

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 2019.4 ~ 2020.3



JAMSTEC 調査船「みらい」(共同研究用海水試料採取を依頼)

# 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	5
2-3. 研究費	13
2-4. 研究指導	14
3. 研究報告	
PEI-ガラスフィルターによる腐植物質-多環芳香族炭化水素会合態の膜分離	16
Spatial-temporal distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface water at West Nanao Bay, Noto Peninsula, Japan, during 2019–2020	18
Dynamics of radionuclides released from the Fukushima nuclear accident at river watershed environment	20
4. 記録	
令和元年度見学来訪・出張の記録	22

## 1. 構成員

### 職員

- ・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
- ・准教授 井上 睦夫 (i247811@staff.kanazawa-u.ac.jp)  
博士 (理学) 専攻 海洋化学
- ・准教授 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 落合 伸也 (sochiai@se.kanazawa-u.ac.jp)  
博士 (理学) 専攻 水文地形環境学・環境動態解析
- ・助教 松中 哲也 (matsunaka@se.kanazawa-u.ac.jp)  
博士 (理学) 専攻 地球化学
- ・博士研究員 岩井 久典 (h-iwai@se.kanazawa-u.ac.jp)  
博士 (工学) 専攻 環境化学
- ・研究員 西川 方敏
- ・事務補佐員 茶木 春奈 (chaki@staff.kanazawa-u.ac.jp)

### 学生

- ・博士前期課程 2年 坂口 航平
- ・博士前期課程 2年 佐々木 一樹
- ・博士前期課程 2年 藤田 充司
- ・博士前期課程 2年 Deddy Irawan Permana Putra
- ・博士前期課程 1年 竹原 亮成
- ・博士前期課程 1年 鶴岡 幹矢
- ・博士前期課程 1年 花木 祥太朗
- ・博士前期課程 1年 宮川 和大
- ・化学科 4年生 亀山 紘旭
- ・化学科 4年生 Rodrigo Jose Mundo Duenas

## 2. 研究活動

### 2-1. 研究概要

本低レベル放射能実験施設では環日本海域の大気—海洋—陸域を連結した統合環境において、有害化学物質等の動態・移行プロセスを検討する。同位体・放射性核種を活用した物質動態トレーサーを開発し、その支配要因を明らかにする。さらに、モデルシミュレーションと組み合わせて、環日本海域における有害化学物質等の総合的な物質動態解析と将来予測を実施する。

#### 2-1-1. 能登半島における統合環境研究

最近の環境汚染物質の中には大気・海洋・陸域環境を広範囲に移動して、ヒトの健康や生態系に影響を及ぼすものがある。このような多様な環境問題の原因を明らかにして有効な対策を講じるためには、従来の大気環境、海洋環境、陸域環境といった個別研究では限界がある。これらの枠を超えて総合する「統合環境」の概念を導入して取り組む必要がある。

本施設の所属する環日本海域環境研究センターでは、少子高齢化に関係した社会・自然環境問題が発生している能登半島において、大気—陸域—沿岸海洋を繋ぐ観測を珠洲市と七尾市旧中島町の熊木川—七尾西湾での観測を開始した。中島地域の熊木川では、平成 30 年度に引き続き毎月 1 回の観測を実施し、河川水中の懸濁粒子の起源を推定するため、大気フォールアウト由来の  $^7\text{Be}$ 、 $^{210}\text{Pb}$  と有機物の  $^{14}\text{C}$  と炭素・窒素安定同位体比を測定した。その結果、 $^7\text{Be}$ 、 $^{210}\text{Pb}$  の沈着から流出までの時間スケールを反映していると考えられる懸濁粒子中の  $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  比は、夏季に低く冬季に高い傾向が見られ、これらの核種の滞留時間は冬季には短いことが示唆された。有機物の  $\delta^{13}\text{C}$  は降雨の影響がある場合には平水時に比べて軽くなり、 $\Delta^{14}\text{C}$  はプラス側にシフトすることが明らかとなった。このことは、森林等の表層土壌侵食量の増加が反映した結果と考えられる。

珠洲市の貯水池（新池）では、昨年度に引き続きセディメントトラップによる沈降粒子採取と水盤による大気降下物採取を同時に行い、大気由来放射性核種（ $^{210}\text{Pb}$ 、 $^7\text{Be}$  等）を用いて貯水池—流域系における地表物質の侵食・運搬プロセスの解明を試みた。その結果、 $^7\text{Be}$  の堆積フラックスは降下フラックスとほぼ同程度の値を示し、流域からの寄与は少なく、湖面への直接沈着によるものが主と考えられた。一方、 $^{210}\text{Pb}$  の堆積フラックスは同期間の降下フラックスに比べて高い値を示し、流域からの流入および湖底での再懸濁・再堆積による寄与が大きいことが示唆された。このことから、系内での地表物質の流出の時間スケールは  $^7\text{Be}$  の半減期（53 日）より長く、 $^{210}\text{Pb}$  の半減期（22.3 年）より短いと推定された。

#### 1) 小松市木場潟における有機汚濁の原因解明研究

本研究では、2019 年 4 月から 2020 年 3 月までほぼ 1 ヶ月に 1 回の水質観測を 5 測点で実施し、2019 年 1 月から 12 月までの観測データを用いて湖内の有機物濃度の変動とその動態について流入河川の測定結果と比較検討した。その結果、木場潟の湖内生産に及ぼす集水域からの栄養塩と有機物の供給は限定的であると考えられる。降雨による湖水の希釈効果は、降水量 43.5mm では一時的に湖水水位は上昇するが、DOC 濃度、栄養塩濃度変動は観測されなかった。しかし、総降水量 143mm、観測前 5 時間から観測終了までの降水量 55.5mm の降雨時には湖水の pH が 9.06 から 6.30 へ低下し、降雨による希釈の効果が観測された。

#### 2) 日本海における水塊移動・物質循環研究

トリウムはその粒子吸着性の特徴から、海洋環境では粒子除去のトレーサーとして利用されてきた。本研究では、日本海沿岸を中心に空間的高分解能の  $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$  放射能比および  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  放射能比の

水平分布および季節変動を探ることにより、日本海表層における粒子吸着性核種のスキャベンジングの寄与を検討してきた。今年度は、さらに鉛直方向の分布を解析した。空間的な日本海を舞台とした粒子除去の海域による違いも明らかになりつつある。

有害有機物の1つである多環芳香族炭化水素 (Polycyclic aromatic hydrocarbons: PAHs) は、主として化石燃料やバイオマスの不完全燃焼および原油を起源にもち、発癌性と変異原性に関連した影響をおよぼす。日本海をはじめとする東アジア縁辺海は、豊かな漁場であることから、有害有機物の生態リスクに関する研究が必要不可欠である。これまで研究例が少なかった日本海を対象とし、溶存態と懸濁態のPAHsの濃度レベル、供給源、および供給経路を明らかにするため、2017-2019年の夏季(7-9月)に、表面海水のサンプリングを広域的に実施しPAHs分析を行った。日本海における表面海水中の全PAHs濃度(溶存態PAHs+懸濁態PAHs)は、2017-2018年の7-9月にかけて、 $1.3\text{--}6.0\text{ ng L}^{-1}$ の範囲(平均: $3.3\text{ ng L}^{-1}$ )にあり、日本沿岸からの4観測線において、それぞれ $34.5^{\circ}\text{N}$ 、 $36.0^{\circ}\text{N}$ 、 $36.5^{\circ}\text{N}$ 、 $39.1^{\circ}\text{N}$ 付近に極大をもつ緯度分布であった。また、日本海中央域から北東域における全PAHs濃度は高緯度で高くなる傾向を示した。一方、2019年7月における日本海的全PAHs濃度は、 $2.2\text{--}6.6\text{ ng L}^{-1}$ の範囲(平均: $4.3\text{ ng L}^{-1}$ )にあり、中央域から北東域において $42.9^{\circ}\text{N}$ と $38.5^{\circ}\text{N}$ 付近で高くなる緯度分布であった。対馬海流の流軸分布とPAHs水平分布の関連性を解析する。

## 2-1-2. 福島第一原発事故に絡む放射能汚染の調査・研究

### 1) 福島県内河川と海岸域での放射生セシウムの動態

福島県内の阿武隈川・夏井川・新田川、群馬県内の利根川上流では福島海洋科学館・群馬水試の協力の下に継続した調査を行った。河川水中の放射能濃度は平成28年度からほぼ横ばいで推移していた。米国ウッズホール海洋研究所と共同で福島県いわき市の四ツ倉海岸において、2019年7月9-10日に海岸砂試料を鉛直的に8測点で採取し、Ge半導体検出器で $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 濃度を測定した。その結果、海岸線よりも奥地で地下水が存在する深さで $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 濃度増加が確認された。また、海岸の微地形を考慮して $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 濃度が高い地下水深度の空間分布との関係を検討するため、ドーローンによる詳細地形観測を金沢大学藤生研究室の協力により実施した。現在、微地形データを解析中である。

### 2) $^{134}\text{Cs}$ 濃度からみた東シナ海東部の海水循環

長崎大学大学院水産・環境科学総合研究科の協力により、2019年6-12月の4度にわたる調査航海東シナ海東部で海水試料(特に九州沖合の鉛直採水)を採取した。極低バックグラウンド $\gamma$ 線測定法の適用により、低レベル $^{134}\text{Cs}$ 濃度の鉛直分布を明らかにした。その結果、2019年に東シナ海東部においては、水深200m付近で $^{134}\text{Cs}$ 濃度が、極大値を示すことが明らかになった。日本海の表層海水の $^{134}\text{Cs}$ 濃度が、東シナ海に比べ高い値を示すのは、この亜表層海水の寄与であると推測された。来年度はより広範囲の調査、研究を行う予定である。本成果は、日本海の海水の由来、例えば太平洋から日本海への流入メカニズムを探るうえで重要な知見をもたらす。

