戸内海の近年の環境変化を反映した問題のひとつとしてあげられる(堀ほか, 2008; 藤原・駒井, 2009; 高木ほか, 2009 a, b)。岡山県沿岸でもノリ養殖漁場が多くあるため、深刻な被害を受けている(高木ほか, 2009 a)。ノリの色落ち現象と深く関わっている栄養塩は、溶存態無機窒素(DIN)濃度の減少によるとみられている(高木ほか, 2009 b; 2012 a, b)。DINは河川を通じて陸域から供給されるほか、水域内でも濃度分布が異なる。したがって、沿岸水におけるDINの分布の特徴を理解するためには水の動的な理解が重要となる。また、水の動的な理解は、生態系・資源の保全再生へ向けた応用面に関わる基本的情報をもたらしてくれる。

児島湾湾奥部にある密度流拡散装置(density current generator)は、水中の栄養塩類を垂直的に混合させ、特定の深さで側方に拡散させることや水の攪拌による富栄養化した水域の改善を目的として2010年12月に設置された。効率的な水の垂直混合と側方拡散が行われれば、この装置による水の循環を介して水理的・生態的環境の改善が期待されることである。本報告は、この装置によって水の動きが周辺へどのような影響を与えているのか、学術的にそのメカニズムを解明することを目的としている。我々は、この装置周辺の水がどのような動態をもっているか、環境放射能であるラジウム同位体比から理解することを試みた。

$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比

ラジウムの同位体には半減期を異にする主な核種として、トリウム系列の ^{228}Ra (半減期5.75年)と ^{224}Ra (3.66日)、ウラン系列の ^{226}Ra (1600年)があり、陸水・海水に非保存性の元素として存在している。河川中では粒状物質に付着して運搬され、海水中では粒子態から放れて溶存態として振る舞う。各同位体の存在量は、水中のイオン強度や水の滞留時

間に応じて異なるため水の履歴を反映している。そのため、目印が付けにくい水の動きや性質を相互に関連させるのに好都合である。海洋では水塊ごとの化学的類似性からラジウムをもとに海洋循環や水塊の動きをとらえるトレーサーとして利用されてきた(Okubo, 1980; Yamada and Nozaki, 1986; Nozaki, et al., 1989; Inoue, et al., 2005, 2006; Kawakami and Kusakabe, 2008)。

それぞれのRa同位体は、化学的性質が同じであるため、半減期の長い ^{228}Ra と ^{226}Ra の水中における放射能比は、粒子に付着した $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比に近い。また、同様に親核種である $^{232}\text{Th}/^{230}\text{Th}$ 比にも近くなる(Moore, 2003; Moore et al., 2006)。しかし、海水の影響を受けて、粒子から放れた各同位体が生物集塊などに付着して沈降し海底や湖底に堆積していくと、親元素のThからの生成と同位体の半減期の違いによって、放射能比は異なってくる。もし、 ^{228}Ra と ^{226}Ra が一定量の崩壊をしたら、 ^{228}Ra は ^{226}Ra に比べて278倍はやく崩壊する(大久保ほか, 1979; Krest et al., 1999)。しかし、 ^{228}Ra と ^{226}Ra が海底や湖底の堆積物の巻き上げなどの物理的影響によって存在量が異なった場合には、結果としてそれぞれの同位体の比が変化する(Krest et al., 1999)。また、季節的に貧酸素化するような湖では、堆積物中のFeを含む硫酸塩物質が硫酸還元によって解離するためRa元素の溶出が促進される場合もある(Bollinger and Moore, 1993)。Nomura et al (2013)は、島根県中海にある閉鎖性水域の季節変化を調べた結果、貧酸素化した夏季の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は溶存酸素濃度が数10%になった冬季の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比より高くなっていることを確認した。一般に、 ^{226}Ra は ^{228}Ra や ^{224}Ra に比べて季節的な濃度変化が少ないことが指摘されている(Bollinger and Moore, 1984, 1993)。

海外においては沿岸・内湾域また汽水・河口域におけるラジウムの研究が活発であり、特に湧水(groundwater)から放出されるラジウムは、堆積物からの溶出や浮遊物からの放出以上に大きいことや、また放射能比とその栄養塩類との関係で多くの報告がある(たとえば、Kelly and Moran, 2002; Rapaglia et al., 2010)。

密度流拡散装置

本装置は、2011年12月14日に児島湾湾奥部の水深5.5mの場所に設置され、2012年1月13日より通常の稼働状態に移行した。設置場所では、約2

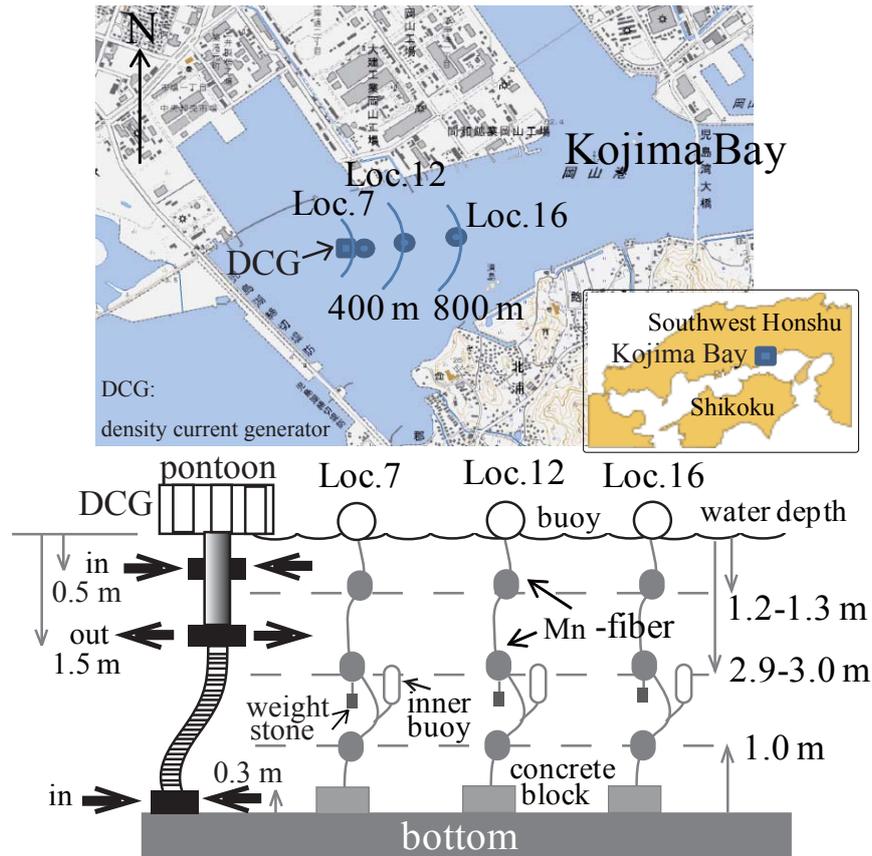


図1 試料採取場所と密度流拡散装置との関係.

Fig. 1 Location map and sampling image in relation to density current generator.

mにも及ぶ潮位変化がみられるため、下部取水口と装置本体との間には12 m長のフレキシブルホースが使われている(図1)。本装置は、上層と下層の水を取水し、混合した水を中層で排出する。上層と下層の取水口は、海面下0.5 mと海底上0.3 mにあり、上層水と下層水の混合水は水深1.5 mにある吐出口から排出される。上層水と下層水の取水比は4:1に設定され、吐出水量は、1日あたり $3 \times 10^4 \text{ m}^3$ になっている(福田・石黒, 2013, 本号)。

稼働日数は2012年6月, 8, 9月が20日以下であり、2012年12月が0日であった(図2)。

研究方法

(1) Mn 繊維

Mn 繊維とは、酸化マンガンが放射性元素を吸着する性質を利用したもので、アクリル繊維(25 g)に0.3モルの酸化マンガンカリウム溶液(KMnO_2)を70°Cで5時間浸透させマンガン化合物の粒子態(鉱物名: Cryptomelane: $\text{KMn}_8\text{O}_{16} \cdot x\text{H}_2\text{O}$)として

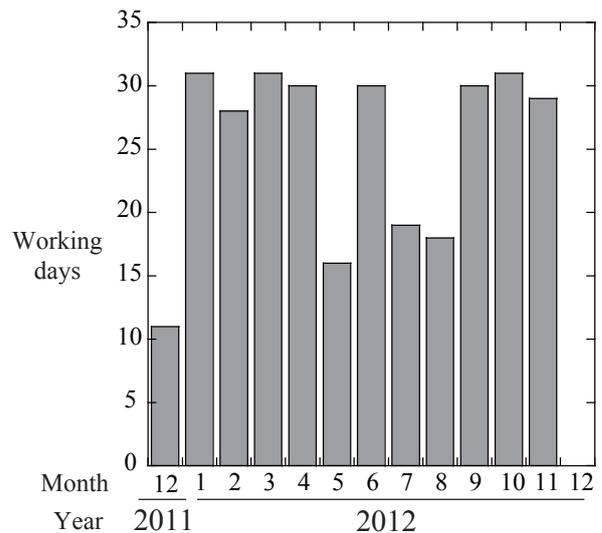


図2 密度流拡散装置の月毎の稼働日数.

