

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
2010.4 ~ 2011.3



能登半島の里山流域（石川県七尾市）

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	7
2-3. 研究費	13
2-4. 研究指導	13
3. 研究報告	
Vertical distributions of ^{226}Ra , ^{228}Ra , and ^{137}Cs activities in the southwestern part of the Sea of Okhotsk	16
サロベツ原野の地下水における有機物の特徴	18
能登半島の貯水池堆積物に基づく集水域環境変動の推定	20
太平洋における ^{137}Cs の3次元分布とモデル計算結果との比較	22
能登半島における里山周辺河川水中の溶存有機物の挙動と特徴について	24
旧ソ連セミパラチンスク核実験場周辺集落の放射能汚染と線量評価	26
高塩分地下水におけるラジウム同位体の挙動	28
Measurement of Global Fallout ^{236}U in Surface Soil by Accelerator Mass Spectrometry (AMS)	30
放射性炭素を用いた十勝川水系における溶存有機物の移行挙動研究	32
九頭竜川流域における放射性核種を用いた河川懸濁粒子の流出挙動	34
薄い逆同時計数用プラスチックシンチレータによる Ge 検出器の宇宙線成分の除去	36
4. 記録	
平成 22 年度見学来訪・出張の記録	37

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 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 西村周作 (erde1002@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
博士 (農学) 専攻 土壌科学
- ・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 2年 鈴木智代
- ・博士前期課程 2年 川合健太
- ・博士前期課程 2年 吉田圭佑
- ・博士前期課程 1年 徳成武勇
- ・化学科 4年生 高田貴裕
- ・化学科 4年生 金森正樹

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、以下の研究を実施した。

1) バックグラウンド低減化システムの開発と応用

Ge 半導体検出器の遮へい内に 2π sr 相当の薄いプラスチックシンチレータ (PS) と波長変換光ファイバーを設置して、バックグラウンド (BKG) となる宇宙線成分を検出し、逆同時計数により BKG 成分を除去するシステムを開発し、本年度は LLRL の地上設置 Ge 検出器での長時間試験を行った。PS と光電子増倍管 (PMT) の間に光コネクタを設け、PMT-コネクタ間を透明ファイバーとして光子損失を低減することにより設置の自由度が大きく改善した。また PS, 遮光幕も補強し実用機としての使用を可能とした。試験の結果、大部分が宇宙線成分と思われる 3MeV 以上の領域では約 70%が除去できることを確認した。

2) 小惑星いとかわ試料の全岩元素分析

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、小惑星いとかわ試料の全岩元素分析 (首都大学東京, 京都大学他と共同で実施) を行った。Sc, Fe, Cr, Mn, Fe, Co, Zn, Ir の定量を行った。他の手法で求めた分析結果とともに、結果の一部は 2011 年 3 月に Houston で行われた月惑星科学会で速報した。

3) 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、黄砂を初めとする鉱物エアロゾルについては海洋への一次生産へ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 10 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、新たにアンダーセン・ローボリュム・エアサンプラーを用いて、エアロゾルを粒径別に採取し、放射能濃度の粒度依存性を検討した。

4) 日本海～東シナ海の多核種同時測定

平成 22 年 7-8 月の蒼鷹丸調査航海において、日本海西部、東シナ海東部の海水試料を鉛直および水平方向に採取した。簡便な共沈法を施した海水試料およびフィルター試料に低バックグラウンドガンマ線測定法を適用することにより、これら試料における ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra および ^{228}Th の測定をおこなった。その結果より、本海域における水塊、粒子など物質循環に関する知見を引き出した。

5) 東シナ海東部における ^{226}Ra 、 ^{228}Ra および ^{228}Th 濃度の季節変動

西海区水産研究所の協力により、2月、3月、4月、5月および7月の6回にわたり、東シナ海東部の7地点において採取された表層海水の ^{226}Ra 、 ^{228}Ra および ^{228}Th 濃度を測定した。その結果、 ^{228}Ra および ^{228}Th 濃度に大きな季節変動があることが明らかになった。東シナ海の水塊、粒子など物質循環が季節的に大きく異なることを反映する。

6) 海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究

海水中に存在する極微量の人工放射性核種 ^{137}Cs (30.5 年) の海水循環の研究で、太平洋深海約 1000-5500m の深層水中の ^{137}Cs 濃度 50 試料を尾小屋地下実験室の Ge 検出器で測定した。この結果及び表層から 1000m の測定結果を基に太平洋の海水循環に加えインド洋、大西洋の海洋循環が更に明らかになった。この結果は、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。

7) 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。今年度は、1953 年の旧ソ連最初の水爆からのフォールアウトの被害を受けたサルジャーレおよびカラウル村内外に加えてカイナル村内外で、きめ細かな土壌採取を行い、 ^{137}Cs 、 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

レベルの把握を目指した。さらに爆発時の中性子との核反応で生成した誘導放射性核種を見積もるために ^{125}Eu , ^{60}Co , 加えて、水爆の原料組成や規模等の情報を得るために $^{238}\text{U}(n,2n)$, $^{238}\text{U}(n,3n)$, $^{235}\text{U}(n,\gamma)$ などの核反応で生成する可能性がある ^{237}Np , ^{236}U についても測定を試みた。

8) グローバルフォールアウト ^{236}U の評価と広島原爆への応用

広島原爆直後の中性子や γ 線による人体への被曝線量評価などは日米共同で信頼できるまでに至っている (DS02)。しかし、原爆投下 20-30 後に“黒い雨”が降り、これに伴うローカルフォールアウトからの被曝は、これまでその寄与が少ないとみなさら検討されてこなかった。最近、黒い雨に含まれている放射性物質からの被曝が関心を呼ぶようになり、黒い雨の降下時間推移、降下範囲、この雨に放射性物質がどの程度含まれていたのかなどの検討が緊急の研究課題になっている。1976年と1978年に、厚生省が中心となり、広島市の爆心地 30 km 圏内 16 方位で、きめ細かな土壌試料の採取を行い、残留放射能の調査を行った。物理的半減期の長い核分裂生成核種 $^{137}\text{Cs}(T_{1/2}=30.17\text{ y})$ を中心に測定が行われたが、1950年から1960年代はじめに行われた米ソの大気圏核実験からの大量の地球規模フォールアウト (global fallout) のために、広島原爆由来のフォールアウト ^{137}Cs の痕跡を見出すことが極めて困難であった

そこで、Global fallout の影響を受けず、当時の Close-in fallout の降下状況を保存している試料に目が向けられた。幸い、市民の協力が得られ、原爆直後に建築されて最近解体する建物が幾つか見つかかり、その床下の土壌が最適ではないかということになり ^{137}Cs 測定を試みる機会を得た。もし、 ^{137}Cs が検出されれば、この ^{137}Cs は Close-in fallout 由来の可能性が非常に高く、降下レベルや分布解明に非常に役立つ。また、黒い雨の降下分布と Close-in fallout の分布との関係解明にも多いに貢献出来る可能性が高い。これらの試料について ^{137}Cs , Pu 同位体の測定を試みた。

9) 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、 ^{226}Ra 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 ^{226}Ra を高濃度に含むのではないかと考え、Na-Cl 型地下水水中の Ra 同位体の地球化学的研究を始めたこれまで、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てき

た。本年度は、メカニズム解明と併せて、北海道の西側において温大深度地下水の採取を行った。

10) 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。我々は、腐植物質の分子サイズに着目し、分子サイズをパラメータとして錯形成、吸着移行性に関する検討を進めている。今年度は、三次元蛍光分光光度法と高速液体サイズ排除クロマトグラフィー分析法を組み合わせ、土壌から分離精製したフミン酸と Eu(III) との錯形成の特徴を蛍光消光法と分子サイズ分布の観点から検討した。その結果、高分子画分と低分子画分のフミン酸と Eu との錯形成は異なることが示唆された。