### 3) 福島原発付近の沿岸域における放射生セシウムの動態研究

本研究では、東京電力株式会社福島第一原子力発電所から放出された放射性物質について、河口・沿岸域における動態を把握するため、3地点で時系列式セジメントトラップを設置し、7期間(1期間は1日間)の沈降粒子を捕集し、懸濁物質の放射性セシウムのフラックス、有機物の同位体比等の分析を行った。それらの結果、河口沖に位置している水深10m程度の浅い沿岸域では、河川の影響を強く受けているためにmass fluxが大きく変動することが明らかとなった。本研究はJAEAからの受託研究として実施した。

## 2-2. 研究業績

### (1) 学術論文

- 1) Chen, J., Shen, H., Sasa, K., Lan, H., Masunaka, T., Matsumura, M., Takahashi, T., Hosoya, S., He, M., He, Y., Li, Z., Zhao, Z., Liu, M., Wei, S., Qi, M., Zhao, Q., Qin, X., Chen, X., Jiang, S., 2019, Radiocarbon Dating of Chinese Ancient Tea Trees, *Radiocarbon*, **61(6)**, 1741-1748.
- 2) Inoue, M., Yamashita, S., Takehara, R., Miki, S., Nagao, S. (2019) Low levels of Fukushima Dai-ichi NPP-derived radiocesium in marine products from coastal areas in the Sea of Japan (2012–2017). *Applied Radiation and Isotopes* **145**, 187-192.
- 3) Inoue, M., Takehara, R., Yamashita, S., Senjyu, T., Morita, T., Miki, S., Nagao, S. (2019) Convection of surface water in the northeastern Japan Sea: Implications from vertical profiles of <sup>134</sup>Cs concentrations. *Marine Chemistry* **214**, 103661.
- 4) Iwai, H., 2019, The use of a glass fiber filter functionalized with a double-layer PEI/HA coating for removing trace levels of copper from artificial seawater, *Analytical Sciences*, **35**, 783-787.
- 5) Iwai, H., 2019, Evaluation of the effect of humic acids on the reductive elution of Fe from Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in a saline, seawater-like medium, *ISIJ International*, **59**, 375-380.
- 6) Ishimaru, T., Tateda, Y., Tsumune, D., Aoyama, M., Hamajima, Y., Kasamatsu, N., Yamada, M., Yoshimura, T., Mizuno, T. and Kanda, J., 2019, Mechanisms of radiocesium depuration in *Sebastes cheni* derived by simulation analysis of measured <sup>137</sup>Cs concentrations off southern Fukushima 2014–2016, *Journal of Environmental Radioactivity*, **203**, 200-209.
- 7) Katsuta, N., Takano, M., Sano, N., Tani, Y., Ochiai, S., Naito, S., Murakami, T., Niwa, M., Kawakami, S., 2019, Quantitative  $\mu$ -XRF scanning spectroscopy of wet sediment based on the X-ray absorption and emission theories: its application to freshwater lake sedimentary sequences, *Sedimentology*, **66**, 2490-2510.
- 8) Matsunaka, T., Sasa, K., Takahashi, T., Matsumura, M., Satou, Y., Shen, H., Sueki, K., Matsuzaki, H., 2019, Pre- and post-accident <sup>14</sup>C activities in tree rings near the Fukushima Dai-Ichi Nuclear Power Plant, *Radiocarbon*, **61(6)**, 1633-1642.
- 9) Matsunaka, T., Sasa, K., Hosoya, S., Shen, H., Takahashi, T., Matsumura, M., Sueki, K., 2019, Radiocarbon measurement using a gas/solid hybrid ion source and an automated sample preparation system at the University of Tsukuba, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **455**, 204-208.
- 10) Matsunaka, T., Nagao, S., Inoue, M., Mundo, R., Tang, N., Suzuki, N., Ogiso, S., Hayakawa, K., 2020, Temporal variations of polycyclic aromatic hydrocarbons in the seawater at Tsukumo Bay, Noto Peninsula, Japan, during 2014–2018, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, **17(3)**, 873.
- 11) Matsumura, M., Sasa, K., Matsunaka, T., Sueki, K., Takahashi, T., Matsuzaki, H., 2020, Contamination assessment of chemical preparation rooms for I-129 AMS, *Analytical Science*, Available online.
- 12) Mundo, R., Matsunaka, T., Iwai, H., Ogiso, S., Suzuki, N., Tang, N., Hayakawa, K., Nagao, S., January 2020, Interannual survey on polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in seawater of North Nanao Bay, Ishikawa, Japan, from 2015 to 2018: Sources, pathways and ecological risk assessment, *International Journal of Environmental Research and Public Health*, 2020, **17(3)**, 904.
- 13) Nomura, R., Inoue, M. (2019) Comparison of different radionuclide dating models for estimating the ages of sediments from Lakes Shinji-ko and Nakaumi, Japan. *Laguna* **26**, 3-26.
- 14) Tsujimoto, A., Nomura, R., Arai, K., Nomaki, H., Inoue, M., Fujikura, K. (2020) Changes in deep-sea

benthic foraminiferal fauna caused by turbidites deposited after the 2011 Tohoku-oki earthquake. *Marine Geology*, **419**,106045.

- 15) Ochiai, S., Tokunari, T., Suzuki, T., Nagao, S., 2020, Transport processes of suspended and riverbed sediments inferred from atmospheric radionuclides in the Kumaki River, *Transactions, Japanese Geomorphological Union*, accepted.
- 16) Shen, H., Sasa, K., Meng, Q., Matsumura, M., Masunaka, T., Hosoya, S., Takahashi, T., Honda, M., Sueki, K., He, M., Huang, B., Zhao, Q., Dong, K., Guan, Y., Ruan, X., Sha, J., 2019, Exposure Age Dating of Chinese Tiankengs by  $^{36}\text{Cl}$ -AMS, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **459**, 29-35.
- 17) Shen, H., Sasa, K., Meng, Q., Matsumura, M., Masunaka, T., Hosoya, S., Takahashi, T., Honda, M., Sueki, K., He, M., Huang, B., Li, Z., Zhao, Z., Zhao, Q., Dong, K., Guan, Y., Ruan, X., Jiang, S., 2019, Sample preparation method of  $^{36}\text{Cl}$  for Chinese TianKeng, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, **458**, 126-129.

## (2) 著書・総説・資料・報告書

- 1) 井上睦夫 (2019) 海洋調査航海における放射能測定のための海水採取法. *ぶんせき 4* (ミニファイル), 154-155.
- 2) Matsunaka, T. and Sasa, K., 2019, Distribution and migration of radioiodine in terrestrial environment, *Environmental Contamination from the Fukushima Nuclear Disaster* (Eds. Nakajima, T., Ohara, T., Uematsu, M., Onda, Y.), Cambridge University Press, Chapter 6.4, 186-191.
- 3) Matsunaka, T., Nagao, S., Inoue, M., Ochiai, S., Morita, T., Miki, S., Honda, N., Aramaki, T., Kudo, I., Takikawa, T., Sueki, K., Takahashi, T., Sasa, K., 2019, Anthropogenic iodine-129 in the Japan Sea and Okhotsk Sea during 2017–2018, *UTTAC ANNUAL REPORT 2018*, UTTAC-88, 25-26.
- 4) 奈良郁子, 松中哲也, 渡邊隆広, 山田和芳, 安田喜憲, 小川原湖堆積物の放射年代測定結果と白頭山噴火年代との比較, 第 21 回 AMS シンポジウム報告集, 印刷中.
- 5) Sasa, K., Takahashi, T., Takano, K., Ochiai, Y., Ota, Y., Matsumura, M., Matsunaka, T., Sakaguchi, A., Sueki, K., 2019, Performance report of the Tsukuba 6 MV multi-nuclide AMS system in fiscal 2018, *UTTAC ANNUAL REPORT 2018*, UTTAC-88,13-14.
- 6) Nagao, S., 2019, Behaviour of Radiocaesium from Rivers to the Coastal Marine Environment, *Environmental Contamination from the Fukushima Nuclear Disaster* (Eds. Nakajima, T., Ohara, T., Uematsu, M., Onda, Y.), Cambridge Press, Chapter 5.3, 131-134.
- 7) 渡邊彰・藤嶽暢英・長尾誠也編, 腐植物質ハンドブック第 2 版, 農文協, 東京, p.194

## (3) 学会発表

- 1) Nagao, S., Profile of Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Japan. *Workshop for source identification and transport processes in river systems*, Taipei, Taiwan (2019.05.13) .
- 2) Nagao, S., Tahara, R., Goto, A., Hasegawa, T., Ochiai, S., Downward variation of organic carbon isotopes in suspended solids from a small river with forest and paddy field at Noto Peninsula, Japan. *2019 Taiwan Geosciences Assembly*, Taipei, Taiwan (2019.05.16) .