Fig. 2 Working days of density current generator in each month.

安定させたものである (Nakano-Ohta, et al., 2004; 佐藤ほか, 2008). サンプルング中にアクリル繊維から脱離するのを少なくするために, 作製した Mn 繊維は, 精製水を用いて 3 回繰り返してもみ洗いし乾燥させた.

(2) 測定地点と Ra の捕集作業

児島湾における Ra の捕集作業は, 密度流拡散装置が 2011 年 12 月に設置される前の 2011 年 6 月から開始した. 設置前は 2 ヶ月間隔で行い, 設置以降 2012 年 6 月までは 1 ヶ月間隔, 6 月以降は 2 ヶ月間隔で実施した. 実施日は, 月の中～下旬に行った(表 1). 総計, 13 ヶ月になる. ただし, 2011 年 12 月の Ra 捕集は, 密度流拡散装置が稼働する 5 日前に実施している. 捕集地点は, 装置から 10 m の地点 (地点番号 7; 水深 5.5 m), 400 m の地点 (地点番号 12; 水深 6.0 m), そして 800 m (地点番号 16; 水深 5.5 m) の 3 地点で行った.

Ra の捕集作業は, Mn 繊維を洗濯用のメッシュ袋に入れ, さらにミカンネットで包み, 上層水は水深 1.2 ~ 1.3 m, 中層水は 2.9 ~ 3.0 m, 下層水については海底から 1.0 m 上の深度になるようにした (図 1). Mn 繊維は設置してから 2 ~ 3 時間後に回収し, 実験室に持ち帰った. 水質測定は, JFE アドバンテック (株) 社製 RINKO-Profiler を使った.

(3) γ 線測定

測定試料は, 回収したマンガン繊維を一晩乾燥させ (約 12 時間), ドラフト内で燃焼させた後, さらに 700°C で 3 時間灰化処理を行い粉末にした. 粉末試料はスチロール管 (U-9 管) に封入後, 密閉状態で保存した.

γ 線測定は, Canberra 社の広エネルギー帯域 BE (Broad Energy) Ge 検出器を使用し, MCA (Canberra DSA1000) とパソコンを接続してシグナルの処理を行った. データ解析は Genie-2000 をベースにした Canberra 社の Spectrum Explorer (version 1.4) によって行った. 放射能濃度は, 既知量のウラン系列核種標準試料 (New Brunswick Laboratory; NBL) に KCl を加えた海水試料の模擬試料を使用してエネルギー効率曲線法により算出した.

^{226}Ra と ^{228}Ra は, ラドンを含む娘核種が親核種であるラジウムと放射平衡に達する 3 週間後以降に 295 keV と 352 keV の ^{214}Pb , 339 keV と 912 keV の ^{228}Ac の壊変数からそれぞれ求めた. 測定時間は, 試料当たり 85000 秒であった.

調査地点の水質

児島湾湾奥の底層水は近年悪化が顕著になり, 貧酸素化していることが知られている (高木ほか, 2009a,b). 図 3 は, 2011 年 6 月から 2012 年 12 月までの月ごとの水温, 塩分, 溶存酸素濃度を深度別に示した. 水温の深度変化は各月とも小さいが, 塩分については夏季に明瞭な躍層が 1.0 ~ 2.0 m にかけて発達していた. 2011 年 9 月の塩分は, 全体的な傾向とは異なった分布を示した. 9 月上旬の台風 12 号からもたらされた著しい降水の影響を受けたものと考えられる. 上層水の水温と塩分の月別変化が顕著であるが, 下層水の塩分は約 30 psu で安定している. 河川水の流入が低下する冬季には, 塩分躍層の発達は弱くなる. 12 月のように明瞭な躍層がみられないこともあった. 下層水の溶存酸素濃度は季節的な変化が明瞭で, 夏季から秋季にかけて低くなり, 冬季には高くなっている. 8 月には溶存酸素濃度が 2.0 mg/L 以下の貧酸素状態が形成された.

結果

地点 7

上層水と中層水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は 3.67 ~ 7.94 で, 期間中はよく似た比を示した. しかし, 月ごとの変化が大きい特徴が 1 ~ 4 月の間にみられた. 下層水は, 3 月と 4 月に, 繊維あたりの ^{226}Ra と ^{228}Ra 濃度が極めて低くなった結果として, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比が異常に高くなり誤差も大きくなった (表 1, 図 4). ^{228}Ra と ^{226}Ra のそれぞれの濃度を定量分析していないため詳しい議論はできないが, 下層水の繊維あたりの ^{226}Ra 濃度は, 0.009 ± 0.006 (3 月), 0.013 ± 0.006 (4 月) であり, それぞれ 66%, 46% の測定誤差を伴うほど低い. このような放射能比が高くなる現象は, ^{228}Ra と ^{226}Ra の低い濃度が著しく比を高めた結果ともいえる. 冬季の下層水の特徴を示している (表 1, 図 4).

地点 12

上層水と下層水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は 3.99 ~ 6.32 の間でよく似た値を示している. しかし, 中層水は, 上層水と下層水の比とは異なり, やや高く (4.7 ~ 7.4 程度) 変動していた. 2012 年 6 月以降は, 上・中・下層水ともよく似た比で推移した (表 1, 図 4).

岡山県児島湾における密度流拡散装置周辺の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の深度別変化

表 1 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の分析結果.

Table 1 Activities of ^{228}Ra and ^{226}Ra in Kojima Bay.

