

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 2013.4 ~ 2014.3

1976/5-2013/8
旧低レベル放射能実験施設



2013/8-2014/3
耐震・増築工事中



2014/3
完工間近い新建物



低レベル放射能実験施設 (LLRL) の記録

- 1970/5 : 日本学術会議の勧告により金沢大学に環境放射能研究所設置の要望 (準備委員会発足)
- 1975/4/1 : 理学部に附属低レベル放射能実験施設設置 (辰口キャンパス)
- 1976/5/20 : 理学部附属低レベル放射能実験施設 (403 m²: LLRL) 開所式
- 1981/6 : 建物増築完工 (403 m²→813 m²)
- 2002/4 : 金沢大学自然計測応用研究センターに改組 (LLRLがこのセンターに組み込まれる)
- 2007/4 : 金沢大学環日本海域環境研究センターに改組 (LLRLがこのセンターに組み込まれる)
- 2013/8 : 建物の耐震・増築開始→2014/3: 完工 (1125 m²)
(2013年8月19日-2014年3月31日 耐震・増築工事のためいしかわクリエイトラボへ移転)

Annual Report of Low Level Radioactivity Laboratory

Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

目次

1. 構成員	2
2. 活動報告	
2-1. 研究概況	3
2-2. 研究業績	6
2-3. 研究費	12
2-4. 研究指導	13
3. 研究報告	
鉛-210 法による陸奥湾の堆積速度と堆積環境の解析	15
²²⁸ Raの分布からみた対馬暖流の循環パターン	18
福島県内の河川における放射性セシウムの移行挙動	20
Sediment transport processes in a reservoir-catchment system inferred from sediment trap observations and fallout radionuclides	22
Influence of deforestation on transport of particulate organic matter inferred from the geochemical properties of reservoir sediments in the Noto Peninsula, Japan	24
Searching ^{242m} Am in environmental samples contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident	26
4. 記録	
平成 25 年度見学来訪・出張の記録	27

1. 構成員

職員

- ・教授 (施設長) 山本政儀 (yama1018@staff.kanazawa-u.ac.jp)
理学博士 専攻 核地球化学・環境放射能
- ・教授 長尾誠也 (nagao37@staff.kanazawa-u.ac.jp)
博士 (水産学) 専攻 地球化学・環境放射化学
- ・助教 浜島靖典 (hamajima@se.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 (i247811@staff.kanazawa-u.ac.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 宮田佳樹 (yoshikimiyata@staff.kanazawa-u.ac.jp)
博士 (理学) 専攻 同位体地球化学
- ・事務補佐員 中本美智代 (mnakamoto@staff.kanazawa-u.ac.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 浜高一仁
- ・博士前期課程 2年 古澤佑一
- ・博士前期課程 1年 河野百合子
- ・化学科 4年生 上村宙輝
- ・化学科 4年生 米岡修一郎

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。

2-1-1. 地球・環境化学的研究

1) 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經由して多量の自然・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口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 ^{210}Pb 、③土壌起源の ^{40}K および ^{137}Cs 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、大気エアロゾル、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、ハイボリウム・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。

2) $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比からみた対馬暖流の水塊流動

日本海の多くを占める対馬暖流は季節変動や年々変動を示すことから、その水塊流動の詳細については、不明な点が多い。本研究では、水塊流動のトレーサーとして $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を用い、2010-2013 年の 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、日本海表層海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比から、表層海水の循環パターンを議論した。その結果、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比に福井沿岸～沖合側線に明らかな境界 (~37°N) がみられた。沿岸分枝と沖合分枝の存在を示唆する。秋田沿岸～沖合側線では、その中間値を示すなど沿岸分枝と沖合分枝のほぼ対等な混合を示唆した。さらに北緯～40°以北で、リマン海流が確認された。

3) 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 2011 年から行っている。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 地点でコアを採取した。堆積環境の変遷の全体像を把握するために、 ^{210}Pb (半減期 22.3 年)を用いた堆積速度、蓄積量、さらに有機物などを検討した。その結果、湾央が沿岸と比べて、過剰 ^{210}Pb 量の蓄積量が多く、表層が 10-15cm 深さまで生物的作用で攪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。

4) 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、2013年4月に熊木川と七尾西湾での調査を実施した。熊木川では上流から下流まで、栄養塩と窒素同位体比分析用の河川水試料を密に採水した。七尾西湾では、地下水の寄与を検討するために海水の Ra と栄養塩を測定した。また、海藻の現存量調査とともに、生産量調査を石川県、長崎大学と共同で実施した。

5) 木場潟の有機汚濁の変遷

湖沼における有機汚濁の指標として、化学的酸素要求量(COD)が用いられている。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の水域内部で発生する間接負荷と関係する。そのため、湖沼の水質改善を推進するためには、湖沼の有機物の特性、起源を把握することが重要である。本研究では、現在もCOD値が高い木場潟を対象に、有機汚濁の原因について堆積物の有機物の分析結果より検討した。

2012年6月に中央部で採取した柱状堆積物の²¹⁰Pbの深度分布より求めた堆積速度は、表層0~8cmで0.15 g/cm²/y、8~14cmでは0.05~0.11 g/cm²/y、14~26.7cmで0.05 g/cm²/yと大きく変動し、流域環境の変化が起こっていると考えられる。現在の堆積物への有機炭素(TOC)フラックスは深さ14cmの1959年当時に比べると約4倍高く、近年、湖内での有機物の蓄積が増加していることが明らかとなった。一方、TOC/TNモル比(C/N)は15.7から12.8と現在に向けて減少している。陸上植物のC/Nは20~75、植物プランクトンは7~8であることから、近年の有機物の蓄積には植物プランクトンの寄与が相対的に増えていることが示唆され、木場潟のCOD増加と関連する可能性が考えられる。

6) 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($\delta^{13}\text{C}$)と放射性炭素($\Delta^{14}\text{C}$)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-七尾西湾を対象に検討を進めている。九頭竜川では、九頭竜川本流と主要な支流の日野川を調査地域に設定し、下流域の1地点で2010年に4回、河川水約120Lを流心から採取した。連続遠心機を用いて河川水から懸濁粒子を分離し、凍結乾燥した後にメノウ乳鉢で粉砕して粉末試料とした。有機物のC-14/C-12の測定は、1M塩酸で炭酸塩の除去を行った試料について、日本原子力研究開発機構青森研究開発センターむつ事務所の加速器質量分析計により行った。測定した値は $\Delta^{14}\text{C} = ((\text{pMC}/100) - 1) \times 1000$ として表した。また、C-13/C-12の測定は、質量分析計により行い、 $\delta^{13}\text{C}$ 値として表した。河川懸濁粒子と沿岸域堆積物の有機炭素含量、全窒素含量は元素分析計により測定した。

河川懸濁粒子有機物の $\delta^{13}\text{C}$ 値は、九頭竜川で-26.3‰から-24.0‰、日野川では-27.0‰から-26.1‰であった。一方、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は九頭竜川で-168‰から-87‰、日野川で-209‰から-143‰であり、九頭竜川の方が見かけ上、新しい有機物で構成されていることが明らかとなった。また、C/N比の平均値は、九頭竜川で 9.1 ± 1.1 、日野川で 8.2 ± 1.1 と、炭素同位体比と同様に九頭竜川と日野川で違

いが認められた。これらの懸濁粒子の有機物の特徴の違いを検討した結果、流域の特徴と流量が関係する可能性が示唆された。

7) 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ウンド井戸型 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、2012 年に測定した 3~5g 程度の試料 2 個に引き続き 3.2g 資料を尾小屋地下実験施設の井戸型 Ge 検出器で測定した。落下後 1 年経過していたため Cr51, Be7, Co58 は検出限界以下であったが Co57, Mn54, Co60, Na22, K40, Al26 を検出した。他の分析結果とともに、Meteoritics & Planetary Science (2014) に掲載され、隕石の由来などを考察した。

2-1-2. 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 3 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・新潟県内の河川、太平洋) および超ウラン元素諸核種 ($^{238,239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , $^{242,243,244}\text{Cm}$) の測定を実施した。

1) 福島県河川湖沼

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。2011 年 5 月 20 日から 2012 年 11 月 2 日まで福島県白河市の羅漢橋と伊達市の梁川大橋で採取した河川水について測定した結果、河川水中の ^{137}Cs の全放射能濃度 (溶存態+懸濁態 Cs-137 放射能濃度) は、白河で 0.024~0.59Bq/L、伊達では 0.043~2.32Bq/L の範囲を示した。降雨後に観測した 2012 年 6 月 20~21 日を除くと、平水時の河川環境では、福島原発事故後、時間の経過とともに徐々に河川水中の ^{137}Cs 放射能濃度が減少していることを示している。このような変動傾向は、阿武隈川の他の観測点や宇多川、新田川、鮫川、夏井川でも認められた。ただし、中流の伊達観測点では、上流の白河観測点に比べて放射能濃度が高い傾向である。このことは、上流から下流へ河川水が移行する過程で、流域からの放射性セシウムの流入が存在することを示唆している。

2012 年 3 月 8 日、4 月 18 日の平水時に伊達で採取した河川水の ^{137}Cs 放射能濃度は 0.043~0.079 Bq/L の値を示したが、6 月 20 日未明の台風 4 号 (グッチョル) 通過に伴う降雨後に採取した河川水は最大で 2.32 Bq/L まで増加した。同様の ^{137}Cs 放射能濃度増加は、上流の白河、中流の本宮、下流の岩沼でも観測され、最大値は 3.83 Bq/L であった。この時の粒子態の割合は平水時の 77-89% から 100% 近くまで増加し、各観測点での水位変動との関連性が認められた。これらの結果より、台風に伴う降雨により粒子態の放射性セシウムがパルス的に陸域から海洋へ放出されるが、全体的には放射性セシウムの流出は減少していることが明らかとなった。