- 3) Nagao, S., Miyasaka, S., Watanabe, S., Suzuki, K., Ochiai, S., Study on deposition of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  from atmosphere to freshwater environment using a mountainous lake, Lake Haruna in Gunma Prefecture, Japan. JpGU, Makuhari (2019.5.26).
- 4) Nagao, S., Tahara, R., Ochiai, S., Goto, A., Hasegawa, T., Study on transport of particulate organic matter in a small river with forest and paddy field by using carbon isotopes ( $\delta^{13}\text{C}$  and  $\Delta^{14}\text{C}$ ). JpGU, Makuhari (2019.5.26).
- 5) Putra, D. I. P., Ochiai, S., Tomihara, S., Watanabe, S., Suzuki, K., Nagao, S., Migration behavior of radiocesium derived from Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident in NatsuiRiver and Tone River. JpGU, Makuhari (2019.5.27).
- 6) 長尾誠也, 河川流域—海洋沿岸域を流域圏とした物質動態研究, 共同研究集会「変化する環オホーツク陸域・海域環境と今後の展開」北海道大学 (2019.7.26).
- 7) Nagao, S., Tahara, R., Ochiai, S., Goto, A., Hasegawa, T., Transport of particulate organic matter in Kumaki River by rain event of Typhoon Talim. *Asia Oceania Geosciences Society 16th Annual Meeting*, Singapore (2019.7.29) .
- 8) Nagao, S., Tahara, R., Goto, A., Hasegawa, T., Ochiai, S., Temporal variation of particulate organic matter concentration and carbon isotope composition ( $\delta^{13}\text{C}$  and  $\Delta^{14}\text{C}$ ) in a small river with forest and paddy filed, Kumaki River in Japan. *The 16th East Eurasia International Workshop Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Eurasia*, Ulaanbaatar, Mongolia (2019.9.17) .
- 9) Bat-Erdene Ariunsanaa, Nagao, S., Short-term dynamics of dissolved major and trace elements in Lake Kibagata. *The 16th East Eurasia International Workshop Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Eurasia*, Ulaanbaatar, Mongolia (2019.9.17) .
- 10) 長尾誠也・宮坂将平・渡辺峻・鈴木究真・落合伸也, 山岳湖沼の赤城小沼における放射性セシウムの堆積解析, 2019年日本放射化学会, いわき (2019.9.24-26).
- 11) 佐々木一樹・長尾誠也・落合伸也・伊佐田智規・入野智久,  $^{210}\text{Pb}$  を用いた厚岸湾における堆積場と粒子動態の解析, 2019年日本放射化学会, いわき (2019.9.24-26).
- 12) Putra, D.I.P., Tomihara, S., Buessler, K. O., Nagao, S., Vertical profiles of radiocesium in beach sand samples from Yotsukura, Fukushima Prefecture after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. 2019年日本放射化学会, いわき (2019.9.24-26).
- 13) 藤田充司・長尾誠也・落合伸也・杉本亮・芳村毅・Matthew A. Charette・Paul B. Henderso,  $\text{Rn-222}$  を用いた能登半島七尾西湾での海底湧水流出解析. 2019年日本放射化学会, いわき (2019.9.24-26).
- 14) 長尾誠也・落合伸也・渡辺峻・鈴木究真, 能登半島・利根川上流河川水における放射性セシウム濃度の時系列変動. *日本陸水学会 第84回大会*, 金沢市 (2019.9.28)
- 15) 長尾誠也・落合伸也, 七尾西湾の環境. 市民講演会「少子高齢化が及ぼす河川・沿岸域環境の変化と保全対策」, 金沢市 (2019.11.09).
- 16) Nagao, S., Research activities of Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Japan. KU-PKU Joint Workshop on Environmental Issues, Pekin University (2020.1.7).
- 17) Nagao, S., Introduction of the international symposium "Integrated Environmental Studies". Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan (2019.12.17-18).
- 18) Nagao, S., Overview of the project "Spatial distribution of trans-boundary pollution and related environmental phenomena in marginal sea area of western Pacific Ocean". Chosen International Symposium



- on Transboundary Pollution at North-South Transect at Marginal Sea in western Pacific Ocean, Kanazawa, Japan (2019.12.18-19).
- 19) Nagao, S., Importance of global research network on atmosphere-marine linkage studies from north to south transect. Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan (2019.12.18-19).
  - 20) Bat-Erdene Ariunsanaa, Nagao, S., Short-term dynamics of dissolved major and trace elements in Lake Kibagata. Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan (2019.12.17-18).
  - 21) 井上睦夫・竹原亮成・花木祥太郎・亀山紘旭・長尾誠也, 西岡純 2018年のセシウムとラジウムの分布からみたベーリング海への福島原発由来セシウムの流入. 西部ベーリング海におけるロシア船観測航海成果とりまとめワークショップ, 北海道大学 (2019.10.18).
  - 22) Inoue, M., Seawater circulation in the Sea of Japan: Implications from radiocesium. Joint International Symposium on Sustainable Development and Environmental issues, Kanazawa, Japan (2019.12.17).
  - 23) 岩井久典, Rodrigo Jose Mundo, 松中 哲也, 長尾 誠也, PEI-ガラスフィルターによる腐植物質と会合した多環芳香族炭化水素の膜分離. 2019年日本腐植物質学会, 稚内 (2019.9.18-19).
  - 24) Iwai, H., Mundo, R., Matsunaka, T., Nagao, S., Partitioning of free- and humic substances bound-polycyclic aromatic hydrocarbons using a glass fiber filter coated with polyethylenimine. *AGU Fall Meeting 2019*, San Francisco, USA (2019.12.9-13).
  - 25) Iwai, H., Mundo, R., Matsunaka, T., Nagao, S., Separation of polycyclic aromatic hydrocarbon associated with humic substances. Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, Japan (2019.12.17-18).
  - 26) Matsunaka, T., Spatial distribution of seawater polycyclic aromatic hydrocarbon concentrations in Japan Sea Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies, Kanazawa, (2019.12.17-18).
  - 27) 松中哲也, 後藤章夫, 渡邊隆広, 土屋範芳, 平野伸夫, 笹公和, 蔵王山における火山活動と熱水系ヨウ素同位体比の変動, 日本陸水学会第84回大会金沢大会 (2019.9.27-30).
  - 28) 松中哲也, 笹公和, 高橋努, 松村万寿美, 末木啓介, 松崎浩之, 樹木年輪に記録された福島第一原子力発電所事故由来 C-14 の分布, 日本放射化学会第63回討論会(2019), いわき (2019.9.24-26).
  - 29) 松中哲也, 笹公和, 松村万寿美, 平尾茂一, 脇山義史, 末木啓介, 樹木年輪に記録された原発事故由来 C-14 の分布, 放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点・共同研究2019年度年次報告会, 福島 (2020.3.11).
  - 30) Mundo, R., Matsunaka, T., Iwai, H., Nagao, S., Spatial variations of polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) in West Nanao Bay, Noto Peninsula, 2019年度北陸地区講演会と研究発表会, 金沢 (2019.11.29).
  - 31) Mundo, R., Matsunaka, T., Iwai, H., Nagao, S., Sources and pathways of polycyclic aromatic hydrocarbons transported to West Nanao Bay, Noto peninsula, Japan. *Joint Usage/Joint Research Symposium on Integrated Environmental Studies*, Kanazawa, Japan (2019.12.17-18).
  - 32) Mundo, R., Matsunaka, T., Iwai, H., Nagao, S., Seasonal study of seawater PAHs in Nanao Bay in 2019, Understanding Present Environmental Situation of Marginal Sea, Kanazawa, (2019.12.16).
  - 33) 奈良郁子, 松中哲也, 山崎慎一, 土屋範芳, 渡邊隆広, 山田和芳, 安田喜憲, 高精度年代測定に基づく小川原湖(青森県)の汽水湖化時期の特定, 日本陸水学会第84回大会金沢大会 (2019.9.27-30).