11) 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。また、微量金属や有害有機物の輸送媒体として有機物の重要性が報告され、生態系との関連性の観点から、腐植物質の移行挙動に関心が集まっている。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。このアプローチでの河川や大気での報告例はそれほど多くはないが、トレーサーとしての有効性が示唆されている。今年度は北海道の湿原を流れる釧路川と別寒牛川において分離した粒子について、懸濁態有機物の炭素同位体比を測定した。その結果、同じ湿原域でも釧路川と別寒辺牛川の懸濁態有機物の炭素同位体比は異なり、微弱な流域環境の違いを反映していることが明らかとなった。

12) 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、熊木川で月1回の観測を開始し、溶存成分とともに粒子態成分の濃度と特徴を分光分析、クロマトグラフィー分析、さらに Be-7 , Cs-137 , Pb-210 等の放射性核種をトレーサーとした検討を進めた。河床堆積物と流域の土壌コアの Cs-137/exPb-210 の放射能濃度比を比較した結果、中流域に広がる水田からの寄

与が中流以降の物質動態に重要な役割を示す可能性が示唆された。

2-2. 研究業績

1) 学術論文

- (1) M. Aoyama, M. Fukasawa, K. Hirose, Y. Hamajima, T. Kawano, P.P. Povinec and J.A. Sanchez-Cabeza, Cross equator transport of ^{137}Cs from North Pacific Ocean to South Pacific Ocean (BEAGLE2003 cruises), *Progress In Oceanography* (in press)
- (2) T. Aramaki, S. Nagao, Y. Nakamura, M. Uchida, Y. Shibata, The effects of rainfall on carbon isotopes of POC in the Teshio River, northern Japan. *Radiocarbon*, 52, 808-814 (2010)
- (3) M. Fukushima, S. Shigematsu, S. Nagao, Degradation of pentachlorophenol in a contaminated soil suspension using hybrid catalysts prepared via urea-formaldehyde polycondensation between tetrakis(hydroxyphenyl)porphineiron (III) and humic acid. *Environmental Chemistry Letters* (in press)
- (4) M. Fukushima, Y. Ishida, S. Shigematsu, H. Kuramitz, S. Nagao, Pattern of oxidation products derived from tetrabromobisphenol A in a catalytic system comprised of iron (III)-tetrakis (p-sulfophenyl) porphyrin, KHSO_5 and humic acids. *Chemosphere* 80, 860-865 (2010)
- (5) Kashiwaya, K., Ochiai, S., Sumino, G., Tsukamoto, T., Szyniszewska, A., Yamamoto, M., Sakaguchi, A., Hasebe, N., Sakai, H., Watanabe, T., Kawai, T.: Climato-hydrological fluctuations printed in long lacustrine records in Lake Hövsgöl, Mongolia, *Quaternary International*, 219, 178-187 (2010)
- (6) I. Levy, P.P. Povinec, M. Aoyama, K. Hirose, J.A. Sanchez-Cabeza, J.-F. Comanducci, J. Gastaud, M. Eriksson, Y. Hamajima, C.S. Kim, K. Komura, I. Osvath, P. Roos, S.A. Yim, Marine anthropogenic radiotracers in the Southern Hemisphere: New sampling and analytical strategies, *Progress In Oceanography* (in press)
- (7) S. Nagao, H. Kodama, T. Aramaki, N. Fujitake, M. Uchida, Y. Shibata, Carbon isotopic composition of dissolved humic and fulvic acids in the Tokachi River system. *Radiation Protection Dosimetry* (in press)
- (8) S. Nagao, T. Irino, T. Aramaki, K. Ikehara, H. Katayama, S. Otsuka, M. Uchida, Y. Shibata, Spatial distribution of $\Delta^{14}\text{C}$ values of organic matter in surface sediments off Saru River in northern Japan, one year after a flood event in 2006. *Radiocarbon*, 52, 1068-1077 (2010)
- (9) Ochiai, S., Kashiwaya, K.: Measurement of suspended sediment for model experiments using general-purpose optical sensors, *Catena*, 83, 1-6 (2010)

- (10) S. Shigematsu, M. Fukushima, S. Nagao, Oxidative degradation of 2,6-dibromophenol using an anion-exchange resin supported supramolecular catalysts of iron(III)-5,10,15,20-tetrakis (p-hydroxyphenyl) porphyrin bound to humic acid prepared via formaldehyde and urea-formaldehyde polycondensation. *Journal of Environmental Science and Health, Part A: Toxic/Hazardous Substances and Environmental Engineering* 45, 1536-1542 (2010)
- (11) K. Tsuda, H. Mori, D. Asakawa, Y. Yanagi, H. Kodama, S. Nagao, K. Yonebayashi, N. Fujitake, Characterization and grouping of aquatic fulvic acids isolated from clear-water rivers and lakes in Japan. *Water Research*, 44, 3837-3846 (2010)

2) 本・総説・資料・報告書

- (1) 長尾誠也：河川水の DOM の特徴と生元素の運搬機構 日本土壌肥料学会編 溶存有機物の動態と機能—土壌—河川—海を結んで— pp.119-144 博友社 (2011).
- (2) 玉村修司、渡部芳夫、長尾誠也、渡部芳夫、Loading Capacity (LC)法を主とした地下水中の様存有機物と放射性核種との錯形成能評価. *原子力バックエンド研究*, 17, pp31-53 (2010)

3) 学会発表など

- (1) 青山道夫、中野英之、本井達夫、津旨大輔、浜島靖典、深澤理郎、河野健、村田昌彦、内田裕、熊本雄一郎：太平洋における ^{137}Cs の 3 次元分布とモデル計算結果との比較. 環境放射能研究会、つくば (2011/3/8-10)
- (2) M. Aoyama, M. Fukasawa, Y. Hamajima, K. Hirose, T. Kawano, H. Nakano, P.P. Povinec, J.A. Sanchez-Cabeza, D. Tsumune: Inter and intra basin scale transport of ^{137}Cs in the Pacific Ocean. IAEA International Symposium on Isotopes in Hydrology, Marine Ecosystems, and Climate Change Studies, Monaco (2011/3/27-4/1)
- (3) M. Ebihara, S. Sekimoto, Y. Hamajima M. Yamamoto, K. Kumagai, Y. Oura, N. Shirai, H. T. R. Ireland, F. Kitajima, K. Nagao, T. Nakamura, H. Naraoka, T. Noguchi, R. Okazaki, A. Tsuchiyama, M. Uesugi, H. Yurimoto, M. Zolensky, M. Abe, A. Fujimura, T. Mukai, and T. Yada: Neutron activation analysis of single grains recovered by the Hayabusa spacecraft. 月惑星科学会議, Houston (2011/3)
- (4) 浜島靖典：薄い逆同時計数用プラスチックシンチレータによる Ge 検出器の宇宙線成分の除去. 第 54 回放射化学討論会、大阪 (2010/9)
- (5) Y. Hamajima, Reduction of cosmic ray components on Ge detector utilizing thin plastic scintillators and wavelength shifting fibers for anticoincidence, *Environmental Radioactivity –New*