2) 新潟県河川・沿岸域

日本海側では、原発からの汚染水の直接流入はなく、大気からのフォールアウトによる影響も極めて小さい。一方で、阿賀野川は、その上流を福島県にもち、新潟県を経て日本海にそそぎ込む。それを反映し、信濃川河川粒子の ^{134}Cs 濃度は 20-30 Bq/kg-dry に対し、阿賀野川では 100-700 Bq/kg-dry と、河川水粒子中の ^{134}Cs 濃度が高い値を示す。また、阿賀野川河口付近の海底堆積物の ^{134}Cs 濃度は 2-30 Bq/kg-dry で、河口に近いほど高濃度を示した。阿賀野川が福島原発起源の ^{134}Cs を日本海に運搬したと考えられる。阿賀野川流域から河口域における、河川粒子、海底堆積物の ^{134}Cs の分布を調べることで、阿賀野川河川粒子が河川から海底に堆積するまでのプロセスお

よびその移動範囲を議論した。

3) 超ウラン元素諸核種の測定

放射線影響の観点から重視されている ^{90}Sr やプルトニウムをはじめとする超ウラン元素諸核種については、これら核種が測定困難な β あるいは α 線放射体のために当初情報が非常に少なかった。原子炉でウラン燃料が燃やされると燃料ウラン（主に ^{238}U ）と中性子との核反応、さらに生成した Pu と中性子との核反応により種々の Pu 同位体が生成され、 ^{239}Pu に対する存在度が燃焼度と共に増加する。それ故、原発由来 Pu の存在を検知あるいは識別する際には、濃度のみならず同位体比での検討が必須である。2012年9-11月にかけて、原発近傍の市町村（南相馬市、浪江町、双葉町、大熊町、それから原発南方の市町村）から立ち入りの許可を得て、黒い物質（道路脇のダストを含む土壌）や落ち葉、さらに降下量評価のための土壌コア試料を100-200地点で採取した。土壌コア試料については、 ^{238}Pu 、 239 、 ^{240}Pu のみであるが、黒い物質や落ち葉には殆どの試料について、試料40-70gから ^{238}Pu 、 239 、 ^{240}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{242}Cm 、 243 、 ^{244}Cm を明瞭に検出でき、原発由来 239 、 ^{240}Pu 蓄積量のみならず、これら核種間の信頼に耐え得る放射能比を評価することができた。土壌コア試料から評価された原発由来 239 、 ^{240}Pu 蓄積量は、 $0\sim 2.8\text{ Bq/m}^2$ で平均 $0.20\pm 0.37\text{ Bq/m}^2$ で非常に少なく、 239 、 $^{240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比は 10^{-7} オーダーであることが分かった。原子力研究開発機構の西原らが評価した原子炉のコア・インベントリーの核種間の比と今回測定した試料での核種間の比との比較を示すが、 239 、 $^{240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比を除いて、両者は2倍以内でよく一致していることが分かった。このような結果は、U（ ^{236}U 測定は広島大・坂口らとの共同）も含めて、Pu、Am、Cmが大きな分別をすること無く、微粉末となって蒸気と共に放出（carry-over）された可能性が高いことを示していると思われる。これらのデータは、原子炉の燃焼度、メルダウン・メルトスルーの燃料破損状況の考察、さらに環境中での非揮発性（refractory）元素（Puなど）と揮発性（volatile）元素（Csなど）の拡散、降下挙動を比較検討する上で貴重なデータではないかと考えている。

4) 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 ^{137}Cs （30.17年）に加え、震災以降放出された ^{137}Cs 及び ^{134}Cs （2.06年）の海水循環の研究で、総計292試料の北太平洋全域の表層海水、南太平洋南極大陸周辺のN62.0/E132.6度の4500mまでの深度分布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、特に南極大陸周辺の深度分布が初めて明らかになり、加えて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。

2-2. 研究業績

1) 学術論文

- (1) Inoue, M., Kofuji, H., Murakami, T., Oikawa, S., Yamamoto, M., Nagao, S., Hamajima, Y., Misonoo, J. (2013) Spatial variations of low levels of ^{134}Cs and ^{137}Cs in seawaters within the Sea of Japan after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Appl. Radiat. Isot.* **81**, 340-343.
- (2) Inoue, M., Furusawa, Y., Fujimoto, K., Minakawa, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Yoshida, K., Nakano, Y., Hayakawa, K., Oikawa, S., Misonoo, J., Isoda, Y. (2013) $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio and ^7Be concentration in the Sea of Japan as indicators for water transport: Comparison with migration pattern of Fukushima Dai-ichi NPP-derived ^{134}Cs and ^{137}Cs . *J. Environ. Radioactivity* **126**, 176-187.

- (3) J. K. Kim, S. K. Krivonogov, Y. J. Lee, J. Y. Woo, K. C. Oh, D. Y. Yang, J. C. Kim, I. Y. Safonova, M. Yamamoto (2013) Climatic stages recorded in sediments of the Gunang Cave, South Korea, *Quaternary International* **313-314**, 194-209.
- (4) Kofuji, H., Inoue, M. (2013) Temporal variations in ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations in seawater along the Shimokita Peninsula and the northern Sanriku coast in northeastern Japan, one year after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioactivity* **124**, 239-245.
- (5) T. Matsunaga, J. Koarashi, M. Atarashi-Abdoh, S. Nagao, T. Sato, H. Nagai (2013) Comparison of the vertical distributions of Fukushima nuclear accident radiocesium in soil before and after the first rainy season, with physicochemical and mineralogical interpretations. *Sci. Total Environ.*, **447**, 301-314.
- (6) S. Nagao, T. Aramaki, N. Fujitake, H. Kodama, T. Tanaka, S. Ochiai, M. Uchida, Y. Shibata, M. Yamamoto (2013) Variation of $\Delta^{14}\text{C}$ and $\delta^{13}\text{C}$ values of dissolved humic and fulvic acids in the Tokachi River system in northern Japan. *Radiocarbon*, **55**, 1007-1016.
- (7) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai, S. Tomihara, K. Fukushi, M. Yamamoto (2013) Export of ^{134}Cs and ^{137}Cs in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences* **10**, 6215-6223.
- (8) S. Nagao, O. Seki, M. Kawahigashi, H. Kodama, T. Suzuki, V. P. Shesterkin, V. I. Kim, S. I. Levshina, A. N. Makhinov (2014) Migration Behavior of Dissolved Organic Matter in the Lower Amur River. Proceedings of the 3rd International Meeting of Amur-Okhotsk Consortium 2013 edited by Amur-Okhotsk Consortium published by Institute of Low Temperature Science, Hokkaido University, Research Institute for Humanity and Nature, Mitsui & Co., Ltd. Environmental Fund, p29-32.
- (9) K. Nishiizumi, M. W. Caffee, Y. Hamajima, R. C. Reedy, K. C. Welten (2014) Exposure history of the Sutter's Mill carbonaceous chondrite. *Meteor. Planet. Sci.* 1-8: doi: 10.1111/maps.12297
- (10) Ochiai S., Nagao S., Yamamoto M., Itono T., Kashiwaya K., Fukui K., Iida H. (2013) Deposition records in lake sediments in western Japan of radioactive Cs from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Appl. Radiat. Isot.* **81**, 366-370.
- (11) A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, M. Hoshi, T. Nakakuki, M. Yamamoto (2013) Uranium-236 as a new oceanic tracer: a first depth profile in the Japan Sea and comparison with caesium-137. *Earth Planet. Sci. Lett.* **333**, 165-170.
- (12) 坂口綾、角倉彰伸、P. Steier、山本政儀、坂田昂平、富田純平、高橋嘉夫 (2013) : 環境中のウラン同位体 U-236 を利用した研究-海洋循環トレーサーとしての確立を目指して : *分析化学*, **62** (第 11 号)、1001-1012.
- (13) S. Tamamura, T. Takada, J. Tomita, S. Nagao, K. Fukushi, M. Yamamoto (2014) Salinity dependence of ^{226}Ra adsorption on montmorillonite and kaolinite. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **299**, 569-575.
- (14) S. Tamamura, R. Ohashi, S. Nagao, M. Yamamoto, M. Mizuno (2013) Molecular-size-distribution-dependent aggregation of humic substances by Na(I), Ag(I), Ca(II), and Eu(III), *Colloids and Surfaces A: Physicochem. Eng. Aspects* **434**, 9-15.
- (15) M. Yamamoto, M. Hoshi, K. Zhumadilov, S. Endo, A. Sakaguchi, T. Imanaka, Y. Miyamoto : Estimation of close-in fallout ^{137}Cs deposition level due to the Hiroshima atomic bomb from soil samples under houses built 1-4 years after the explosion, *Revis: The Hiroshima A-bomb with a Database, Volume 2*

2) 本・総説・資料・報告書

- (1) 長尾誠也、新堀雄一、田中忠夫、佐々木隆之、斉藤拓巳、桐島陽、吉川英樹、飯島和毅、濱克宏、岩月輝希、高橋嘉夫、足立泰久、鈴木庸平、渡部芳夫 (2013) 放射性廃棄物の地層処分における国内の地下水コロイド研究の現状と今後の展開. 20, 3-14.
- (2) 長尾誠也、大西健夫 (共著) アムール川、全世界の河川辞典 (編者: 高橋裕、賽馨、野々村邦夫、春山成子)、丸善出版