Samples	110621/12:00					110826/12:00						
	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm
7-Upper	0.319	0.021	0.069	0.006	4.62	0.48	0.883	0.033	0.172	0.008	5.14	0.31
7-Middle	0.725	0.029	0.126	0.007	5.77	0.41	1.180	0.038	0.214	0.009	5.51	0.29
7-Lower	0.151	0.016	0.041	0.006	3.67	0.69	0.443	0.024	0.063	0.005	7.06	0.65
12-Upper	0.355	0.022	0.076	0.006	4.65	0.45	1.015	0.035	0.211	0.009	4.82	0.26
12-Middle	0.738	0.032	0.116	0.007	6.37	0.47	0.833	0.032	0.154	0.008	5.42	0.36
12-Lower	0.417	0.023	0.073	0.006	5.69	0.57	0.628	0.028	0.099	0.006	6.32	0.49
16-Upper	0.547	0.027	0.109	0.007	5.01	0.39	1.363	0.040	0.283	0.010	4.82	0.23
16-Middle	0.586	0.027	0.115	0.007	5.10	0.38	1.025	0.038	0.174	0.009	5.88	0.36
16-Lower	0.288	0.019	0.045	0.004	6.36	0.75	0.700	0.029	0.157	0.008	4.45	0.29
Samples	111017/14:00					111209/15:00						
	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm
7-Upper	1.460	0.041	0.304	0.011	4.81	0.22	0.428	0.023	0.086	0.008	4.97	0.55
7-Middle	1.814	0.047	0.383	0.012	4.73	0.19	0.969	0.037	0.176	0.008	5.49	0.33
7-Lower	0.367	0.022	0.078	0.006	4.68	0.44	0.320	0.021	0.062	0.006	5.14	0.57
12-Upper	1.458	0.042	0.295	0.010	4.95	0.22	0.554	0.026	0.128	0.010	4.32	0.38
12-Middle	1.675	0.044	0.322	0.013	5.21	0.25	1.451	0.042	0.268	0.010	5.41	0.26
12-Lower	0.625	0.027	0.110	0.007	5.66	0.43	0.233	0.019	0.053	0.007	4.37	0.66
16-Upper	1.136	0.037	0.236	0.009	4.81	0.25	0.562	0.027	0.092	0.007	6.13	0.54
16-Middle	1.511	0.042	0.280	0.010	5.40	0.25	0.898	0.036	0.169	0.008	5.32	0.33
16-Lower	0.423	0.026	0.078	0.006	5.41	0.52	0.249	0.020	0.031	0.005	8.04	1.41
Samples	120124/15:00					120221/15:00						
	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm
7-Upper	0.668	0.028	0.113	0.007	5.92	0.46	0.094	0.016	0.025	0.005	3.78	0.95
7-Middle	0.562	0.026	0.102	0.007	5.49	0.48	0.404	0.028	0.084	0.006	4.79	0.49
7-Lower	0.238	0.020	0.034	0.006	6.97	1.37	0.100	0.014	0.018	0.006	5.69	1.98
12-Upper	0.977	0.036	0.156	0.008	6.26	0.39	0.228	0.020	0.049	0.009	4.70	0.94
12-Middle	0.967	0.034	0.141	0.008	6.85	0.47	0.185	0.017	0.033	0.004	5.64	0.90
12-Lower	0.179	0.020	0.037	0.007	4.83	1.04	0.248	0.020	0.050	0.005	4.96	0.63
16-Upper	0.596	0.028	0.115	0.007	5.19	0.40	0.253	0.019	0.046	0.005	5.48	0.73
16-Middle	0.600	0.027	0.101	0.007	5.97	0.47	0.232	0.019	0.042	0.005	5.50	0.76
16-Lower	0.240	0.019	0.044	0.005	5.41	0.72	0.143	0.015	0.022	0.004	6.53	1.35
Samples	120315/15:00					120417/15:00						
	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm	^{228}Ra : Bq/f	\pm	^{226}Ra : Bq/f	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm
7-Upper	0.334	0.021	0.042	0.005	7.94	1.02	0.373	0.022	0.064	0.006	5.84	0.69
7-Middle	0.625	0.028	0.089	0.006	7.01	0.59	0.526	0.025	0.103	0.007	5.13	0.42
7-Lower	0.089	0.015	0.009	0.006	10.47	7.91	0.118	0.020	0.013	0.006	9.17	4.83
12-Upper	0.440	0.024	0.070	0.006	6.27	0.62	0.292	0.020	0.062	0.006	4.69	0.54
12-Middle	0.446	0.027	0.069	0.007	6.42	0.73	0.549	0.026	0.074	0.012	7.41	1.28
12-Lower	0.139	0.017	0.024	0.006	5.75	1.68	0.140	0.017	0.033	0.007	4.31	1.07
16-Upper	0.419	0.023	0.075	0.005	5.58	0.49	0.408	0.023	0.062	0.005	6.56	0.63
16-Middle	0.582	0.029	0.092	0.006	6.30	0.53	0.740	0.031	0.130	0.007	5.71	0.39
16-Lower	0.123	0.016	0.013	0.004	9.60	3.54	0.245	0.019	0.050	0.005	4.90	0.64
Samples	120521/15:00					120625/15:00						
	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm
7-Upper	1.323	0.042	0.210	0.009	6.29	0.34	0.746	0.030	0.153	0.008	4.88	0.31
7-Middle	1.929	0.048	0.303	0.011	6.36	0.27	0.842	0.032	0.156	0.009	5.39	0.38
7-Lower	0.537	0.026	0.094	0.006	5.73	0.47	0.319	0.023	0.054	0.005	5.88	0.72
12-Upper	2.028	0.049	0.324	0.014	6.27	0.31	0.608	0.027	0.140	0.008	4.34	0.31
12-Middle	2.369	0.053	0.399	0.012	5.94	0.22	0.747	0.030	0.146	0.007	5.11	0.33
12-Lower	0.471	0.025	0.077	0.006	6.11	0.59	0.220	0.018	0.055	0.006	3.99	0.56
16-Upper	1.834	0.047	0.306	0.011	6.00	0.26	0.486	0.025	0.109	0.007	4.45	0.37
16-Middle	2.434	0.054	0.385	0.012	6.33	0.24	1.547	0.043	0.288	0.010	5.38	0.25
16-Lower	0.781	0.031	0.135	0.007	5.78	0.39	0.219	0.020	0.041	0.005	5.33	0.78
Samples	120821/15:00					121015/15:00						
	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm
7-Upper	0.941	0.033	0.201	0.009	4.67	0.26	0.460	0.024	0.108	0.008	4.27	0.38
7-Middle	1.526	0.043	0.280	0.010	5.45	0.25	0.547	0.028	0.088	0.006	6.19	0.55
7-Lower	0.318	0.023	0.063	0.005	5.02	0.56	0.142	0.016	0.024	0.005	5.89	1.48
12-Upper	0.815	0.031	0.168	0.008	4.84	0.30	0.502	0.025	0.101	0.006	4.97	0.40
12-Middle	1.815	0.046	0.365	0.012	4.97	0.20	0.637	0.028	0.136	0.007	4.68	0.32
12-Lower	0.259	0.027	0.058	0.007	4.44	0.70	0.144	0.020	0.034	0.007	4.23	1.07
16-Upper	1.195	0.038	0.216	0.009	5.52	0.29	0.380	0.024	0.087	0.006	4.37	0.42
16-Middle	1.665	0.047	0.311	0.011	5.35	0.24	0.419	0.024	0.069	0.008	6.08	0.82
16-Lower	0.373	0.025	0.076	0.006	4.91	0.50	0.247	0.019	0.052	0.005	4.79	0.57
Samples	121217/15:00					Samples	110621-11209 :average					
	^{228}Ra : Bq/fiber	\pm	^{226}Ra : Bq/fiber	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm	$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$	\pm				
7-Upper	0.299	0.020	0.050	0.005	5.94	0.70	7-Upper	4.89	0.39	Index of		
7-Middle	0.589	0.027	0.095	0.008	6.20	0.57	7-Middle	5.38	0.31	Sample collected		
7-Lower	0.235	0.018	0.050	0.005	4.68	0.58	7-Lower	5.14	0.59	110621/12:00		
12-Upper	0.549	0.026	0.088	0.006	6.24	0.52	12-Upper	4.69	0.33	year 2011		
12-Middle	0.892	0.032	0.159	0.008	5.62	0.35	12-Middle	5.60	0.33	month 6		
12-Lower	0.229	0.021	0.046	0.007	5.00	0.92	12-Lower	5.51	0.54	day 21		
16-Upper	0.259	0.019	0.033	0.007	7.84	1.80	16-Upper	5.19	0.35	time 12:00		
16-Middle	0.638	0.027	0.087	0.006	7.31	0.59	16-Middle	5.43	0.33			
16-Lower	0.170	0.017	0.014	0.007	11.88	5.82	16-Lower	6.07	0.74			