- Frontiers and Developments-, Rome (2010/10/25-27)
- (6) M. Inoue, K. Yoshida, M. Minakawa, H. Kofuji, S. Nagao, Y. Hamajima, A. Shiomoto and M. Yamamoto: Spatial distributions of ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th , and ^{137}Cs in the southwestern area of the Sea of Okhotsk. Environmental Radioactivity –New Frontiers and Developments-, Rome (2010/10/25-27)
- (7) 入野智久、池原研、長尾誠也：北海道沙流川における河川水中懸濁粒子と河口域海底堆積物の主要元素組成. 2010年度日本地球化学会年会、立正大学 (2010.9)
- (8) 木下哲一、森田祐一郎、横山明彦、浜島靖典、榊本和義、八島 浩、関本 俊、廣瀬健太郎、大槻 勤、高橋成人、Michael Paul：p核 Sm-146 元素合成における核反応. 第54回放射化学討論会、大阪 (2010/9)
- (9) H. Kofuji, M. Inoue, K. Yokota, H. Maeda: Sedimentation rates in Kagoshima Bay, Southwestern Japan, using ^{210}Pb method. Environmental Radioactivity –New Frontiers and Developments-, Rome (2010/10/25-27)
- (10) S. Nagao, N. Fujitake, S. Tamamura, T. Tanaka, Y. Nakaguchi, R. R. Rao: Size selective complexation for Am with groundwater humic and fulvic acids. The 6th International Conference on Interface Against Pollution, Beijing, (2010/5/16-19)
- (11) S. Nagao, H. Kodama, T. Aramaki, N. Fujitake, M. Uchida, Y. Shibata: $\Delta^{14}\text{C}$ values of dissolved humic and fulvic acids in the Tokachi River system. The Third Asian and Oceanic Congress on Radiation and Protection. Chiba, (2010/5/24-28)
- (12) 長尾誠也、藤嶽暢英、田中孝幸、荒巻能史、児玉宏樹、山本政儀、内田昌男、柴田康行：放射性炭素を用いた十勝川水系における様存有機物の移行挙動研究. 第54回放射化学討論会、大阪 (2010.9)
- (13) S. Nagao, N. Fuhitake, T. Tanaka, T. Aramaki, H. Kodama, M. Yamamoto, M. Uchida, Y. Shibata: Transport of dissolved organic matter in the Tokachi River system. The 7th East Asia International Workshop Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Asia. Jeju, Korea (2010/10/6-10)
- (14) S. Nagao; Outline of Noto Peninsula Sciences Project. The 4th International Symposium on Environment of Rim of the Japan/East Sea. Jeju, Korea (2010/10/18-20)
- (15) 長尾誠也：環境半島学における能登半島：コアサイトとしての重要性 第2回能登総合シンポジウム、珠洲市商工会議所 (2011/1/21-22)
- (16) 長尾誠也：環境半島学の展開 総合地球環境学研究所連携F S研究シンポジウム「半島の現状と未来」、総合地球環境学研究所、京都 (2011/2/28)

- (17) R. Nomura, K. Nakamura, K. Seto, M. Inoue and H. Kofuji: Opening of the closed water area and the change of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratios in brackish Lake Nakaumi, southwest Japan. Environmental Radioactivity –New Frontiers and Developments-, Rome (2010/10/25-27)
- (18) 西村周作、柴田英昭、長尾誠也：サロベツ原野の地下水における有機物の特徴. 第 26 回日本腐植物質学会講演会、つくば (2010. 11)
- (19) Ochiai, S., Lin, J., Huang, J., Kao, S., Kashiwaya, K.: Climato-hydrological changes and dam construction impact inferred from sediments of Sun Moon Lake, Taiwan. European Geosciences Union General Assembly 2010, Vienna, Austria (2010/5)
- (20) Ochiai, S., Lin, J., Huang, J., Kao, S., Kashiwaya, K.: Climato-hydrological changes and artificial construction impact inferred from sediments of Sun Moon Lake, Taiwan. Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Asia, Jeju, Korea (2010/10)
- (21) Ochiai, S., Nagao, S., Yonebayashi, K., Fukuyama, T., Yamamoto, M., Nakamura, K., Kashiwaya, K.: Transport processes of particulate organic matter in small reservoir-catchment systems in Noto peninsula, Japan. Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Asia, Jeju, Korea (2010/10)
- (22) Ochiai, S., Nagao, S., Yonebayashi, K., Fukuyama, T., Yamamoto, M., Nakamura, K., Kashiwaya, K.: Environmental changes inferred from small reservoir sediments in Noto Peninsula. The 4th International Symposium on Environment of Rim of the Japan/East Sea, Jeju, Korea (2010/10)
- (23) 大西健夫、楊宗興、柴田英昭、長尾誠也：アムール川における鉄生成・輸送モデリングー1990年代後半の急激な増加解明に向けてー. 地球惑星合同大会、幕張 (2010.5)
- (24) 大西健夫、楊宗興、柴田英昭、長尾誠也：アムール川における鉄輸送モデルー形容モデルとのカップリングへ向けて. 地球惑星合同大会、幕張 (2010.5)
- (25) 大西健夫、楊宗興、柴田英昭、長尾誠也：アムール川流域における土地利用の変化が溶存鉄生成量に及ぼしうる影響の評価. 地球惑星合同大会、幕張 (2010.5)
- (26) 柴田英昭、上田宏、N.Ileva、長尾誠也、中村洋平、門谷茂、柴沼成一郎：Changes of river water quality under the land-use changes in Teshio River watershed, northern Japan. 地球惑星合同大会、幕張 (2010.5)
- (27) 粗康輝、渡邊剛、坂本竜彦、長尾誠也：石垣島に生息するハマサンゴ骨格の発光バンドと腐植物質の関係 日本サンゴ礁学会第 13 回大会 (2010/12/2-5)
- (28) K. Yoshida, M. Inoue, Y. Kiyomoto, M. Minakawa, H. Kofuji, S. Nagao, Y. Hamajima, and M. Yamamoto: Seasonal variations and vertical distribution of ^{228}Ra , ^{226}Ra , and ^{228}Th activities in

surface water on the east side of the East China Sea and their implications. Environmental Radioactivity –New Frontiers and Developments-, Rome (2010/10/25-27)

- (29) 吉田圭佑、井上睦夫、清本容子、小藤久毅、長尾誠也、浜島靖典、山本政儀：東シナ海東部における表層海水の ^{228}Ra , ^{226}Ra , ^{228}Th 濃度の季節変動およびそれらがもたらす知見. 第54回放射化学討論会、大阪 (2010/9)

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、広島原爆“黒い雨”にともなう放射性降下物に関する研究広島“黒い雨”放射能研究会、2009-現在
- (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、地下水中有機コロイドの特徴と核種移行に及ぼす影響評価、日本原子力研究開発機構、地層処分の実力を示すネットワーク、原子力重点連携研究、2009-現在
- (6) 長尾誠也、地下及び地表環境での C-14 の移行動態とモデル解析、日本原子力研究開発機構、地層処分の実力を示すネットワーク、原子力重点連携研究、2009-現在
- (7) 浜島靖典、放射性同位元素分析によるズワイガニの年齢評価、若狭湾エネルギーセンター、2007-現在
- (8) 井上睦夫、近年の海面水位上昇が及ぼす沿岸水の滞留時間の長期化問題と生態系への影響、島根大学、共同研究、2009-現在

・海外渡航

- (1) 山本政義、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・The IV International Conference on "Medical and biological and radio-ecological problems on uranium- and oil-producing regions"、カザフスタン共和国 (2010..9.19-29)
- (2) 長尾誠也、IAP2010 (第 6 回環境汚染におけるコロイド界面現象と界面科学の取り組み国際会議、中国 (2010.5.16-20)
- (3) 長尾誠也、第 15 回国際腐植物質学会国際会議、スペイン (2010.6.27-7.3)

- (4) 長尾誠也、The 7th East Asia International Workshop Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Asia、韓国 (2010.10.6-10)
- (5) 長尾誠也、The 4th International Symposium on Environment of Rim of the Japan/East Sea、韓国 (2010.10.17-20)
- (6) 井上睦夫、Environmental Radioactivity –New Frontiers and Developments-、ローマ・イタリア (2010.10)
- (7) 浜島靖典、Environmental Radioactivity –New Frontiers and Developments-、ローマ・イタリア (2010.10)

5) 各種活動 (学会・社会)

・学会活動

山本政儀：日本温泉科学会編集委員

長尾誠也：日本原子力学会編集委員、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 (2011/1～)、日本地球惑星連合2010年大会「水循環・水環境」コンペナー、日本放射化学会「環境放射能・放射線夏の学校」の開催(2010/8/1-3、金沢)

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：原子力安全委員会核燃料安全専門審査会審査委員、国連科学委員会 UNSCEAR 国内対応委員、環境科学技術研究所委員会委員、福井県原子力安全専門委員会委員、福井県美浜町原子力環境安全監視委員、福井県客員研究員、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

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、総合地球環境学研究所客員教授、総合地球環境学研究所 F S 研究シンポジウム「半島の現状と未来」の開催 京都 総合地球環境学研究所 (2011/2/28)