3) 学会発表など

- (1) Y. Furusawa, M. Inoue, S. Nagao, M. Yamamoto, Y. Hamajima, H. Kofuji, K. Yoshida, Y. Nakano, K. Fujimoto, A. Morimoto, T. Takikawa, Y. Isoda: Lateral distribution of $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ and $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios in surface waters of the Sea of Japan and their physical implication. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (2) K. Hamataka, S. Nagao, M. Kato, I. Kudo, M. Yamamoto: Sedimentary environment inferred from sedimentation rates by ^{210}Pb and ^{137}Cs and their inventories in Mutsu Bay, Japan. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (3) M. Inoue, M. Minakami, K. Yoshida, Y. Nakano, H. Kofuji, S. Nagao, M. Yamamoto, Y. Hamajima: Vertical profiles of ^{228}Ra and ^{226}Ra activities in the Sea of Japan and their implications for water circulation. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (4) M. Inoue, S. Ochiai, T. Murakami, S. Oikawa, M. Yamamoto, S. Nagao, Y. Hamajima, H. Kofuji, J. Misonoo: Low levels of ^{134}Cs and ^{137}Cs in bottom sediments along the Japanese Archipelago side of the Sea of Japan after the Fukushima Dai-ichi NPP accident. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (5) 井上睦夫、長尾誠也、山本政儀、浜島靖典、小藤久毅、早川和一、藤本賢、皆川昌幸、磯田豊: 福島原発事故以降の日本海およびその周辺海域の低レベル ^{134}Cs , ^{137}Cs 濃度の経時変動、環日本海域環境研究センターシンポジウム、金沢 (2014/3).
- (6) Y. Kawano, S. Nagao, S. Ochiai, M. Yamamoto: Study of factors controlling organic pollution in Lake Kiba. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (7) H. Kofuji: In-site measurement of ^{134}Cs and ^{137}Cs in seabed by underwater γ -spectrometry systems and application for the survey to the Fukushima Dai-ichi NPP accident. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (8) 長尾誠也、金森正樹、桐島陽、落合伸也、山本政儀: 阿武隈川における放射性セシウムの移行に及ぼす降雨の影響評価. 日本地球惑星科学連合 2013 年大会 (福島セセッション)、幕張メッセ (2013/5).
- (9) 長尾誠也、関幸、鈴木智代、落合伸也、鎌内宏光、田中孝幸、荒巻能史、山本政儀: 厚岸湖における陸起源粒子態有機物の移行と堆積状況. 日本地球惑星科学連合 2013 年大会 (水循環・水環境セセッション)、幕張メッセ (2013/5).
- (10) 長尾誠也、鈴木智代、関幸、落合伸也、田中孝幸、荒巻能史、山本政儀: 放射性炭素と炭素安

- 定同位体比を用いた釧路川河川懸濁態有機物の移行動態に関する研究. 日本地球惑星科学連合 2013 年大会 (生物地球化学セッション)、幕張メッセ (2013/5).
- (11) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai, S. Tomihara, A. Kirishima, M. Yamamoto: Transport of ^{134}Cs and ^{137}Cs in river waters from Fukushima Prefecture in Japan during 2011-2012. Joint Assembly of IAHS-IAPSO-IASPEI, Gothenburg, Sweden (2013/7).
- (12) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai, S. Tomihara, M. Yamamoto: Transport of dissolved and particulate forms of ^{134}Cs and ^{137}Cs in river waters from Fukushima Prefecture after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. Second Russian-Japanese seminar “Behaviors of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Radioactive Compounds in atmosphere and marine environment at East Asia” Vladivostok, Russia (2013/8).
- (13) S. Nagao, K. Hamataka, T. Arai, S. Tomihara, K. Tanaka, M. Uematsu, M. Inoue, Y. Hamajima, M.: Yamamoto: Distribution of ^{134}Cs and ^{137}Cs radioactivity in seawaters from the coastal area off Fukushima to Pacific Ocean. Third Russian-Japanese seminar “Behaviors of Polycyclic Aromatic Hydrocarbons and Radioactive Compounds in atmosphere and marine environment at East Asia” Kanazawa, Japan (2013/8).
- (14) S. Nagao, T. Suzuki, S. Ochiai, M. Yamamoto, K. Nakamura: Study on transport of particulate organic matter in the Kumaki River system. The 10th East Eurasia International Workshop on Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Eurasia. Kwangju, Korea (2013/8).
- (15) R. Nomura, M. Inoue, H. Kofuji and S. Ikeda: Verification of anticlockwise gyre in the semi-closed water area of Lake Nakaumi, southwest Japan, by using $^{224}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ activity ratios. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (16) Ochiai S., Nagao S., Suzuki T., Yamamoto M., Yonebayashi K., Okazaki M., Kashiwaya K., Nakamura K.: Sedimentation Processes of Nanao Bay, Japan, 2013 Taiwan Geosciences Assembly, Taoyuan, Taiwan (2013/5).
- (17) Ochiai S., Nagao S., Suzuki T., Yamamoto M., Yonebayashi K., Okazaki M., Kashiwaya K., Nakamura K.: Sedimentation Processes of Nanao Bay, Japan, LOICZ workshop, Taipei, Taiwan (2013/5)
- (18) 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北部の流域環境変動の推定, 日本地球惑星科学連合 2013 年大会, 幕張メッセ (2013/5).
- (19) 落合伸也, 長尾誠也, 金森正樹, 桐島陽, 落合伸也, 山本政儀: 阿武隈川における放射性セシウムの移行に及ぼす降雨の影響評価. 日本地球惑星科学連合 2013 年大会 (水循環・水環境セッション)、幕張メッセ (2013/5).
- (20) Ochiai S., Nagao S., Yamamoto M., Itono T., Kashiwaya K.: Sediment transport processes in reservoir-catchment system inferred from sediment trap observation and fallout radionuclides. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (21) Ochiai S., Nagao S., Yonebayashi K., Itono T., Suzuki T., Hasegawa T., Kashiwaya K., Yamamoto M.: Catchment environmental changes inferred from geochemical properties of Lake Onuma sediment, Japan, The 10th East Eurasia International Workshop Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Eurasia, Gwangju, Korea (2013/10).
- (22) A. Sakaguchi, A. Kadokura, P. Steier, Y. Takahashi, K. Shizuma, T. Nakakuki, M. Yamamoto: Depth

distribution of U-236 and Cs-137 in the Japan Sea: toward the potential use as a new oceanic circulation tracer. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).

- (23) 鈴木智代、長尾誠也、山本政儀、中村浩二：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. 日本地球惑星科学連合 2013 年大会（水循環・水環境セッション）、幕張メッセ (2013/5).
- (24) 富田純平、高田貴裕、山本政儀：NaCl 型温鉱泉中のラジウム濃度、日本温泉科学会第 66 回大会、岳温泉、福島県二本松市 (2013/9).
- (25) J. Tomita, T. Takada, S. Nagao, M. Yamamoto: Ra isotopes in Na-Cl type groundwater in Japan. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).
- (26) M. Yamamoto, A. Sakaguchi, S. Ochiai, T. Takada, S. Nagao, P. Steier: Isotopic U, Pu, Am and Cm signatures in environmental samples from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. 5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry (APSORC 13). Kanazawa, Japan (2013/9).

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）、2010-2013
- (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
- (5) 長尾誠也、福島原発事故由来の放射性セシウムの海洋堆積物への蓄積に関する研究（代表 JAMSTEC 本多牧生）、金沢大学環日本海域環境研究センター 一般共同研究、2013 年度
- (6) 長尾誠也、沖縄海域における溶存有機物の特性に関する研究（代表 北海道大学 島村道代）、金沢大学環日本海域環境研究センター 一般共同研究、2013 年度
- (7) 長尾誠也、Cs-137 および Pb-210 を用いたインドネシア農地における土壌浸食量の推定（代表 岐阜大学 大西健夫）、金沢大学環日本海域環境研究センター 一般共同研究、2013 年度
- (8) 長尾誠也、北海道大沼の湖沼堆積物に見られる縞構造の形成過程の解明（代表 岐阜大学 勝田長貴）、金沢大学環日本海域環境研究センター 一般共同研究、2013 年度

・海外渡航

- (1) 山本政義、セミパラチンスク核実験場周辺住民のフォールアウトによる健康リスクに関する国際ワークショップ」出席のためリヨンへ出張 (2013/5/4-10)
- (2) 長尾誠也、TGA conference、台湾 (2013/5/12-15)
- (3) 長尾誠也、Join Assembly Conference、スウェーデン (2013/7/21-28)
- (4) 長尾誠也、日本-ロシア二国間共同研究、ロシア (2013/7/31-8/3)
- (5) 長尾誠也、アムール・オホーツクコンソーシャム、ロシア (2013/10/5-8)

- (6) 長尾誠也、10th East Eurasia International Workshop、韓国 (2013/10/8-10)
- (7) 落合伸也、2013 Taiwan Geosciences Assembly、台湾 (2013/5/12-15)
- (8) 落合伸也、モンゴルの湖沼堆積物試料採取、モンゴル (2013/8/25-31)
- (9) 落合伸也、The 10th East Eurasia International Workshop、韓国 (2013/10/7-13)

5) 各種活動 (大学・学会・社会)

・ 他大学での集中講義

- (1) 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 2013/8/23-24
- (2) 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」2013/7/15

・ 学会活動

- (1) 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
- (2) 長尾誠也：日本原子力学会評議員、日本原子力学会バックエンド部会長、日本放射化学会編集委員、日本腐植物質学会編集委員・会長、国際腐植物質学会日本支部長、日本地球惑星連合 2013 年大会「水循環・水環境」コンビーナー
- (3) 浜島靖典：日本放射化学会ニュース編集委員

・ 社会活動

- (1) 山本政儀：日本分析センター評議員、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、石川県原子力安全専門委員、石川県原子力環境安全管理協議会委員、石川県放射線測定技術委員会委員、
- (2) 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) M. Yamamoto: Overview of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) accident, with amounts and isotopic compositions of released radionuclides, In: 5th-Pacific Symposium on Radiochemistry, APSORC13, Kanazawa Japan, 22-27 September 2013 (特別講演)
- (2) S. Nagao, M. Kanamori, S. Ochiai, S. Tomihara, M. Yamamoto: Transport of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in the Natsui River and Same River in Fukushima Prefecture, Japan. 2013 Taiwan Geosciences Assembly (LOICZ-Land Ocean Interaction in the Coastal Monitoring), Taoyuan, Taiwan, 13 May 2013. (招待講演)
- (3) S. Nagao: Study on transport of particulate organic matter in river and coastal marine systems using radiocarbon (Plenary Lecture). APSORC 2013. 24 September 2013, Kanazawa, Japan.
- (4) 長尾誠也：木場潟汚染原因の解明、こまつ水郷 2020 ネット講演会、小松市 (2014/1/25).
- (5) 長尾誠也：木場潟の有機汚濁の変遷、木場潟環境フォーラム、小松市 (2014/2/9).

