金沢大学環日本海域環境研究センター

低レベル放射能実験施設 研究概要・年次報告 2012.4~2013.3



Annual Report of Low Level Radioactivity Laboratory Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

1	權成員	. 7
		_

2. 活動報告

2-1.	研究概況	3
2-2.	研究業績	6
2-3.	研究費	3
2-4.	研究指導	4

3. 研究報告

4. 記録

平成24年度見学来訪	 ・出張の記録	· 3	6
------------	---------------------------	-----	---

1. 構成員

職員

・教授 (施設長)	山本政儀 (pluto@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)				
理学博士 専攻	核地球化学・環境放射能				
・教授	長尾誠也 (s_nagao@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)				
博士 (水産学) 専攻	女 地球化学・環境放射化学				
・助教	浜島靖典 (hama@cacheibm.s.kanazawa-u.ac.jp)				
博士 (理学) 専攻	核放射化学・放射線計測				
・助教	井上睦夫 (mutsuo@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)				
博士 (理学) 専攻	同位体地球化学				
・博士研究員	落合伸也 (sochiai@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)				
博士 (理学) 専攻	古環境				
・博士研究員	村上拓馬 (takuma@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)				
博士 (理学) 専攻	古環境				
・博士研究員	西村周作 (erde1002@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)				
博士 (農学) 専攻	土壤科学				
・事務補佐員	中本美智代 (nakamoto@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)				

学生

- ·博士後期課程 社会人選抜 小藤久毅
- ·博士後期課程3年 鈴木智代
- ·博士前期課程2年 高田貴裕
- ·博士前期課程2年 金森正樹
- ·博士前期課程1年 浜高一仁
- ·博士前期課程1年 古澤佑一
- ·化学科4年生 荒井隆史
- ·化学科4年生 河野百合子
- ・化学科4年生 川村皓一 (有機化学)

2. 活動報告

2-1. 研究概況

本研究施設では、低バックグラウンドガンマ線測定法などの適用により、放射性核種を精密に 測定し、物質の時間的・空間的分布や移行挙動の環境・地球科学的解析を行うほか、放射性同位 体をトレーサーとする研究領域の開拓を目指すことを目的としている。本年度は、福島第一原発 事故関連も含めて以下の研究を実施した。

1) カリフォルニアに落下した炭素質隕石中の宇宙線生成核種

尾小屋地下実験室の極低バックグランド井戸型 Ge 検出器を用いて,2012 年 4 月 22 日にカリ フォルニアに落下した炭素質隕石の中から,3~5g 程度の試料 2 個を尾小屋地下実験施設の井 戸型 Ge 検出器で測定した。Co57, Cr51, Be7, Co58, Mn54, Co60, Na22, K40, Al26 を検出し た。他の分析結果とともに, Science 338, 1583-1587 (2012) に掲載された。

2) 大陸からの汚染物質の長距離輸送

我が国は、極東アジアの中緯度に位置するため、ジェット気流に伴う偏西風が卓越し、冬期に はシベリア等気圧に伴う季節風によって、風上側のアジア大陸から日本海を経由して多量の自然・ 人為起源物質が日本列島さらに太平洋に輸送される.これらの輸送の実態把握と将来予測は気候 変動の面からのみならず、環境汚染物質や黄砂の影響評価の面からも重要視されている.当実験 施設のある石川県辰ロ町で一月毎に採取している 20 数年継続の降下物試料を用いて放射性核種, ①成層圏起源の⁷Be,②主に大陸起源の²¹⁰Pb,③土壌起源の⁴⁰K および¹³⁷Cs 降下量の長期観測を実 施している.これらの放射性核種は、大気エーロゾル、鉱物粒子(黄砂も含めて)の大陸から日本へ の輸送過程を解明する有用なトレーサーでありデータの蓄積を図っている.併せて、本年度はア ジア大陸由来の空気塊が日本海でどのように変質しているかを検討するために、ハイボリュム・ エアサンプラーを用いて、エアロゾルも採取し、大気と降下物のつながり、変動などを検討した。

3) 海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究

海水中に震災前から存在する極微量の人工放射性核種¹³⁷Cs(30.17年)に加え,震災以降放出 された¹³⁷Cs及び¹³⁴⁷Cs(2.06年)の海水循環の研究で,550試料の北太平洋全域の表層海水,及 び,東経165度北緯48度~南緯4度の800mまでの海水中の¹³⁷Csおよび¹³⁴⁷Cs濃度を尾小屋地 下実験室のGe検出器で測定した。この結果から太平洋の海水循環に加え震災により放出された放 射性物質の移流拡散が明らかになった。この結果は、他の分析結果とともに、 Biogeosciences, 10, 3067-3078 (2013)に掲載され、海水大循環予測モデルのデータとして提供し、モデ ルの検証が行われている。

4)²²⁸Ra/²²⁶Ra 比,⁷Be 濃度からみた日本海の水塊流動

2012年7月に中央水産研究所所属の蒼鷹丸の航海で採取された日本海表層水の²²⁸Ra/²²⁶Ra 比を 測定、解析することにより、表層海水の循環パターンを議論した。さらに7Be 濃度の鉛直分布を 求めることにより、海水の鉛直循環に関する知見を得た。これは前年度に我々が検討した日本海 にもたらされた福島原発起源の放射性セシウムの日本海からの除去パターンを支持するものであ った。²²⁸Ra/²²⁶Ra 比と⁷Be 濃度の分布を組み合わせることにより、日本海海水の三次元的海水循 環モデルの構築を試みている。その結果は、海洋学のみならず、有事の際の汚染物質の移行を推 測する上でも重要である。

5) 陸奥湾における堆積環境の研究

青森県の陸奥湾をフィールドにして、海底堆積物の堆積環境変遷解明の研究を昨年度から行っ ている。陸奥湾は大都市と比べて人口密度の低い地域に存在し、沿岸からの人為的影響が比較的 少ないと推察できるが、陸奥湾は漁業生産の場として古い歴史を持ち、1970年代から増養殖産業 (特にホタテ)が盛んに行われており、過密養殖によるホタテの大量斃死、水質悪化による赤潮の害 が発生しており、ヘドロの増加も懸念されている。内湾全域の堆積環境の解析を目的として、西 湾と比べて海水交換が少なく、汚染が進行していると思われる東湾を中心に新たに7地点でコア ーを採取した。堆積環境の変遷の全体像を把握するために、²¹⁰Pb(半減期 22.3年)を用いた堆積速 度、蓄積量などを検討した。その結果、湾央が沿岸と比べて、過剰²¹⁰Pb量の蓄積量が多く、表層 が 10-15cm 深さまで生物的作用で撹乱されていることが見出され、湾央への sediment focusing が 進行していることが示唆された。

6) 旧ソ連核実験場セミパラチンスク周辺住民の被曝線量評価

旧ソ連の核実験場セミパラチンスクでは、450回以上の核実験が行われ、それによって数十万と も言われる周辺の住民が幅広い範囲で外部および内部からの長期の低線量率被曝を受けてきた. 1994年以来、低線量のリスク評価に資するデータを提供するために、住民への放射線影響の基礎 となる被曝線量評価、特に放射能汚染状況の把握と外部被曝および内部被曝線量評価を重点的に 行っている.今年度も、核実験場(大気、地上実験を実施した場所)から南に約140kmに位置す るカラウル村内外できめ細かな土壌採取を行い、¹³⁷Cs、Pu 測定を通して放射性雲の飛来状況(セ ンター軸、幅)と降下レベルの把握、被曝線量の推定を目指した.

7) 大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型地下水の Ra 同位体の地球化学的研究

油田塩水など、海水よりも高塩濃度の塩水が Ra 同位体を高濃度(例えば、²²⁶Ra 濃度で数 10~数 100 Bq/kg)に含むことが世界の幾つかの地域で見出されている。近年、国内においても掘削技術の 進歩により平野部や海岸地域において大深度井の開発が進み、様々な種類の水(例えば、海水、 化石水、沈み込むプレートからの脱水流体など)を起源とする高塩濃度 Na-Cl 型地下水が得られ るようになった。その大部分は、温泉として利用されている. 我々は、これら高塩濃度 Na-Cl 型 地下水が²²⁶Ra を高濃度に含むのではないかと考え、Na-Cl 型地下水中の Ra 同位体の地球化学的 研究を実施してきた。 これまで、典型的なグリーンタフ地域である石川県、日本の油田・ガス田 地域である新潟県および一部石油や天然ガスを含む温泉が点在する富山県氷見市をフィールドに して研究をしてきた. その結果、1Bq/kg をこえる地下水が点在することが明らかになり、Ra 同 位体の起源や水相への輸送メカニズム解明が重要になった。今年度は、昨年度に引き続き、北海 道の西側(中央も含めて)において大深度高塩分熱水の地下水採取を行い、昨年度のデータと併 せて検討を行った。

8) アクチノイドと腐植物質との錯体研究

放射性廃棄物の地中埋設処分において、放射性核種の移行に影響を及ぼす溶存有機物の検討 が重要課題として残され、地下水有機物の大部分を占め、アクチノイドとの錯形成能が高い腐植 物質を対象にした研究が行われている。腐植物質は、フミン酸とフルボ酸で構成され、生成され る環境により構造・官能基特性等が異なる。そのため、アクチノイドの移行挙動への影響を定量 化するには、1つのパラメータで系統的に評価する必要がある。2012年度は、北海道幌延地域の 深部地下水から分離精製したフミン酸とフルボ酸を用い、Eu(III)との錯形成能を三次元蛍光分光 光度法により評価した。その結果、幌延地下水のフミン酸とフルボ酸は、Eu との錯形成能は同じ 程度であることが示唆された。

9) C-14 をトレーサーとした有機物の環境動態研究

地球温暖化に関係した有機物の動態研究では、炭素の貯蔵媒体の陸域や海洋における溶存有機 炭素の特徴や起源推定、時間軸を考慮することが重要である。当実験施設では、炭素安定同位体 比(δ^{13} C)と放射性炭素(Δ^{14} C)を組み合わせて、有機物の分解・滞留時間を考慮した有機物の 移行動態の検討を進めている。本研究では、河川流域から河川を経由して輸送される粒子態 有機物の移行動態、および、沿岸域堆積物への堆積過程を明らかにするため、九頭竜川、 釧路川、別寒辺牛川-厚岸湖、熊木川-七尾西湾を対象に有機物の Δ^{14} C と δ^{13} C 値を測定した。 その結果、釧路川では河川の上流から下流にかけての流域で供給される有機物の特徴は異なり、 海洋沿岸域に対しては、下流域からの寄与が大きいことが明らかとなった。また、別寒辺牛川が 流れ込む厚岸湖の表層堆積物有機物の δ^{13} C 値は、別寒辺牛川河口から離れるに従い-27.4 ‰から-19.1‰へ増加し、 Δ^{14} C 値も-50‰から-169‰と増加した。 Δ^{14} C 値を δ^{13} C 値をdロットすると、河川懸濁粒子と厚岸湖表層堆積物の有機物は、負の相関関係が存在した。 このことは、海底堆積物に負荷される海洋起源有機物は陸起源有機物との二成分の混合に より支配されていることが考えられる。また、海洋起源有機物の Δ^{14} C 値が陸起源有機物に 比べて、見かけ上古いことは、プランクトン等の新しく生成された有機物は堆積物表層で 分解され栄養塩を生成する、さらには、厚岸湾への移動が早いことを示唆している。

10) 能登半島七尾湾流域における物質動態研究

里山と里海の連関性を物質動態の観点より検討するため、昨年度は熊木川と七尾西湾での調査 を4月と8月に実施した。その結果、七尾西湾では、西部と東部で堆積環境が異なり、西部では 細粒物質の堆積が卓越していた。一方、有機物の堆積状況も西部と東部で異なり、海流・河川の 影響が寄与示唆された。また、2012年8月の七尾西湾西部の底層水では、222Rn 放射能濃度が高 い分布を示した。特に、水深が浅いほど 222Rn 放射能濃度は高くなる傾向を示し、浅層地下水の 流入の可能性が示唆された。