- 34) Ochiai, S., Tsuruoka, M., Tahara, R., Matsunaka, T., Matsuki, A., Nagao, S., Erosion and transport processes of earth surface materials in river catchment systems inferred from atmospheric radionuclides. *Workshop for source identification and transport processes in river systems*, Taipei, Taiwan (2019.5.13) .
- 35) Ochiai, S., Suzuki, T., Nagao, S., Yonebayashi, K., Goto, A., Hasegawa, T., Nakamura, K., Natural and anthropogenic impacts on the transport of particulate organic matter inferred from reservoir sediments in the Noto Peninsula, Japan. *2019 Taiwan Geosciences Assembly*, Taipei, Taiwan (2019.5.16) .
- 36) Ochiai, S., Tahara, R., Matsunaka, T., Nagao, S., Transport processes of suspended solids in the Kumaki River inferred from atmospheric radionuclides. *Japan Geoscience Union Meeting 2019*, Chiba, Japan (2019.5.29).
- 37) Ochiai, S., Lin, J.C., Kashiwaya, K., Typhoon-induced soil erosion inferred from reservoir sediment observation in a mud rock area in southern Taiwan. *Asia Oceania Geosciences Society 16th Annual Meeting*, Singapore (2019.7.29).
- 38) Ochiai, S., Tahara, R., Matsunaka, T., Nagao, S., Discharge behavior of suspended solids in the kumaki river based on atmospheric radionuclides. *The 16th East Eurasia International Workshop Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Eurasia*, Ulaanbaatar, Mongolia (2019.9.17).
- 39) 落合伸也・田原龍之介・松中哲也・長尾誠也, 能登半島・熊木川流域での大気由来放射性核種の流出挙動. *日本陸水学会 第84回大会*, 金沢市 (2019.9.28)
- 40) 落合伸也・長尾誠也・林俊全・柏谷健二, 堆積物の放射性核種・物理特性から見た流域の土砂流出イベント. *汽水域研究会 2019年(第11回)北潟湖大会*, あわら市 (2019.11.03)
- 41) 落合伸也, 熊木川における物質輸送. 市民講演会「少子高齢化が及ぼす河川・沿岸域環境の変化と保全対策」, 金沢市 (2019.11.09).
- 42) 坂口航平, 長尾誠也, 松中哲也, 福士圭介, 勝見尚也, 木場潟における有機物濃度と炭素同位体比変動, *日本陸水学会第84回大会金沢大会* (2019.9.27-30).
- 43) Sasa, K., Takahashi, T., Matsumura, M., Ochiai, Y., Matsunaka, T., Sakaguchi, A., Shen, H., Sueki, K., Progress of Ultrasensitive Detection Techniques for the 6MV multi-nuclide AMS System at the University of Tsukuba. *The 8th East Asia Accelerator Mass Spectrometry Symposium*, Nagoya, Japan (2019.12.2-6).
- 44) 亀山紘旭・井上睦夫・花木祥太朗・諸角季生・城谷勇陸・竹原亮成・森田貴己・三木志津帆・本多直人・長尾誠也,  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  比および  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  比からみた日本列島をとりまく三縁海における物質循環. 2019年日本放射化学会, いわき (2019.9.24-26).
- 45) 竹原亮成・井上睦夫・花木祥太朗・松中哲也・森田貴己・三木志津帆・滝川哲太郎・葛西広海・谷内由貴子・長尾誠也, 2018-2019年の日本列島周辺における  $^{134}\text{Cs}$  の空間分布. 2019年日本放射化学会, いわき (2019.9.24-26).
- 46) 花木 祥太朗・井上 睦夫・諸角季生・城谷勇陸・伊藤 雅・本多直人・小藤久毅・藤田充司・鈴木信雄・小木曾正造・広橋教貴・安東宏徳・佐藤勇介・森脇和也・長尾誠也,  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比からみた対馬暖流三分枝の循環. 2019年日本放射化学会, いわき (2019.9.24-26).
- 47) Tsuruoka, M., Ochiai, S., Matsuki, A., Nagao, S., Erosion and transport processes of earth surface materials in a reservoir-catchment system inferred from atmospheric radionuclides  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$ . *Japan Geoscience Union Meeting 2019*, Chiba, Japan (2019.5.29)
- 48) Tsuruoka, M., Ochiai, S., Matsuki, A., Nagao, S., Dynamics of earth surface materials in a reservoir-catchment system inferred from  $^7\text{Be}$  and  $^{210}\text{Pb}$ . *The 16th East Eurasia International Workshop Present Earth*

*Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Eurasia*, Ulaanbaatar, Mongolia (2019.9.17)

- 49) 横山大輝, 笹公和, 松中哲也, 高橋努, 松村万寿美, 高野健太, 落合悠太, 長谷川涼, 太田祐貴, 末木啓介, 福島県の避難指示区域における I-129 の分布と Cs-137 との関係性, 日本放射化学会第 63 回討論会(2019), いわき (2019.9.24-26).

#### (4) 研究交流

##### ● 共同研究

- (1) 井上睦夫: 放射性核種からみた日本海の物質循環, 日本海区水産研究所 (本多直人)
- (2) 松中哲也: 樹木年輪に記録された原発事故由来 C-14 の分布, 筑波大学
- (3) 松中哲也: 出水時の河川水の Cs-137 および I-129 濃度の時系列変化, 福島大学
- (4) 松中哲也: 蔵王火山の活動の熱的・地球化学的モニタリング, 東北大学
- (5) 長尾誠也: 機能強化事業支援経費: 共通政策課題分, 令和元年度, 東アジアの大気・陸域・海域の国際統合環境共同研究拠点の充実, 低レベル放射能実験施設, 1,000 千円.
- (6) 長尾誠也, 井上睦夫: 日本近海における低レベルセシウムの汚染調査および汚染物質循環の解析, 中央水産研究所
- (7) 落合伸也: ユーラシア東部地域の湖沼堆積物を用いた長期古環境変動解析, 岐阜大学 (勝田長貴)
- (8) 落合伸也: 堆積物の放射性核種・磁化特性を用いた洪水イベント履歴の復元, 新潟大学 (卜部厚志), 富山大学 (酒井英男), 立山カルデラ砂防博物館 (丹保俊哉・飯田 肇)

##### ● 共同研究・共同利用 (文科省)

- 1) 長尾誠也: 環日本海域沿岸域における海底湧水の実態把握 (国際・重点研究). ロシア科学アカデミー極東支部 (A. Charkin)
- 2) 長尾誠也: 日本海から採取した海底堆積物コア - 環境 DNA を用いた過去生態系の推定 (一般拠点研究). 九州大学 (准教授 島崎洋平)
- 3) 長尾誠也: 環日本海域海底堆積物における重金属の分布状況 (国際一般研究). ロシア極東連邦大学 (Olga V. Nesterova)
- 4) 長尾誠也, 海底に堆積するマイクロプラスチックの分布調査とその応用に関する研究 (一般研究). 山口大学 (准教授 川村喜一郎)
- 5) 長尾誠也: 農用地におけるマイクロプラスチックの分析方法の確立と動態把握 (一般研究). 石川県立大学 (講師 勝見尚也)
- 6) 長尾誠也: 二枚貝の貝殻を用いた日本海沿岸の放射性ストロンチウムモニタリング法の検討 (一般研究). 近畿大学 (講師 荻部甚一)
- 7) 長尾誠也: 瀬戸内海の海底堆積物中多環芳香族炭化水素 (PAH) の分布 (若手一般研究). 広島大学 (博士後期課程 1 年 辻 浩明)
- 8) 長尾誠也: 日本海における越境汚染の実態把握 (研究集会). ロシア科学アカデミー極東支部 (V. B. Lobanov)
- 9) 長尾誠也: 陸起源物質が沿岸海洋に及ぼす影響評価 (研究集会). 北海道大学 (准教授 白岩孝行)
- 10) 井上睦夫: 複数の放射性核種を利用した日本海—オークランド(ニュージーランド) 沿岸域の物質循環の比較および解析 (一般国際研究). オークランド工科大学 (Stephen Archer)

- 11) 井上睦夫：日本周辺海域における東電福島第一原発事故由来の粒子態放射性セシウムの沈降実態（一般研究）．水産研究・教育機構中央水産研究所（主任研究員 帰山秀樹）
- 12) 井上睦夫：日本の東西沿岸域における東電福島第一原発由来放射性 Cs の動態把握（一般研究）．海洋生物環境研究所（主査研究員 高田兵衛）
- 13) 井上睦夫：セシウム 137 を用いた日本海深層水の循環に関する研究（一般研究）．海洋研究開発機構（主任技術研究員 熊本雄一郎）
- 14) 井上睦夫：ネオジウムおよびラジウム同位体をマルチトレーサーとした日本海における物質循環の解明に関する研究（一般研究）．弘前大学（助教 田副博文）
- 15) 落合伸也：台湾と日本の山地小河川における地表水と地下水の相互作用と溶存有機物の流出挙動（国際一般研究）．国立台湾大学（教授 黄誌川）
- 16) 落合伸也：花粉分析と磁化測定に基づく過去の森林管理が山地から水域への土砂流出に及ぼした影響評価（一般研究）．森林研究・整備機構（志知幸治）
- 17) 松中哲也：Pb-210 と C-14 を用いた湖底堆積物の高精度年代モデル構築とモンスーン変動復元（一般研究）．中京大学（非常勤講師 奈良郁子）
- 18) 松中哲也：日本海と太平洋における人為起源 129I と 137Cs および 36Cl の降下量変動評価と海洋循環トレーサーへの適応（一般研究）．筑波大学（准教授 笹公和）

- 海外渡航

- 1) 長尾誠也・落合伸也：台北（台湾），「2019 Taiwan Geosciences Assembly」出席，研究打ち合わせ（2019. 5.12-5.17）
- 2) 長尾誠也：ロシア（ウラジオストク），「26th International Conference (PACON-2019)」出席（2019. 7.15-7.18）
- 3) 長尾誠也・落合伸也：シンガポール，「16th Annual Meeting Asia Oceania Geosciences Society」出席（2019. 7.28-8.2）
- 4) 長尾誠也：ロシア（ウラジオストク），「e-ASIA JRP Conference on Climate Change and Nature Disasters」出席（2019. 8.12-8.15）
- 5) 長尾誠也・落合伸也：モンゴル（ウランバートル），「The 16th East Eurasia International Workshop」出席（2019. 9.15-9.18）
- 6) 長尾誠也・井上睦夫・松中哲也：台北（台湾），台湾沖海洋調査打ち合わせ（2019. 11.3-11.6）
- 7) 長尾誠也・井上睦夫：オークランド（ニュージーランド），大気海洋観測に関する共同研究打ち合わせ（2019. 11.27-11.30）
- 8) 長尾誠也：北京（中国），研究集会「東アジア地域の環境保全における中日協力のあり方」出席（2020. 1.6-1.9）
- 9) 井上睦夫：ロシア（ウラジオストク），海水の放射性核種の分布調査に関する共同研究の打ち合わせ，海水試料からの放射性核種の分離処理（2019. 9.7-9.12）
- 10) 井上睦夫：台北（台湾），台湾沖海洋調査試料の化学処理（2019. 12.2-12.7）
- 11) 岩井久典：サンフランシスコ（アメリカ），「AGU fall meeting2019」出席（2019. 12.8-12.15）