6) その他

新聞・テレビ報道

- (1) 長尾誠也、こまつ水郷 2020 ネット講演会開催 木場潟の水質調査を報告 北國新聞 (2014/1/26)
- (2) 長尾誠也、木場潟環境フォーラムで木場潟の有機汚濁の状況を報告 北陸中日新聞 (2014/2/10)
- (3) 長尾誠也、木場潟の環境を考えるー小松でフォーラム、北国新聞 (2014/2/10)

2-3. 研究費

平成 25 年度

研究費

1)科学研究費等

- | | |
|--------------------------------------|----------|
| (1) 山本政儀 (代表) 新学術領域研究 (総額 15,600 千円) | 2,840 千円 |
| (2) 山本政儀 (分担) 新学術領域研究 | 150 千円 |
| (3) 山本政儀 (分担) 基盤研究(B) | 600 千円 |
| (4) 山本政儀 (分担) 基盤研究(B) | 200 千円 |
| (5) 山本政儀 (分担) 基盤研究(B) | 100 千円 |
| (6) 山本政儀 (分担) 基盤研究(C) | 100 千円 |
| (7) 長尾誠也 (代表) 基盤研究(B) | 1,900 千円 |
| (8) 長尾誠也 (分担) 新学術領域研究 | 3,160 千円 |
| (9) 長尾誠也 (分担) 基盤研究(C) | 100 千円 |
| (10) 井上睦夫 (代表) 基盤研究(C) | 1100 千円 |
| (11) 井上睦夫 (分担) 基盤研究(B) | 100 千円 |
| (12) 井上睦夫 (分担) 基盤研究(B) | 150 千円 |
| (13) 浜島靖典 (分担) 新学術領域研究 | 560 千円 |
| (14) 浜島靖典 (分担) 基盤研究(B) | 870 千円 |
| (15) 浜島靖典 (分担) 基盤研究(C) | 100 千円 |
| (16) 宮田佳樹 (代表) 基盤研究(B) | 1,200 千円 |

2)受託研究費等

- | | |
|--------------------------|-----------|
| (1) 山本政儀、日本原子力研究開発機構受託研究 | 8,264 千円 |
| (2) 山本政儀、海洋生物環境研究所共同研究 | 1,420 千円 |
| (3) 長尾誠也、海上技術安全研究所受託研究 | 22,745 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 | 1,237 千円 |
| (6) 長尾誠也、地(知)の拠点整備事業 | 400 千円 |
| (7) 長尾誠也、小松市受託研究 | 281 千円 |
| (8) 浜島靖典、気象研究所受託研究 | 2,006 千円 |
| (10)浜島靖典、(株)環境総合テクノス寄付金 | 1,914 千円 |

2-4. 研究指導

1) 博士論文

- (1) 糸野妙子 Present earth surface processes and historical hydro-environmental fluctuations inferred from lake-catchment systems (湖沼-流域系を対象とした現代の地表プロセスの解明と歴史時代における水文環境の解析)、自然科学研究科環境科学専攻、博士(理学)副査:長尾誠也,山本政儀

2) 修士論文

- (1) 濱高一仁、鉛-210 法による陸奥湾の堆積速度と堆積環境の解析、自然科学研究科物質化学専攻、修士(理学)、山本政儀
- (2) 古澤佑一、放射性核種からみた東シナ海・日本海表層海水の水塊流動に関する研究、自然科学研究科物質化学専攻、修士(理学)、長尾誠也

3) 卒業研究

- (1) 上村宙輝、福島県内の河川における放射性セシウムの移行挙動、理学部化学科、学士(理学)、長尾誠也
- (2) 米岡修一郎、福島原発事故由来 ^{134}Cs をトレーサーとした阿賀野川河川粒子の日本海への流入・拡散、理学部化学科、学士(理学)、長尾誠也

3. 研究報告

鉛-210 法による陸奥湾の堆積速度と堆積環境の解析

浜高一仁¹、長尾誠也¹、工藤 勲²、山本政義¹

¹〒923-1224 石川県能美市和気オ 24 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

²〒060-0810 札幌市北区北 10 条西 5 丁目 北海道大学大学院環境科学院

Hamataka, K., Nagao, S., Kudo, I, Yamamoto, M.:

内湾、沿岸海域の環境変化は、人類の活動の増大に伴い、今世紀に入ってから著しい。堆積環境の変遷等の全体像を知るためには、まず堆積速度や堆積フラックスを特徴づけ定量化することが重要である。この目的のために、ここ100年程度の内湾の堆積物の年代測定法として²¹⁰Pb(半減期 22.3年)や¹³⁷Cs(30年)の年代測定法が有用視されている。工業地帯で人口密集地域に存在する東京湾、大阪湾、伊勢湾等においてこの手法を用いての堆積環境の変遷等が調査研究されている。

本研究では大都市と比べて人口密度の低い地域に存在する青森県の陸奥湾を実験海域とした。陸奥湾は、漁業生産の場として古い歴史を持ち、近年増養殖産業(特にホタテ貝)が行われており、過密養殖によるヘドロの堆積、水質悪化による養殖場近辺の堆積環境(底層の貧酸素水塊の発生、赤潮の発生など)の変化が懸念されている。

本研究では、こうした堆積環境状況全体を把握するために、堆積物コア中の放射性²¹⁰Pbおよび¹³⁷Csを測定し、それらの蓄積量や堆積速度から堆積環境を特徴付け、定量化することを目的とした。

[陸奥湾の特徴]

陸奥湾(面積 1580 km²、容積 54.6 km³、平均水深 34.6 m、最大水深 75 m)は、本州北端に位置する半閉鎖的内湾で、湾北西部でのみ平館海峡を通じて津軽海峡と連絡しており、湾内と外洋水が交換している。また、その外洋水は平館海峡西部から流入し、巨視的にみると、表層水は西湾、東湾をそれぞれに反時計方向に循環する流れがあり、湾奥部の青森湾、大湊湾などにはこれと対抗する小環流が生じている。また、湾内の水塊更新に要する日数は、西湾で1カ月余り、東湾で3カ月程度と見積もられている。

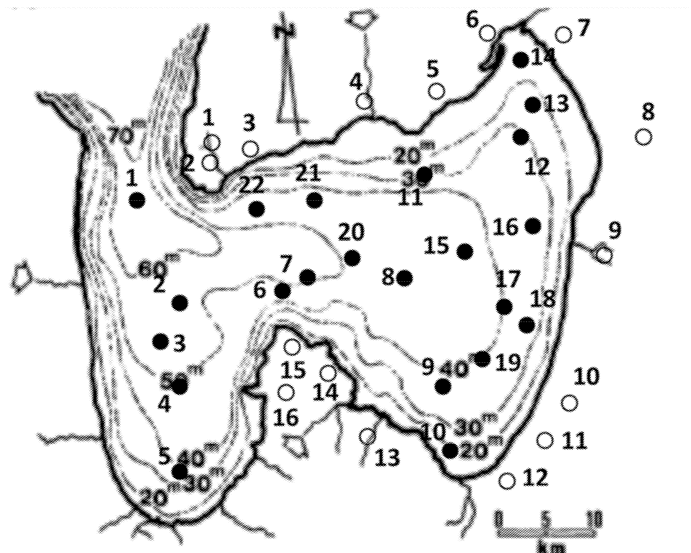


Fig.1 Sampling sites of sediment of Mutsu bay (●) and soil of Mutsu bay basin(○).

[研究方法と結果]

Fig. 1 に示した 22 地点において、グラビティコアラー (直径 3.5 cm, 5 cm, 8 cm) を用いて、20-40 cm 深さの海底堆積物コア試料を採取した (2011 年 5 月から 2013 年 8 月まで合計 5 回 22 地点)。試料は、堆積速度を評価するために現場で表層から深さ 1 cm ごとに切断し、研究室に持ち帰った。また、 $\text{excess}^{210}\text{Pb}$ (^{210}Pb 量から ^{226}Ra 量を差し引いた量)、 ^{137}Cs の降下量を明らかにするために、湾周辺陸域の未攪乱土壌をステンレスパイプ (直径 4.7 cm、長さ 20 cm) を用いて採取した (2013 年 7 月に 16 地点)。海底堆積物は凍結乾燥後、粒径分析と Biogenic-Si 測定のために 1g 程度分取し、その後、残りの試料をメノウ乳鉢にて粉碎混合・均一試料にした。 ^{210}Pb (46.5 keV)、 ^{137}Cs (661.6 keV) は井戸型もしくは平板型 Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーにより定量した。

過剰 ^{210}Pb 蓄積量は、湾口 (St.1) が最も低く (5.8 kBq/m^2)、西湾・東湾中央 (Sts. 2, 4, 6, 7, 8, 16, 21) において高く ($17.5\text{-}32.4 \text{ kBq/m}^2$)、東湾沿岸 (Sts. 9, 10, 12, 14) では低い ($7.9\text{-}10.0 \text{ kBq/m}^2$) 傾向にあった。一般に、河川からの影響を強く受けている沿岸域では、 $\text{excess}^{210}\text{Pb}$ 蓄積量が陸域土のそれよりも数倍高くなることが知られているが、陸奥湾沿岸の $\text{excess}^{210}\text{Pb}$ 蓄積量 ($7.9\text{-}10.0 \text{ kBq/m}^2$) は $1/2\sim 1/3$ と低くなっている。 ^{137}Cs は、現在大気からの供給はほとんど無く、大部分が河川由来であるが、その蓄積量は湾内平均で 0.11 kBq/m^2 ($0.03\text{-}0.19 \text{ kBq/m}^2$) であり、周辺土壌の平均 2.6 kBq/m^2 ($0.44\text{-}3.83 \text{ kBq/m}^2$) と比べて平均 4%程度と低く、また、同時に測定した表層堆積物の C/N モル比 10 前後 (海洋起源由来を示唆) から、河川経由の湾への影響は低いと考えられる。TOC の値は湾中央部が沿岸より 1.4 倍程度高い値を示した。このことから、湾中央に有機物質が多く沈積していることが示唆された。粒度分布の測定結果から、湾中央の堆積物は沿岸と比べて細粒化 (粒子サイズの細かい成分が卓越) していることも分かった。