11) 福島第一原発事故に絡む放射能汚染の調査・研究

事故が発生して以来2年余りが経過した。今年度も、昨年度に引き続き、環境に放出された放射性核種、特に放射性セシウムの動態研究(福島県内の河川、太平洋、日本海の海水)および超ウ ラン元素諸核種(^{238,239,240}Pu,²⁴¹Am,^{242,243,244}Cm)の測定を実施した。

a) 福島県内の河川

福島第一原子力発電所から環境中に放出された放射性セシウムは陸上の広範囲に沈着し、福島 県と茨城県、群馬県の山間部に比較的高い放射性セシウムの蓄積量を示している。本研究では、 2011年12月、2012年4月、6月に阿武隈川、久慈川、那珂川、利根川で河川水を採取し、河川 水の放射性セシウム濃度を測定した。本発表では、各流域における放射性セシウムの放射能濃度 から移行挙動を検討した。その結果、2011年12月の阿武隈川河川水の¹³⁷Csの放射能濃度は41 mBq/Lから120 mBq/Lの変動幅を示し、下流の伊達市で最大値を示した。宇多川では37 mBq/L、 飯舘村を流れる新田川では189 mBq/L と高い値であった。一方、福島県南部の夏井川と鮫川では、 11 mBq/L から28 mBq/L と阿武隈川に対して低い放射能濃度を示し、群馬県の利根川、烏川、 渡良瀬川ではほぼ同じ放射能濃度(7.7-13 mBq/L)であった。これらの河川水中の放射性セシウ ムの放射能濃度は、河川流域土壌への放射性セシウムの蓄積量水平分布とほぼ一致していた。つ まり、事故後9ヶ月経過した時点でも、河川水中の放射性セシウムの放射能濃度は、河川流域環 境に左右されていることが考えられる。

b) 太平洋の海水

本研究では、研究調査船みらい MR-11-05 次航海(2011 年 6 月 30 日~8 月 2 日)、研究調査船白鳳丸 KH-11-07 次航海(2011 年 7 月 16 日~8 月 2 日)、研究調査船淡青丸 KT-11-22 次航海(2011 年 9 月 7 日 ~9 月 10 日)、および KT-11-27 次航海(2011 年 10 月 27 日~11 月 1 日)の計 4 回の航海による海水試料 (約 20 L)を用いた。4 つの航海の結果を比較してみると、東経 145°より近傍の海洋では Cs-134 の放 射能濃度が 100 mBq/L を超え、濃度分布は一様ではなく複雑であった。また、北緯 36°、東経 142° 付近では観測時に黒潮の影響で検出限界以下であった。東経 145°より遠方の海域では、北緯 37°以 南で黒潮の影響により検出限界以下、北緯 37°以北では大気経由とみられる放射性セシウムがゆっく りと遠方へ運ばれていることが示唆された。

c) 日本海の海水

平成 24 年 7 月の中央水産研究所、蒼鷹丸の調査航海に参加し、0・1000 m 水深で海水 60 L を採 取した。検出限界 0.03 mBq/L の測定条件で、低バックグラウンドγ線測定法を適用したが、福 島第一原発事故に起因する¹³⁴Cs は全試料において検出されなかった。我々の先の研究で、秋田~ 北海道沖合の表層海水に極微弱 (~1mBq/L) なセシウムの汚染がみられたが、対馬暖流の寄与に より、それら大部分は深層に移行する以前に津軽海峡、宗谷海峡から流出したと考えられた。

2-2. 研究業績

1) 学術論文

- M. Aoyama, D. Tsumune, Y. Hamajima (2013) Distribution of ¹³⁷Cs and ¹³⁴Cs in the North Pacific Ocean: Impacts of the TEPCO Fukushima-Daiichi NPP accident. J. Radioanal. Nucl. Chem. 296, 535-539.
- (2) M. Aoyama, M. Uematsu, D. Tsumune, and Y. Hamajima (2013) Surface pathway of radioactive plume of TEPCO Fukushima NPP1 released ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs. *Biogeosciences*, **10**, 3067-3078.
- (3) M. Aoyama, D. Tsumune, M. Uematsu, F. Kondo, Y. Hamajima (2012) Temporal variation of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs activities in surface water at stations along the coastline near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident site, Japan. *Geochem. J.*, 46, 321-325.
- (4) M. C. Honda, T. Aono, M. Aoyama, Y. Hamajima, H. Kawakami, M. Kitamura, Y. Masumoto, Y. Miyazawa, M. Takigawa and T. Saino (2012) Dispersion of artificial caesium-134 and -137 in the western North Pacific one month after the accident. *Geochem. J.*, 46, e1-e9.
- (5) T. Imanaka, S. Endo, M. Sugai, S. Ozawa, K. Shizuma, M. Yamamoto (2012) Early radiation survey of the Iitate Village heavily contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, conducted on March 28th and 29th, 2011. *Health Phys.* **102**, 680-686.
- (6) Inoue, M., Kofuji, H., Hamajima, Y., Nagao, S., Yoshida, K., Yamamoto, M. (2012) ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs activities in coastal seawater along Northern Sanriku and Tsugaru Strait, northeastern Japan, after Fukushima Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactivity* **111**, 116-119.
- (7) Inoue, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Fujimoto, K., Yoshida, K., Hayakawa,

K., Suzuki, A., Takashiro, H. and Minakawa, M. (2012) Low-levels of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in surface seawaters around the Japanese Archipelago after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in 2011. *Geochem. J.* **46**, 311-320.

- (8) Inoue, M., Yoshida, K., Minakawa, M., Kiyomoto, Y., Kofuji, H., Nagao, S., Hamajima, Y. and Yamamoto, M. (2012) Spatial variations of ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, and ²²⁸Th activities in seawater from the eastern East China Sea. *Geochem. J.* 46, 429-441.
- (9) Inoue, M., Kofuji, H., Murakami, T., Oikawa, S., Yamamoto, M., Nagao, S., Hamajima, Y. and Misonoo, J. (2013) Spatial variations of low levels of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in seawaters within the Sea of Japan after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Appl. Radiat. Isot.* (in press).
- (10) Peter Jenniskens, Marc D. Fries, Qing-Zhu Yin, Michael Zolensky, Alexander N. Krot, Scott A. Sandford, Derek Sears, Robert Beauford, Denton S. Ebel, Jon M. Friedrich, Kazuhide Nagashima, Josh Wimpenny, Akane Yamakawa, Kunihiko Nishiizumi, Yasunori Hamajima, Marc W. Caffee, Kees C. Welten, Matthias Laubenstein, Andrew M. Davis, Steven B. Simon, Philipp R. Heck, Edward D. Young, Issaku E. Kohl, Mark H. Thiemens, Morgan H. Nunn, Takashi Mikouchi, Kenji Hagiya, Kazumasa Ohsumi, Thomas A. Cahill, Jonathan A. Lawton, David Barnes, Andrew Steele, Pierre Rochette, Kenneth L. Verosub, Jérôme Gattacceca, George Cooper, Daniel P. Glavin, Aaron S. Burton, Jason P. Dworkin, Jamie E. Elsila, Sandra Pizzarello, Ryan Ogliore, Phillipe Schmitt-Kopplin, Mourad Harir, Norbert Hertkorn, Alexander Verchovsky, Monica Grady, Keisuke Nagao, Ryuji Okazaki, Hiroyuki Takechi, Takahiro Hiroi, Ken Smith, Elizabeth A. Silber, Peter G. Brown, Jim Albers, Doug Klotz, Mike Hankey, Robert Matson, Jeffrey A. Fries, Richard J. Walker, Igor Puchtel, Cin-Ty A. Lee, Monica E. Erdman, Gary R. Eppich, Sarah Roeske, Zelimir Gabelica, Michael Lerche, Michel Nuevo, Beverly Girten, Simon P. Worden (2012) Radar-Enabled Recovery of the Sutter's Mill Meteorite, a Carbonaceous Chondrite Regolith Breccia, *Science* 338, 1583-1587 DOI: 10.1126/science.1227163.
- (11) Katsuta, N., T. Murakami, Y. Wada, M. Takano, M. Kunugi and T. Kawai (2011), "Continental erosion/weathering changes in central Asia recorded in the Holocene sediment from Lake Hovsgol, Northwest Mongolia, by synchrotron, μ-XRF mapping analyses.", International Perspectives on Global Environmental Change, Stephen S. Young and Steven E. Silvern (Ed.), ISBN: 978-953-307-815-1, InTech.
- (12) J. Koarashi, AtarashiAndoh, T. Matsunaga, T. Sato, S. Nagao and H. Nagai (2012) Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radiocesium in soil under different land-use conditions. *Science of the Total Environment*, **431**, 392-401.
- (13) T. Matsunaga, J. Koarashi, M. AtarashiAndoh, S. Nagao, T. Sato and H. Nagai (2012) Comparision of the vertical distributions of Fukushima nuclear accident rediocesium in soil before and after the first rainy season, with physicochemical and mineralogical interpretations. *Science of the Total Environment*, 447, 301-314.
- (14) Murakami, T., N. Katsuta, T. Takamatsu, M. Takano, K. Yamamoto, T. Nakamura and T. Kawai (2012). "Response of Biogenic Silica Production in Lake Baikal and Uranium Weathering Intensity in the Catchment Area to Global Climate Changes.", International Perspectives on Global Environmental Change, Stephen S. Young and Steven E. Silvern (Ed.), ISBN: 978-953-307-815-1, InTech.

- (15) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai, S. Tomihara, K. Fukushi, M. Yamamoto (2013) Export of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences Discussion*, **10**, 1-24.
- (16) Ochiai S., Nagao S., Yamamoto M., Itono T., Kashiwaya K., Fukui K., Iida H.: Deposition records in lake sediments in western Japan of radioactive Cs from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Appl. Radiat. Isot.* (in press).
- (17) A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, M. Hoshi, T. Nakakuki, M. Yamamoto (2012) Uranium-236 as a new tracer-A first depth profile in the Japan Sea and comparison with Cs-137. *Earth Planet. Sci. Lett.* **333-334**, 165-170.
- (18) A. Orkhonselenge, S. K. Krivonogov, K. Mino, K. Kashiwaya, I. Y. Safonova, M. Yamamoto, K. Kashima, T. Nakamura, J. K. Kim (2013) Holocene sedimentary records from Lake Borsog, eastern shore of Lake Khuvsgul, Mongolia, and their paleoenvironmental implication. *Ouaternary Intenational* 290-291, 95-103
- (19) S. Tamamura, S. Nagao, M. Yamamoto, Molecular-size distribution (MSD)-dependent fluorescence quenching of humic substances by complex formation with Eu(III) for different fluorophores. *Humic Substances Research* (accepted, soon issued in 2013)
- (20) M. Terashuma, S. Nagao, T. Iwatsuki, N. Fujitake, Y. Seida, K. Iijima and H. Yoshikawa (2012) Europium-binding abilities of dissolved humic substances isolated from deep groundwater in Horonobe area, Hokkaido, Japan. J. Nucl. Sci. Technol., 49, 804-815.
- (21) M. Yamamoto, T. Takada, S. Nagao, T. Koike, K. Shimada, M. Hoshi, K. Zhumadiov, T. Shima, M. Fukuoka, T. Imanaka, S. Endo, A. Sakaguchi, S. Kimura (2012) Early survey of radioactive contamination in soil due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident: with emphasis on Pu analysis. *Geochem. J.* 46, 341-353

2) 本・総説・資料・報告書

- (1) 長尾誠也:河川環境への影響と課題.日本水環境学会誌、42,91-94 (2013).
- (2) 柴田英昭、上田宏、イレバ・ニーナ、長尾誠也、中村洋平、門谷茂、柴沼成一朗: 第1章 自然河川流域と沿岸生態系-農業と沿岸-1.天塩川、森と海をむすぶ川、京都大学出版(京都大学フィールド科学教育研究センター編)、pp. 1-21、2012.
- (3) M. Yamamoto, M. Hoshi, K. Zhumadilov, S. Endo, A. Sakaguchi, T. Imanaka, Y. Miyamoto : Estimation of close-in fallout ¹³⁷Cs deposition level due to the Hiroshima atomic bomb from soil samples under houses built 1-4 years after the explosion, Revist: The Hiroshima A-bomb with a Database, Volume 2 Hiroshima City 2013, ISBN 978-4-9905935-1-3, p.35-43 (2013/3)