- 訪問外国人研究者

- 1) Tung-Yuan Ho, Research Fellow, 台湾中央研究院（台北），海水試料採取調査に関する研究打合せ，

長尾誠也・井上睦夫 (2019. 6.27)

- 2) モンゴル国立大学 (モンゴル), Yale-NUS College (シンガポール) 14名 (学生), サマースクール, 落合伸也 (2019. 7.7)
- 3) Jr-Chuan Huang, Professor, National Taiwan University (台湾), 全国共同利用研究に関する調査・実験・研究打ち合わせ, 長尾誠也・落合伸也 (2019. 8.7-8.9)
- 4) Chen Pei-Hao, Student, National Taiwan University (台湾), 全国共同利用研究に関する調査・実験・研究打ち合わせ, 長尾誠也・落合伸也 (2019. 8.7-8.9)
- 5) Huang Wei-Lun, Student, National Taiwan University (台湾), 全国共同利用研究に関する調査・実験・研究打ち合わせ, 長尾誠也・落合伸也 (2019. 8.7-8.9)
- 6) Aleksandr Charkin, Researcher, V.I.II'ichev Pacific Oceanological Institute, Far Eastern Branch, Russian Academy of Sciences (ロシア), 全国共同利用研究 研究打ち合わせ, 調査, 試料前処理, 長尾誠也 (2019. 8.27-8.30)
- 7) Pavel Semkin, Researcher, V.I.II'ichev Pacific Oceanological Institute, Far Eastern Branch, Russian Academy of Sciences (ロシア), 全国共同利用研究 研究打ち合わせ, 調査, 試料前処理, 長尾誠也 (2019. 8.27-8.30)
- 8) Jr-Chuan Huang, Professor, National Taiwan University (台湾), 全国共同利用研究 打ち合わせ, 落合伸也 (2019. 12.20)

#### (5) 各種活動

##### ● 学会活動

- 1) 井上睦夫：日本放射化学会「放射化学」編集委員 2019-現在
- 2) 長尾誠也：日本腐植物質学会理事, 2015-現在
- 3) 長尾誠也：日本腐植物質学会編集委員, 2011-現在
- 4) 長尾誠也：国際腐植物質学会日本支部長, 2012-現在
- 5) 長尾誠也：国際腐植物質学会選挙委員会委員長

##### ● 社会活動

- 1) 井上睦夫：石川県 2018-現在
- 2) 長尾誠也：小松高校 SSH 運営委員会委員 2011-現在
- 3) 長尾誠也：環境技術研究所排出放射能環境動態調査検討委員会委員, 2013-現在
- 4) 長尾誠也：海洋生物環境研究所データ解析専門部会委員, 2014-現在
- 5) 長尾誠也：海洋生物環境研究所海洋放射能検討委員会委員
- 6) 長尾誠也：大学連携ネットワーク連携協力推進協議会委員, 2016-現在
- 7) 長尾誠也：弘前大学被ばく医療総合研究所戦略会議委員
- 8) 長尾誠也：東京大学大気海洋研究所協議会委員
- 9) 長尾誠也：島根大学海洋科学部門起き臨海実験書共同利用運営委員会委員
- 10) 長尾誠也：筑波大学放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同拠点運営委員会委員
- 11) 長尾誠也：新潟大学佐渡自然共生科学センター アドバイザリーボード委員

##### ● 招待講演および特別講演, 依頼講演

- 1) 井上睦夫：基調講演「 $^{134}\text{Cs}$  からみた日本海と福島原発事故」原子力施設等放射能調査機関連絡協議会年会，敦賀市 (2019.7.11).
- 2) 井上睦夫：基調講演「 $\text{Cs-134}$  からみた日本海の物質循環」環境放射能測定技術会議，敦賀市 (2020.2.26).
- 3) Nagao, S., Terasaki, S., Ochiai, S., Fukushi, K., Asami, M., Temporal variation of radiocesium concentration in surface marine sediments at coastal area off Fukushima Prefecture, Japan. 26th International Conference on Marine Science and Technology for Sustainable Development, Vladivostok (2019.7.16-19). 招待講演
- 4) Nagao, S., Ochiai, S., Tomihara, S., Suzuki, K., Effect of heavy rain on transport of suspended solids in river systems. e-Asia JRP Conference on Climate Change and Natural Disasters, Vladivostok (2019.9.13-14). 招待講演
- 5) Nagao, S., Behavior and characterization of humic substances in Japan, IWA Specialist Conference on Natural Organic Matter in Water 2019, The International Water Association, Tokyo (2019.10.7-9). 招待講演

### 2-3. 研究費

#### (1) 科学研究費等

- 1) 長尾誠也，科学研究費（基金）：基盤研究 C，赤城大沼における放射性セシウムの特異性分析による動態解明，分担者，平成 30 年度～令和 2 年度，30 千円。
- 2) 長尾誠也，科学研究費（基金）：基盤研究 C，溶存性および吸着性放射性核種を利用した日本列島近海の汚染物質循環の解析，分担者，平成 30 年度～令和 2 年度，100 千円。
- 3) 井上睦夫，科学研究費（基金）：基盤研究 C，溶存性および吸着性放射性核種を利用した日本列島近海の汚染物質循環の解析，代表者，平成 30 年度～令和 2 年度，1,100 千円。
- 4) 落合伸也，科学研究費（基金）：基盤研究 C，堆積物の放射性核種・磁化特性による河川流域の土砂流出イベント履歴復元手法の開発，代表者，平成 31 年度～令和 3 年度，1,100 千円。
- 5) 岩井久典，科学研究費（基金）：若手研究，褐藻に対する鉄の細胞壁吸着性及び生物利用性への腐植物質の寄与，代表者，平成 30 年度～令和 2 年度，1,203 千円。

#### (2) 研究助成金等

- 1) 長尾誠也，研究助成：住友財団，環境研究助成・課題研究，少子高齢化に対応した流域管理の提言と実践，平成 29 年度～令和元年 11 月 令和元年度 2,352 千円

#### (3) 共同研究費

- 1) 濱島靖典，共同研究：㈱環境総合テクノス，微弱放射能測定のための試薬開発と遮蔽体材料開発および環境試料測定，平成 29 年～31 年度，600 千円。

#### (4) 受託研究費

- 1) 長尾誠也，受託研究：国立研究開発法人日本原子力研究開発機構，福島県沿岸海域における放射性セシウムの移動挙動の解明を目的とした係留調査試料の分析及び動態研究，令和元年度，4,119 千円。
- 2) 長尾誠也，受託研究：小松市，木場潟の水質改善調査，令和元年度，1,785 千円。

- 3) 濱島靖典, 受託研究: (株)環境総合テクノス, 極微量放射能の分布に関する研究, 令和元年度, 1,915 千円.

(5) 奨学寄附金

- 1) 岩井久典, 造船学術研究推進機構, 327,541 円.

2-4. 研究指導

(1) 修士論文

- 1) 坂口航平, 木場潟における有機汚濁の原因解明研究. 自然科学研究科物質化学専攻, 修士(工学), 長尾誠也
- 2) 佐々木一樹, 厚岸湖・厚岸湾における陸起源懸濁粒子の堆積環境の解析. 自然科学研究科物質化学専攻, 修士(理学), 長尾誠也
- 3) 藤田充司, Rn-222 を用いた七尾湾における海底湧水の実態把握. 自然科学研究科物質化学専攻, 修士(理学), 長尾誠也
- 4) Deddy Irawan Permana Putra, Dynamics of radionuclides from the Fukushima nuclear accident at river watershed and coastal environment. 自然科学研究科物質化学専攻, 修士(理学), 長尾誠也

(2) 卒業研究

- 1) 亀山紘旭,  $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$  比からみた日本列島をとりまく海洋の粒子除去. 理工学域物質化学類化学コース, 学士(理学), 井上睦夫
- 2) Rodrigo Jose Mundo Duenas : Spatial-temporal distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in seawater at West Nanao Bay, Noto Peninsula. 理工学域物質化学類化学コース, 学士(理学), 長尾誠也

# 3. 研究報告



## PEI-ガラスフィルターによる腐植物質-多環芳香族炭化水素会合態の膜分離

岩井久典、Rodrigo Mundo、松中哲也、長尾誠也

〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学日本海域環境研究センターLLRL

Iwai, H., Mundo, R., Matsunaka, T., Nagao, S., Separation of polycyclic aromatic hydrocarbon associated with humic substances using a PEI coated-glass fiber filter

### 【はじめに】

多環芳香族炭化水素 (PAHs) は、化石燃料の燃焼や工場排煙等、人間活動により大量に環境中へ放出される。近年、東アジアでは PAHs の環境中放出量の増加及び近隣諸国への越境汚染が問題視されている[1,2]。PAHs は発がん性及び水生生物に対する変異原性を有するため、環境中 PAHs の挙動把握が重要となっている。

腐植物質 (HS) は両親媒性を有することから、環境中の PAHs の吸着、溶解及び移動性に大きく関わっていると考えられ、HS と PAHs の会合体の把握は PAHs の環境中挙動の理解に不可欠である。これまでの研究では、HS と PAHs の会合性の評価には蛍光消光法が用いられているが、分析の都合上、当該手法による環境水中の PAHs の存在状態の把握は困難である[3]。