Fig.2 に陸奥湾の海底堆積物に沈積してくる $\text{excess}^{210}\text{Pb}$ フラックス ($1 \text{ dpm/cm}^2/\text{y} \rightarrow 1/60 \text{ Bq/cm}^2/\text{y}$) を示すが、湾口で最も低く (1.08

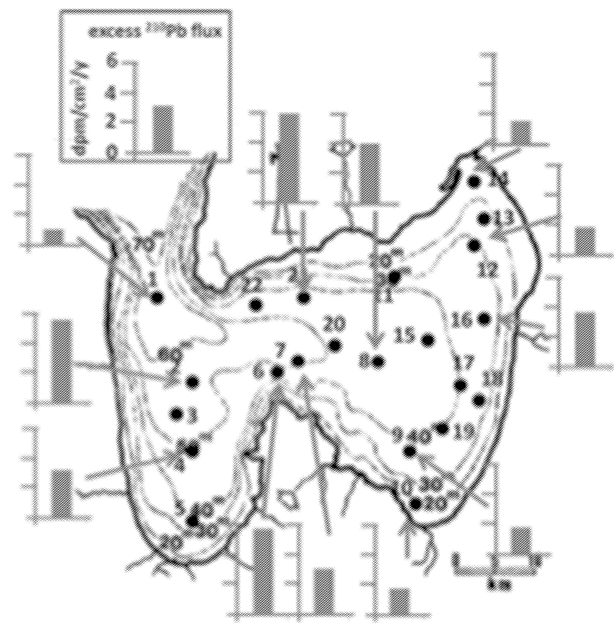


Fig.2 Distribution of excess ^{210}Pb flux in the sediment

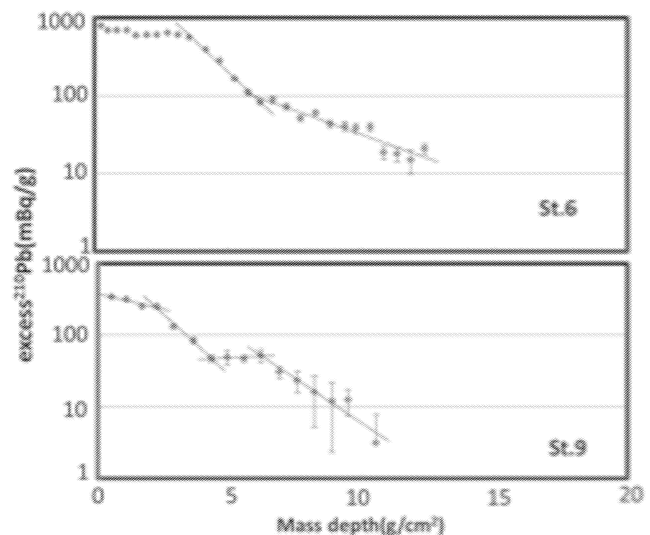


Fig.3 Depth profiles of excess ^{210}Pb in sediment cores (Sts.6 and 9).

dpm/cm²/y)、西湾中央と東湾中央で高く(3.12-6.05 dpm/cm²/y)、東湾沿岸で低く(1.47-1.85 dpm/cm²/y) になっており、陸奥湾堆積物の全体での平均は 3.30 dpm/cm²/y であった。海底堆積物への excess²¹⁰Pb フラックスは、湾周辺土壌の平均 4.25dpm/cm²/y (2.37-5.72 dpm/cm²/y) の約 80%であった。従って、差分の 20%程度が、大部分粒子として存在していると思われ ²¹⁰Pb として平館海峡を通り、流出していくことが考えられる。

excess ²¹⁰Pb の深度分布は、地点ごとに様々であった。例として Fig. 3 に東湾中央の St.6 と東湾沿岸域の St.9 で得た深度分布を示す。湾中央においては表層の濃度がほぼ一定となっており、活発な生物攪乱が起きていることを示唆した。

今回、湾中央の堆積物で、表層での生物攪乱が顕著で有り、CIC モデルによる堆積速度の評価が困難（一部の試料では評価可能）であったので、蓄積量と表層 excess²¹⁰Pb フラックスから平均堆積速度を評価した。平均堆積速度は、西湾及び東湾中央で 71~147 (mg/cm²/y)、東湾沿岸で 57~114 (mg/cm²/y)であり、前者が平均 1.4 倍程度大きくなっている。粒子の沈積が西湾及び東湾中央において発達している事が示唆された。

年代毎の堆積状況を詳細に検討するために、CRS モデル（フラックス一定、粒子沈積非定常）で解析を試みた。Fig. 4 に東湾中央と東湾沿岸の幾つかの試料に対する堆積速度の年変化を示す。東湾中央において、1980 年頃から堆積速度が漸次増加してきていることが明らかである（西湾中央も同様）。しかし、東湾沿岸では堆積速度はほぼ一定であった。陸奥湾においては、1978 年頃よりホタテ貝の養殖技術の進歩により、飛躍的に生産が拡大している。このことは東湾及び西湾中央の堆積速度上昇と調和的である。また、上述したように、TOC の値も湾中央部が沿岸より 1.4 倍程度高い割合を示し、有機物質が湾中央に多く沈積（生物的攪乱が卓越する主因）していることから、ホタテ貝の糞や養殖施設に付着している微生物の遺骸や糞等の粒子（²¹⁰Pb 沈積に関与）が沿岸から湾内海流により湾中央へ穏やかに Sediment focusing していると考えられる。

本研究から、陸奥湾では大都市部の湾よりは比較的安定な堆積環境にあることが示唆されたが、湾中央への有機物の沈積が今後進むと、ヘドロ化の懸念が強まることから、今後さらに調査をしていくことが重要である。

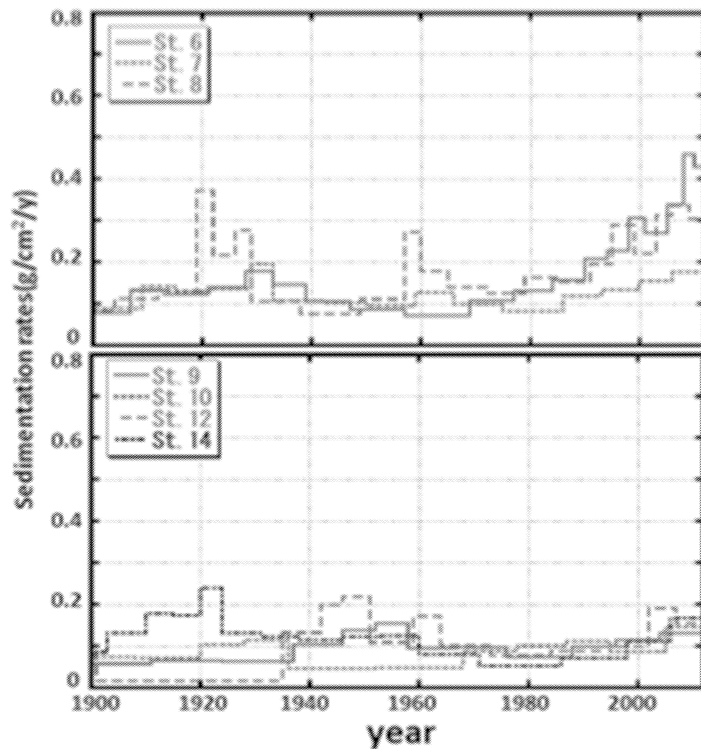


Fig.4 Temporal variation of sedimentation rates using CRS model.

^{228}Ra の分布からみた対馬暖流の循環パターン

古澤佑一¹、井上睦夫¹、藤本賢²、吉田圭佑¹、長尾誠也¹、
山本政儀¹、浜島靖典¹、小藤久毅¹、皆川昌幸²

¹〒923-1224 石川県能美市和気オ 24 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

²〒236-8648 神奈川県横浜市金沢区福浦 2-12-4 水産総合研究センター 中央水産研究所 放射能調査グループ

Furusawa, Y., Inoue, M., Fujimoto, K., Yoshida, K., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Kofuji, H. and Minakawa, M.: Migration pattern of the Tsushima Warm Current; Implication from transport of ^{228}Ra

東シナ海大陸側の浅い大陸棚および沿岸堆積物より海水に供給されるラジウム同位体は、東シナ海を通過し日本海にもたらされた後、対馬暖流とともに循環する。当研究室では、これまで短半減期 (5.75 年) の ^{228}Ra 濃度 ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比) を利用することにより、日本海の海水循環を調査してきた (Inoue *et al.*, 2007)。本研究では、2012 年および 2013 年 7 月の蒼鷹丸調査航海測線 (SY12, SY13) において採取された日本海表層海水 (5-m 水深) 39 試料の ^{228}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の水平分布を、尾小屋地下測定室を利用した低バックグラウンド γ 線測定 (Hamajima and Komura, 2004) により求めた。海水採取地点を Fig. 1 に示す。

測線 SY12, SY13 の測定結果を Fig. 2 に示す。北緯 \sim 39°N で、 ^{228}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比が明らかに高くなった。 ^{228}Ra に富む大陸側浅層海水の寄与が大きいことを示唆する。対馬海峡西水道を通過した後、韓国半島に沿って北上した対馬暖流沖合分枝の影響が大きいと考えられる。さらに北上すると、SY13 の日本海側では、 ^{228}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比ともに、SY12 の沖合分枝とその沿岸域の間の値を示した。2 つの水塊の混合が考えられる。SY13 のオホーツク側表層の低い ^{228}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は、対馬暖流よりも東樺太海流の影響が顕著に大きいことを反映する。

今後、 ^{228}Ra 濃度、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比に塩分、密度を加えることにより、日本海における対馬暖流の循環パターンを議論し、そのうえで対馬暖流沖合分枝と沿岸分の混合比の見積もりをおこなう。さらに表層海水の $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比の解析により、日本海表層におけるスキヤベンジングについても考察する予定である。

謝辞

海水採取にご協力いただいた、水産総合研究センター蒼鷹丸の同乗研究者、船長および乗組員の皆様に感謝いたします。

引用文献

M. Inoue *et al.* (2007) *Mar. Chem.* **107**, 559-568.

Y. Hamajima and K. Komura (2004) *Appl. Radiat. Isot.* **61**, 179-183.

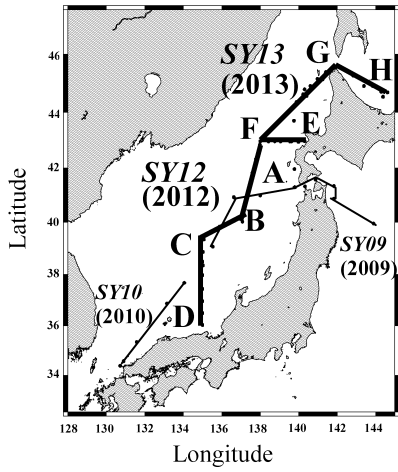


Fig. 1: Sampling locations for surface waters on transects SY12 and SY13.