招待講演および特別講演，依頼講演

(1) 長尾誠也 「縁辺海域における陸起源有機物の移行動態と堆積過程」

第30回石橋雅義先生記念講演会 京大 (2010/4/28)

(2) 長尾誠也：石川県立大 「集中講義」 (2010/8)

(3) 長尾誠也：神戸大学人間科学部 「集中講義」 (2010/9)

(4) 長尾誠也 「七尾西湾、熊木川、里山の研究から分かること」 金沢大学タウンミーテ

ィング in 七尾、七尾市サンビーム日和ヶ丘、(2011/3/5)

2-3. 研究費

1) 科学研究費等

- (1) 山本政儀（代表）基盤研究(B)、4,800 千円
- (2) 山本政儀（代表）基盤研究(C)、1,100 千円
- (3) 山本政儀（分担）基盤研究(B)、50 千円
- (4) 山本政儀（分担）基盤研究(C)、100 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(A)、150 千円
- (7) 長尾誠也（分担）基盤研究(B)、300 千円
- (8) 長尾誠也（分担）基盤研究(B)、100 千円
- (9) 井上睦夫（代表）基盤研究(C)、1,200 千円
- (10) 井上睦夫（分担）基盤研究(B)、100 千円
- (11) 浜島靖典（分担）基盤研究(C)、100 千円
- (12) 長尾誠也、特別経費（里山里海再生学の構築）3,728 千円
- (13) 長尾誠也、特別経費里山里海再生学 5,300 千円
- (14) 長尾誠也、重点戦略経費重戦（設備充実費）971 千円

2) 受託研究費等

- (1) 山本政儀、石川県受託研究、2,000 千円
- (2) 山本政儀、福井県受託研究、1,595 千円
- (3) 長尾誠也、日本原子力研究開発機構受託研究、1,950 千円
- (4) 長尾誠也、産業技術総合研究所受託研究、6,000 千円
- (5) 長尾誠也、大阪湾広域臨海環境整備センター、1,600 千円
- (6) 山本政儀、海洋生物環境研究所共同研究、1,575 千円

2-4. 研究指導

1) 修士論文

- (1) 川合健太、旧ソ連セミパラチンスク核実験場周辺集落の放射能汚染と被爆線量評価、自然科学研究科物質化学専攻、修士（理学）、山本政儀
- (2) 吉田圭佑、東シナ海・日本海における放射性核種の季節変動および水平・鉛直分布、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) 金森正樹、九頭竜川流域における放射性核種を用いた河川懸濁粒子の流出挙動、理学部化学科、学士（理学）、長尾誠也
- (2) 高田貴裕、高塩分地下水におけるラジウム同位体の挙動、理学部化学科、学士（理学）、山本政儀

3. 研究報告

**Vertical distributions of ^{226}Ra , ^{228}Ra , and ^{137}Cs activities
in the southwestern part of the Sea of Okhotsk**

M. Inoue¹, K. Yoshida¹, M. Minakawa², H. Kofuji³, S. Nagao¹, Y. Hamajima¹ and M. Yamamoto¹

¹Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

²Fisheries Research Agency, National Research Institute of Fisheries Science

³Japan Marine Science Foundation

In the southwestern Sea of Okhotsk, circulation of water masses is markedly complicated and variable. In winter, the convective mixing of surface water is believed to form an intermediate layer. However, the vertical circulation characteristics have not yet been well determined. In this study, we applied low-background γ -spectrometry to conduct an investigation of vertical profiles of ^{226}Ra ($t_{1/2} = 1600$ y), ^{228}Ra (5.75 y), and ^{137}Cs (30.2 y) in the southwestern part of the Sea of Okhotsk, so we could elucidate the flow patterns of water masses in this area.

Samples and experimental methods: We collected 14 seawater samples (~60 L) on the southwestern slope of the Kuril Basin in the Sea of Okhotsk (site *SY09C*; N45°01', E145°01'; 1850 m depth) during the *Soyo Maru* expedition (Jul-Aug 2009). Detailed explanations of experimental procedures are presented elsewhere.

Results and Discussion: The water column in this area is considered to consist of intermediate cold water (ICW) (temperature of -1.8-+2°C, salinity of 32.8-33.4) (50-300 m), transient layer water (TLW) (1-2°C, 33.4-34.3) (300-1200 m), and deep layer water (below ~1200 m to bottom) beneath the surface water (above ~50 m) (Figs. 1a and b). The variation of ^{226}Ra activity in surface and ICW is small (~2 mBq/L) (Fig. 1c). In the transient and deep layers, ^{226}Ra activity gradually increases from 2-5 mBq/L, reflecting the reserve of ^{226}Ra that is continuously supplied from bottom sediment (and settling particles) and/or the long residence time of deep layer water. ^{228}Ra activity in the ICW exhibits small variation (~0.4 mBq/L) after the decrease from the surface (~0.6 mBq/L) (Fig. 1d). ^{228}Ra activity steeply decreases in TLW and is markedly low in the deep layer water (<0.1 mBq/L). The profile of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio mainly results from large variation in the activity of short-lived ^{228}Ra , exhibiting a constant value (0.15) in ICW (Fig. 1e). ^{137}Cs activity in the *SY09C* waters also exhibits small variation in ICW (~1 mBq/L), remaining similar to the surface level, and it continues to decrease in TLW and the deep layer water (0.5 to 0.1 mBq/L) (Fig. 1f). ^{137}Cs activity of the *SY09C* waters is lower than

that of waters from the Japan Basin in the Sea of Japan (the site *SY09B*; N43°00', E138°00'; 3700 m depth; our unpublished data) at all depths and, therefore, the estimated inventory of *SY09C* waters (0.7 kBq/m²; 0-1850 m depth) is approximately 1/3 times that of the *SY09B* waters (2 kBq/m²; 0-2000 m). This indicates that the water current from the Sea of Japan do not contribute to effective accumulation of ¹³⁷Cs in the southwestern Sea of Okhotsk. In the northwestern Okhotsk, rapid sea-ice formation leads to production of dense shelf water (26.9σ_θ maximum density), which directly joins to Okhotsk Sea Intermediate water (26.8-27.4σ_θ; 250-1000 m depth) in the off-shore area. Nuclide features in ICW are plausibly explained by downward delivery of ²²⁸Ra and ¹³⁷Cs from the surface accompanying the convective mixing of surface water, which starts to migrate from the northwest Okhotsk to this area, before/during the homogenization by vertical mixing. Activities of all nuclides in the water sample from 500 m depth remain at similar levels as those of ICW, suggesting that the convection of surface water affects the upper part of TLW.