カチオン性ポリマーでコーティングされたガラスフィルターには、静電的相互作用によって、負に帯電した HS が吸着される[4]。PAHs は負電荷を持たないためこのフィルターには吸着しないが、HS との会合体は腐植物質のもつ負電荷によって当該フィルターに吸着されると予想される。本研究では、水溶液系環境試料の新規分析手法として当該フィルターを用いた HS-PAHs 会合体の簡易的な分離法を提案し、それを用いた HS-PAHs 会合性の評価を行う。

### 【試料と方法】

腐植物質：フミン酸 (HA) 及びフルボ酸 (FA) は異なる起源 (広葉樹バーク堆肥、ピート及び茂原地下水) から分離精製したものを用いた[4,5]。PcGF：ポリエチレンイミン (PEI, MW: ca. 1800, 0.1% in 10 mM リン酸緩衝液、pH 7.0) をガラス濾紙 (ADVANTEC GC-50、 $\phi$  90 mm) に通し、PEI でコーティングしたガラス濾紙 (PcGF) を作成した[4]。PcGF は、純水を通して洗浄した後、すぐに試験に用いた。PAHs：重水素化された napharene (Nap-d8)、acenaphthene (Ace-d10)、phenanthrene (Phe-d10)、pyrene (Pyr-d10) 及び benzo[a]pyrene (BaP-d12) の混液を標準試料 (STD mix、 $[\text{PAHs}]_{\text{total}} = \text{ca. } 7.28 \mu\text{g mL}^{-1}$ ) として用いた。PAHs の分離及び分析：HA 及び FA ( $2 \text{ mg L}^{-1}$  in 10 mM リン酸緩衝液、pH 7.0) の水溶液 200 mL に STD mix を 0–100  $\mu\text{L}$  添加し、吸引濾過により PcGF に HS を吸着させた。先行研究に基づき、濾紙に吸着した PAHs はジクロロメタンで抽出し、蛍光検出 HPLC により定性定量を行った[2]。

### 【結果と考察】

PcGF ( $\phi = 90 \text{ mm}$ ) 1 枚あたり  $2 \text{ mg L}^{-1}$  HA 200 mL の内 95% の HA が PcGF に吸着されることが分かった。HA 及び FA をろ過した後の PcGF から PAHs5 を抽出したところ 5 種の重水素 PAHs のうち、2-3 環の PAHs は検出されなかった。添加量に対する PcGF から検出された Pyr-d10

及び BaP-d12 の検出量 (%) を Fig. 1 に示す。この結果から、HS の起源 (Hc-: バーク堆肥、Ap-: ピート、Mg-: 茂原地下水) に関係なく、PAHs は HA と会合しやすく、環数の多いものほど HS 会合体を形成しやすいことが分かった。HS の紫外可視吸光特性と%会合体 PAHs の関係から、HS の分子量、重合度及び芳香族度が高いほど PAHs が会合しやすいことが分かった (Fig. 2)。

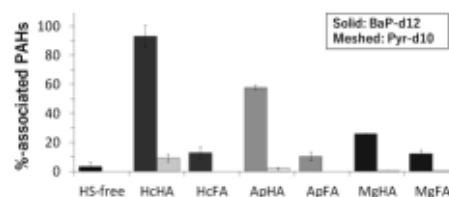


Fig. 1: The % of associated PAH to HSs. Solid and meshed columns represent BaP-d12 and Pyr-d10, respectively. The columns and error bars represent the averages and standard deviations (n = 3).

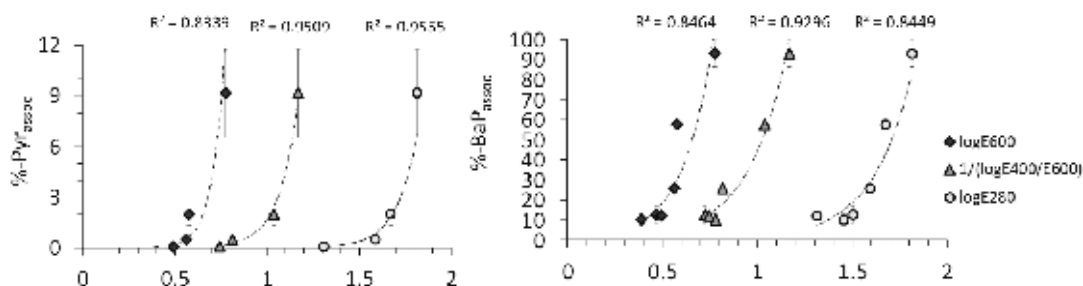


Fig. 2: The relationship between UV-vis indexes and %-associated PAHs

高い PAH 会合性を示した HcHA 及び ApHA について、PAHs 添加量を変化させ、その会合性の変化した場合の遊離体 PAH と会合体 PAH の関係を Fig. 3 に示す。これらのプロットに対して Langmuir 型の吸着等温式がよく一致した。

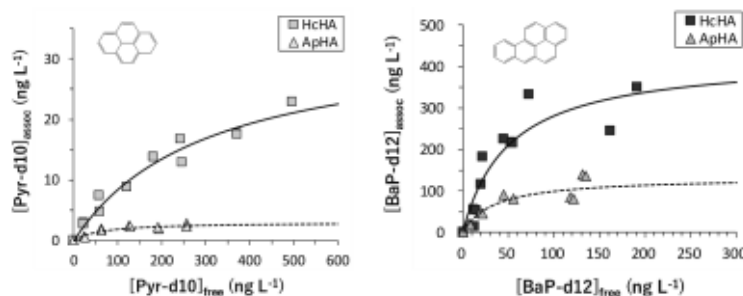


Fig. 3: The relationship between the concentrations of free- and associated PAHs.

Langmuir 型の吸着等温式のフィッティングから、HcHA と ApHA で試算された会合係数に大きな差はなかったが、HcHA が高い会合容量を有することが分かった。以上の結果から、HS における PAHs の会合部位は起源によらないこと、PAHs とその特定部位が 1:1 で会合すること、及び会合容量は HS の起源及び分画間で大きな差があることが分かった。

#### 【参考文献】

- [1] Li, et al. (2014) *Environ. Pollut.*, 192, pp. 83-90. [2] Nagato, et al. (2019) *Mar. Pollut. Bull.*, 138, pp. 333-340. [3] Li and Lee, (2000) *Anal. Chem.*, 72, pp. 5272-5279. [4] Iwai, (2019) *Anal. Sci.*, 35, pp. 783-787. [5] Nagao, et al., (2009) *Humic Substances Res.*, 5/6, pp. 9-17.

## Spatial-temporal distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface water at West Nanao Bay, Noto Peninsula, Japan, during 2019–2020

Rodrigo Mundo<sup>1,2</sup>, Tetsuya Matsunaka<sup>1,2\*</sup>, Hisanori Iwai<sup>2</sup>, Shinya Ochiai<sup>1,2</sup>, Seiya Nagao<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Division of Material Chemistry, Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University, Kanazawa 920-1192, Japan

<sup>2</sup> Low Level Radioactivity Laboratory, Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Nomi 923-1224, Japan

### [Introduction]

Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs) is a family of compounds designated as priority pollutants by the US Environmental Protection Agency as harmful organic substances with carcinogenicity and mutagenicity effects. PAHs are produced after pyrogenic events or released from petrogenic sources. Located in a remote rural area facing the Sea of Japan, Nanao Bay is renowned for the Oyster production. Kumaki, Otsu and Ninomiya rivers, with different land usages in their courses, flow into the southwest part of the bay, generating an estuary-like environment with abundant seagrass and shallow waters (2–3 m). In the north-east part of the bay, a sandier seafloor and deeper waters are characteristic. After the embryogenic effects of PAHs, determination of concentrations and spatial distribution in seawater of West Nanao Bay is essential to ensure the safety and sustainable oyster production. This study aims to elucidate levels, sources, pathways and ecological risks of PAHs in West Nanao Bay, Noto Peninsula, through the seasonal monitoring of the spatial distribution, as well as phase partitioning, of PAHs in surface seawater.

### [Experimental]

The spatial distributions in surface water was seasonally investigated from May 2019 until February 2020; simultaneously water quality parameters (e.g. salinity, turbidity, etc) were recorded on the field by water quality profiler. Seawater (10 L) was collected from 15 sampling points and stored in a polished stainless well-closed container to avoid PAHs photodegradation and any residual contamination. PAHs in seawater samples were separated and concentrated as particle phase (> 0.5  $\mu\text{m}$ ) and dissolved phase by tandem filtration with GC-50 glass fiber filter and solid phase extraction Empore C18 disk, respectively. To adjust extraction recoveries, deuterated standards were utilized. Samples were analyzed with a high-performance liquid chromatography coupled to a fluorescence detector (Shimadzu co., Ltd. Japan, 20A series).

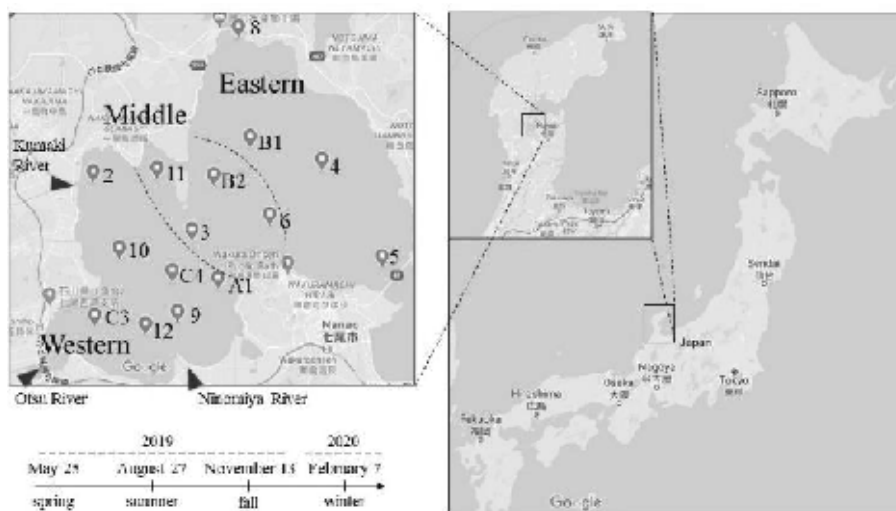


Fig. 1 Sampling points at West Nanao Bay, Noto Peninsula.