3) 学会発表など

- (1) 古澤佑一、井上睦夫、長尾誠也、山本政儀、浜島靖典、藤本賢、磯田豊:²²⁸Ra/²²⁶Ra 比からみた日本海表層の水塊流動の検討、第56回放射化学討論会、東工大(東京)(2013年10月3日)
- (2) 浜島靖典:尾小屋地下実験施設の井戸型 Ge 検出器による隕石中の宇宙線生成核種の測定、第 56 回放射化学討論会、東工大(東京)(2013年10月3日)

- (3) 井上睦夫:²²⁸Ra/²²⁶Ra比,¹³⁴Cs,¹³⁷Cs,⁷Be 濃度分布からみた日本海の物質循環、2013 年度日本海 洋学会春季大会シンポジウム、2013 年 3 月 25 日、東京海洋大(東京)
- (4) M. Inoue, H. Kofuji, S. Oikawa, T. Murakami, K. Fujimoto, M. Yamamoto, S. Nagao, Y. Hamajima, J. Misonoo: Vertical profiles of low ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs concentrations in seawaters of the Japan Sea after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. 6th international Conference on Radionuclide Metrology Low-Level Radioactivity Measurement Techniques, Sept. 20th, 2012 Jeju (Korea)
- (5) M. Inoue, S. Itoh, H. Yurimoto, M. Kimura, N. Nakamura: A granular-olivine clast with fractionated REE from the Murchison CM Chondrite: Evidence for alteration/metamorphism and melting on the CM parent asteroid. 75th Annual Meteoritical Society Meeting. Cairns, Australia (12-17 Aug. 2012)
- (6) 金森正樹、長尾誠也、落合伸也、山本政儀:降雨時における阿武隈川河川水の放射性セシウム 野移行挙動、2012日本放射化学会年会、東京工業大学 (2012/10/3-5).
- (7) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai et al.: Migration behavior of Cs-134 and Cs-137 derived from the Fukushima Diichi NPP in river systems from Fukuhisma Prefecture. 地球惑星連合大会、千葉幕張 (2012/5/20-25).
- (8) S. Nagao, M. Kanamori, S. Tomihara, S. Ochiai, M. Iwata, M. Inoue and M. Yamamoto: Export of Cs-134 and Cs-137 in the Fukushima river systems at the heavy rain event in September 2011. ASLO Aquatic Sciences Meeting, Lake Biwa, Shiga (2012/7/8-13).
- (9) S. Nagao, T. Aramaki, N. Fujitake, H. Kodama, T. Tanaka, S. Ochiai, M. Uchida, Y. Shibata, S. Ochiai and M. Yamamoto: Variation in Δ^{14} C and δ^{13} C values of dissolved humic and fulvic acids in the Tokachi River system in northern Japan. 21st International Radiocarbon Conference, Paris (2012/9/7-13).
- (10) S. Nagao, K. Hamataka, M. Kanamori, K. Tanaka, K. Hayakawa, S. Yoshida, M. Iniue and M. Yamamoto: Variation in radioactivities of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs derived from the Fukushima Nuclear Power Plant accident in air dust and surface seawaters ariund Japan. FRBRAS-Kanazawa University Joint Symposium, Vladivostok, Russia (2012/8/1).
- (11) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai, K. Suzuki, M. Yamamoto: Dispersion of Cs-134 and Cs-137 in river waters from Fukushima and Gunma Prefecture at nine months after the Fukuhsima accident. ICRS-12 & RSPD 2012, Nara, (2012/9/2-7)
- (12) 長尾誠也、金森正樹、富原聖一、鈴木究真、落合伸也、山本政儀:福島・茨城・群馬県にお ける河川水の放射性セシウムの放射能濃度、2012 日本放射化学会年会、東京工業大学 (2012/10/3-5).
- (13) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai, S. Tomihara and M. Yamamoto: Migration behavior of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs derived from the Fukushima Daiichi NPP in river systems in Fukushima Prefecture, Japan after a heavy rain event. East Asia International Symposium, Kobe (2012/10/8-12).
- (14) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai, S. Tomihara, K. Fukushi, M. Inoue, Y. Hamajima and M. Yamamoto: Pulse input of Cs-134 and Cs-137 from river to coastal region in Fukushima area by heavy rain events. Science symposium on the accident at Fukushima Daiichi-Exploring the impacts of radiation on the ocean, The University of Tokyo (2012/11/12-13)
- (15) S. Nagao: Changing concept of material cycle and its boundaries. BRIT XII-2012 (The XII

International Scientific Meeting on Border Regions in Transition), Fukuoka/Busan (2012/11/13-16).

- (16) 長尾誠也: 炭素・窒素同位体比を用いた環境変遷と人の健康との関係とその応答性. 公衆 衛生研究会、金沢大学 (2013/3/1)
- (17) 長尾誠也:河川における放射性物質の動態、環境省推進費成果報告会「放射性物質の挙動と 流出」、東京大学 (2013/3/18)
- (18) 長尾誠也、金森正樹、富原聖一、落合伸也、山本政儀:河川を含めた陸水の蓄積-放射性セシウムの河川からの流出に及ぼす影響-、日本海洋学会春季大会シンポジウム「東日本大震災による放射性物質汚染:堆積物の謎に迫る」、東京海洋大学 (2013/3/25).
- (19) 長尾誠也:熊木川-七尾西湾の物質動態の特徴-趣旨説明、金沢大学里山里海再生学シンポジ ウム「里山里海の自然と人々の暮らし~持続可能な地域発展をめざして」、七尾市 (2013/3/29).
- (20) 西村周作、鈴木庸平、福田朱里、今野祐多、執印訓子、長尾誠也;室内培養実験における地下水溶存有機物の特徴.日本腐植物質学会第28回講演会、東京(2012.11.21-22)
- (21) 落合伸也,長尾誠也,米林甲陽,福山泰治郎,山本政儀,柏谷健二,中村浩二: 貯水池堆積
 物に基づく能登半島の流域環境変動の推定,日本地球惑星科学連合 2012 年度連合大会,千葉 (2012/5)
- (22) Ochiai S., Nagao S., Yonebayashi K., Itono T., Kashiwaya K., Yamamoto M.: Catchment environmental changes inferred from Lake Onuma in Hokkaido, Japan. 2012 ASLO Aquatic Science Meeting, Otsu, Japan (2012/7)
- (23) Ochiai S., Nagao S., Yamamoto M., Itono T., Kashiwaya K., Fukui K.: Deposition records in lake sediments in western Japan of radioactive Cs from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. 6th International Conference on Radionuclide Metrology Low-Level- Radioactivity Measurement Techniques, Jeju, Korea (2012/9)
- (24) Ochiai, S., Nagao, S., Yonebayashi, K., Itono, T., Suzuki, T., Kashiwaya, K., Yamamoto, M.: Catchment environmental changes inferred from geochemical properties of Lake Onuma sediment, Japan, The 9th East Asia International Workshop on Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Asia, Kobe, Japan (2012/10)
- (25) 落合伸也, 鈴木智代, 長尾誠也: 七尾西湾の堆積環境, 金沢大学里山里海再生学シンポジ ウム『里山里海の自然と人々の暮らし~持続可能な地域発展をめざして』, 七尾 (2013/3)
- (26) T. Onishi, S. Nagao: Outlines of official hydrological and hydrochemical monitoring program in Japan. Amur-Okhotsk Consortium-Joint Research Cruise in Amur River 2012-, Khbarovsk, Russia (2012/9/24-10/1)
- (27) A. Sakaguchi, H. Chiga, P. Steier, K. Shizuma, M. Hoshi, Y. Takahashi, M. Yamamoto :Preliminary Results of Uranium-236, Plutonium-239, 240 and Cesium-137 Measurements in Samples Related With 'Black Rain' after the Hiroshima Atomic Bomb, Health Physics Society 58th annual meeting Health Physics 2013, Sakuramento, USA (2012/7)
- (28) A Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, M. Yamamoto :Depth distributions of uranium-236 and cesium-137 in the Japan/East Sea; toward the potential use as a new oceanic European Geosciences Union General Assembly 2013 circulation tracer ウィーン オーストリア (20124/7-11)

- (29) 杉本亮、本田尚美、鈴木智代、落合伸也、谷口真人、長尾誠也: 夏季の七尾西湾における 栄養塩分布に地下水湧出が及ぼす影響、平成24年度日本水産学会秋季大会、水産大学校 (2012/9/14-17)
- (30) 高田貴裕、山本政儀、長尾誠也、玉村修一、佐々木圭一、張 勁、秋田藤夫、高塩分温鉱泉 中のラジウム同位体の挙動、第65回温泉科学会、登別温泉、北海道 (2012/9/26-29)

4) 研究交流

・共同研究

- (1) 山本政義、旧ソ連核実験場セミパラチンスクの環境放射能汚染と住民の被曝線量評価、星 正 治、広島大学原爆医学放射線研究所、1995-現在
- (2) 山本政義, 環境試料中の迅速簡便な²⁴¹Am 分析・測定法の開発、海洋生物環境研究所共同 研究(及川真司 研究員)、2010-2012
- (3) 長尾誠也、北海道沿岸河口域における物質動態に関する検討、北海道大学低温科学研究所、一般共同研究、2009-現在
- (4) 長尾誠也、C-14 をトレーサーとし河川水中粒子態有機物の起源推定研究、日本原子力研究開 発機構、施設利用共同研究、2006-現在
- · 海外渡航
- (1) 山本政儀、旧ソ連核実験場周辺住民の被曝線量評価」の土壌試料収集(基盤研究(海外 B)カ ザフスタン共和国 (2012. 8.1-9)
- (2) 長尾誠也、日本-ロシア二国間共同研究、ロシア (2012/7/31-8/4)
- (3) 長尾誠也、17th International Conferences of International Humic Substances Society、中国 (2012.9.9-15)
- (4) 長尾誠也、アムール・オホーツクコンソーシャム、ロシア (2012.9.24-10/1)
- (5) 井上睦夫、75th Annual Meteoritical Society Meeting、オーストラリア (2013/9)
- (6) 井上睦夫、6th International Conference on Radionuclide Metrology Low-Level- Radioactivity Measurement Techniques、韓国 (2013/9)
- (7) 落合伸也、6th International Conference on Radionuclide Metrology Low-Level- Radioactivity Measurement Techniques、韓国 (2013/9)

5) 各種活動 (大学・学会・社会)

・ 他大学での集中講義

長尾誠也(非常勤講師)、集中講義 専門科目「地球環境科学特別講義」神戸大学 2012/8/30-31 長尾誠也、北海道大学原子力人材育成 中級講義「環境放射能測定 VI 海洋における放射性核種 の挙動」

·学会活動

山本政儀:日本温泉科学会編集委員、日本放射線研究連合幹事 長尾誠也:日本原子力学会バックエンド部会副部会長、日本放射化学会編集委員、日本腐植物質 学会編集委員・評議委員・会長、国際腐植物質学会日本支部長、日本地球惑星連合2012年 大会「水循環・水環境」コンビーナー

浜島靖典:日本放射化学会ニュース編集委員

・社会活動

- 山本政儀:日本分析センター評議委員、環境科学技術研究所委員会委員、福井県美浜町原子力環 境安全監視委員、石川県原子力環境安全管理協議会委員、石川県放射線測定試技術委員会委 員、金沢市災害対策技術アドバイザー会議委員
- 長尾誠也:小松高校 SSH 運営委員・評価委員、日本原子力研究開発機構研究嘱託、環境技術研究 所 排出放射能環境移行調査検討委員会委員