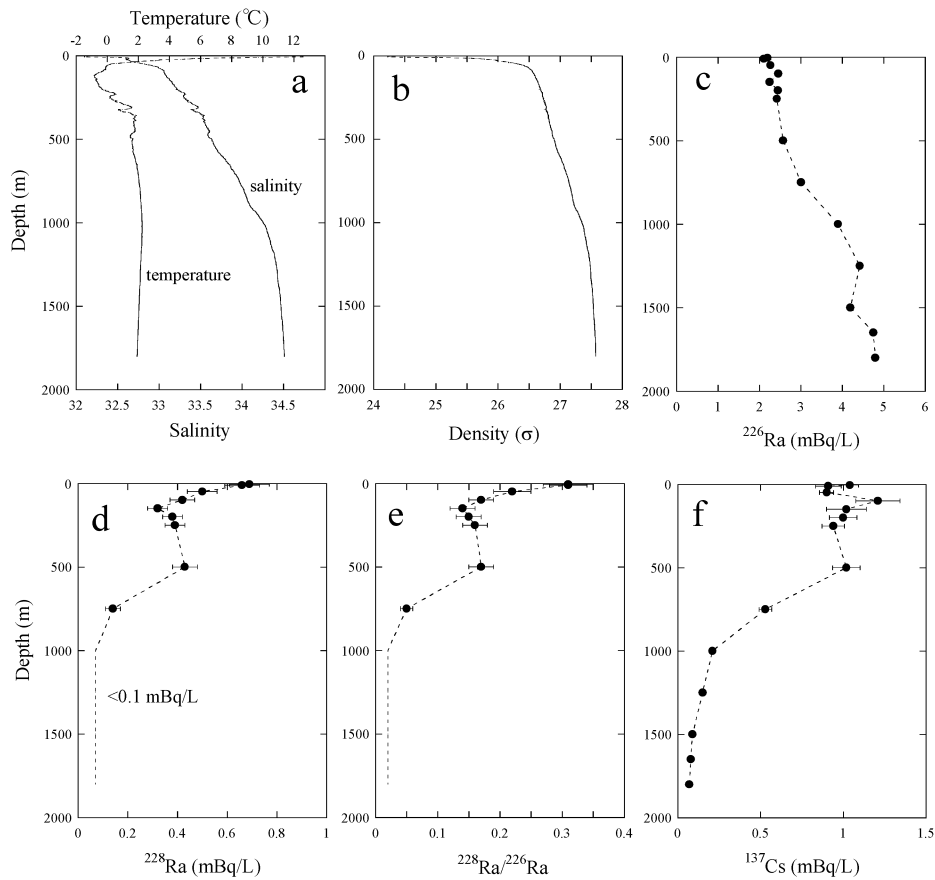


Fig. 1: Vertical profiles of a) salinity and potential temperature, b) density, c) ²²⁶Ra and d) ²²⁸Ra activities, e) ²²⁸Ra/²²⁶Ra ratio, and f) ¹³⁷Cs activity of the *SY09C* water samples.

サロベツ原野の地下水における有機物の特徴

西村周作¹、柴田英昭²、長尾誠也¹

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(低レベル放射能実験施設)

² 〒060-0811 北海道札幌市北区 北海道大学北方生物圏フィールド科学センター

Nishimura S.¹, Shibata H.², Nagao S.¹: Characteristics of organic matter in groundwater from Sarobetsu field

¹ Institute of Nature and Environmental Technology (Low Level Radioactivity Laboratory), Kanazawa Univ.

² Field Science Center for Northern Biosphere, Hokkaido Univ.

1. はじめに

陸域生態系における炭素の一部は河川を経由して海洋へと移行する。この過程において土壌間隙水に溶け込んだ溶存有機物は地下水中の養分元素や放射性核種の移行性や生物利用性・毒性に影響を与えている。このような相互作用は普遍的に行われており、溶存有機物の動態を把握することで環境生態系を維持していくことが可能であると考えられている。近年、三次元蛍光分光光度法により溶存有機態炭素(DOC)濃度の低い河川、湖水および海水における有機物の特性が明らかにされている。さらに、地下水における有機物の蛍光特性についても明らかにされている[1]。しかしながら、地下水における有機物の特徴は、鉛直方向(浅地層から深地層への縦移動)についての報告は多々みられるが、水平方向(ほぼ同じ深度の地層間での横移動)について調査した報告はあまりみられない。本研究では、サロベツ原野の5地点の浅地層地下水における有機物の特徴について、年間の観測から把握することを目的とした。

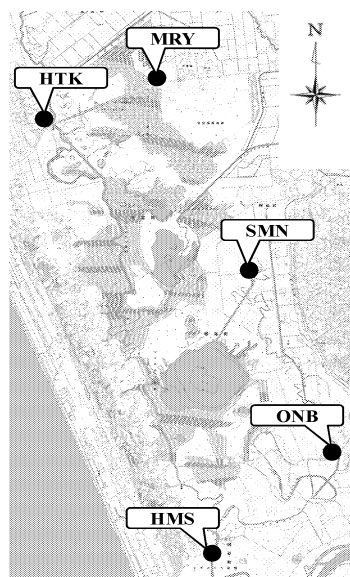


図1 サロベツ原野における地下水採取地点

2. 試料および方法

サロベツ原野は、北海道の北端に近い宗谷丘陵の南西側に位置し、面積約216km²の日本有数の湿原で、東西約8km、南北約27kmにわたり、丘陵や砂州・砂丘を交互に挟んで日本海に面している。また、わが国の泥炭地としても石狩平野、釧路湿原に次ぐ規模を有している。今回、丸山(MRY)、豊富(HTK)、下沼(SMN)、オンネベツ(ONB)および浜里(HMS)にある観測井戸において2007年から2009年の1月、5月、8月および11月に地下水を採取した(図1)。採取した地下水はGF/Fフィルターでろ過した。得られた地下水のDOC濃度、三次元蛍光スペクトル、紫外可視スペクトルおよび高速液体サイズ排除クロマトグラム(紫外(280nm)および蛍光(励起波長(Ex)320nm/蛍光波長(Em)430nm)検出器を使用)を測定し、有機物の特性分析を行った[2]。

3. 結果と考察

地下水中のDOC濃度は0.79~16.3mg L⁻¹の範囲に分布し、HMSは一部を除く採水月において最も高い値を示した(図2)。また、DOC濃度は1月および11月より5月および8月の方で高い値を示したが、HTKでは11月の方で高い値を示した。

三次元蛍光スペクトルは、Ex305~320nm/Em430~435nmおよびEx325~345nm/Em420~435nmに蛍光ピークが各試料で見られ、これらのピークは既報の結果からフルボ酸様物質であると考えられた[3]。また、試料には芳香族アミノ酸のチロシンおよびトリプトファンに由来する波長位置(Ex280nm/

Em305nm および Ex280nm/Em335nm) にピークが見られた。フルボ酸様物質 (Ex320nm/Em430nm) の相対蛍光強度も DOC 濃度と同様の変動傾向を示した。

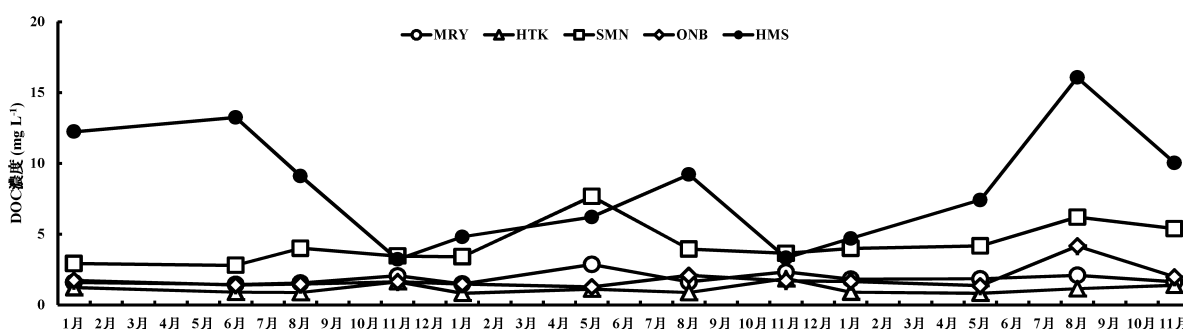


図2 地下水の DOC 濃度

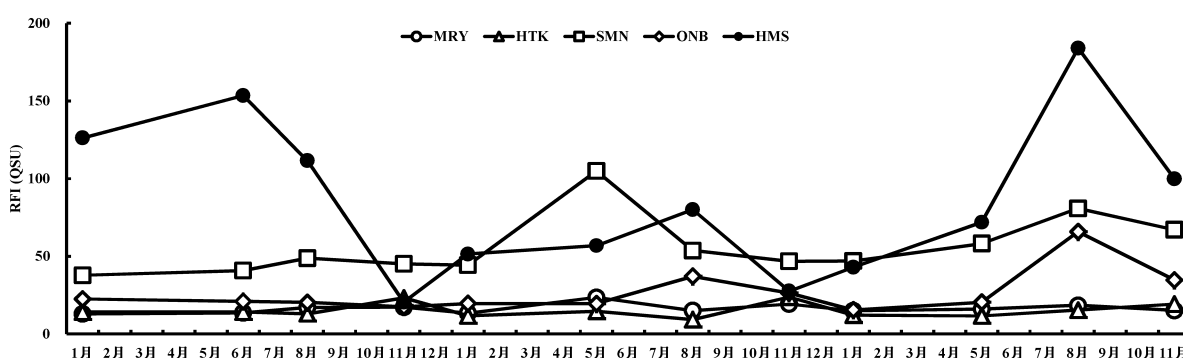


図3 フルボ酸様物質 (Ex320nm/Em430nm) の相対蛍光強度

地下水の紫外可視スペクトルはいずれの試料においても 260nm 付近に滑らかなブロードが見られ、紫外 280nm の吸光度は DOC 濃度と類似した変動傾向を示した。