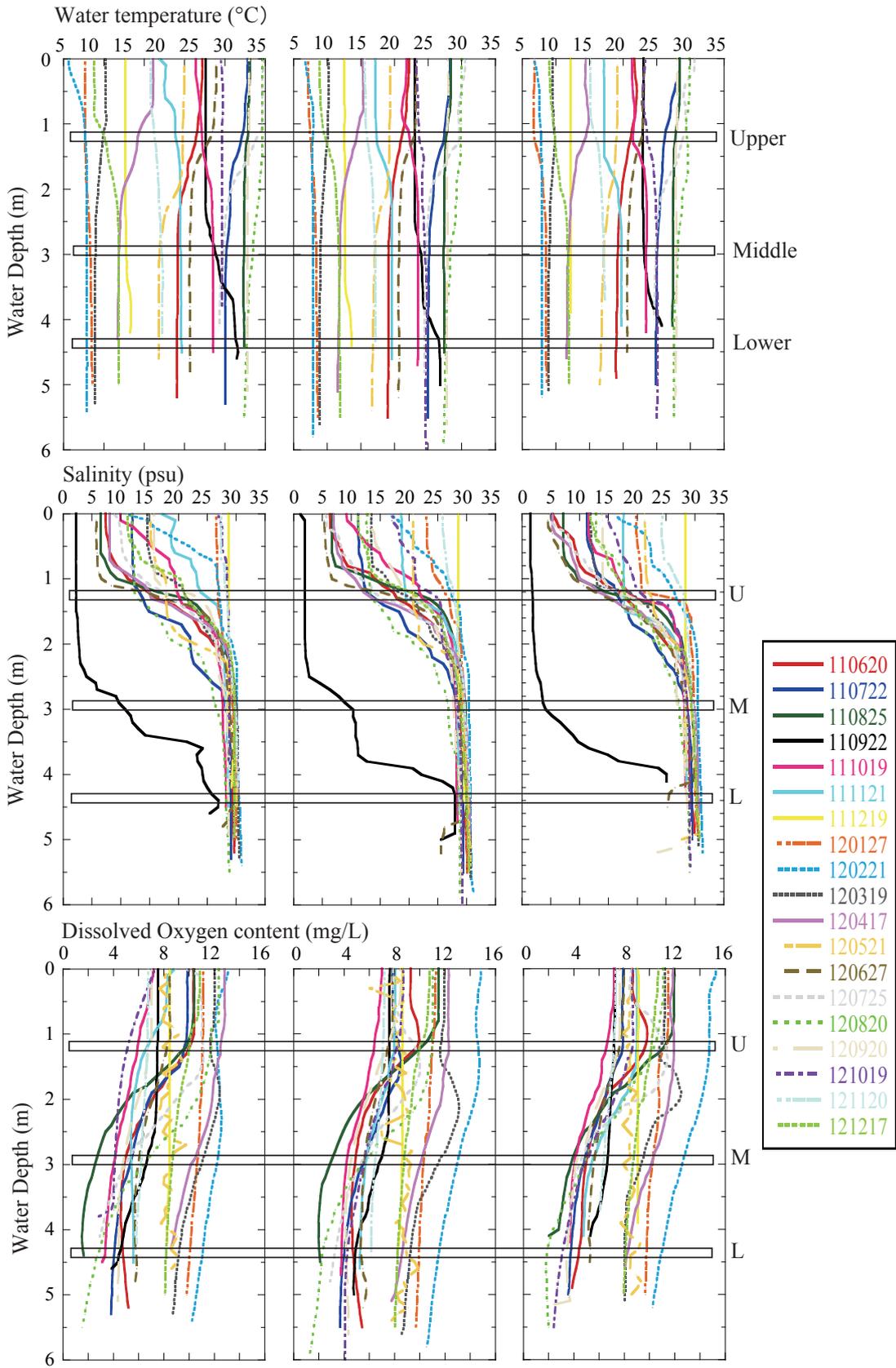


図3 水温、塩分、溶存酸素濃度の月毎の鉛直分布。

Fig. 3 Vertical profile of water temperature, salinity, and dissolved oxygen content in each month.

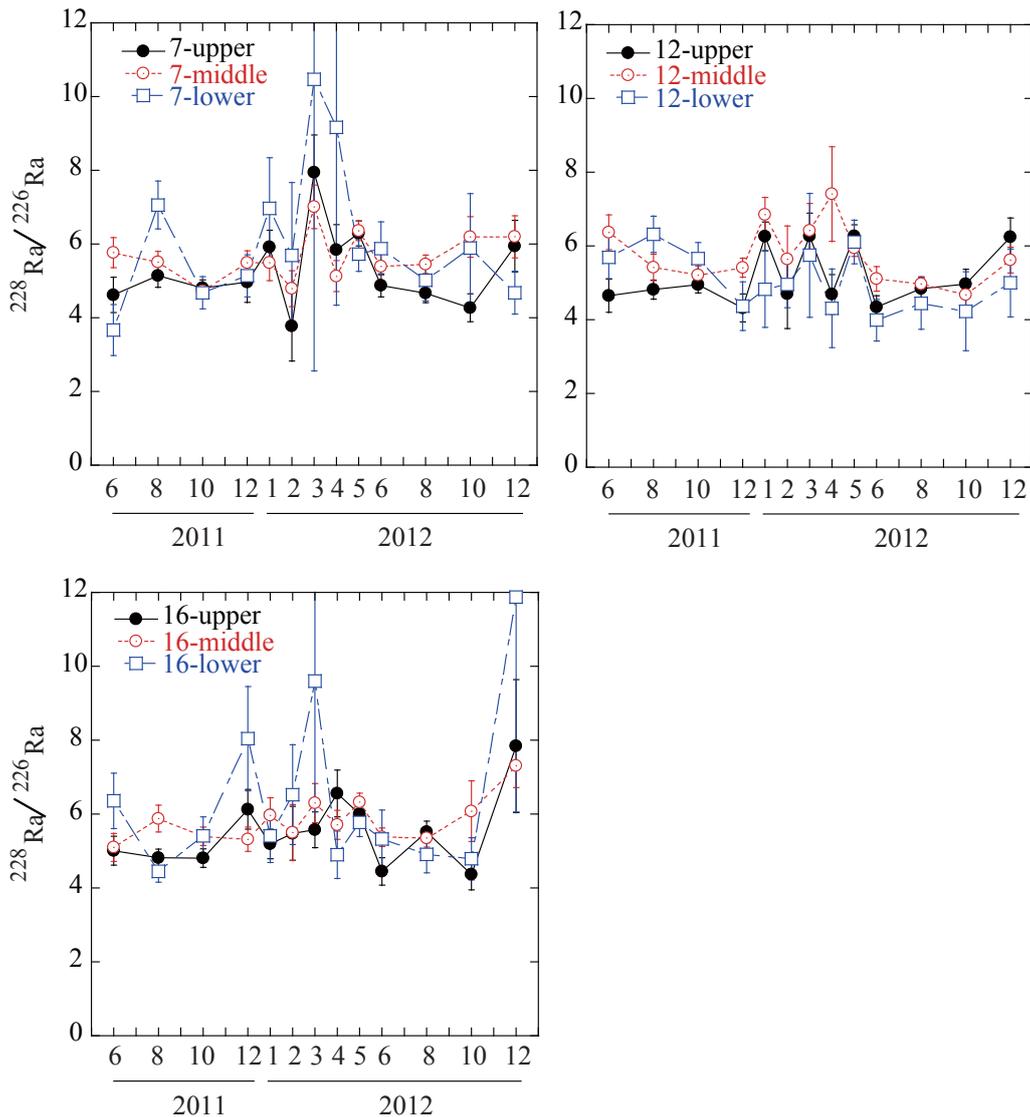


図4 3地点における上層水, 中層水, 下層水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の月毎の変化.

Fig. 4 Monthly variation of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios in the upper, middle, and lower water at three locations.

地点 16

上層水と中層水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は, 4.37 ~ 7.84 の一様な値を示しており, 相対的にみて月ごとの変化が少ないことが特徴的である. 下層水の高い $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は, ^{228}Ra と ^{226}Ra の濃度のそれぞれの濃度が低いなかで, 相対的に ^{226}Ra 濃度が低かったことによるもので, 地点7と同様に大きな誤差を伴っている.

考 察

(1) $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と塩分, 溶存酸素濃度との関係

Ra 同位体の濃度が塩分と相関をもっていることが指摘されている (Moore et al., 1995; Hancock and Murray, 1996; Krest et al., 1999), また, 半減期の長い ^{226}Ra は ^{228}Ra に比べて年間の濃度変化が小さい特徴がある. 閉鎖性の強い水域での年間調査によると, 溶存酸素濃度との関係もみられ, 溶存酸素が低下する夏季の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は高くなり, 溶存酸素濃度が高い冬季には比は低くなる. 前述のように底質の酸化還元状態に伴って Fe, Mn 酸化物の化学変化

が Ra 元素の量的変化と密接に関係しているものとみられる (Bollinger and Moore, 1993; Nomura et al., 2013). 以上のようなことから, ここでも年間を通して塩分と溶存酸素濃度との関係を検討した (図 5, 6). なお, 下層水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比については, 地点 7 と地点 16 のように, 月毎の変化が大きく誤差値も大きな月もあるため, 以下の議論には言及しないことにした. また, ここで扱った水質測定日が Mn 繊維による Ra の捕集作業日とは完全に一致していなかったこともあり, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比との厳密な対応関係を議論することはできないと思われる. 水質測定日と Ra 捕集作業日は 1 日から 4 日違いのことが多く, 例外として, 2011 年 12 月は 10 日の違いがあった (表 1, 図 3). したがって以下の議論では, 水質の月別変化に対する $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の挙動を理解することとした.