・招待講演および特別講演、依頼講演

- (1) 山本政儀 「正しく知る放射能・放射線—福島第一原発事故から」、旧辰ロ町職員 OB 会、辰公 会総会、辰口福祉会館、石川県能美市 2012/4/22
- (2) 山本政儀 「福島第一原発事故による環境汚染と汚染地域の人々-正しく恐れる放射線被曝」 富山県砺波市頼成、西慶寺、2012/5/26
- (3) 山本政儀「正しく知る放射能・放射線-福島第一原発事故から」 金沢市役所環境政策課、金 沢ニューグランドホテル、2012/6/4
- (4) 山本政儀「放射能・放射線とはなあ-に」平成24年度環境放射線測定教室、 石川県立志賀高等学校(能登地区高等学校生徒),2012/7/27
- (5) 山本政儀「正しく知る放射能・放射線」金沢市役所環境局部局専門研修会,金沢市役所、2012/8/22
- (6) 山本政儀「放射線—福島第一原発事故を顧みて」 第一回金沢市原子力災害対策検討会、金沢市役所、2012/8/23
- (7) 山本政儀「正しく知り恐れる放射能・放射線―福島第一原発事故を顧みて」 薬剤師 PS 講座 石川県薬剤師会 羽咋市シルバー人材センター、2012/9/9
- (8) 山本政儀「放射能・放射線―福島第一原発事故を顧みて」 金沢市議会、金沢市役所、2012/10/19
- (9) 山本政儀 特別講演:放射線を正しく怖がり,賢く使うために「福島第一原子力発電所の事故 と環境放射能」 富山大学 放射線に関する情報発信、富山大学五福キャンバス理学部 2F 多 目的ホール 2013/2/5
- (10) 山本政儀「超ウラン元素 (Pu, Am, Cm)諸核種の放出実態」第25回放射性同位元素研究連絡 シンポジウム、金沢大学・自然科学大講義棟1階レクチャーホール、2013/3/8
- (11) 山本政儀「正しく知る放射能・放射線―福島第一原発事故からー」 金沢大学附属高等学校、 2013/3/15
- (12) 長尾誠也:福島県内河川の放射性物質の測定結果について、いわきサイエンスカフェ、いわき (2012/6/30).
- (13) 長尾誠也、関宰、寺島元基、川東、児玉宏樹、V.P.Shesterkin、V.I.Kim、S.I.Levshina、A,N.Makhinov、
 B.Yan、B.Zhang: 大陸と概要を結ぶ溶存鉄とその役割-アムール川とオホーツク海での調査研究
 -. 日本分析化学会北陸懇談会、福井大学 (2012/7/13)
- (14) 長尾誠也:能登半島の環境維持と再生-河川水系の変化-、公開市民講座「金沢大学の研究現

場に見る"再生"への道」、金沢大学サテライトプラザ (2012/7/21).

- (15) 長尾誠也:能登半島の里山里海環境と津軽半島との連携について、第1回津軽半島サミット、 五所川原 (2012/9/1-2).
- (16) 長尾誠也、浜高一仁、井上睦夫、田中潔、本多牧生、張頸、早川和一、濱島靖典、山本政儀 「日本周辺海洋環境における放射性セシウムの動態」環境分析研究懇談会、環境第61回分析 化学年会、金沢大学 (2012/9/19-9/21)
- (17) 長尾誠也「福島河川における放射性セシウムの移行動態」、公開特別シンポジウム「福島原発から考える元素動態」、環境第61回分析化学年会、金沢大学 (2012/9/19-9/21)
- (18)長尾誠也、金森正樹、富原聖一、落合伸也、山本政儀:福島原発由来放射性セシウムの河川 水系での移行挙動、日本水環境学会特別講演会「放射性物質の環境動態-チェルノブイリ原発 事故から学ぶ-」、東京大学工学部(2012/10/23).
- (19) 長尾誠也:河川および海洋における放射性セシウムの移行動態、金沢大学シンポジウム「福島原発事故に対する金沢大学のアプローチ」、金沢大学 (2013/3/8).
- (20) 長尾誠也、河野百合子:木場潟の COD 環境基準値超過の原因解明、木場潟環境フォーラム、 小松市 (2013/2/17).
- (21) 長尾誠也:木場潟再生プロジェクトー水郷木場潟の再生に向けた水質・底質分析ー、小松市・ 金沢大学連携協定1周年記念シンポジウム、小松市(2013/2/24).

6) その他

新聞・テレビ報道

- (1) 山本政儀、黒い雨」 痕跡-初確認中国新聞 (2012/5/24)
- (2) 山本政儀、「戦艦陸奥 今も現役」: 遮蔽材に変身北國新聞(35 面, 町を歩く)(2012/6/24)
- (3) 長尾誠也、長尾教授が結果などを説明 いわて民報 (2012/7/1)
- (4) 長尾誠也、金沢大学とアクアマリン 県内の川の放射能汚染を調査 福島中央テレビ (2012/8/8)
- (5) 長尾誠也、「環境半島学」能登発信へ 読売新聞朝刊 (2012/8/21)
- (6) 長尾誠也、木場潟浄化へ本腰 北國新聞朝刊 (2012/11/21)

2-3. 研究費

平成24年度

研究費

1)科学研究費等

(1) 山本政儀	(代表)	基盤研究(B)、	3,100 千円
(2) 山本政儀	(代表)	基盤研究(C)、	750 千円
(3) 山本政儀	(代表)	新学術領域研究、	総額 32,500 千円
			山本 2,450 千円
(4) 山本政儀	(分担)	新学術領域研究、	200 千円
(5) 山本政儀	(分担)	基盤研究(C)、	100 千円
(6) 山本政儀	(分担)	基盤研究(C)、	50 千円

(7) 日	山本政儀	(分担)	基盤研究(B)、	600	千円
(8) 日	山本政儀	(分担)	基盤研究(B)、	100	千円
(9) ∄	長尾誠也	(代表)	基盤研究(B)	7,600	千円
(10)	長尾誠也	(分担)	新学術領域研究、	4,450	千円
(11)	長尾誠也	(分担)	基盤研究(C)、	100	千円
(12)	長尾誠也	(分担)	基盤研究(B)、	50	千円
(13)	井上睦夫	(代表)	基盤研究(C)	1,500	千円
(14)	井上睦夫	(分担)	基盤研究(B)、	100	千円
(15)	浜島靖典	(分担)	新学術領域研究、	9,560	千円
(16)	浜島靖典	(分担)	基盤研究(B)、	1,070	千円
(17)	浜島靖典	(分担)	基盤研究(C)、	100	千円
(18)	長尾誠也	特別約	圣費里山里海再生学、	300	千円

2)受託研究費等

(1)	山本政儀、	石川県受託研究、	1,904 千円
(2)	山本政儀、	日本原子力研究開発機構受託研究、	13,239 千円
(3)	山本政儀、	海洋生物環境研究所共同研究、	810千円
(4)	長尾誠也、	国立環境研究所受託研究、	997 千円
(5)	長尾誠也、	日本原子力研究開発機構受託研究、	914 千円
(6)	長尾誠也、	産業技術総合研究所受託研究 、	6,000千円
(7)	長尾誠也、	小松市受託研究、	285 千円
(8)	井上睦夫	日本海洋振興財団受託研究	2,100 千円
(9)	浜島靖典	気象研究所受託研究	2,162 千円
(10))浜島靖典	㈱環境総合テクノス寄付金	11,500 千円

2-4. 研究指導

1) 博士論文

- Zinnat Ara Begum Remediation of toxic metal contaminated soil using biodegradable aminopolycarboxylate chelants、自然科学研究科物質化学専攻、博士(工学)副査:長尾誠也
- (2) 岡村浩之 Ionic liquid extraction of metal(II, III) complexes with macrocyclic and chelating ligands (大環状およびキレート配位子を有する金属(II, III)錯体のイオン液体抽出)、自然科学研究科 物質化学専攻、博士(理学)副査:長尾誠也

2) 修士論文

- (1) 金森正樹、福島県内の河川における放射性セシウムの移行挙動研究、自然科学研究科物質化学 専攻、修士(理学)、長尾誠也
- (2) 高田貴裕、高塩分地下水中におけるラジウム同位体の挙動、自然科学研究科物質化学専攻、修 士(理学)、山本政儀

3) 卒業研究

- (1) 荒井隆史、北西太平洋における福島原発由来放射性セシウムの拡散挙動、理学部化学科、学士 (理学)、長尾誠也
- (2) 河野百合子、木場潟の有機汚濁の原因解明、理学部化学科、学士(理学)、長尾誠也

3. 研究報告

大深度掘削 NaCl 型温鉱泉水中のラジウム (Ra) 濃度 -高濃度 Ra 泉存在の普遍性と成因解明-

高田貴裕¹、富田純平²、山本政儀¹、長尾誠也¹、玉村修一³、佐々木圭一⁴、 張 勁⁵、秋田藤夫⁶

¹金沢大・LLRL,²日本原子力開発機構、³北海道科学技術総合振興センター・幌延地圏環境 研究所、⁴金沢学院大学、⁵富山大学、⁶北海道立総合研究機構・北海道地質研究所

1. はじめに

掘削技術の進歩により、陸域で1000m級の大深度掘削が可能になり、日本列島の平野部の 地下には、深層熱水地下水と呼ばれる高塩分の水が貯留されていることが分かってきた。 諸外国では、高塩分をもつ塩水中に非常に高濃度の226Raが見出されている。そこで、数年 前から、大深度掘削井から得られる高塩分深層地下水に興味を持ち、北陸の沿岸地域から 北海道にいたる地域を中心に1000m 級の大深度掘削井から湧出する温泉水中の天然放射性 核種(ウラン(U)、ラジウム(Ra)同位体)の測定を継続してきた。その結果、Ra同位体を 高濃度(>1 Bq/kg)(放射能温泉としての定義:²²⁶Ra ≧ 0.37 Bq/kg)に含む温泉水を数多 く新規に見出し、ウラン鉱床の無い沿岸の平野部の温鉱泉でこのような値が検出されるこ とは極めてまれであるため、その成因解明が、放射能温泉探査のみならず U, Th を含む Ra のホットアトム反跳化学、岩石-高塩分熱水反応に絡む物質循環研究、高レベル放射性廃棄 物地層処分の長期挙動解明のナチュラル・アナログ研究にも役立つのではないかとの着想 に至り研究を進めてきた。ここでは、これまでの成果を纏めて述べる。

2. 研究の方法

日本海に面する石川、富山、新潟、山形、秋田、青森、北海 道西部を中心に、主として1000m以深から湧出する温泉水に 着目して試料水を採取した。試料水は源泉付近から採水を行 い(計100地点以上)、現地で温度、pHを測定した。温泉水 20 L を用いて U, Ra 同位体を Fe, Ba 共沈にて分離・精製し、 α線およびγ線測定により U,Ra 同位体を定量した。また、 別途採水した温泉水 100 mL を用いてイオンクロマトグラフ と安定同位体比用質量分析計(富山大学 張研究室)により主 要溶存イオン濃度と水素・酸素安定同位体比を測定、0.1 M 硫酸とメチルクレゾールを用いて pH4 アルカリ度を測定し た。掘削カッティングスを用いた抽出実験は、試料 10g を希酸(0.5 M 塩酸 300 mL)で 15 分間超音波振盪で反応 させ、抽出相と残渣を分離して、それぞれの放射能を測 定した。また Ra の吸着実験はバッチ法にて、鉱物試料(モ ンモリロナイト、カオリナイト、ゲータイト) 0.01gに NaCl 溶液(0.001 M, 0.01 M, 0.1 M, 0.5 M, 1.0 M) 30 mL を 混合し、²²⁶Raトレーサーを添加して2日間反応させた後 に溶液を分離し、y線測定にて吸着量を測定して、分配 係数Kd等を算出した。



3. 研究成果

①温泉水の特徴

採取した全ての温泉水について主要溶存イオン濃度と水素・酸素安定同位体比を測定した.