高速液体サイズ排除クロマトグラムはいずれの試料も保持体積 9.1mL、9.8mL、11.5mL に検出されるピークと 13.0mL 付近に微弱なピークが検出された。これらのピークは、紫外および蛍光検出の両者で見られ、標準物質 (琵琶湖水フルボ酸, 日本腐植物質学会頒布) で検出されたピーク位置および形状と類似していた。また、ピーク強度比 (9.1mL/9.8mL) は、ONB を除くすべての試料で DOC 濃度と同様の変動傾向を示した。DOC 濃度、フルボ酸様物質の相対蛍光強度、紫外 280nm の吸光度、紫外および蛍光で検出された全ピーク面積の間には其々高い正の相関関係がみられた。

本研究で得られた結果から、サロベツ原野の地下水の有機物はフルボ酸様物質を多く含有しており、採取した地点および年月において有機物の濃度および特性に違いがあることが確認された。また、これらの違いは季節間においてもみられ、一部の試料では、1月および11月と5月および8月との間においても生じていることが確認された。以上のことから、地下水における有機物の存在量は流域の環境、例えば積雪や流入量などによる影響を大きく反映するものであることが推測された。

<引用文献>

- [1] 長尾ら, 原子力バックエンド研究, 15, 69-76 (2009)
- [2] 長尾ら, 原子力バックエンド研究, 15, 77-86 (2009)
- [3] 長尾誠也, 環境中の腐植物質 (石渡ら編), 三共出版, 30-48 (2008)

能登半島の貯水池堆積物に基づく集水域環境変動の推定

落合伸也¹、長尾誠也¹、米林甲陽²、福山泰治郎³、山本政儀¹、柏谷健二⁴、中村浩二⁴

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〒921-8836 石川県石川郡野々市町末松 1-308 石川県立大学 生物資源環境学部 環境科学科

³〒399-4598 長野県上伊那郡南箕輪村 830 信州大学 農学部 森林科学科

⁴〒920-1192 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

Ochiai, S., Nagao, S., Yonebayashi, K., Fukuyama, T., Yamamoto, M., Kashiwaya, K., Nakamura, K.: Environmental changes inferred from small reservoir sediments in Noto Peninsula

1. はじめに

地表を構成する地表物質（土砂・有機物など）は、流水の作用によって陸域から海洋へと運搬される。地表環境（地形・植生・土地利用など）の変化はこうした物質の運搬に影響を与えると考えられている。本研究の調査対象地域である能登半島においては、人間活動による地表環境変化（森林・水田の管理放棄などによる植生・土地利用変化）が起こりつつある。こうした環境変化が集水域の物質運搬へもたらす影響の評価のためには、過去から現在に至る環境変化の連続的な把握と、地表物質の運搬過程の解明が不可欠である。本研究では、集水域における物質運搬過程およびその経時的変化を評価するために小規模な貯水池に着目する。集水域から貯水池へ流入し堆積する土砂・有機物の物理特性・有機物特性は、降水量など水文環境や地表環境によって影響されると考えられる。このため、貯水池堆積物を用いて、過去の水文環境変動、地表環境変動を連続的に推定することが可能である。

そこで本研究では、能登半島の貯水池・集水域系における水文・地表環境の経時変化を推定すること、これらの貯水池 - 集水域系における土砂・有機物の運搬過程の解明を目的とする。

2. 調査対象地と手法

2009年10月にビシャグソ池（七尾市）、新池（珠洲市）において、重力落下式コアサンプラーを用いて、それぞれ26cm、31cmの表層堆積物コアを採取した。これらのコアは1cm間隔で切断し、それぞれの試料について以下の有機物特性、物理特性の分析を行った。全有機炭素含有量（TOC）、全窒素含有量（TN）、炭素・窒素同位体比（ $\delta^{13}\text{C}$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ ）は、元素分析装置、質量分析装置によって測定を行った。生物起源シリカ含有量は、Mortlock and Froelich (1989)に基づく吸光光度法によって測定を行った。鉱物粒径は貯水池内由来の有機物、炭酸塩、生物起源シリカの除去後に、レーザー回折粒度分布測定装置によって測定した。

3. 結果と考察

ビシャグソ池においては、堆積物の C/N 比は 10 から 13 を示しており、貯水池内での生物生産を反映する生物起源シリカ量も比較的低い。このことはビシャグソ池堆積物では、集水域由来の有機物の寄与が比較的大きいことを示唆している。この結果は比較的大きな水域面積/集水面積比に関連していると考えられる。C/N 比は上部に向かって徐々に減少しており、同様に降水量変動を反映する鉱物粒径も減少している。これらの結果は、降水量の多い時期に、C/N 比の高い集水域由来の有機物が土砂粒子とともに貯水池に流入しており、降水によるこれらの物質の流入は徐々に減少してきていることを示唆している。

新池においては、C/N 比は 9 前後の値を示しており、ビシャグソ池より小さい。生物起源シリカ量も高い値を示している。このことは貯水池内で生産される有機物がより卓越していることを示唆している。この結果は新池の水域面積/集水面積比（約 10）がビシャグソ池（約 31）より小さいことに関連していると考えられる。深度 10-20cm において鉱物粒径が大きくなる部分が見られ、この部分においては C/N 比もわずかに増加している。これらの結果は、新池においても降水量の多い時期に流域由来の有機物が貯水池に流入していることを示唆している。これらのことから、両池において地表物質の流出に影響を与える環境変化があったことが考えられる。

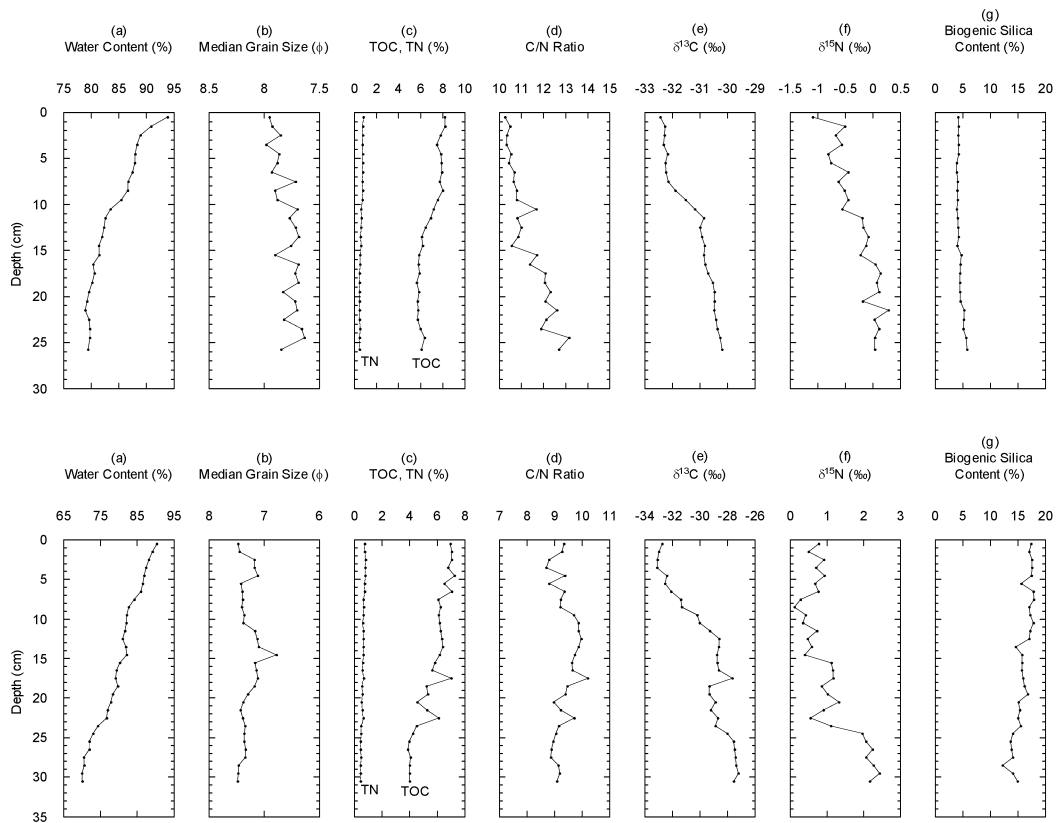


Fig.1 Vertical changes in (a) water content, (b) mineral grain size, (c) TOC and TN, (d) C/N ratio, (e) Carbon isotope ratio $\delta^{13}\text{C}$, (f) nitrogen isotope ratio $\delta^{15}\text{N}$, and (g) biogenic silica content for the cores from Bishaguso-ike (upper graphs) and Shin-ike (lower graphs).