児島湾奥部の上層～中層の塩分は, 晩秋から冬季に高くなり, 春季から夏季にかけて低くなる傾向がみられる. 上層～中層の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比も, 冬季から春季で高く夏季で低くなる. このような中層の塩分と $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は, 似た変化のパターンを示しているようにもみえる. ここで塩分と $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の関係についてスピアマンの順位相関を計算すると, 0.27 (地点 7), 0.69 (地点 12), 0.53 (地点 16) となり, 地点 12 の相関係数のみが有意な相関であった. また, 同様の計算においてすべての地点の上層水における塩分と $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比との関係には, 明瞭な相関関係が示されなかった (図 5).

児島湾奥部の上層～中層の溶存酸素濃度は冬季に高く, 概ね 10～12 mg/L を示す. 夏季から晩秋には溶存酸素濃度は概ね 4 mg/L 台まで低下する. このような溶存酸素濃度の季節変化は, 塩分と同様に $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変化と見かけの上で調和的である (図 6). しかし, 両者の関係を同様にスピアマンの順位相関でみると, 地点 12 の中層水で係数が統計的に有意な 0.59 を示したほかは, 地点 16 の上層水では相関係数が 0.36 であり, 統計的に有意な関係は示されなかった.

以上のように, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節的な変化パターンは, 塩分や溶存酸素濃度の季節変化と概ね調和的であるが, 今回の調査では統計的に保証される結果を得ることができなかったといえる. また, 児島湾の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変化は, 地中海の閉鎖性水域の季節変化 (Nomura et al., 2013) とは逆の関係 (すなわち, 冬季に低く夏季に高い) になっていることが確認された. この違いの詳細は不明であるが, 干

満差が小さく, 底層水が夏季に無酸素状態になる中海の閉鎖性水域の場合とは異なり, 貧酸素化するものの潮汐作用が顕著な児島湾との水域の違いが反映されているものとみられる.

また, Ra 同位体の捕集を海水から直接 Mn 繊維に吸着させているため, 海水中の懸濁物による酸化マンガンへの何らかの妨害が予想される. この点については, 地中海の 2010 年の月別調査 (1 月～11 月) において, 今回のような沈下捕集式と採水器過式で $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を比較した結果では, 躍層より上で沈下捕集式の方が採水器過式より平均して 0.35 高く, 躍層より下では平均して 0.08 高かった. ただし, 試料の採取・採水時期が一致していなかったこともあり, 詳細については今後の課題である. 今回の調査では懸濁物による放射能比への影響は低いものとして扱った.

(2) $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と地点間の相関

3 地点の上層・中層の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は, 上述のように月別変化が設置場所の塩分や溶存酸素濃度と似た変化を示す地点 (地点 12 の中層水) もあれば, 調和的な変化パターンのみみられる地点, またみられない地点など複雑な関係を示していた. ここでは, 結果として地点間の近似性がどの程度のものであるか検討した. 図 7 は, 各地点の上層と中層を一緒にして調査期間の変化を示した. 3 地点の変化は月ごとにそれぞれ異なっており, 一致することはみられない. しかし, 上層水の地点 7 と地点 12 は似たような変動を月ごとに示し, また中層水の地点 7 と地点 16 も見かけのうえで似たような変動を示す. しかし, 中層水の地点 12 は中層水の他の 2 地点とは異なった分布を示している. これら見かけの変化に対して, 数値化して関連性を検討するために, 3 地点の 3 深度 (上層・中層・下層), 計 9 試料間の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比のユークリッド距離をとって以下のような 3 つの分析を行った.

第 1 の分析は, 調査期間 (2011 年 6 月から 2012 年 12 月までの 13 期間) の全てを一括して距離相関を検討した. 結果は, 表 2 (a) に示されるように, 上層と中層は, 概ね $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比が近いもののみみられる. 下層は地点 12 において上層と近い関係がみられたことを除くと, 全体に下層と上・中層との関係は低いといえる. 地点 7 の上層に近いものとして, 地点 7 の中層 (2.99) と地点 12 (2.55) の上層があり, 地点 7 の中層に近いものとして, 地点 12 の上層 (2.73) と地点 16 の中層 (1.97) がある.

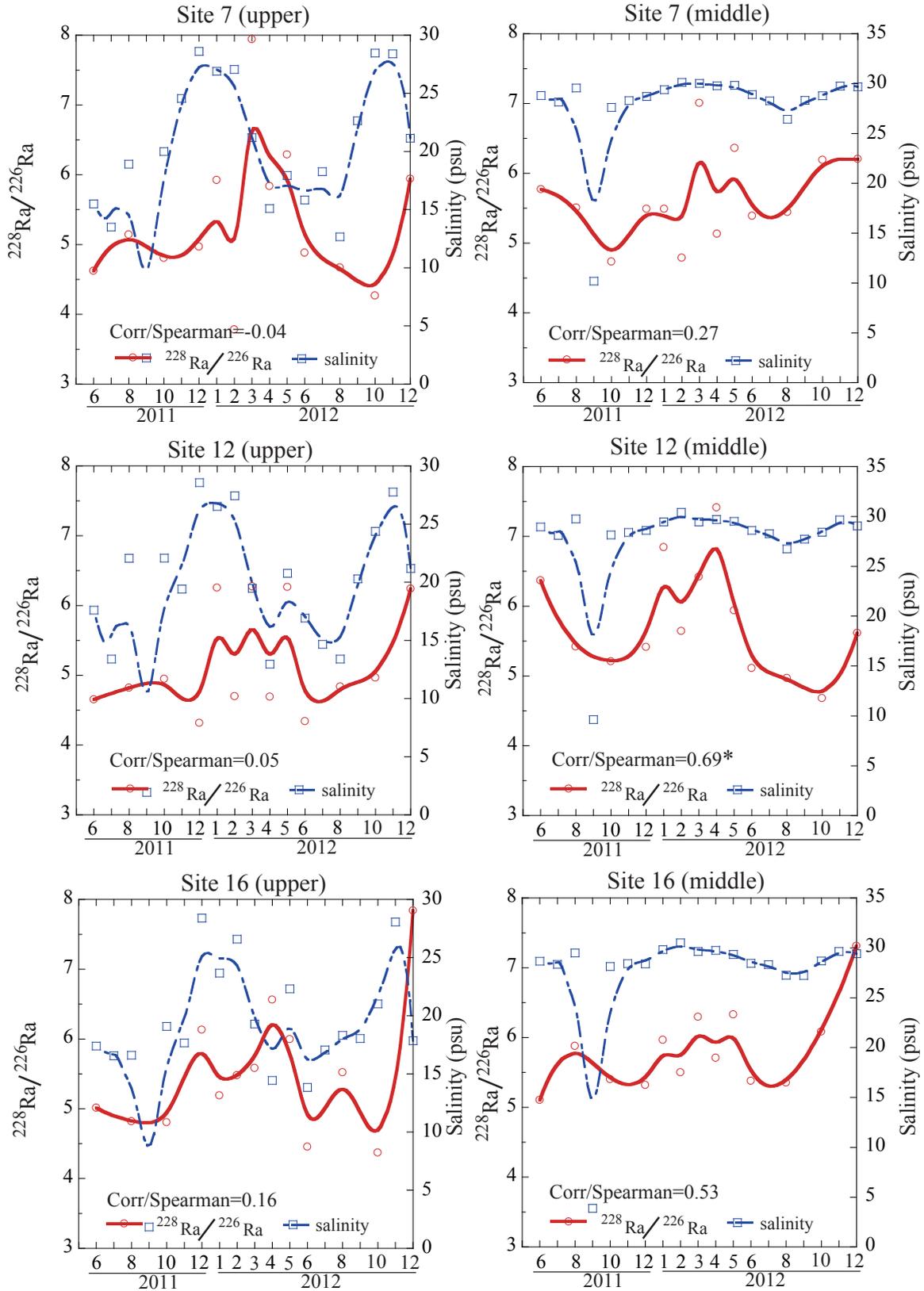


図5 3地点における上層水と中層水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と塩分との関係。月毎の放射能比と塩分は幾何学的平滑化曲線で示した。スピアマンの順位相関で95%の意義のある値には*印で示した。
Fig. 5 Monthly variation of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios and salinity in the upper and middle water at three locations. Plots were geometrically smoothed.