**[Results and discussion]**

The mean total 14 PAHs (particulate plus dissolved) concentrations were correspondingly 9.57 ng L<sup>-1</sup> in May 2019, 21.95 ng L<sup>-1</sup> in August 2019, 11.07 ng L<sup>-1</sup> in November 2019, and 7.35 ng L<sup>-1</sup> in February 2020 (Fig. 2). Highest total PAHs in the western part, decreasing towards the lowest total PAHs in the eastern part was the general trend besides in August 2019 when abnormally high total PAHs levels (up to ~130 ng L<sup>-1</sup>) were detected in the central part of the bay. Based on the diagnostic isomer ratios of [Flu] / [Flu + Pyr] and [BaA] / [BaA + Chr], and a varimax rotated principal component analysis, it was established that two distinct pyrogenic (liquid fossil fuel and coal combustion) were presented in the dissolved phase. With the same methodology, it was inferred that a major pyrogenic source (biomass combustion) plus a petrogenic second component were present in the particulate phase. With a strong inverse proportionality ( $r^2 = 0.89$ ) between annual average particulate-PAHs (PPAHs) and salinity, riverine runoffs were determined to be a major transportation pathway of PAHs towards the bay. Based on the ecological risk coefficients (RQ) developed by Cao et al. [1], PAHs ecological impact was analyzed. The RQ  $\Sigma$  14 PAHs (NCs) varied from 0 to 82.49 in 60 surface seawater samples, representing a very low to low risks to marine life.

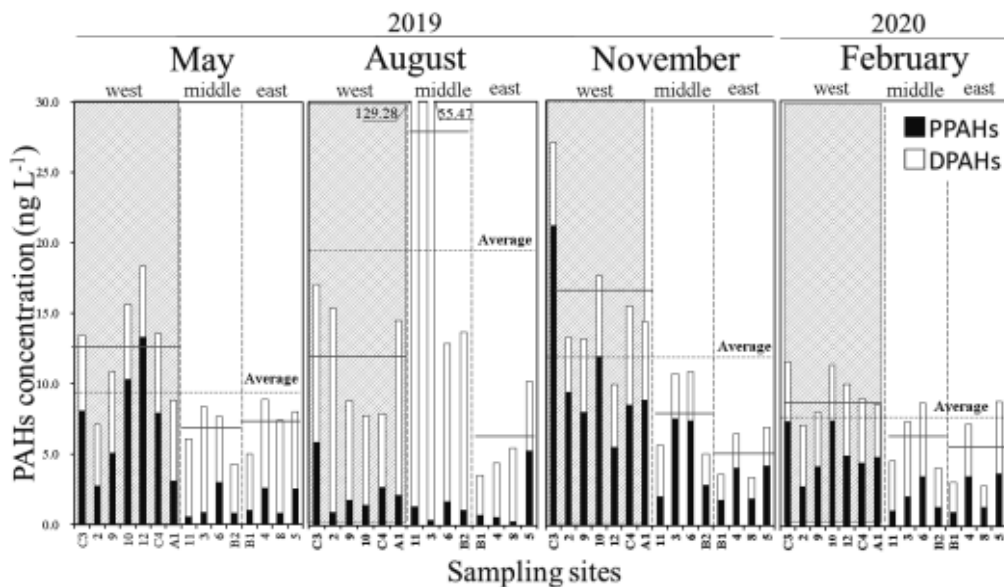


Fig. 2. PAHs levels in surface water at West Nanao Bay, Noto Peninsula, during 2019–2020.

**[References]** [1] Cao Z., Liu J., Luan Y., Li Y., Ma M., Xu J., Han S. Distribution and ecosystem risk assessment of polycyclic aromatic hydrocarbons in the Luan River, China. *Ecotoxicol.*, **2010**, Vol. 19, 827–837.

# Dynamics of radionuclides released from the Fukushima nuclear accident at river watershed environment

Deddy Irawan Permana Putra<sup>a</sup>, Shinya Ochiai<sup>b</sup>, Seiichi Tomihara<sup>c</sup>, Shun Watanabe<sup>d</sup>, Kyuma Suzuki<sup>d</sup>, Seiya Nagao<sup>b</sup>

<sup>a</sup> Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University, Kakuma, Ishikawa 920-1192, Japan

<sup>b</sup> Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Wake O-24, Nomi, Ishikawa 923-1224, Japan

<sup>c</sup> Aquamarine Fukushima, Tatsumicho-50 Onahama, Iwaki, Fukushima 971-8101, Japan

<sup>d</sup> Gunma Prefectural Fisheries Experiment Station, Maebashi, Gunma 371-0036, Japan

## [Introduction]

An earthquake on 11 March 2011 caused an accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FDNPP), which resulted in contamination of a wide range of terrestrial and marine environment. Radioactive cesium widely deposited on land and transported from watershed through river system to the ocean. Most of the radiocesium concentration derived from the FDNPP accident in riverine suspended solids are predominantly governed by the contributions of radioactive depositions in the catchment areas (Ueda *et al.*, 2013, Nagao *et al.*, 2015, Ochiai, *et al.*, 2015). Recently, the scientists reported that the activity of <sup>137</sup>Cs was found in beach groundwater with a maximum value of  $23.0 \pm 0.5$  kBq m<sup>-3</sup> at Yotsukura, Iwaki city 40 km away from FDNPP (Sanial, *et al.*, 2017). The dispersion and deposition of radiocesium on the environment are of great concern in the coastal area surrounding Fukushima Prefecture. Investigations of radiocesium concentration in the rivers have been performed to understand factors controlling transport of radiocesium during different watershed condition.

## [Location, Measurement]

In this study, field survey was carried out at two river systems and one coastal area (Fig. 1). River water samples were collected at a fixed station from the Tone River and the Natsui River at normal and high flow condition during 2018-2019. The upper Tone River watershed has catchment area of 16.840 km<sup>2</sup> and the Natsui River catchment area is 749 km<sup>2</sup>. Suspended solids were separated from river water by using continuous flow centrifugation. Dissolved cesium was co-precipitated using ammonium molybdophosphate (AMP) method. Radioactive cesium concentration was determined for the AMP precipitates and suspended solids samples using HPGe gamma spectrometry.

## [Result, Discussion]

The maximum concentration of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs at normal flow condition was 0.7 mBq L<sup>-1</sup> and 7.9

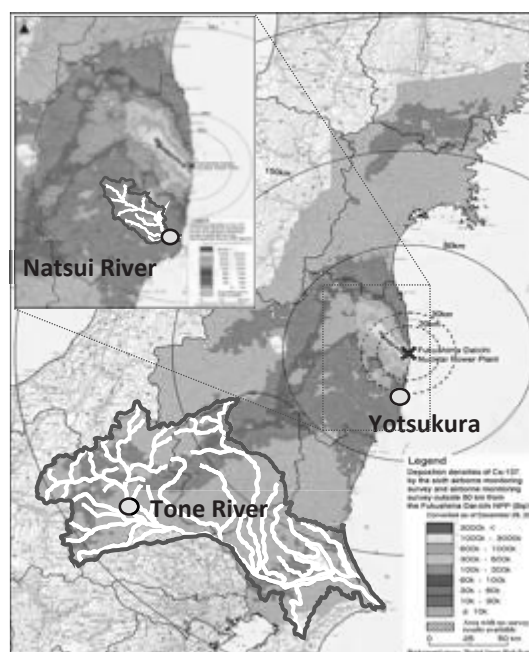


Fig. 1. Sampling Location (Cs<sup>137</sup> distribution map, JAEA)

mBq L<sup>-1</sup> in the Tone River, and 1.1 mBq L<sup>-1</sup> and 11 mBq L<sup>-1</sup> in the Natsui River, respectively (Fig. 2). Total concentration of <sup>134</sup>Cs after the rain events was 18 – 37 mBq L<sup>-1</sup> in the Tone River and 40 mBq L<sup>-1</sup> in the Natsui River. The concentration of <sup>137</sup>Cs in the Tone and Natsui River was 210 – 411 mBq L<sup>-1</sup> and 447 mBq L<sup>-1</sup> respectively. The suspended solids concentration in both rivers was higher than 100 mg L<sup>-1</sup> at high flow condition. The percentage of <sup>137</sup>Cs in particulate phase to the total concentration was over 95 % (Fig. 3). However, during low-flow periods the percentage varied from 50 to 95 % in the Natsui River and 12 to 84 % in the Tone River. These results indicate that the transport of radiocesium in river systems are influenced mainly by the movements of suspended particles associated with radiocesium during runoff events. The <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs concentrations in particulate phase during high flow after rain events were the highest in the both rivers.