石川、富山、新潟の例を下図に示す。得られた温泉水は天水と海水の混合に由来すると考 えられ、その化学組成と海水との比較より、大部分の温泉水は天水と海水または化石海水 の混合に由来することが判明した。

②Ra 濃度について

石川、富山、新潟、北海道から採取した温泉 水のRa-226 濃度は,非常に幅広い濃度範囲で 分布し,北海道の神恵内温泉においてこれま での研究を含めた中で最高の5097 mBq/kgの 値を得た。ウラン鉱床や火山性に関係なく沿 岸や平地で高い Ra-226 濃度の熱水が点在し ていることが明らかになった。TDS と Ra 濃 度には右図に示すように正の相関がある。



③高濃度 Ra 温泉の成因解明

一般に、水相中の Ra 同位体は主として①溶存親核種の壊変、②帯水層岩石の溶解、③岩石 表層の親核種の α 壊変に伴う α 反跳、④岩石表層の吸着・脱離反応、⑤沈殿反応により支

配される。①の溶存親核種については、Ra の親核種であるThは中性溶液中ではTh(IV) で不溶性であるため、その寄与は少ないと考 えられる。²²⁶Raの半減期(1600年)は地球化 学的に見ると短いため、Ra同位体は絶えず 岩石から供給されていると考えられ、主とし て②岩石の溶解と③α反跳が寄与している ものと思われる。年代の古い地下水を考えた 場合、水相中へのRa供給が帯水層岩石の溶 解が主であるとすると、水相中の²²⁸Ra/²²⁶Ra

比は帯水層岩石の放射能比に 0.0036(²²⁸Ra と²²⁶Ra の半減期の比)を乗 じた値になるのに対し、 α 反跳が主であ るとすると、帯水層岩石と水の ²²⁸Ra/²²⁶Ra 比がほぼ等しくなる。

氷見の温泉の温泉水とバルクでの掘 削カッティングス試料の²²⁸Ra/²²⁶Ra比は それぞれ1-2、約10であり、温泉水のほ うが非常に高い値である。このことは、 水相中へのRa同位体の供給は帯水層岩 石の溶解では説明できず、岩石表層の親 核種のα壊変に伴うα反跳に支配され ていることを示唆する。さらに、抽出実 験から、いくつかの抽出相の放射能比



地下水中の²²⁶Ra濃度および²²⁸Ra/²²⁶Ra放射能比の両方を説明できる メカニズムは?



(²³²Th/²³⁰Th, ²³²Th/²³⁸U)がバルク岩石と比較して、水相中の ²²⁸Ra/²²⁶Ra 放射能比に近い値と なっており、α反跳による Ra の供給を考えるときは、全岩石で考えるよりもα反跳に寄与 し得るような岩石表層(表面コーティング層)の値を考えたほうが調和的な結果が得られ ることが明らかとなった。

④岩石表層の吸着・脱離反応

Raと鉱物試料を用いた吸着実験では、ゲー タイトへのRaの吸着はほとんど見られな いが、モンモリロナイト・カオリナイトに ついては分配係数Kdは塩分が低いと大きく、 逆に塩分が高くなるとKdが小さくなった (下図)。Kdを塩分の関数でフィッティング すると、Kdは塩分に反比例することが明ら かとなった。 結果として、高塩分地下水では、Raは鉱物

結果として、高塩分地下水では、Ra は鉱物 等に吸着せず、保存性として振る舞うこと が判明した。



⑤ 温泉水からの Ra 除去-沈殿反応

沈殿反応による Ra の除去の検討のため、硫酸イオンと塩化物イオンの比を海水の比と比較 し分類した。TDS と²²⁶Ra の関係では硫酸イオンが未検出のものでは比較的良い相関にあ るのに対し、硫酸イオンが含まれるものは未相関であることが分かった。また、Ba と²²⁶Ra の関係においても硫酸イオンが未検出のものは比較的良い相関関係にある。これは硫酸イ オンが含まれる温泉水では汲み上げる過程で温度・圧力の変化により溶解度の低い鉱物(た とえば BaSO₄)等に Ra が共沈除去され、本来の深層下での組成を反映していない可能性が 考えられる。いずれにしても、硫酸イオンの有無が²²⁶Ra 濃度に大きく寄与している可能性 がある。

深層熱水地下水と呼ばれる高塩分の水中での天然放射性元素、特に Ra を中心に平野部や沿岸地域で何故、高濃度の Ra 温泉が出現するのかの普遍性と成因解明を目指して取り組み、おおよそのメカニズムが解明できた。今後も、継続しながらモデルの構築を進めたい。

1) Tomita, J., Satake, H., Fukuyama, T., Sasaki, K., Sakaguchi, A., Yamamoto, M.: Radium geochemistry in Na-Cl groundwater in Niigata Prefecture, Japan, J. Environmental Radioactivity, 101, 201-210 (2010).

2) Yamamoto, M., Sakaguchi, A., Kofuji, H.: Uranium in acidic mine drainage at the former Ogoya Mine in Ishikawa Prefecture of Japan, J. Radioanal. Nucl. Chem., 283, 699-705 (2010).

3) 富田純平, 佐竹 洋、佐々木圭一, 坂口 綾, 井上睦夫、浜島靖典, 山本政儀、大深度 掘削井から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中のラジウム(Ra)同位体-石川県沿岸地域, 温泉科学 (J. Hot. Spring. Sci.), 58(4), 241-255 (2009)

4) Tomita, J., Sakaguchi, A. and Yamamoto, M.: Hokutolite collected from riverbed at Peitou Hot Spring in Taiwan: with emphasis on radiochemical studies, J. Radioanal. Nucl. Chem., 270 (3), 567-574 (2006).

Sedimentary environment inferred from sedimentation rates by ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs and their inventories in Mutsu Bay, Japan

Kazuhito Hamataka¹, Seiya Nagao¹, Michio Kato², Isao Kudo³, Masayoshi Yamamoto¹

¹LLRL, KINET, Kanazawa University, Ishikawa 923-1224, Japan

² Graduate School of Science, Kanazawa University, Kanazawa, Ishikawa 920-1192, Japan

³ Graduate School of Fisheries Sciences, Hokkaido University, Sapporo 060-0808, Japan

I. INTRODUCTION

Environment in the semi-enclosed bay is sensitive to human activity and change of natural environment, and these directly and strongly impact in its sedimentary environment.

Mutsu Bay (surface area of 1580 km^2 , average depth of 34 m, and maximum depth of 75 m), which is located in the north of Honshu in Japan, is indirectly connected with the open sea by a narrow channel through which seawater flows in and out the bay. The east floor of Mutsu Bay is relatively flat and shallow (40 m deep on average). The coastal areas are excessively populated and extensive scallop farming has been popularly practiced since 1970s. The present–day, death of scallop due to overcrowded cultivation and generation of red tides by declining water quality are going on, and muds are markedly accumulating in the offshore areas (Minoura *et al.* (1992)).

We have been interested in clarifying whole pictures about such sedimentary environment of Mutsu Bay, investigating the sediment rates by using radioactive ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs and their inventories in sediments.

II. MATERIAL AND METHODS

Core sampling: The core sediment samples were collected during cruises in May and August 2011, and June and September 2012. A small gravity corer (3.5 or 8.0 cm in diameter) was used to collect surface sediments (20-40 cm long) at 14 locations (Fig. 1). The obtained cores

were immediately cut every 1 cm from top along the core, and after taking them to laboratory the samples were freeze-dried.

Measurements of ²¹⁰*Pb and* ¹³⁷*Cs:* The samples were then sieved through a 2-mm mesh to remove pebbles and fragments of shell, and pulverized in an agate mortar to obtain homogeneous samples. An aliquot of 5-10 g of sample was packed into a plastic vessel and stored for more than 3 weeks.



Fig. 1 Sampling sites in Mutsu Bay

The ²¹⁰Pb, ²²⁶Ra (from daughter nuclide ²¹⁴Pb) and ¹³⁷Cs were measured by a low–background g-ray spectrometer with a high pure Ge detector (planar or well type).

The spectrometer was calibrated with standards prepared by the New Brunswick Laboratory (NBL) reference materials No. 42-1 (4.04% uranium), and analytical grade KCl. Unsupported ²¹⁰Pb activity (²¹⁰Pb_{ex}) was calculated from the difference between the total ²¹⁰Pb and the ²²⁶Ra (from ²¹⁴Bi) contents.

III. RESULTS AND DISCUSSION

To date, activity measurements of ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs were finished for cores from St.1 to St.10. Overall, the sediments (Sts. 2-4 and 6-8) from the offshore area were mostly mud, while sand and coarser sediments, with their low mud contents, are restricted to the nearshore area. Surface mixed layers (up to a depth of 10-15 cm) were observed on the ²¹⁰Pb_{ex} depth profiles from the offshore area, evidencing the excessively post-depositional mixing of surface sediments by bioturbation and so on. For other sites, ²¹⁰Pb_{ex} concentrations declined more or less exponentially with depth. Sedimentation rates calculated for these cores varied in the wide range from 0.04 to 0.2 g/cm²/y. Sedimentation rates using ¹³⁷Cs method could not be applied. A generally increasing trend in sedimentation rate after the late 1970s, when correspond to the rapid increase of scallop-production activity, was clearly observed at St.10.

Excess ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs inventories were calculated as the sum of ²¹⁰Pb_{ex} and ¹³⁷Cs through a sediment core, respectively. The ²¹⁰Pb_{ex} inventories ranged from 7-30 kBq/m². Apart from the values (7-9 kBq/m²) from the nearshore areas, the responding inventories (17-30 kBq/m²) for cores (Sts. 2-4 and 6-8) from the offshore areas were somewhat higher than the reported value of ca.15 kBq/m² estimated for the surrounding soils, indicating that the sediment focusing due to the inner current etc., to the deeper area from the surrounding nearshore area, affects the sediment accumulation in the offshore area. The ¹³⁷Cs inventories (0.08-0.14 kBq/m²) were clearly lower than its inventories (around 3 kBq/m²) in the surrounding soils. Further works are going on organic contents and grain-size of sediments.

K. Minoura et al. (1992), Marine Geology, 103, 487-502.

Catchment environmental changes inferred from geochemical properties of Lake Onuma sediment, Japan

Shinya Ochiai¹, Seiya Nagao¹, Koyo Yonebayashi², Taeko Itono³, Tomoyo Suzuki³, Kenji Kashiwaya¹, Masayoshi Yamamoto¹

¹Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University ²Faculty of Bioresources and Environmental Sciences, Ishikawa Prefectural University ³Graduate School of Natural Science & Technology, Kanazawa University

Lake Onuma is a dammed lake formed by volcanic eruption of Mt. Komagatake in 1640. This lake recently confronts the progress of eutrophication causes the water bloom of blue-green algae. And, it may be associated with the catchment environmental changes (e.g., land use changes, development of livestock farming, etc.) related to human activities. For proper future prediction, it is necessary to evaluate the continuous record of eutrophication and its relationship to environmental factors. This study aims to reveal the sedimentation record of organic matter and the catchment environmental changes printed in Lake Onuma sediment located in Hokkaido, Japan.

Surface sediment cores (ON11-2-2: 68 cm and ON11-2-1: 96 cm) were collected in September, 2011. The contents of total organic carbon (TOC) and total nitrogen (TN), carbon and nitrogen isotope ratios (δ^{13} C and δ^{15} N) were analyzed along the Core ON11-2-2. Biogenic silica content was analyzed for Core ON11-2-1. Vertical profiles of radionuclide activity concentration (210 Pb_{ex} and 137 Cs) were also measured to estimate sedimentation rate and age of the cores.

The estimated age of ON11-2-2 core ranges around 100 years based on the ²¹⁰Pb and ¹³⁷Cs dating methods. Sedimentation rate changed in 1940s and 1980s corresponding to the change in biogenic silica content. It suggests that environment changes related to biogenic productivity in 1940s and 1980s.

The C/N ratio and δ^{13} C of sediment show the relatively small variation (Fig. 1). These values plotted near the typical value of freshwater plankton on the δ^{13} C - C/N ratio plot (Fig. 2a). It suggests that main source of the sediment organic matter was plankton throughout the past 100 years. On the other hand, the δ^{15} N has increased and the biogenic silica content has decreased since 1940s (Fig. 1 and Fig. 2b). This result implies that the δ^{15} N of plankton reflecting that of dissolved inorganic nitrogen (DIN) derived from livestock and sewage water has been increased corresponding to the eutrophication of Lake Onuma.



Fig.1 Vertical changes in (a) TOC and TN, (b) C/N atomic ratio, (c) carbon isotope ratio δ^{13} C, (d) nitrogen isotope ratio δ^{15} N for Core ON11-2-2, and (e) biogenic silica content for Core ON11-2-1.



Fig.2 (a) The relationship between carbon isotope ratio δ^{13} C and C/N ratio of the sediment samples. (b) The relationship between carbon isotope ratio δ^{13} C and nitrogen isotope ratio δ^{15} N of the sediment samples.