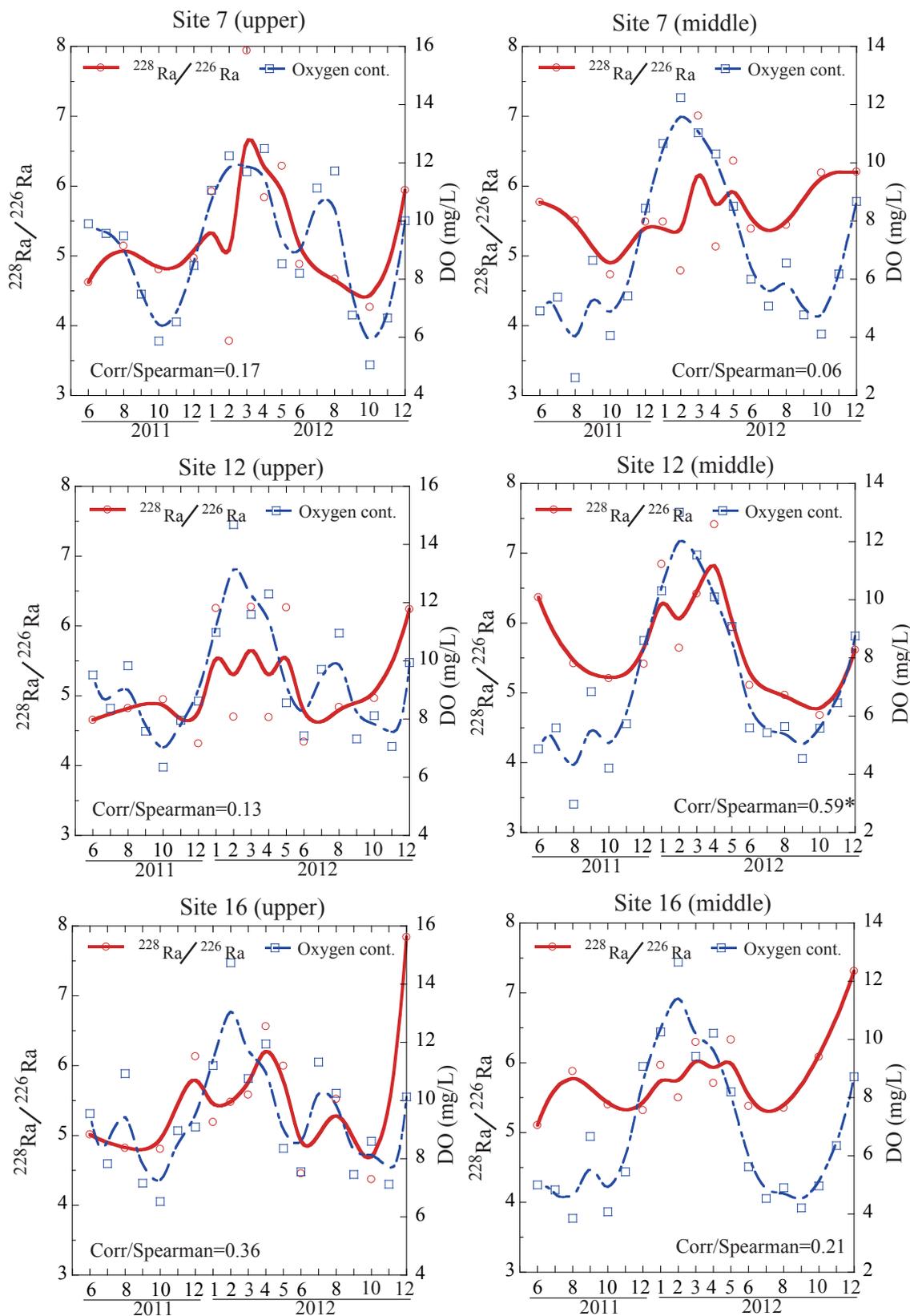


図6 3地点における上層水と中層水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と溶存酸素濃度との関係。月毎の放射能比と溶存酸素濃度は幾何学的平滑化曲線で示した。スピアマンの順位相関で95%の意義のある値には*印で示した。

Fig. 6 Monthly variation of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios and dissolved oxygen content in the upper and middle water at three locations. Plots were geometrically smoothed.

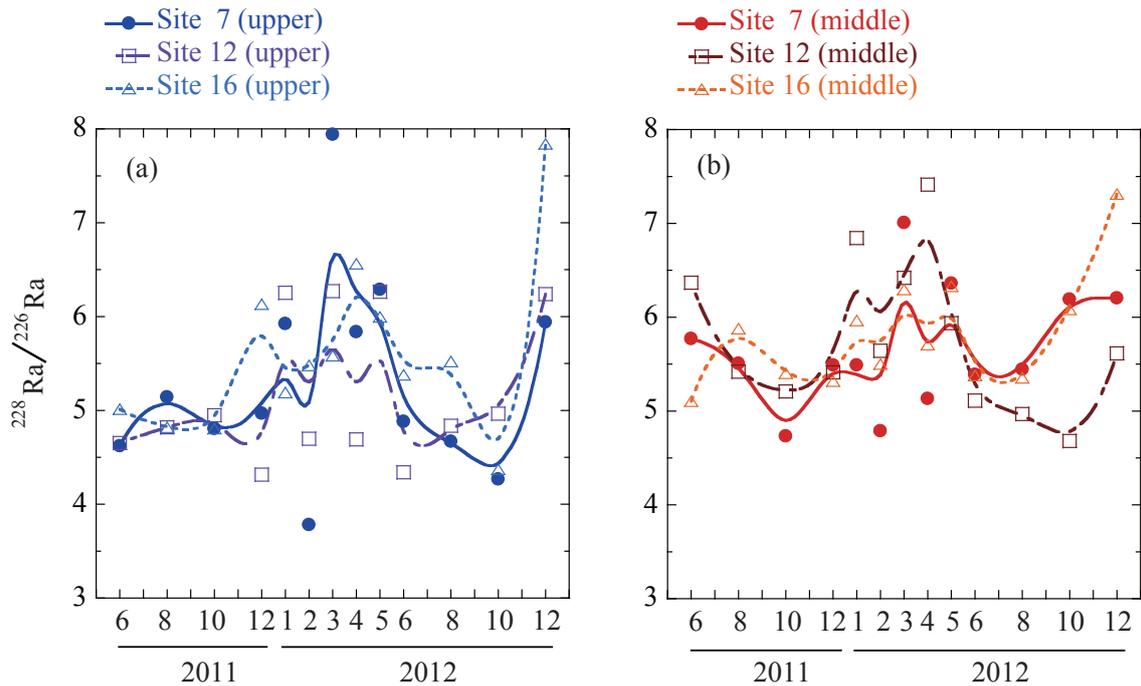


図7 幾何学的平滑化曲線で示した上層水(a) および中層水(b) における月毎の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の比較。
 Fig. 7 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios indicated by geometric smoothing in the upper water (a) and the middle water (b).

最も遠い関係にあった地点7と地点16の下層のユークリッド距離は9.92であり、このユークリッド距離をもとにすると、2.99以下は30%以内の距離の相関になる。一方で800mも離れた地点7の中層水と地点16の中層水の距離相関が1.97を示した関係もみられた。

第2の分析は、装置の稼働前(2011年6月~12月)と稼働期間(2012年1月~12月)の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を別々に扱って、それぞれをグループとしてユークリッド距離を計算した(表2(b))。稼働前の距離相関は表の下半分に示されている。概ねユークリッド距離は短く、地点の上層・中層は比較的近い関係になっている。ただし、地点16の下層は、地点7と地点12とは比較的遠い関係となっている。地点7の下層と地点16の下層は最も遠い関係(4.79)であり、この関係の30%以内(1.44)を示すユークリッド距離は、3地点の上層・中層がそれぞれの層のなかで近い関係になっている。この関係は、このユークリッド距離を使ってクラスター分析を行った結果からも得られる(図8(a))。

稼働前の児島湾の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は地点間よりも、深度別の違いが明瞭であったことを示している。稼働期間中の距離相関は表の上半分に示されている。稼働前には地点ごとおよび深度ごと(とくに上層・

中層)のユークリッド距離が短かったが、値は全体的に大きくなっている特徴がみられる。稼働前と同様に地点7の下層と地点12の下層は8.69と最も遠い関係になっている。このユークリッド距離(8.69)の30%は、2.61であることから、この値以下を示す関係は、地点7の中層と地点16の中層が最も近く、地点12の上層が地点7の上層・中層(2.44, 2.08)、地点12の下層(2.22)、地点16の中層(2.34)と近い関係を示した。地点16の上層と中層も近い値(2.46)であった。以上のことから、稼働前と比べて稼働中は、上・中層の層状の関係より上・中層をつないで距離の関係が近くなったとみられる。稼働期間中のユークリッド距離を使ったクラスター分析では、地点12の上層が地点7と地点16の中層とより近い関係として示されている(図8(b))。

第3の分析は、第2と同様に稼働前と稼働中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を別々に扱ったが、稼働前(1106~1112)の地点・深度ごとの $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を平均し(表1)、稼働期間の個々の月の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比との差をとり、その差についてユークリッド距離をとって地点・深度ごとの比較を行った(表2(c))。この検討は稼働前 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を基準にして稼働期間の変化をみようとするものである。結果は、地点12の上層と中層の関係を除き、第1の分析と似た距離相関が

表 2 3 地点 (Loc.7, Loc. 12, Loc. 16) の上層, 中層, 下層のユークリッド距離による距離相関. ボールド字体は最長距離の 30% 以下の関係を示す.