太平洋における¹³⁷Cs の3次元分布とモデル計算結果との比較

青山 道夫¹、中野 英之¹、本井 達夫²、津旨 大輔³、浜島 靖典⁴、深澤 理郎⁵、河野 健⁵、村田 昌彦⁵、
内田 裕⁵、熊本 雄一郎⁵

¹気象研究所 ²気象大学校 ³電力中央研究所 ⁴金沢大学 ⁵RIGC/JAMSTEC

1. はじめに

海洋環境における人工放射性核種は1945年以前には全く存在しなかったものである。2000年代に入ってから行ってきた研究船みらいを主につかっった太平洋の広い範囲での¹³⁷Csの3次元分布の測定解析結果とモデル計算結果から特に海水中蓄積量について報告する。

2. 研究の概要

研究は文部科学省「放射能調査研究費」によって行なわれている。試料採取は、海洋研究開発機構の「みらい」による複数のWOCE再観測航海および2002年の気象庁「凌風丸」による東経165度線での定期海洋観測において行なわれた。図1に概要を示す。得られた試料は、船上で酸を添加し陸上に持ち帰って処理を行い、¹³⁷Cs等を測定した。測定に使用する試料の量が少なくても測定できる方法を開発(Aoyama et al.,2005 ;Aoyama et al., 2008)し採用することにより、試料採取の空間密度を上げることができた。これらのデータを用いて、太平洋の2000年代での¹³⁷Csの精密な3次元分布を得た。また複数の海洋大循環モデル(OGCM)を用いた1945年からの時空間変動の研究を行っている。

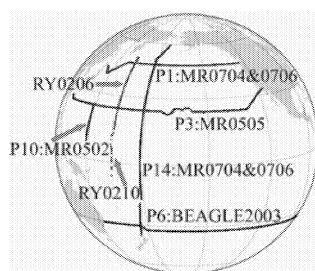


図1 観測航海の概要

3. 結果と議論

1) 太平洋での3次元分布

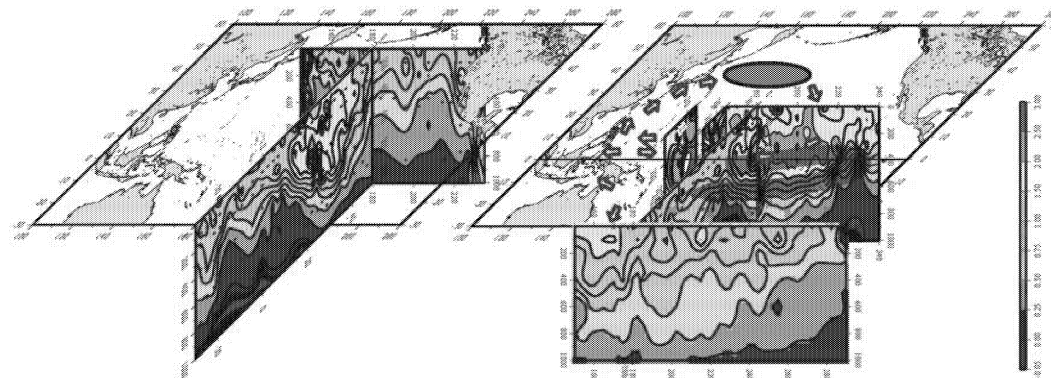


図2 P1とP14での¹³⁷Cs分布(0-1000m深) 図3 P3,P10,RY0206,P6 での¹³⁷Cs 分布(0-1000m深)

東経165度線に沿う¹³⁷Csの断面で見られた濃度極大の特徴(Aoyama et al., 2008, GRL)および北緯24度P3線に沿う¹³⁷Csの鉛直分布の特徴はすでに報告している(青山等, 2008)。図2に示すように東経179度P14線に沿う観測結果でも東経165度線と同様に、深さにして400-600m、密度にして $\sigma_\theta=26.0-26.5$ 付近

に濃度の極大が見出され、これらの極大は、図3 に示すように北緯24 度線日付変更線の東側の深さ400–500m に見られる極大とつながっており、中央モード水による¹³⁷Cs の海洋内部の輸送経路を明瞭に捉えることができた。図3 に示すように、北太平洋中緯度に降下した¹³⁷Cs は、中央モード水による内部輸送(亜熱帯循環内を北緯24 度線日付変更線の東側では南西方向に輸送される)に乗るが、西端で深度が浅くなるとともに赤道に沿う東向き輸送となり、太平洋の東端で赤道を越え、赤道の南で西向きに輸送される。その後一部はタスマン海に輸送される。北太平洋では、一部は亜熱帯循環に沿って日本沿岸に戻ると推測された。

2) 海水中蓄積量の分布

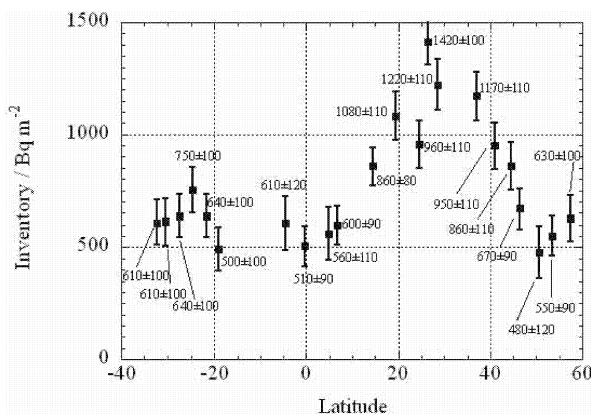


図4 P14 東経179 度線に沿う海水中蓄積量の南北分布 2007 年

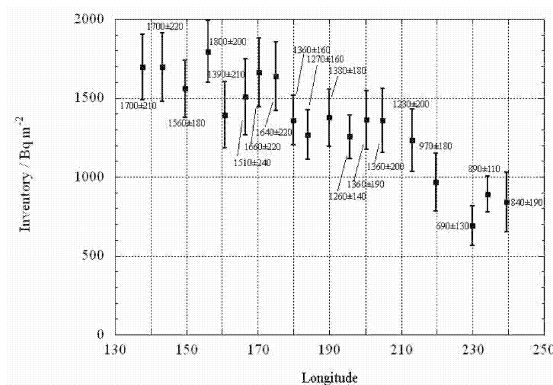


図5 P3 北緯24 度線に沿う海水中蓄積量の東西分布 2005 年

図4 および図5 に東経179 度線に沿う海水中蓄積量の南北分布および北緯24 度線に沿う表面から1000m 深までの¹³⁷Cs の海水中蓄積量の東西分布を示す。北太平洋日付変更線付近での1970 年までの降下量は北緯45 度付近に極大を示し、降下量はおよそ7500 Bq m⁻²、南太平洋でも同様に南緯45 度付近に極大を示し、降下量はおよそ1000 Bq m⁻²であった(Aoyama et al., 2006)。それらに対し、約35 年後の観測結果は極大の緯度は両半球とも赤道方向に20 度分シフトしていること、また半減期を考慮すると、北半球では蓄積量は降下量の約3 分の1 となり、南半球では1.5 倍に増加していることが明らかになった。北緯24 度線に沿う東西分布は、亜熱帯循環西側で蓄積量が多く、東側で少ないという分布を示し、主温度躍層の深さと密接な関係があると考えられる。またモデル計算結果において、半減期を考慮した総降下量とインベントリーの全球分布の比較を行っている(Tsumune et al., 2011)。海域毎に見ると、2003 年時点での北太平洋への総降下量は150.2PBq、インベントリーの総量は86.2PBq で57%に減少している。海域内の分布を考慮すると減少量がさらに大きい地点もあり、観測と概ね一致していると言える。また南太平洋においては、総降下量は20.3PBq、インベントリーの総量は36.7PBq で1.8 倍程度増加し、観測結果とほぼ同様な結果となった。