Isotopic U, Pu, Am and Cm signatures in environmental samples from the Fukusima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

M. Yamamoto¹, A. Sakaguchi², S. Ochiai¹, T. Takada¹, S. Nagao¹, P. Steier³

¹ Low Level Radioactivity Laboratory, KINET, Kanazawa University,

² Graduate School of Science, Hiroshima University,

³ VERA-Laboratory, Faculty of Physics, University of Vienna, Vienna, Austria

I. INTRODUCTION

In the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident that occurred in connection with the *M9* Great East Japan Earthquake and subsequent tsunami on 11 March 2011, large amounts of radionuclides, especially volatile ones such as ¹³¹I, ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs, have been accidently released into the environment from the FDNPP. By broad survey of these nuclides and investigations, whole picture about levels and spreading areas of contaminants has been becoming clear, together with the situation of plant accident. However, information on releases of U and transuranic nuclides as refractory elements in fuel core was extremely limited due to the difficulties of analyzing these nuclides. In this paper, we aimed an understanding the amount and activity ratios among these nuclides released into the environment. For this purpose, ²³⁶U, Pu isotopes (²³⁸Pu, ²³⁹Pu and ²⁴⁰Pu), ²⁴¹Am and Cm isotopes (²⁴²Cm and ^{243,244}Cm) were measured for roadside dust collected at the Fukushima areas heavily contaminated. Their released levels and isotopic compositions will be discussed, compared with the fuel compositions in FDNPP estimated by Nishihara et al. (2012).

II. MATERIAL AND METHODS

The road dusts, called "Black Materials", whose color is apparently black, are browned in a corner and/or dip of residential streets and roadside by wind and rain. These materials are composed with fine aerosol particles, fine car-cut asphalt materials, residue of lichens, soil and so on, and contaminated with extremely high levels of contaminated with extremely high levels of radionuclides released. They seemed to be suitable for getting information on isotopic composition of trace amount of U and transuranic nuclides. The samples were mainly collected from areas within the 20-km exclusion zones (Minami-Souma, Namie, Futaba and Okuma Towns) in Sep. to Nov., 2012. Also were samples taken from Iitate Village heavily contaminated. The collected samples were air-dried, and sieved through a 2-mm mesh to remove pebbles and big plant remains, and pulverized in an agate mortar to obtain homogeneous samples. After chemical separation of each element, Pu (²³⁸Pu and ^{239,240}Pu), ²⁴¹Am and Cm (²⁴²Cm and ^{243,244}Cm) were determined by alpha-ray spectrometry, respectively. Uranium-236 was determined by AMS installed at VERA-Laboratory, University of Vienna (Vienna, Austria).

III. RESULTS AND DISCUSSION

The collected black materials samples were found to be contaminated with extremely high levels of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs over 1000 kBq/kg by the FDNPP accident. More than 100 samples

from areas within the 20 km-exclusion zones were determined for ²³⁸Pu, ^{239,240}Pu, ²⁴¹Am. ²⁴²Cm and ^{243,244}Cm by a-ray spectrometry. Furthermore, in some samples, ²³⁶U was successfully determined by AMS. The results provided a coherent isotopic data set as follows: 1) traces of ^{239,240}Pu (range: 0.0n-1.8 Bq/kg) and high levels of ²³⁸Pu/^{239,240}Pu activity ratios (range; ca.1-2.7, but mostly around 2.1-2.4) were detected; for samples showing ²³⁸Pu/^{239,240}Pu ratios of more than 2 (most (or all) of Pu detected is due to the accident); 2) ²⁴¹Am/^{239,240}Pu activity ratios were in the range from 0.32-0.75 with the mean value of 0.53 ± 0.12 (n=35); 3) ²⁴²Cm/^{243,244}Cm activity ratios (decay-corrected to 11 March, 2011) were 25.1±8.9 (n=61) on average; 4) ²⁴²Cm/^{239,240}Pu activity ratios (decay-corrected to 11 March, 2011) were 33.6±10.6 (n=52) on average; and 5) ²³⁶U/^{239,240}Pu activity ratios were in the range of (1.96-18.4) x10⁻⁴ with the weighted mean value of 7.87x10⁻⁴ (n=12).

When these activity ratios are compared with those of fuel compositions in the FDNPP estimated by Nishihara et al (2012) of the JAEA group, fairly good agreement was found, indicating that traces of U and transuranic nuclides, probably with forms of fine particles, were released into the environment without their large fractionations.

K. Nishihara et al. (2012), JAEA-Data/Code, 2012-018.



Black material samples



Alpha-ray spectrum in Am and Cm isotopes

Comparison of activity ratios of nuclides between estimated core inventories and measured data

Activity ratio	Unit-1*	Unit-2*	Unit-3*	Measured data** (average)
Pu/Cs-137	7.86E-03	7.54E-03	9.96E-03	n E-07
U-236/Pu	3.63E-04	3.66E-04	2.84E-04	7.9E-04
Pu-238/Pu	2.92	2.38	2.30	ca. 2.3
Pu-241/Pu	140	146	126	_
Am-241/Pu	0.35	0.23	0.23	0.53 ± 0.12
Cm242/Pu	56.1	46.5	43.3	33.6 ± 10.6
Cm242/Cm243,2	44 32.5	27.6	20.0	25.1 ± 8.9
Cm243,244/Pu	1.72	1.68	2.16	ca. 1.3

Estimation of fuel compositions and their inventories*

* These data were cited from the report by Nishihara et al. (JAEA-Data/Code, 2012/9)

Pu: 239,240Pu

^{*} All data were decay-corrected on 11 March,2011.

木場潟における有機汚濁の原因解明

河野百合子¹、長尾誠也¹、落合伸也¹、山本政儀¹

金沢大学 環日本海域環境研究センターLLRL

1. 研究背景·目的

閉鎖性水域の湖沼は、その水理特性のため、汚濁物質は蓄積しやすく、水質が悪化するとその 改善は容易ではないという特性を有している。湖沼での有機汚濁は、流域から流入する直接負荷 に加え、植物プランクトンによる湖内生産および底泥からの栄養塩類溶出という水域内部で発生 する間接負荷と密接に関係する。このことから湖沼の水質保全策の推進を図るためには、湖沼の 有機物の特性、起源を把握することが必要である。

本研究では、有機汚濁の指標として用いられている化学的酸素要求量(COD)が平成 2~3 年に湖 沼水質全国ワースト 2 位を記録し、現在も環境基準値を超えている木場潟を対象とし、有機汚濁 の原因について堆積物の観点より検討した。

2. 試料及び実験方法

木場潟は石川県小松市の東部丘陵に接し、面積 1.14km²、平均水 深 2.2m、最大水深 6.0 m の浅く小さな湖沼である。流入河川は日用 川、山代川、坊川であり、加えて数多くの排水路、土地改良区排水 機場からの流入がある。流出河川は前川の一本のみである。2012 年 6月に図 1 に示した地点で表層堆積物と柱状堆積物を採取した。試料 は 1~2 cm 間隔で切断し、真空凍結乾燥後に低エネルギーGe 半導体 検出器を用いた y 線スペクトロメトリーにより ²¹⁰Pb と ¹³⁷Cs を定量 した。柱状堆積物の堆積年代は ²¹⁰Pb を用いて推定した。木場潟にお ける有機物の堆積状況および有機物の堆積環境の変遷を調べるため に、炭素安定同位体比(δ¹³C)と窒素同位体比(δ¹⁵N)を質量分析装置、 炭素含有量(TOC)および窒素含有量(TN)を元素分析装置によって測 定した。



図1 試料採取地点

結果と考察

●:表層堆積物, O:柱状堆積物

表層 0~2 cm の堆積物の測定結果を表 1 に示した。粒度は KB1 のみが 276 μm で粗く、他の地 点は 8~18 μm と細かかった。大気降下由来である ²¹⁰Pbex と ¹³⁷Cs 蓄積量は湖中央が少なく、流 入・流出部で多かった。このことは、流入部から湖中央への土砂粒子移行が少ないことを示唆す る。TOC 含有量は 2.8~7.2 %であり、湖中央で高い傾向にあった。最も少なかった流入部と比べ

表 1 表層堆積物の粒度,²¹⁰Pbex・¹³⁷Cs 蓄積量,TOC,C/N mol 比,δ¹³C

ると TOC が 2.5 倍で あった。C/N mol 比と δ¹³C との関係から、木 場潟表層堆積物の有 機物は湖の植物プラ ンクトンに比べて陸 上植物の寄与が比較 的大きいことが明ら

採取	粒度	²¹⁰ Pbex 蓄積量	¹³⁷ Cs 蓄積量	TOC	C/N	$\delta^{13}C$
地点	(µm)	(mBq/cm^2)	(mBq/cm^2)	(%)	mol 比	(‰)
KB1	276	未測定	未測定	2.8	12.3	-27.0
KB2	17	468.1	9.0	5.6	13.0	-26.8
KB3	8	139.3	3.3	7.2	13.3	-26.1
KBG1	6	150.7	4.9	4.5	12.8	-26.1
KB4	10	347.5	8.9	5.3	12.3	-26.6
KB5	18	484.9	7.1	4.8	13.0	-27.0

かとなった。

柱状堆積物の²¹⁰Pbの深度分布は表層①0~8 cm は緩やかに減少、②8~14 cm はほぼ一定濃度、 ③14~26.7(最下部) cm は急激な減少を

示した。①と③層の堆積速度を表2に示した。近年は過去に比べて堆積速度が速くなっており、流域の環境変化が起こっていることが考えられる。

図 2 には有機物の各項目の測定結果 を示した。表層の TOC 含有量は 20 cm 以深に比べて 1.9 倍高く、湖内での有 一 機物の蓄積が増加していることを示してい る。一方、C/N mol 比は 15.7 から 12.8 と 現在に向けて減少し、 δ^{13} C は多少の変動が 見られた。陸上植物の C/N mol 比は 20~75、 植物プランクトンは 7~8 であること、堆積 速度が現在の方が 3 倍高いことから、有機 物の蓄積量は植物プランクトン、陸上植物 の寄与ともに増加しているが、植物プラン クトンの寄与がより増えていることが示唆 された。

表 2 ²¹⁰Pb 法から見積もった堆積速度と堆積年代

50	深さ	堆積速度	堆積年代(y)
(cm) (g/cm ²)		(g/cm ² /y)	
0~8	0~2.83	0.15(平均)	1989~2007
8~14	2.83~5.27	0.05~0.11	1959~1989
14~26.7	5.27~13.06	0.05(平均)	~1959



図 2 TOC 含有量(a)と有機物のδ¹³Cの深度分布(b)

北西太平洋における福島原発由来放射性セシウムの拡散挙動

荒井隆史¹、長尾誠也²、浜高一仁³、井上睦夫²、田中潔⁴、本多牧生⁵、 張剄⁶、浜島靖典²、山本政儀²

¹金沢大学理工学域物質化学類、²金沢大学環日本海域環境研究センター、 ³金沢大学大学院自然科学研究科、⁴東京大学大気海洋研究所、⁵海洋研究開発機構、 ⁶富山大学理学部

Diffusional behavior of radioactive cesium derived from the Fukushima Nuclear Power Plant in the western North Pacific

【序論】

2011年3月11日に東日本を大地震が襲った。地震の規模はマグニチュード9.0と 日本周辺における観測史上最大の規模であった。この地震に伴い津波が発生し、数多 くの犠牲者を出した。また、この災害により福島第一原子力発電所では電力供給の停 止や冷却システムの故障から重大な事故が起こり、放射性物質が環境中へと放出され た。環境中へ放出されたなかでも海洋への付加は多く、海洋環境・資源への影響、そ れらによる人間への健康面への影響に関する問題が危惧されている。そのため、将来 にわたる海洋への影響を評価するためには、海洋へ付加された放射性物質の拡散状況 を把握することが必要不可欠である。

環境中へ放出された放射性核種の中でもセシウムは海水中に溶存し、その半減期は Cs-134, Cs-137 がそれぞれ 2.06 年、30.2 年と長いため、海洋での拡散挙動を明らか にしなければならない。