(a) 期間全体の結果. (b) 下半分は稼働前の距離相関, 上半分は稼働期間の距離相関. (c) 稼働前の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 平均との差分に基づく稼働期間の距離相関.

Table 2 Distance correlation of Upper, Middle, Lower samples from three localities, using Euclidean distance. Bold face indicating $\leq 30\%$ of most long distance.

(a) whole period, (b) period before DCG working (lower half) and period of working (upper half) , (c) working period with reference to the averaged $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios during the pre-working .

(a)

	7-Upper	7-Middle	7-Lower	12-Upper	12-Middle	12-Lower	16-Upper	16-Middle	16-Lower
7-Upper	0								
7-Middle	2.99	0							
7-Lower	5.70	6.44	0						
12-Upper	2.55	2.73	7.20	0					
12-Middle	3.62	3.44	5.73	3.80	0				
12-Lower	3.89	3.72	8.01	2.96	4.39	0			
16-Upper	3.97	3.63	7.51	3.55	3.59	4.64	0		
16-Middle	3.58	1.97	6.49	2.83	3.28	4.12	2.86	0	
16-Lower	7.80	7.29	9.92	8.09	8.15	9.23	6.61	6.86	0

(b)

	7-Upper	7-Middle	7-Lower	12-Upper	12-Middle	12-Lower	16-Upper	16-Middle	16-Lower
7-Upper		2.68	5.28	2.44	3.10	3.39	3.76	3.40	6.89
7-Middle	1.32		5.88	2.08	3.35	3.32	3.42	1.68	6.68
7-Lower	2.15	2.63		6.72	4.74	7.61	6.97	6.17	8.69
12-Upper	0.74	1.77	2.59		3.14	2.22	3.03	2.34	6.95
12-Middle	1.87	0.78	3.21	2.14		4.09	3.16	2.98	7.65
12-Lower	1.90	1.67	2.49	1.96	1.60		3.87	3.93	8.23
16-Upper	1.26	1.21	2.79	1.85	1.70	2.56		2.46	6.14
16-Middle	1.12	1.03	2.00	1.59	1.37	1.23	1.46		6.00
16-Lower	3.65	2.90	4.79	4.14	2.81	4.18	2.44	3.32	

Lower half: Distance correlation before working. Upper half: Distance correlation during working

(c)

	7-Upper	7-Middle	7-Lower	12-Upper	12-Middle	12-Lower	16-Upper	16-Middle	16-Lower
7-Upper	0								
7-Middle	2.63	0							
7-Lower	4.84	6.21	0						
12-Upper	2.43	1.96	6.09	0					
12-Middle	3.14	3.37	5.54	3.15	0				
12-Lower	4.73	3.66	8.41	4.38	3.89	0			
16-Upper	3.75	3.40	7.03	3.00	3.19	4.54	0		
16-Middle	3.08	1.63	6.49	1.58	3.11	4.15	2.27	0	
16-Lower	6.12	6.26	9.17	6.02	7.39	7.30	5.52	5.75	0

得られた. 地点 12 の上層と地点 16 の中層が最も近い関係 (1.58) を示し, 地点 7 の中層と地点 16 の中層 (1.63), 地点 7 の中層と地点 12 の上層 (1.96) がとくに近い関係になっている. この関係は, 同じデータセットを使って行ったクラスター分析の結果からもいえる (図 8 (c)).

このような, 密度流拡散装置の稼働前後で起こった地点間の深さごとの Ra 比の距離相関の変化は, 装置を介して周囲の上層水と下層水が混合され, 排出された水塊 (拡散された水) の動きを反映したものとみられる. 地点 7 の中層で排出された混合水は, 拡散過程で地点 12 の上層水へ到達していたことが

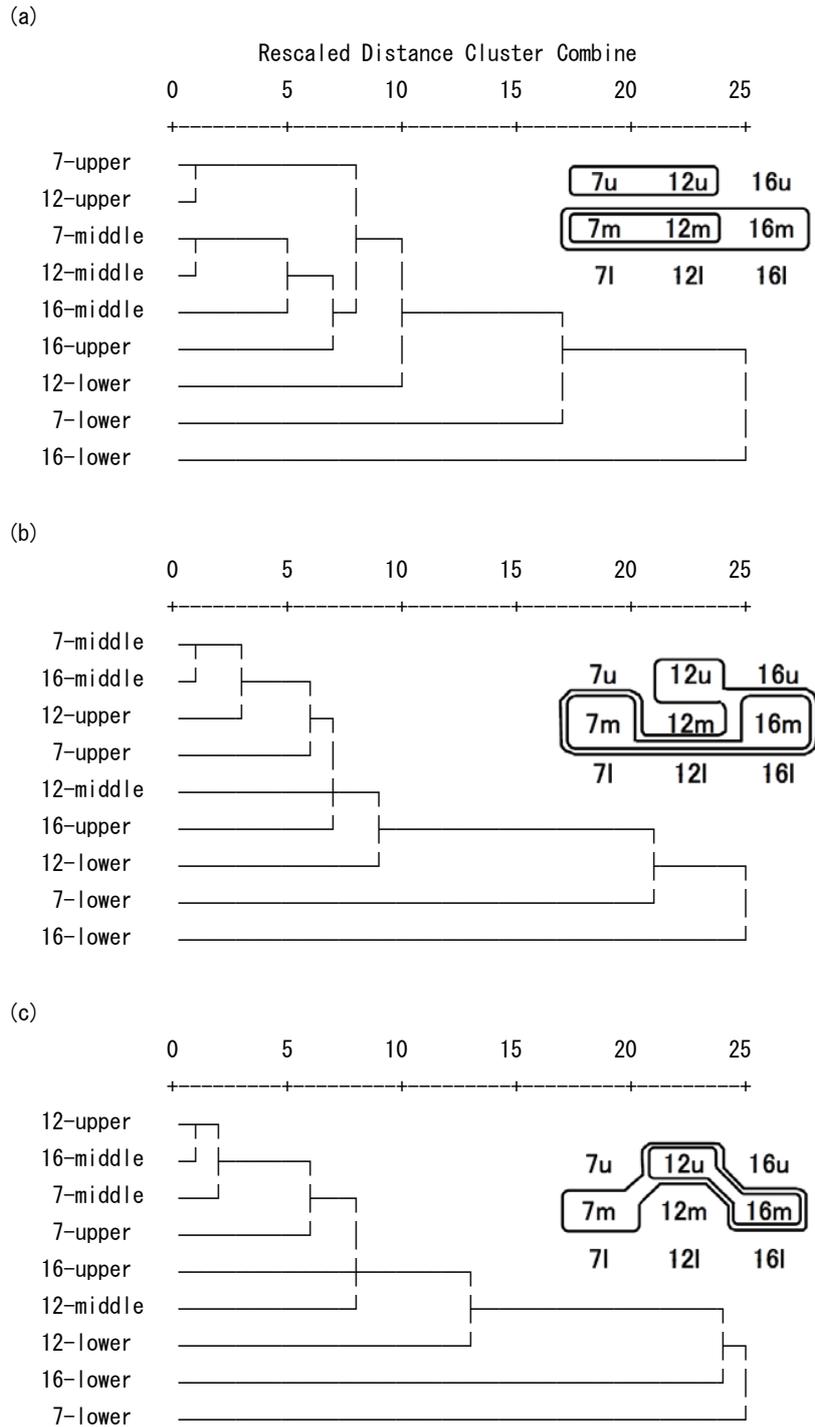


図8 ユークリッド距離を基にした地点・深度間のクラスター分析の結果と連結距離5以内の密接なクラスター。

(a) 2011年6月から2011年12月までの稼働前の結果；(b) 2012年1月から2012年12月までの稼働後の結果；(c) 稼働前の地点・深度ごとの $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の平均を差し引いた稼働後の結果。

Fig. 8 Results of cluster analysis based on Euclidean distance.