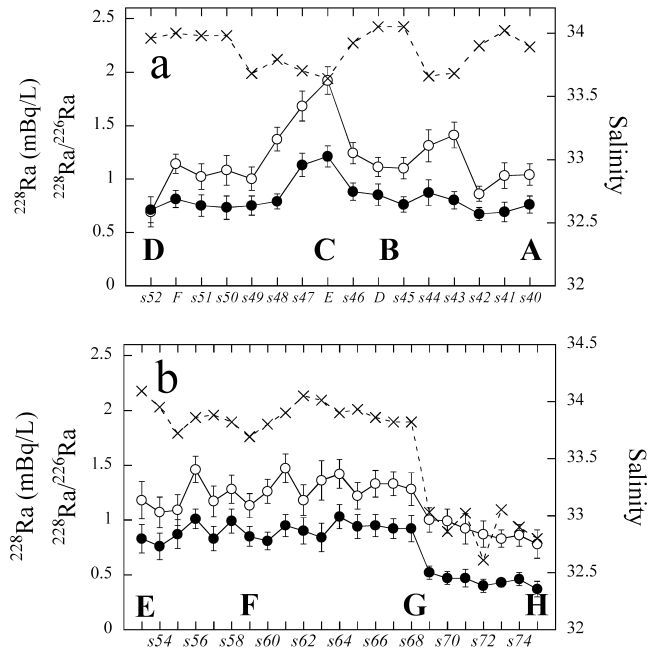


Fig. 2: Lateral profiles of ^{228}Ra activity, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio, and salinity in surface waters on a) transect SY12 and b) SY13.

(●, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio; ○, ^{228}Ra activity; ×, salinity)

福島県内の河川における放射性セシウムの移行挙動

上村宙輝¹、長尾誠也¹、落合伸也¹、宮田佳樹¹、井上睦夫¹、桐島陽²、山本政儀¹

¹〒923-1224 石川県能美市和気オ 24 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

²〒980-8577 宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1 東北大学多元物質科学研究所

Uemura, H., Nagao, S., Ochiai, S., Miyata, Y., Inoue, M., Kirishima, A., Yamamoto, M.:

Migration behavior of radiocesium in the rivers in Fukushima Prefecture, Japan

【序論】

平成 23 年 3 月 11 日の東日本大震災によって発生した東京電力福島第一原子力発電所（福島第一原発）事故によって、大量の放射性物質が大気中に放出された。福島第一原発から 4 月初めまでに大気中に放出された¹³⁷Cs の総量は 15PBq と推定されており、一部は陸域へと沈着し、空間線量率の増加、農畜産物や水産物の放射能汚染など社会的に大きな問題となっている。また、陸域に沈着した放射能核種は、河川を通じて海洋へと移行し、新たな放射性核種の拡散の可能性が指摘されている。そのため、河川における放射性核種の移行挙動を特定することは、河川流域および沿岸海洋への中長期的な生態影響評価に有効である。しかし、流域環境の多様性、流域における降下量の違いなどの様々な要因のため、その多くが未解明である。そこで本研究では、福島原発事故が発生してからの時間経過に伴って、放射性セシウムの放射能濃度の変動を把握し、流域スケールでの福島原発由来の放射性セシウムの移行挙動を検討した。

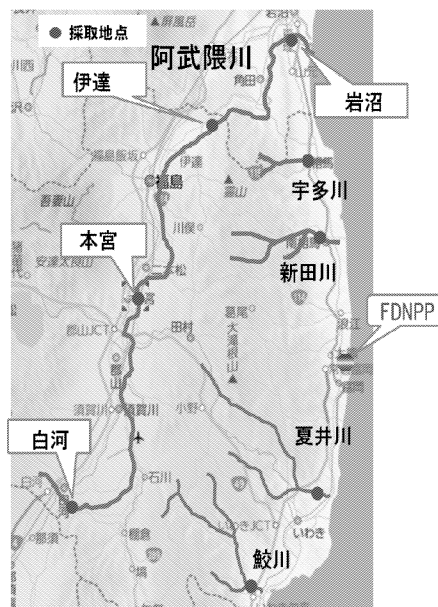


図 1 試料採取地点

【試料と実験】

本研究では、福島県に位置する阿武隈川、宇多川、新田川、鮫川、夏井川の 5 つの流域（図 1）に着目し、2011 年 5 月から 2~8 地点で定期的に河川水の採取を行ってきた。河川水は硝酸で pH1 にし、塩化セシウムを添加して 1 時間攪拌した後、リンモリブデン酸アンモニウム六水和物（AMP）を添加して 1 時間攪拌し、一晚静置した。AMP を回収、乾燥した後一定の形に成型し、Ge 半導体検出器で放射性セシウム濃度を測定した。また、同様に、河川懸濁粒子の放射性セシウムも定量した。

【結果と考察】

新田川、宇多川、阿武隈川（岩沼）の河川水中の¹³⁷Cs濃度の系時変化を図2に示す。それぞれの河川の¹³⁷Cs濃度の変動はおおよそ類似している。467日目の2012年6月20日と570日目の2012年10月1日に降雨により¹³⁷Cs濃度のピークが検出された。表1には、2012年6月20日、10月1日および2013年10月17日の降雨時の測定結果を示した。全¹³⁷Cs濃度（溶存態と懸濁態）は阿武隈川（岩沼）が最も高く、宇多川は阿武隈川（岩沼）と比べ10分の1以下の値であった。しかし、溶存態¹³⁷Cs濃度は新田川が最も高く、阿武隈川（岩沼）は宇多川よりも低い値であった。降雨時の溶存態の割合は、阿武隈川（岩沼）で1%以下であったが、新田川では9~15%、宇多川は10%~21%と異なっていた。これは河川によって全¹³⁷Cs濃度の支配要因が違うことを示唆している。

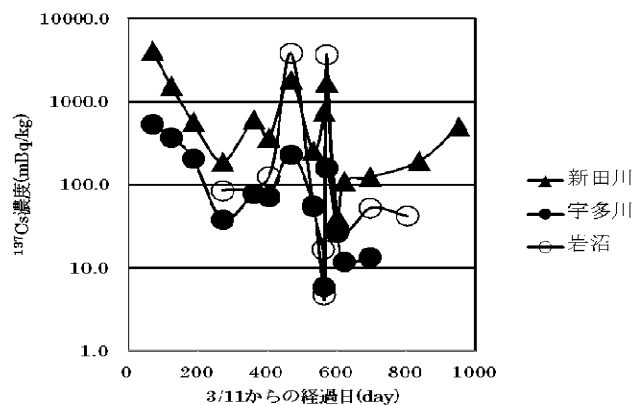


図2 新田川、宇多川、阿武隈河川（岩沼）の¹³⁷Cs濃度の系時変化

表1 新田川、宇多川、阿武隈河川（岩沼）の降雨時における全¹³⁷Cs濃度（溶存態+懸濁態）と溶存態¹³⁷Cs濃度と溶存態の割合

採取日	経過日数(day)	濁度(NTU)	全 ¹³⁷ Cs濃度 (mBq/kg)	溶存態 ¹³⁷ Cs濃度 (mBq/kg)	溶存態の割合(%)
新田川	2012年6月20日	467	48 1826 ± 2	162 ± 0	8.9
	2012年10月1日	570	34 1683 ± 5	229 ± 1	13.6
	2013年10月17日	951	19 497 ± 3	75 ± 1	15.0
宇多川	2012年6月20日	467	66 230 ± 1	22 ± 0	9.5
	2012年10月1日	570	9 157 ± 2	33 ± 1	21.0
阿武隈河川(岩沼)	2012年6月20日	467	774 3826 ± 21	11 ± 0	0.3
	2012年10月1日	570	267 3688 ± 38	27 ± 1	0.7

【参考文献】

金森 正樹 金沢大学大学院自然科学研究科修士論文

Sediment transport processes in a reservoir-catchment system inferred from sediment trap observations and fallout radionuclides

Shinya Ochiai¹, Masayoshi Yamamoto¹, Seiya Nagao¹, Taeko Itono², Kenji Kashiwaya³

¹LLRL, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

²Graduate School of Natural Science & Technology, Kanazawa University

³Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

Sediment transport processes and their responses to hydrological conditions were investigated based on sediment trap observations of excess ^{210}Pb ($^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$), ^{137}Cs , and ^{134}Cs in a reservoir-catchment system. The study site is an artificial reservoir Takidani-ike located in Kanazawa City, Japan (Fig. 1). Deposited sediment samples were collected monthly using sediment traps and oven-dried at 110 °C to obtain sedimentation rates. Samples collected from February 2010 to May 2012 were used for radioactivity measurements of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, ^{137}Cs , and ^{134}Cs by gamma-ray spectrometry using Ge detectors.