#### [References]

- S. Ueda, *et al.*, 2013. Fluvial discharges of radiocaesium from watersheds contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. *J. Environ. Radioact.* 118, 96–104.
- S. Nagao, *et al.*, 2015. Migration behavior of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in the Niida River water in Fukushima Prefecture, Japan during 2011–2012. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 303, 1617–1621.
- S. Ochiai *et al.*, 2015. Effects of radiocesium inventory on <sup>137</sup>Cs concentrations in river waters of Fukushima, Japan, under base flow conditions. *J. Environ. Radioact.* 144, 86-95.
- Sanial, V., 2017. Unexpected source of Fukushima-derived radiocesium to the coastal ocean of Japan. <https://doi.org/10.1073/pnas.1708659114>.

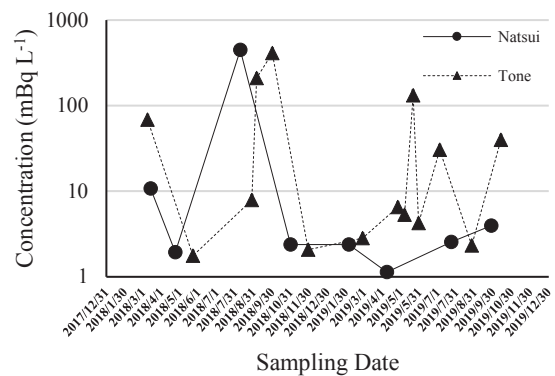


Fig. 2 Total <sup>137</sup>Cs concentration in the Natsui River and the Tone River.

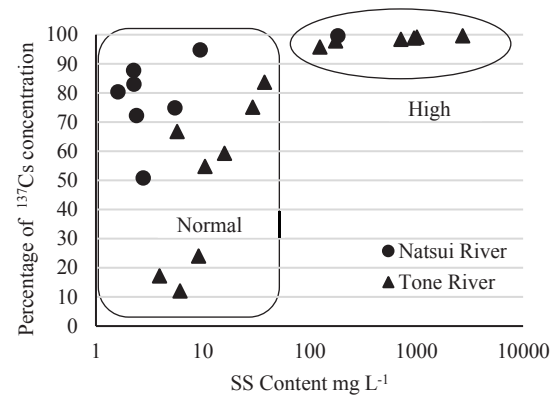


Fig. 3 Relationships between percentage <sup>137</sup>Cs in suspended solids with SS content mg L<sup>-1</sup> in the Natsui River and the Tone River

## 4. 記録

### 令和元年度見学来訪・出張の記録

- 4.5 広島大学 博士課程2年生 辻 浩明 氏,全国共同利用研究 研究打ち合わせ
- 4.9 気象庁気象研究所 リサーチ・アソシエイト 木名瀬 健 氏,簡易降水サンプラー設置のため来所
- 4.16 公益財団法人 海洋生物環境研究所 高田 兵衛 氏,及川 真司 氏,業務打合せ
- 4.18 近畿大学 講師 荻部 甚一 氏,全国共同利用研究 研究打合せ
- 4.23 福井県原子力環境監視センター 所長 田賀 幹生 氏,室長 八杉 昌志 氏,主任研究員 玉柿 励治 氏,施設見学のため来所
- 5.7-5.8 広島大学 博士課程2年生 辻 浩明 氏,全国共同利用研究に際した実験のため来所
- 5.8 気象庁気象研究所 リサーチ・アソシエイト 木名瀬 健 氏,簡易降水サンプラーによる降水サンプルの採取,研究打ち合わせのため来所
- 5.10 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 吉田 圭佑 氏,研究打ち合わせ
- 5.12-5.17 長尾教授,落合助教,「2019 Taiwan Geosciences Assembly」出席, 研究打ち合わせのため台湾へ出張
- 5.18 七尾高校 高校生 平澤 萌花 氏,グローバルサイエンスキャンパス事業のため来所
- 5.24 国立研究開発法人 森林研究・整備機構 森林総合研究所 四国支所 志知 幸治 氏,全国共同利用研究 研究打合せおよび試料の分取作業
- 6.5-6.6 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 尻引 武彦 氏,御園生 敏治 氏,研究打ち合わせ
- 6.11-6.12 国立研究開発法人 海洋研究開発機構 地球環境部門 海洋観測研究センター 熊本 雄一郎 氏,全国共同利用研究 研究打ち合わせ
- 6.11-6.12 弘前大学 被ばく医療総合研究所 助教 田副 博文 氏,全国共同利用研究 研究打ち合わせ
- 6.11-6.12 国立研究開発法人 水産研究・教育機構 中央水産研究所 帰山 秀樹 氏,全国共同利用研究 研究打ち合わせ
- 6.11-6.14 福島大学 環境放射能研究所 特任准教授 高田 兵衛 氏,全国共同利用研究 研究打ち合わせ、調査、試料前処理のため来所
- 6.13 気象庁気象研究所 リサーチ・アソシエイト 木名瀬 健 氏,簡易降水サンプラーによる降水サンプルの採取,研究打ち合わせのため来所
- 6.27 台湾科学アカデミー中央研究所 リサーチフェロー Tung-Yuan Ho 氏,研究打合せ
- 7.7 モンゴル国立大学、Yale-NUS College 14名(学生),サマースクールのため、来所
- 7.12 茨城大学 准教授 畷田 敏行 氏, 全国共同利用研究 研究打ち合わせ
- 7.13 七尾高校 高校生 平澤 萌花 氏,グローバルサイエンスキャンパス事業のため来所
- 7.15-7.18 長尾教授,26th International Conference (PACON-2019) 参加のためウラジオストク、

ロシアへ出張

- 7.18 理工学域物質化学系3年生37名実習、尾小屋地下実験室見学
- 7.25-7.26 筑波大学 准教授 笹 公和 氏,技術職員 松村 万寿美 氏, 修士課程2年 落合 悠太 氏,全国共同利用研究に関する実験・研究打ち合わせ
- 7.28-8.2 長尾教授,落合助教, 16th Annual Meeting Asia Oceania Geosciences Society (AOGS2019) 参加のためシンガポールへ出張
- 8.9 公益財団法人 日本海洋科学振興財団 小藤 久毅 氏,研究打ち合わせ
- 8.7-8.9 国立台湾大学 教授 黄 誌川 氏,学生 陳 沛壕 氏,学生 黄 偉倫 氏,全国共同利用研究のため来所
- 8.12-8.15 長尾教授, e-ASIA JRP Conference on Clime Change and Nature Disasters に参加のためウラジオストク、ロシアへ出張
- 8.27-8.30 ロシア科学アカデミー極東支部 Aleksandr Charkin 氏,Pavel Semkin 氏,全国共同利用研究 研究打ち合わせ、調査、試料前処理のため来所
- 9.6 公益財団法人 海洋生物環境研究所 城谷 勇陸 氏,業務打ち合わせ
- 9.7-9.12 井上准教授, 海水の放射性核種の分布調査に関する共同研究の打ち合わせ及び、海水試料からの放射性核種の分離処理のためウラジオストク、ロシアへ出張
- 9.11 気象庁気象研究所 予報研究部 第4研究室 室長 財前 祐二 氏,研究打ち合わせ
- 9.12-9.13 筑波大学 准教授 坂口 綾 氏,4年 橋本 美耶 氏,ヨウ素の化学分離
- 9.15-9.18 長尾教授,落合助教, THE 16 TH EAST EURASIA INTERNATIONAL WORKSHOP 参加のためウランバートル、モンゴルへ出張
- 9.24-9.27 筑波大学 4年 橋本 美耶 氏,ヨウ素の化学分離のため来所
- 10.24 国立研究開発法人 森林研究・整備機構 森林総合研究所 四国支所 志知 幸治 氏,全国共同利用研究 試料の分取作業のため来所
- 10.24-10.25 国立研究開発法人 海洋研究開発機構 地球環境部門 海洋観測研究センター 熊本 雄一郎 氏,全国共同利用研究 研究打ち合わせ
- 11.3-11.6 長尾教授,井上准教授,松中助教, 台湾沖海洋調査うち合わせのため台北、台湾へ出張
- 11.14 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 尻引 武彦 氏,御園生 敏治 氏,研究打ち合わせ、尾小屋地下実験室見学
- 11.27-11.30 長尾教授,井上准教授, 大気海洋観測に関する共同研究打合せのためオークランド、ニュージーランドへ出張
- 12.2-12.7 井上准教授, 台湾沖海洋調査試料の化学処理のため台北、台湾へ出張
- 12.8-12.15 岩井博士研究員, AGU fall meeting2019 のためサンフランシスコ、アメリカへ出張
- 12.9-12.10 筑波大学 修士課程2年 落合 悠太 氏,全国共同利用研究に関する実験
- 12.16-12.22 島根大学 助教 長門 豪 氏,NPAH 分析法研修会、打ち合わせ等のため来所



- 12.20 国立台湾大学 教授 黄 誌川 氏, 全国共同利用研究 打ち合わせのため来所
- 1.6-1.9 長尾教授, 研究集会「東アジア地域の環境保全における中日協力のあり方」のため  
北京、中国へ出張
- 1.10 島根大学 助教 長門 豪 氏, サンプリングのため来所
- 1.20 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 諸角 季生 氏, 就職支援のため来所
- 1.28 国立研究開発法人 森林研究・整備機構 森林総合研究所 四国支所 志知 幸治 氏, 全  
国共同利用研究 研究打合せ
- 1.29-2.6 金沢大学 助教 本田 匡人 氏, ニトロ PAH 類の分析のため来所
- 3.24 金沢大学 准教授 福士 圭介 准教授, 研究打ち合わせのため来所



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