(a) Clusters before the density current generator working. (b) Clusters during DCG (density current generator) working. (c) Clusters based on the data of working DCG, but subtracted by averaged $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio before DCG. working.

考えられる。一方で、相関関係の変化は検討した地点間の距離が400 mと800 mであったため自然界の変化を反映した面もあるかもしれない。今後の課題は、地点間の間隔を短くし、また上層・中層内の測定深度を密にして装置から排出された混合水の挙動を明確にすることが望まれる。

ま と め

児島湾の水の動きを環境放射能である ^{228}Ra と ^{226}Ra の比($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比)を使って検討した。 ^{228}Ra と ^{226}Ra は半減期が長いので、水の動的過程をトレースすることに有効であると考えられる。しかし、環境放射能を使って閉鎖性水域の水塊の動きを検討した研究例はこれまでなかったため、基礎的研究を含めて、以下のことを明らかにすることができた。

(1) 児島湾の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は、季節的な変動を示し、塩分と溶存酸素濃度との関係のみられる地点・深度と関係のみられない地点・深度があることが明らかになった。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と溶存酸素濃度との間に統計的な有意性をもって示される地点・深度は少なかったが、概ね溶存酸素濃度が高いときには $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比も高くなる傾向を示した。これは、閉鎖性の極めて強い中海の閉鎖域で確認されていることは逆の結果であった。

(2) 冬季には ^{228}Ra と ^{226}Ra は濃度が低下し、高い $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を示すことがあった。このような高い比は、 ^{228}Ra 濃度に比べて ^{226}Ra 濃度が極めて低いこととも関連していた。

(3) 密度流拡散装置に近い地点から400 mと800 mまで離れた3地点で、上層、中層、下層についてそれぞれの $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比のユークリッド距離のみたところ、装置に近い地点7の中層と地点12の上層で月ごとの $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比が似た変動をしていたことが明らかとなった。装置に近い地点7の下層は地点12や地点16の下層とも異なっていた。この $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の関連性が、密度流拡散装置による水の動きを反映しているとする、装置から400 mまでの範囲に影響しているものとみられる。今後とも継続的調査を含めて、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の変動要因について検討する必要がある。

謝 辞

本研究を行うにあたって、岡山県農林水産総合センター水産研究所の高木秀蔵氏、弘奥正憲氏には現地調査および試料の採取でお世話を頂いた。

引 用 文 献

- Bollinger, M. S. and Moore, W. S. (1984) Radium fluxes from a salt marsh. *Nature*, 309: 444-446.
- Bollinger, M. S. and Moore, W. S. (1993) Evaluation of salt marsh hydrology using radium as a tracer. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 57: 2203-2212.
- 福田賢一, 石黒貴裕 (2013) 物理的指標による密度流拡散装置からの吐出水の観測. *Laguna* (汽水域研究), 本号.
- 藤原建紀, 駒井幸雄 (2009) 沿岸海域の栄養塩動態 (特集 海の貧栄養化とノリ養殖). *海洋と生物*, 31: 134-140.
- Hancock, G. J. and Murray, A. S. (1996) Source and distribution of dissolved radium in the Bega River estuary, Southeastern Australia. *Earth and Planetary Science Letters*, 138: 145-155.
- 堀 豊, 望月松寿, 島本信夫 (2008) 播磨灘北部海域におけるノリ色落ちと漁場環境の変遷. *水産学*研究, 72: 107-112.
- Inoue, M., Kofuji, H., Yamamoto, M. and Komura, K. (2005) Seasonal variation of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio in seaweed: implications for water circulation patterns in coastal areas of the Noto Peninsula, Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 80: 341-355.
- Inoue, M., Tanaka, K., Watanabe, S., Kofuji, H., Yamamoto, M. and Komura, K. (2006) Seasonal variations in $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio within coastal waters of the Sea of Japan: implications for water circulation patterns in coastal areas. *Journal of Environmental Radioactivity*, 89: 138-149.
- Kawakami, H. and Kusakabe, M. (2008) Surface water mixing estimated from ^{228}Ra and ^{226}Ra in the northwestern North Pacific. *Journal of Environmental Radioactivity*, 99: 1335-1340.
- Kelly, R. P. and Moran, S. B. (2002) Seasonal changes in groundwater input to a well-mixed estuary estimated using radium isotopes and complications for coastal nutrient budgets. *Limnology and Oceanography*, 47: 1796-1807.
- Krest, J. M., Moore, W. S. and Rama (1999) ^{226}Ra and ^{228}Ra in the mixing zones of the Mississippi and Atchafalaya Rivers: indicators of groundwater input. *Marine Chemistry*, 64, 129-152.
- Moore, W. S., Astwood, H. and Lindstrom, C. (1995) Radium isotopes in coastal waters on the Amazon

- shelf. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59: 4285-4298.
- Moore, W. S. (2003) Sources and fluxes of submarine groundwater discharge delineated by radium isotopes. *Biogeochemistry*, 66, 75-93.
- Moore, W. S., Blanton, J. O. and Joye, S. B. (2006) Estimates of flushing times, submarine groundwater discharge, and nutrient fluxes to Okatee Estuary, South Carolina. *Journal of Geophysical Research*, 111: C09006, doi: 10.1029/2005JC003041.
- Nakano-Ohta, T. Sato, T., and Sato, J. (2004) Collection of radium isotopes in natural waters by manganese-impregnated acrylic fiber. *Radioisotopes*, 53: 1-11.
- Nomura, R., Nakamura, K., Seto, K., Inoue, M. and Kofuji, H. (2013) Opening of the closed water area and consequent changes of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ activity ratios in coastal lagoon Nakaumi, southwest Japan. *Applied Radiation and Isotopes*, <http://dx.doi.org/10.1016/j.apradiso.2013.03.069>.
- Nozaki, Y., Kasemsupaya, V. and Tsubota, H. (1989) Mean residence time of the shelf water in the East China and the Yellow seas determined by $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ measurements. *Geophysical Research Letters*, 16: 1297-1300.
- Okubo, T. (1980) Radium- 228 in the Sea of Japan. *Journal of Oceanographical Society of Japan*, 36: 263-268.
- 大久保 隆, 三宅 寛, 道嶋正美 (1979) 瀬戸内海及び周辺海域の放射性核種の動向 (第1報, 表面水中のラジウム同位体の分布). *神戸商船大紀要*, 第二種, 27: 109-115.
- Rapaglia, J., Ferrarin, C., Zaggia, L., Moore, W. S., Umgiesser, G., Garcia-Solsona, E., Garcia-Orellana, J. and Masque, P. (2010) Investigation of residence time and groundwater flux in Venice Lagoon: comparing radium isotope and hydrodynamical models. *Journal of Environmental Radioactivity*, 101: 571-581.
- 佐藤 純・斎藤 敬・中野(太田) 朋子 (2008) 天然水中のラジウム同位体. *放射化学ニュース*, 17: 14-23.
- 高木秀蔵, 藤沢節茂, 藤原建紀 (2009a) 備讃瀬戸のノリ養殖の現状と河川からの栄養塩供給. *海洋と生物*, 31: 118-122.
- 高木秀蔵, 岩本俊樹, 飯野浩太郎 (2009b) 児島湾における底質環境の現状と近年の変化. *岡山水試報*, 24: 1-5.
- 高木秀蔵, 難波洋平, 藤沢節茂, 渡辺康憲, 藤原建紀 (2012a) 備讃瀬戸に流入する河川水の広がり とノリ漁場への栄養塩供給. *水産海洋研究*, 76: 197-204.
- 高木秀蔵, 清水泰子, 草加耕司, 藤沢節茂, 藤原宗弘, 渡邊康憲, 藤原建紀 (2012b) 河川から間欠的に供給される栄養塩によるノリ色調の回復. *日水誌*, 78: 246-255.
- Yamada, M. and Nozaki, Y. (1986) Radium isotopes in coastal and open surface waters of the western North Pacific. *Marine Chemistry*, 19: 379-389.