Fig. 2a shows the temporal changes in sedimentation flux of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ calculated from the sedimentation rates and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ concentrations. Sedimentation flux of catchment-derived $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ without the direct fallout flux to the water surface was calculated to be 4.6–48 Bq/m²/day. Sedimentation fluxes of ^{137}Cs and ^{134}Cs ranged 0.14–1.7 and n.d.–0.11 Bq/m²/day, respectively (Fig. 2b). Assuming that the annual total sedimentation is equal to the annual total discharge from the catchment, the discharge rates of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$, ^{137}Cs , and ^{134}Cs from a unit area of the catchment were estimated to be 190, 6.52, and 0.444 Bq/m²/year, respectively. These values are equivalent to 0.71, 0.26, and 3.02 %/year of the inventory of each corresponding radionuclide. These differences in discharge rates suggest that ^{134}Cs freshly derived from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident accumulated in the erodible surface soil and was a major sediment source on an annual timescale.

The seasonal changes in $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ activity ratios in the trap samples corresponded well to precipitation changes (Fig. 2c). The increase in $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ ratios might be attributable to erosion by heavy rainfall from the ridge part in which the ^{137}Cs was heavily accumulated, although under normal precipitation the erosion from that area is negligibly small (Fig. 1). The results suggest that precipitation intensity affects the source of eroded sediment and the transport processes in the catchment. The $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ activity ratio can be used as a sensitive indicator of precipitation changes in the lake sediment record.

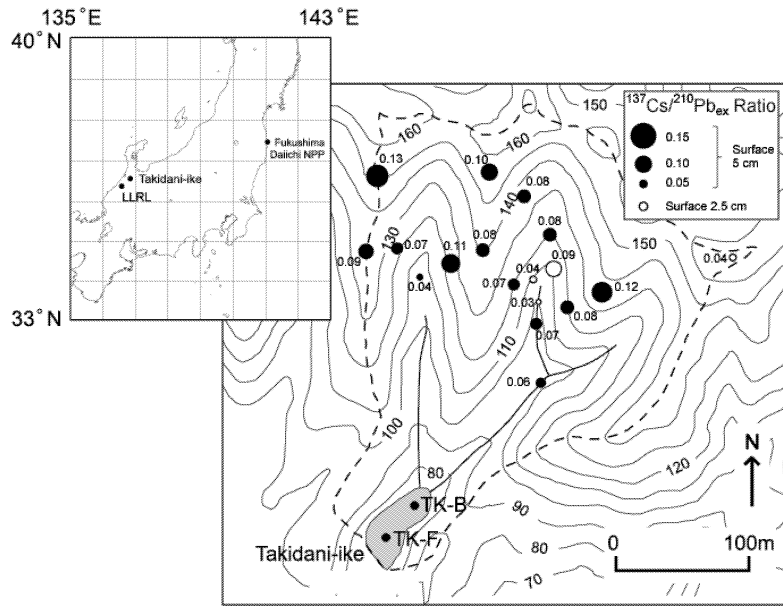


Fig. 1. Topographic map of Takidani-ike and the spatial distribution of $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ activity ratios in the surface soil. Closed and opened circles in the catchment indicate the activity ratios at depths of 5 cm and 2.5 cm, respectively.

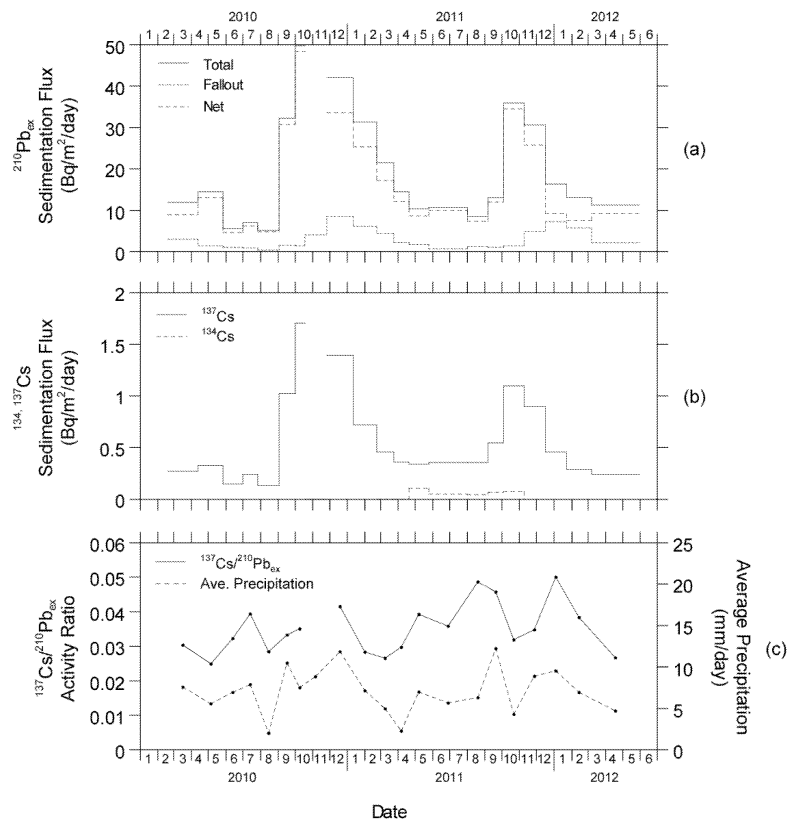


Fig. 2 (a) Temporal changes in the sedimentation fluxes of $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$. The solid, dotted, and dashed lines indicate the total sedimentation flux, fallout flux, and sedimentation flux of catchment-derived $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$. (b) Sedimentation fluxes of ^{137}Cs (solid line) and ^{134}Cs (dashed line). (c) Temporal changes in the $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ activity ratios of Takidani-ike sediment (solid line) and average precipitation for each sampling interval in Kanazawa City (dashed line).

Influence of deforestation on transport of particulate organic matter inferred from the geochemical properties of reservoir sediments in the Noto Peninsula, Japan

Shinya Ochiai¹, Seiya Nagao¹, Koyo Yonebayashi², Taijiro Fukuyama³, Tomoyo Suzuki¹,
Masayoshi Yamamoto¹, Kenji Kashiwaya⁴, Koji Nakamura⁴

¹LLRL, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

²Faculty of Bioresources and Environmental Sciences, Ishikawa Prefectural University

³Faculty of Agriculture, Shinshu University

⁴Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

This study aims to reveal the influence of artificial deforestation and the subsequent recovery process on particulate organic matter transport in the Noto Peninsula, Japan. Study site is a small reservoir Bishaguso-ike and its catchment area located in Nanao City (Fig. 1). Two sediment cores (Core B; 26 cm, and Core B11-3; 88 cm in length), soil, land plant, aquatic plant and plankton samples were collected from 2009 to 2011. Total organic carbon (TOC), total nitrogen (TN) contents, carbon and nitrogen isotope ratios ($\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$) were analyzed for these samples.

The ²¹⁰Pb dating of a sediment core showed that the sedimentation rate increased by about 2.7 times in 1975, corresponding to the deforestation and plantation in 1975–1982 (Fig. 2). The sedimentation rate and TOC sedimentation flux remained high until 1991, suggesting that the erosion rate of soil and organic matter increased during the 15 years after deforestation. This intensive erosion was induced by the exposure of bare soil, forest management practices to remove understory vegetation, and rainfall events. The fast decrease in sedimentation rate may be attributed to the end of management practices and/or reduced heavy rainfall at this time.

After the sedimentation rate had recovered to pre-deforestation levels, the sediment $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$ kept decreasing from the mid-1980s to the present. Based on the estimation of organic source contribution to the sediment, the decrease of $\delta^{13}\text{C}$ and $\delta^{15}\text{N}$ in the sediments reflects the fact that the contribution of soil and floating-leaved plants have decreased, but the contributions of plankton, land plants, and submerged aquatic plants have increased (Fig. 3). These temporal changes in organic matter contribution reflect the gradual recovery of vegetation, forest regrowth, the accumulation of forest floor organic matter, and the reduction of soil erodibility. These recovery processes progress relatively slowly, and the change in organic matter transport continued for at least 35 years after deforestation and plantation.

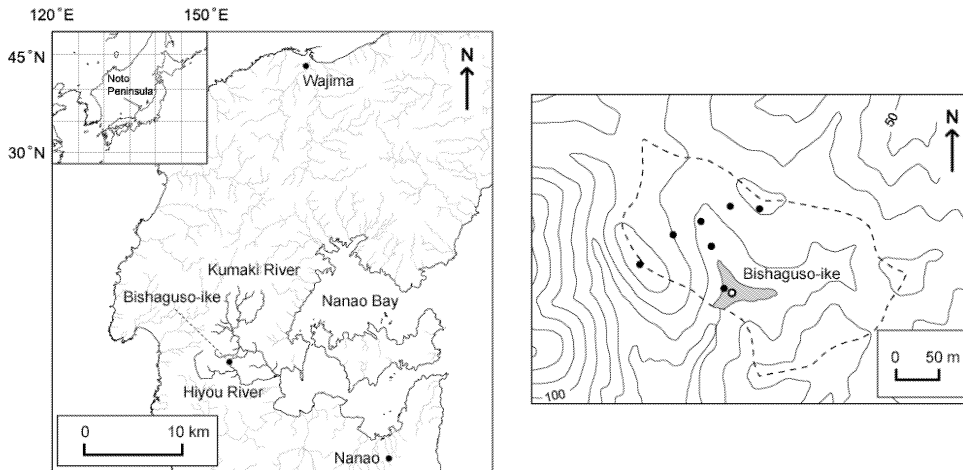


Fig. 1. Locations and topographic maps of the Bishaguso-ike reservoir. Dashed line indicates the catchment area of the reservoir. Open and closed circles show the sampling points of sediment cores and soil samples, respectively.