本研究では、2011年6月から11月までに実施された研究調査航海で採取された海

水中の放射性セシウムの放射能濃度を測定し、 その経時変動を追うことで海洋表層における放 射性セシウムの拡散挙動を評価した。

【試料・実験】

本研究では、研究調査船みらい MR-11-05 次 航海(2011 年 6 月 30 日~8 月 2 日)、研究調査船 自鳳丸 KH-11-07 次航海(2011 年 7 月 16 日~8 月 2 日)、研究調査船淡青丸 KT-11-22 次航海 (2011 年 9 月 7 日~9 月 10 日)、および KT-11-27 次航海(2011 年 10 月 27 日~11 月 図1:採取地点



1日)の計4回の航海による海水試料(約20L)を用いた。海水試料は硝酸でpH1.6 に 調整し、CsClを0.52g加え1時間撹拌した。その後、リンモリブデン酸アンモニウ ムを8.00g加え一時間撹拌した。そのまま一晩静置し、濾過により沈殿を回収し、 乾燥、パック詰めをした。低レベル放射能実験施設のGe半導体検出器により、低レ ベルバックグラウンド γ 線測定し、Cs-134, Cs-137を測定した。

【結果・考察】

4 つの航海の結果を比較してみると、東経 145°より近傍の海洋では Cs-134 の放 射能濃度が 100 mBq/L を超え、濃度分布は一様ではなく複雑であった。また、北緯 36°、東経 142°付近では観測時に黒潮の影響で検出限界以下であった。東経 145° より遠方の海域では、北緯 37°以南で黒潮の影響により検出限界以下、北緯 37°以 北では大気経由とみられる放射性セシウムがゆっくりと遠方へ運ばれていることが 観測された。

Hybrid Coordinate Ocean Model の海流データと比較すると、6月から11月の観 測時全体において放射性セシウム福島原発から南側と東側へと輸送され、その後、東 側では中規模の渦による滞留で濃度分布が複雑化したと考えられる。一方、南側へと 運ばれた放射性セシウムは黒潮に乗り素早く遠方へと輸送され、KT-11-22 と KT-11-27 次航海の北緯 35~37°、東経 142~144°の海域と KH-11-07 次航海の北緯 30~37°、東経 150~165°の海域で放射性セシウムが検出されなかったと考えられる。 また、MR-11-05 次航海の北緯 30°、東経 145°付近の海域では黒潮の流れによる小 規模な渦が形成され、わずかながら放射性セシウムが検出された可能性が考えられる。 一方 MR-11-05 と KH-11-07 次航海の北緯 40~50°、東経 155~165°の北東遠方では、 東側に向かうゆっくりとした海流により輸送されたことが明らかとなった。



図 2: Cs-134 の濃度分布(左から MR-11-07、KH-11-07、KT-11-22、KT-11-27)

室内培養実験における地下水溶存有機物の特徴

西村周作¹、鈴木庸平²、福田朱里³、今野祐多⁴、執印訓子⁵、長尾誠也¹

¹金沢大学環日本海域環境研究センター、²東京大学大学院理学系研究科、³日本原子力研究開発機構、 ⁴海洋研究開発機構、⁵産業技術総合研究所

Characterization of dissolved organic matter in groundwater during laboratory incubation: Nishimura S.¹, Suzuki Y.², Fukuda A.³, Konno U.⁴, Shuin K.⁵, Nagao S.¹, ¹Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa Univ., ² School of Science, The Univ. Tokyo. ³ Japan Atomic Energy Agency (JAEA), ⁴ Japan Agency for Marine-Earth Science and Technology (JAMSTEC), ⁵ Advanced Industrial Science and Technology (AIST)

1. はじめに

天然水に存在する有機物は、集水域の環境条件によって多様な特性を持つ[1]。近年、地下水中に おけるアクチノイドなどの移行に及ぼす有機物の影響を評価するため、浅層から深部にかけての地 下水中の溶存有機物を対象にした研究が進められ、三次元蛍光分光光度法によって、フルボ酸など の溶存有機物の蛍光特性が地層などの違いを反映していることが明らかになってきた[2]。一方で、 地下環境には溶存有機物の分解・生成に関わる微生物が存在し、その活性が溶存有機物に与える影 響については明らかになっていない。本研究では、地下水中の有機物を含む懸濁物質を用いた培養 実験を行い、三次元蛍光分光光度法により溶存有機物の生成と分解について検討を行った。

本共同研究において産業技術総合研究所が使用した予算は,原子力安全・保安院から受託した研 究費の一部である。

2. 試料および方法

岐阜県瑞浪市の独立行政法人日本原子力研究開発機構・瑞浪超深地層研究所用地内の地表からの 鉛直ボーリング孔 (MSB-4, MSB-2, MIZ-1) および地下の研究坑道からの水平ボーリング孔 (07MI07, 09MI20, 09MI21) において深度 99~1149 m の花崗岩中の地下水を採取した。地下水試料とともに、 地下水のろ過によりメンブレンフィルター (孔径 0.2 µm) に捕集した懸濁物質を、嫌気チャンバー内 において、滅菌地下水に再懸濁して作成した微生物濃縮液を培養試料とした。培養は気相に窒素ガ スを充填した嫌気条件下で、25 ℃ で 8 カ月以上行った。また、好気条件下の微生物活動の影響評価 のため、培養試料の気相中の酸素濃度を約 1500 ppm になるように酸素ガスを添加した試料、および 液相に最終硝酸イオン濃度 50 µM になるように KNO₃を添加した試料を作成し、25 ℃ で 5,6 日間培 養を行った。さらに、培養試料を 2 回オートクレーブ処理した後、上記条件で培養したものをネガ ティブコントロール試料 (N 試料) とした。これらの試料について三次元蛍光分光光度計、紫外可視 分光光度計、蛍光 (励起波長 (Ex.) 320 nm/蛍光波長 (Em.) 430 nm) および紫外 (280 nm) 検出器を 備えた高速液体サイズ排除クロマトグラフにより測定を行った[3]。

<u>3.結果と考察</u>

フルボ酸様物質の蛍光ピークは、い ずれの地下水・培養試料においても Ex. 290~318 nm/Em. 358~430 nm の範囲 に検出された。嫌気試料のフルボ酸様 物質の相対蛍光強度 (RFI; Ex. 320 nm /Em. 430 nm) は培養後、地下水試料 に比べ 2~27 倍高い値を示した。硝酸 添加試料は5日間の培養で約5倍高い 値を示したが、酸素添加試料では培養 による変化はみられなかった(図 1)。 N 試料の RFI も、地下水試料に比べて 高い値を示したが、培養試料よりも低 い値を示したことから、嫌気培養に伴 うフルボ酸様物質の生成を確認できた。 紫外 280 nm の吸光度(ABS)は、09MI20 試料を除くすべての試料で、地下水試 料に比べて高い値を示した。紫外吸収



図1 嫌気条件(上)と酸化剤添加条件(下)における培養に伴うフルボ酸 物質の相対蛍光強度(RFI)の変化 複数本、培養した試料については標準偏差をエラーバーで示した。

有機物の特徴を検討するため、RFI/ABS を解析した結果、培養前後の増減は一定ではなかった。このことから、微生物によって生成されるフルボ酸様物質の特徴は、採取した地下水のフルボ酸様物質とは異なる可能性が示唆された。

蛍光検出サイズ排除クロマトグラムには、MIZ-1 試料を除くすべての試料において保持体積 8.9 ml (Peak I)、9.6 ml (Peak II) に検出されるフルボ酸様物質のピークが検出された。N 試料では、さらに、 保持体積 18~23 ml に非常にブロードなピークが検出された。フルボ酸様物質のピークの強度比 (Peak I/Peak II) は、いずれの嫌気試料も地下水試料に比べて高かった。以上の結果は、培養により 高分子画分を有するフルボ酸様物質が生成されることを示唆している。また、紫外検出のクロマト グラムには、蛍光検出と同じ保持体積で 2 つのフルボ酸様物質のピークがみられたが、培養試料の ピークの強度比は、地下水試料と一致するものと地下水試料より低くなるものがあった。つまり、 試料によって、培養時に生成されるフルボ酸様物質の特徴が異なることを示唆している。

得られた結果から、嫌気培養により、微生物の働きによってフルボ酸様物質は分解されるのでは なく、生成されることを明らかにした。生成したフルボ酸様物質は、採取した地下水よりも高分子 の有機物量が多いが、微生物の種類や代謝活性の違いにより特徴は異なると考えられる。また、こ の生成において硝酸は微生物活動を促進し、酸素は阻害する可能性が考えられた。

<引用文献>

[1] 渡辺ら, 日本土壌肥料学雑誌, 80, 89-94 (2009)

- [2] 長尾ら, 原子力バックエンド研究, 15, 69-76 (2009)
- [3] 長尾ら, 原子力バックエンド研究, 15, 77-86 (2009)

能登半島の熊木川における降雨時の溶存有機物の特徴と流出応答性

鈴木智代¹、長尾誠也¹、落合伸也¹、山本政儀¹、中村浩二² ¹〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学 環日本海域環境研究センター LLRL ²〒920-1192 石川県金沢市角間町 金沢大学 地域連携推進センター T. Suzuki, S. Nagao, S. Ochiai, M. Yamamoto, K. Nakamura Characteristics and runoff responses of DOM during rainfall events in the Kumaki River in Noto Peninsula, Japan.

【はじめに】

日本では近年、農村の後継者不足や里山の管理放棄等により、これまで循環的に維持されてきた農 村・里山の自然が荒廃する問題が生じている。里山の植生管理は里山の物質循環に重要な役割を担っ ており、里山つまり森林や耕地が放棄され自然が荒廃すると土壌の化学的性質や水の水質に影響を及 ぼすという報告がある。このことは同時に森林から河川へ流出する有機物の濃度や構造特性が変化し、 流域環境・沿岸環境またそれらの生態系へ影響を及ぼす可能性が考えられる。溶存有機物の 40~80% を占める高分子有機酸の腐植物質は、難分解性で環境や生成過程により構造特性が異なるため、腐植 物質を分析することにより里山の荒廃の影響を評価するパラメータとして利用することが可能である。 また河川中の溶存有機物や腐植物質の年間の負荷量は、降雨時の寄与が高いことが他の流域の研究例 から報告されている。里山の放棄が進行した場合、降雨時に土壌表層から流出する高分子画分の腐植 物質が減少する可能性が考えられる。

本研究では里山放棄が進行している能登半島の熊木川に着目し、降雨時に流出する腐植物質の流出 挙動を把握することで里山の荒廃が流域環境へ及ぼす影響を検討することを目的とする。本報告では 2009年と2011年の7月に採取した降雨イベント時の熊木川河川水の結果を用い、降雨時に流出する腐 植物質の濃度と構造特性、腐植物質の流出応答性について報告する。

【試料採取および分析方法】

河川調査は2009年7月13日、2009年7月27日~28日、2011年7月7日~8日に七尾西湾流域河 川の熊木川で行った。河川水は、人工林の管理放棄が目立つ熊木川上流、水田が広く分布する熊木川 中流と熊木川下流で採取した。採取した試料はGF/Fフィルターでろ過し分析まで冷凍保存した。河川 水試料は、腐植様物質の濃度・構造特性を明らかにするため、三次元蛍光スペクトル測定・高速液体 サイズ排除クロマトグラフィーにより分析した。七尾西湾流域の降雨量・水位データは石川県河川総 合情報システム(石川県土木部河川課)よりご提供いただいた。



⁽a) 2009 年 7 月 27 日水位上昇時、(b) 2009 年 7 月 27 日水位低下時、(c) 2010 年 7 月 1 日平水時、の熊木川上流における 蛍光スペクトルを示す。

【結果と考察】

三次元蛍光スペクトルを測定した結果、河川水には2つの腐 植様物質ピーク(Peak M 励起波長 Ex./蛍光波長 Em.: 300-340/425-440 nm;Peak C Ex./Em.: 305-345/450-465 nm) が見られた(図1)。降雨量・水位と腐植様物質ピーク M の相 対蛍光強度(RFI)の変動を比較したところ(図3)、水位ピー ク時には腐植様物質濃度を反映する RFI が平水時(2010年7 月1日平水時 RFI: 5.2-7.5 QSU)より2倍~5倍高い値で検出 され、水位が低下するに従って腐植様物質の濃度も減少した。 また平水時には上流より中・下流の RFI が高い傾向が見られた が、降雨イベント時には同程度の値を示した。