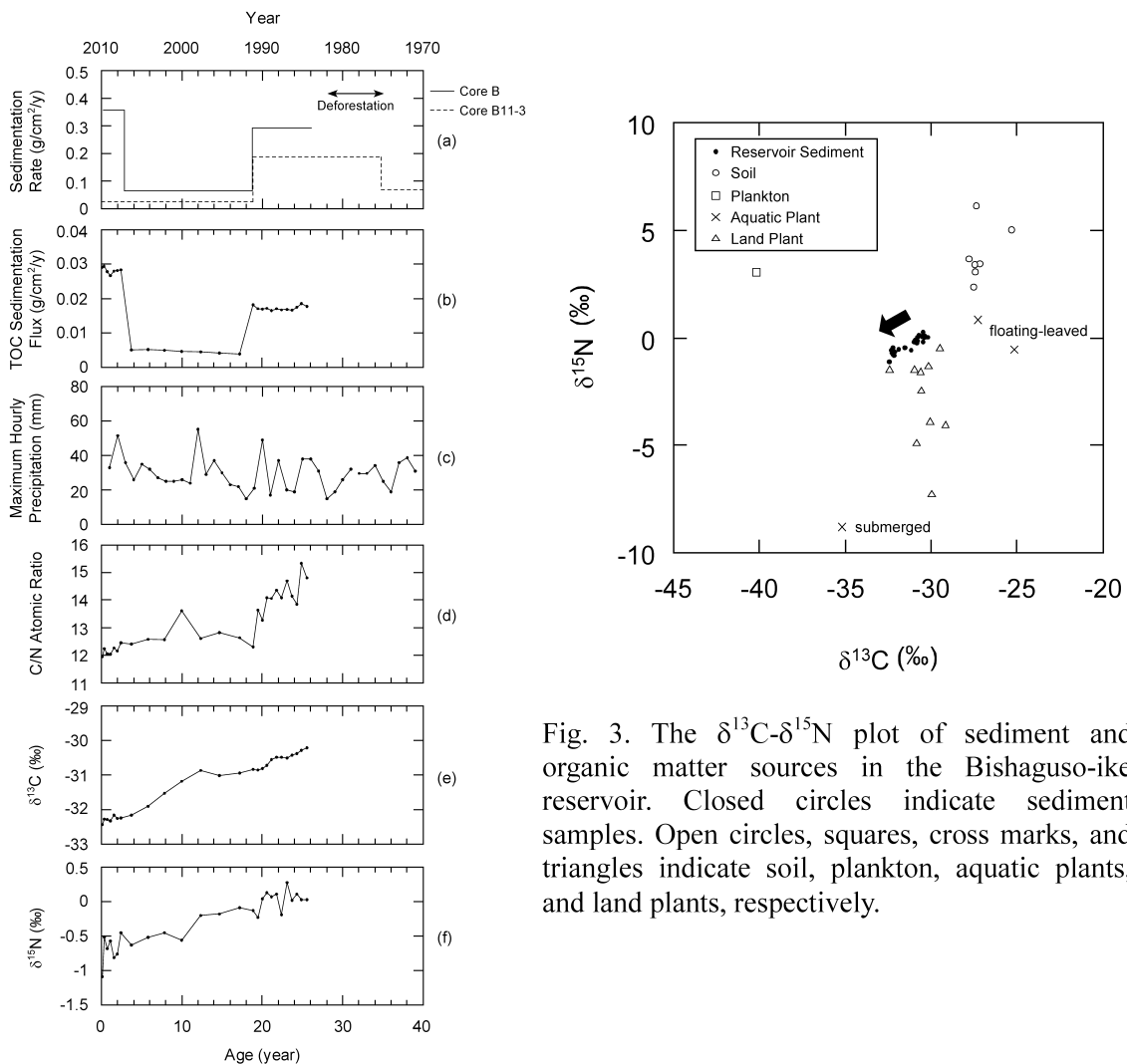


Fig. 2. Temporal changes in (a) sedimentation rate, (b) TOC sedimentation flux, (c) Maximum hourly precipitations for one year in Nanao City (present–1979) and Wajima City (1979–present). Temporal changes in (d) C/N atomic ratio, (e) $\delta^{13}\text{C}$, and (f) $\delta^{15}\text{N}$ of Core B.

Searching ^{242m}Am in environmental samples contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

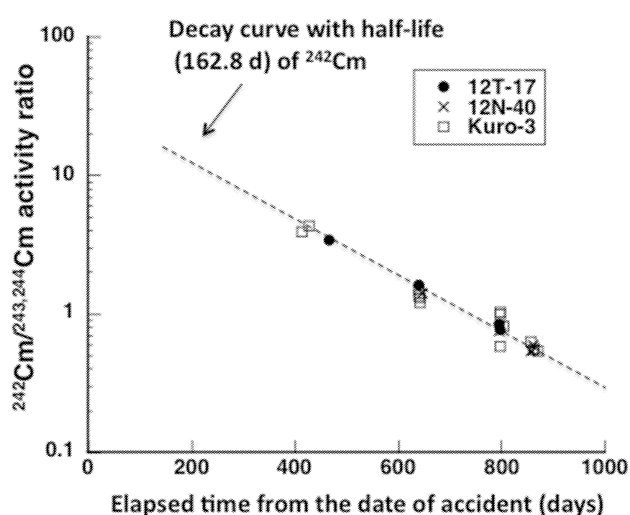
M. Yamamoto
Kanazawa Univ. LLRL

Previous alpha-spectrometric measurements of ^{241}Am and Cm isotopes using soil core samples (5-7 cm in diameter) contaminated by the FDNPP accident have shown that their detections were rather difficult or impossible. However, when dust samples containing soil et al. (black substances) from the roadsides and litter samples heavily contaminated by this accident were subjected to analysis, low levels of ^{241}Am , ^{242}Cm and $^{243,244}\text{Cm}$, including ^{238}Pu and $^{239,240}\text{Pu}$, were clearly detected by α -spectrometer after radiochemical separation.

For Cm, the following isotopes are important from the standpoints of scientific and potential radiological concern: ^{242}Cm ($T_{1/2} = 162.94$ d, α), ^{243}Cm ($T_{1/2} = 29.1$ y, α and EC) and ^{244}Cm ($T_{1/2} = 18.10$ y, α). It is well known that, in the use of nuclear materials with high fuel burn-up, Cm isotopes (mainly ^{242}Cm and ^{244}Cm) become the major contributors to total α -activity early in the lifetime and the release of these nuclides into the natural environment has the potential to cause local contamination and accumulation of its daughter Pu isotopes. The ^{243}Cm from the fuel reprocessing is estimated to be several orders of magnitude less abundant than either ^{242}Cm or ^{244}Cm . The ^{242}Cm is produced by the nuclear reaction of ^{241}Am (n, γ) ^{242}Am ($T_{1/2} = 16.02$ h, β^- and EC), 82.7% (β^-) that decays rapidly in ^{242}Cm . In addition, ^{242m}Am ($T_{1/2} = 141$ y, IT) can be produced by neutron capture reaction of ^{241}Am : about 10% of the neutron capture reactions yield ^{242m}Am and the rest revert to the ground state of ^{242}Am .

Until now, only a few environmental studies on searching ^{242m}Am , have been conducted in the local areas highly contaminated with transuranium elements such as the Irish Sea, which received radioactive waste discharges from the Sellafield nuclear fuel reprocessing facilities (Dutton and Lovett, 1977; Murray et al., 1979; Yamamoto et al. 1998) and, to a small extent, for global fallout (Holm and Persson, 1978). In the natural environment, its detection is rather difficult or impossible.

This time, to ascertain whether ^{242}Cm detected in the above mentioned environmental samples contaminated by the FDNPP accident is supported by its precursor ^{242m}Am , the activity ratios of $^{242}\text{Cm}/^{243,244}\text{Cm}$ have been measured at some intervals over a period of about 2.5 years. The results are shown in the upper Figure. The $^{242}\text{Cm}/^{243,244}\text{Cm}$ activity ratios decrease exponentially according to the half-life of ^{242}Cm , indicating the absence of ^{242}Cm supported by ^{242m}Am as of now.



平成25年度見学来訪・出張の記録

- 平成 25. 4.22-26、6.7-14 国立環境研究所 荒巻 能史 氏 研究打ち合わせ
4.25-26 (財) 海洋生物環境研究所 及川 真司 氏 研究打ち合わせ
5.4-10 山本教授「セミパラチンスク核実験場周辺住民のフォールアウトによる健康リスクに関する国際ワークショップ」出席のためリヨンへ出張
5.13 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
5.17 奈良教育大学 学長 長友恒人氏 研究打ち合わせ
5.30 気象研究所 青山 道夫 氏、環境テクノス 富田 正利氏 研究打ち合わせ
7.1 理工学域物質化学系3年生38名実習、尾小屋地下測定室見学
7.21-28 長尾教授「IAHS(国際水文科学会)-IAPSO(国際海洋物理科学協会)-IASPEI(国際地震及び地球内部物理学協会)合同シンポジウム」出席のためスウェーデンへ出張
7.31-8.3 長尾教授「ロシア科学アカデミー極東支部太平洋海洋研究所とのジョイントシンポジウム」出席のためロシアへ出張
9.22-27 「5th Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry '13」(於:金沢)開催
10.5-10 長尾教授「The 3rd International Meeting of Amur-Okhotsk Consortium 2013 in collaboration with the Conference on “Sustainable Nature Management in Coastal Areas」出席のためロシア、韓国へ出張
- 平成 26. 1.30-2.1 水産総合研究センター増養殖研究所 業務推進課長 皆川 昌幸氏研究打ち合わせ
1.8、3.13-14 岐阜大学 准教授 勝田 長貴 氏 全国共同利用研究のため来所
3.5-8 海洋研究開発機構むつ研究所 技術研究主任 川上 創 氏 全国共同利用研究の成果報告、尾小屋地下測定室見学
3.6-7 海洋研究開発機構 チームリーダー 本多牧生 氏 全国共同利用研究の成果報告、尾小屋地下測定室見学
3.10-11, 3.14-15 岐阜大学 准教授 大西 健夫氏、修士2年 ディアナ・ハプサリ 氏 全国共同利用研究のため来所
3.13-16 北海道大学 特任准教授 島村 道代 氏 全国共同利用研究のため来所
3.31 福島大学環境放射能研究所 教授 青山 道夫 氏 尾小屋地下測定室で測定打ち合わせ

*平成25年8月19日～26年3月31日 耐震改修工事のためいしかわクリエイトラボへ移転



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