流出する腐植様物質の特徴を把握するため、腐植様物質の蛍
光ピークに相当する検出波長(Ex. 320 /Em. 430 nm)で高速液
体サイズ排除クロマトグラフィー分析を行った。その結果、保
持体積 8.4 ml (Peak 1) と 9.4 ml (Peak 2)、9.7 ml (Peak 3) に
ピークが検出された(図 2)。クロマトグラムのピーク 2 とピ

図 2:2009 年 7 月 27 日~28 日の降雨時 の熊木川上流のサイズ排除クロマトグ ラム

ーク3の強度比を比較したところ(図3)、降雨イベント時は平水時(2010年7月1日平水時ピーク強度比:0.45-0.49)より高分子画分の割合が大きく水位低下とともに減少していた。

以上の結果から、2009年から2011年までの3回の観測で降雨量・降雨継続時間が異なり、これに伴う水位変動と腐植様物質の濃度変動も異なっていることが明らかになった。そこで、降雨に対する腐植様物質の流出応答性を把握するため、観測3日前から観測日までの降雨の様子と腐植様物質の濃度・ 分子サイズ分布を比較した。イベント①(図3(a))では観測日以前の降雨が20mm/h以下であり影響が小さく、また観測日の降雨量が少なくとも高分子画分の腐植様物質の流出が認められる。イベント②(図3(b))では観測日の降雨のみの影響を反映した腐植様物質の流出が認められる。一方、 イベント③(図3(c))では観測日以前に20mm/hを超える降雨があり、この降雨の影響で土壌中の腐 植様物質が放出されてしまい、観測日に高分子画分の腐植様物質の流出量が減少したと考えられる。 これらのことから、観測前3日間の降雨量と時間・水位変動の違いにより腐植様物質の流出応答性が 変化することが示唆された。



図 3:各降雨イベントのハイドログラフ、腐植様物質の濃度・分子サイズの変動 (a) 2009 年7月13日、(b) 2009 年7月27日~28日、(c) 2011 年7月7日~8日の降雨イベントの変動を示す。

モンゴル・ダルハド盆地堆積層のウラン・トリウム同位体の記録

村上拓馬1、山本政儀1、淵崎円香2、福士圭介3、長尾誠也1、柏谷健二3

¹〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学環日本海域環境研究センター LLRL ²〒923-1192 石川県金沢市角間町 金沢大学大学院自然科学研究科 ³〒923-1192 石川県金沢市角間町 金沢大学環日本海域環境研究センター

はじめに

近年の地球温暖化により気候変動の将来予測への関心が高まる中で、気候モデリングの精密化と ともにモデル計算の妥当性を検証する上で必要な古気候記録の復元が重要な課題となっている。ア ジア大陸内陸部は、日射量に対する気候感度が地球上で最も高い(Short et al. 1991)ことから、 陸域における古環境変動を理解する上で重要な地域と見なされ、ロシア・バイカル湖やその集水域 に属するモンゴル・フブスグル湖の湖底堆積物の様々な成分を用いた古環境変動解析が行われてき た(図1)。特にバイカル湖において、ウラン(U)は環境変動指標である生物起源シリカと同調し た変動を示すため、環境変動指標としての可能性が指摘されてきた(Edgington et al. 1996)。本 施設では、これら両湖の堆積物中のUならびにトリウム(Th)の同位体組成に着目し、環境変動 指標としての確立を目的としてきた(Sakaguchi et al. 2006; Sakaguchi et al. 2009; Mino et al. 2009)。

モンゴル北部に位置するダルハド盆地(図1)は、フブスグル湖の西方に位置し、それらの間に は分水嶺があるため、バイカル湖やフブスグル湖とは異なる陸水学的特徴を持つ。現在、ダルハド 盆地の多くは陸地を占めているが、周囲の地形調査および地質学的・堆積学的調査により、氷期に は氷河湖を形成し、盆地全域が水没胃していたことが明らかとなっている(Krivonogov et al. 2005; Gillespie et al. 2008)。そのため、ダルハド盆地は、氷期-間氷期スケールで大きな水位変動を伴っ た環境変動を経験してきたことが期待される。

本研究では、バイカル湖・フブスグル湖とは陸水学的・地理的に異なるダルハド盆地の U ならびにトリウムで得た古気候・古環境記録をバイカル湖およびフブスグル湖の記録と対比し、大陸内の環境変動の解明を目的とする。本報告書では、ダルハド盆地における U および Th がどのような環境変動指標になるかを理解するために、ダルハド盆地の流入・流出河川と堆積層中の U および Th の同位体組成について報告する。

試料と方法

本研究で使用する水試料については、2011 年 8 月にダルハド盆地の流出河川1ヶ所と流入河川7 ヶ所で採取した(図1)。採水方法については、0.45µmのメンブレンフィルターによりろ過した後、 pH1に調整した。堆積物コア DDP10-3(全長 164.5m)は、2010 年 3 月~5 月にダルハド盆地で 掘削された 3 本のうちの1 本である。DDP10-3の掘削は、氷河湖最深部と推測される地点(北緯 51°19′51.20″,東経 99°30′4.40″)で行われた(図1)。このコアは 3cm 毎にサブサンプリングされた 後、冷蔵保存された。本研究では、これらの試料から約1m間隔で試料を選出し、U-Th同位体分 析に用いた。



図1 ダルハド盆地周辺とサンプリング地点

U-Th 同位体分析については、以下の手順で行った。水試料については、Fe 共沈や陰イオン交換 樹脂を用いてUとThのみを溶離した後、α線スペクトロメトリを用いてUおよびThの同位体組 成を分析した。堆積物試料については、凍結乾燥後、粉砕混合した。乾燥試料約 0.5g を 450℃の 電気炉を用いて、一晩熱し、灰化した。灰化試料を HNO3、HF、HClO4により分解し、その残渣 を Na2CO3 溶融により全分解した。得られた溶液試料中の U と Th については、水試料と同様の方 法で溶離され、α線スペクトロメトリを用いて分析した。

結果と考察

表1に水試料中の238U濃度、234U/238U放射能比とアルカリ度を、図2にDDP10-3コア中のU および Th の同位体濃度と各比を示

す。河川水中の溶存²³⁸U 濃度は 2.8 ~50 mBg/L、²³⁴U/²³⁸U 放射能比は 1.3~5.1 であり、流入河川によって 大きく異なる値を示した。これらの 値は、アルカリ度 0.4~3.7 meg/L と相関性を持つ。これは U が炭酸イ オンと結合し、溶解度の高い錯体を 形成するためである。特に高い 238U 濃度および ²³⁴U/²³⁸U 放射能比を示 すダルハド盆地南部には、石灰岩地

表1 ダルハド河川水中のウランの同位体組成とアルカリ度

Sampling No.	²³⁸ U conc.			ling No. 238U conc. 234U/238U		J	Alkalinity
	((mBq/L)		(act	ivitiy ra	atio)	(meq/L)
DW11-01	8.36	±	0.77	2.36	±	0.21	1.44
DW11-02	3.67	±	0.31	1.34	±	0.14	0.49
DW11-03	2.89	±	0.34	1.46	±	0.21	0.83
DW11-04	3.60	±	0.34	1.96	±	0.21	0.89
DW11-05	49.95	±	3.21	5.06	±	0.19	3.61
DW11-06	10.50	±	0.59	2.20	±	0.12	2.39
DW11-07	4.17	±	0.45	2.32	±	0.27	1.00
DW11-08	10.50	±	0.59	2.20	±	0.12	1.85

帯が分布することから、これらの濃度や放射能比の差は河川流域の地質構造の違いに起因するもの と考えられる。

堆積物中の²³⁸U濃度は10~80 mBq/g、²³²Th濃度は8~70 mBq/gの範囲で変動を示し、約20m 以浅から減少傾向を示す。一方、234U/238U 比および 238U/232Th 比も 20m 以浅から減少傾向を示し、 約 10m 付近の一部を除き、各放射能比は約 1 となり(図 2)、20m 以浅の U の多くは、岩石・鉱 物由来であることが示唆された。また、20m 以深においては、²³⁸U 濃度、²³⁴U/²³⁸U 比および ²³⁸U/²³²Th 比が、20m 以浅と比べ、増加することから、自生性 U(一度、溶解した後に吸着や還元 化作用により堆積した U)の割合が増加していたことが示唆された。この約 20m 付近は、花粉分 析の結果から、最終氷期と完新世の境界にあたることが提案されており(高原、私信)、ダルハド 盆地の堆積物では、自生性 U の割合が、寒冷期から温暖期にかけて減少傾向を示す。これは、こ れまで報告されているバイカル湖やフブスグル湖の傾向とは逆傾向であり、非常に興味深い。今後、 UおよびThの堆積過程を明らかにし、環境変動の指標としての確立を目指す。



平成24年度見学来訪・出張の記録

- 平成 24. 5.22 学校教育学類 4 年生授業「理科カリキュラム研究 II」のため 15 名尾小屋地下測定室見学
 - 6.4-5 気象研究所 青山 道夫 氏、環境総合テクノス 西谷文男副所長、十亀 清副所長、 山野伸一氏、富田正利氏、太田秀和氏、JAMSTEC 熊本雄一郎氏、林 和彦氏、研究 打ち合わせ、尾小屋地下実験室見学
 - 6.11-13、 8.23-27 国立環境研究所 荒巻 能史 氏 研究打ち合わせ
 - 7.23 理工学域物質化学系 3 年生 42 名実習、尾小屋地下測定室見学
 - 7.31-8.4 長尾教授「東アジアの大気・海洋中の多環芳香族炭化水素類と放射性物質の挙動に 関する共同研究打合せ」のためロシアへ出張
 - 8.17 環境総合テクノス 嶋本 晶文 氏 研究打ち合わせ
 - 8.1-9 山本教授「「セミパラチンスク核実験場周辺住民の低線率外部・内部被曝の線量評価

モデル構築」における土壌試料収集のためカザフスタン共和国へ出張

- 8.10-19 井上助教「75th Annual Meteoritical Society Meeting 2012」参加、情報収集の ためオーストラリアへ出張
- 8.22 首都大学東京 海老原 充 教授 研究打ち合わせ
- 8.24-27、平成 25.2.12-16 国立環境研究所 荒巻 能史 氏 研究打ち合わせ
- 8.27, 30-31 長尾教授 神戸大学で集中講義
- 9.3-7、 平成 25.2.1 群馬県水産試験場 鈴木 究真 氏 研究打ち合わせ
- 9.9-15 長尾教授「第16回国際腐植物質学会国際会議」出席・情報収集のため中国へ出張
- 9.16-21 井上助教、落合博士研究員「6th International Conference on Radionuclide Metrology Low-Level Radioactivity Measurement Technique 2012」参加のため 韓国へ出張
- 9.25 気象研究所 青山 道夫 氏 Dr. Hult Mikael 尾小屋地下測定室見学
- 11.15 (財) 海洋生物環境研究所 及川 真司 氏研究打ち合わせ
- 12.3 筑波大学 関口 智寛 氏、日本原子力研究開発機構 乙坂 重嘉 氏、弘前大学 山田正俊 教授 研究打ち合わせ
- 12.20 電力中央研究所 津旨 大輔 氏 研究打ち合わせ
- 12.27-28 首都大学東京 海老原 充 教授、広島大学 高橋 嘉夫 教授、田中 万也教授、 坂口 綾 助教 研究打ち合わせ
- 平成 25. 3.1-4 北海道大学 島村 道代 氏 研究打ち合わせ

3.17-20 北海道科学技術振興センター 玉村 修司 氏 研究打ち合わせ

3.21 財団法人ふくしま海洋科学館・アクアマリン環境研究所 富原 聖一 氏、東北大学 桐島 陽 助教「陸域から沿岸域への放射性セシウムの移行動態解析と生態系への影響評価検討 会」のため来所



金沢大学 環日本海域環境研究センター

環日本海域環境研究センター 低レベル放射能実験施設 〒923-1224 石川県能美市和気 TEL (0761) 51 - 4440 FAX (0761) 51 - 5528 尾小屋測定室 TEL, FAX (0761) 67 - 1740

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Wake, Nomi, Ishikawa 923-1224, JAPAN