能登半島における里山周辺河川水中の溶存有機物の挙動と特徴について

鈴木智代¹, 長尾誠也¹, 福山泰治郎², 倉光英樹³, 落合伸也¹, 徳成武勇¹, 山本政儀¹

¹〒923-1224 石川県能美市 金沢大学環日本海域環境研究センター, LLRL; ²〒399-4598 長野県上伊那郡 信州大学農学部; ³〒930-8555 富山県富山市 富山大学大学院理工学研究部

T. Suzuki¹, S. Nagao¹, T. Fukuyama², H. Kuramitsu³, S. Ochiai¹, T. Tokunari¹, M. Yamamoto¹

: Study of characteristics and behaviors of dissolved organic matters in river water at 'Satoyama' in the 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きた。里山の植生管理は、里山の物質循環に作用する重要な役割を担っており、耕地や里山の放棄により自然が荒廃すると、土壌の化学的性質や湧水の水質に影響を及ぼすという報告もある。このことは同時に、山林から河川へ流出する溶存有機物の濃度や構造特性も変化することが考えられる。海洋沿岸域の生態系の豊かさには、山林からの有機物の流出が関与しているとの指摘もあり、山林の環境が変化することによって海洋沿岸域の環境も変化する可能性が指摘されている。里山の放棄が海洋沿岸の生態系へ及ぼす影響を把握するためには、局所的な有機物の挙動だけでなく、流域スケールでの有機物の移行挙動を解明する必要がある。本研究では、里山放棄が問題となっている能登半島に着目した。この里山放棄が及ぼす有機物の濃度・構造特性の変化や有機物の移行挙動を解明し、里山の荒廃が里海の生態系に与える影響を評価することを目的として研究を進める。本年度は、降雨時に見られた有機物の濃度・構造特性の時系列変化について報告する。

【試料採取および分析方法】

河川調査は2009年6月～2010年3月の期間に七尾西湾流域河川の熊木川・日用川・二宮川で行い、河川水・河床堆積物試料を採取した。熊木川では、里山の管理と放棄による寄与を比較するため、人工林の管理放棄が目立つ熊木川上流、比較的人工林が管理されている支流の西谷内川で、またそれらの河川水が合流する熊木川中流、中流から下流域に広がる水田からの排水が流入している熊木川下流でサンプリングを行った。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。

【結果と考察】

今回は2009年7月27日～28日に採取した大雨時の結果に焦点を当てて議論する。2009年7月27日は前日26日から降雨があり（約15mm/h）、河川水位が上昇（最大0.73m）し

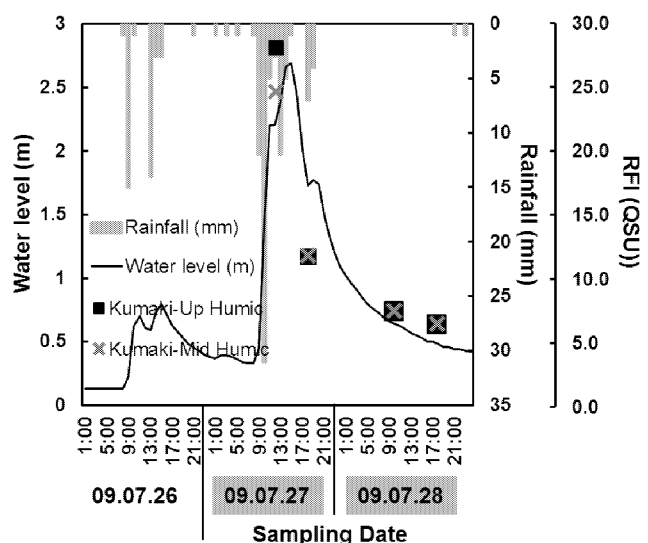


図1. 降雨量と水位、腐植物質量の経時変化

RFIは腐植物質の相対蛍光強度を示す。

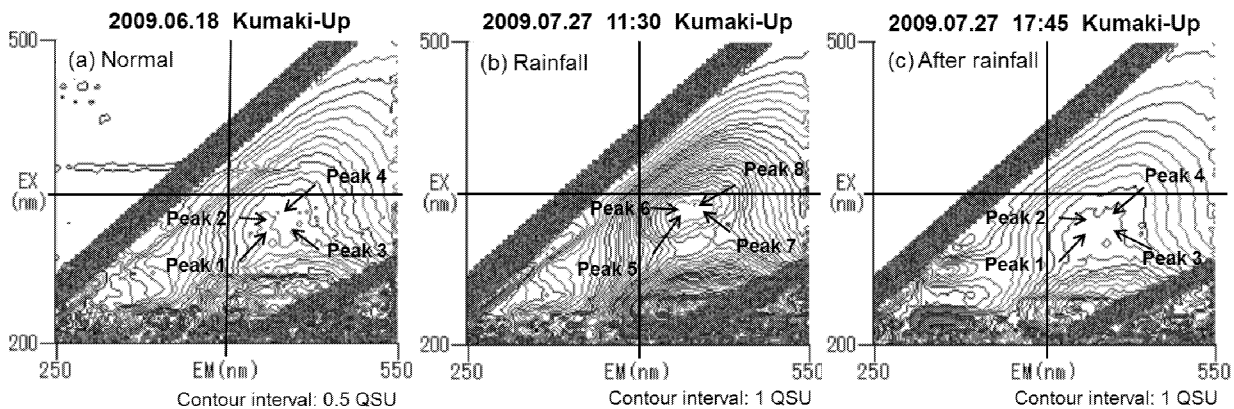


図 2. 熊木川上流の蛍光スペクトル

(a) 定常時、(b) 降雨時、(c) 降雨直後、の際の熊木川上流における蛍光スペクトルを示している。

ていた。27日に熊木川現地を観察したところ、上流の河内周辺の水田で河川水が水田にまであふれていることが確認できた。そのため27日～28日にかけては、上流と中流で、午前と夕方の計4回河川水を採取した。

三次元蛍光スペクトル測定の結果、腐植様物質ピーク（励起波長 Ex / 蛍光波長 Em : 300～340 / 430～465nm）が見られ、濃度を反映する相対蛍光強度（RFI）も高い値で検出された。降雨量・水位と腐植物質の相対蛍光強度の変化について図1に示す。降雨量が減少し水位が低下するに従って、腐植物質の濃度も減少している。これは昨年度報告した液体サイズ排除クロマトグラフィーの結果からも明らかであり、降雨によって流出した画分の寄与が大きいことを示唆している。

さらに、降雨時に流出する物質の特徴を把握するため、定常時と降雨時の蛍光スペクトルを比較した（図2）。腐植様物質のピークに注目すると、図2(a)の定常時と(b)の降雨時にはスペクトル形状が異なっており、降雨時には比較的高波長側にピークが検出された。図2(c)の降雨直後では、(a)定常時と同様のスペクトル形状であることから降雨時には特有の性質をもった有機物がパルス的に流入し、水位ピーク後、定常時とほぼ同じ状態に戻ることが明らかとなった。

また、より高波長域に現れる降雨時の Peak 5 と Peak 8 の相対蛍光強度の比を取り、上流と中流で比較したところ同様な推移が見られた（図3）。この結果から、上流から中流にかけてほぼ同じ蛍光特性を持つ溶解有機物が流入していることが示唆された。

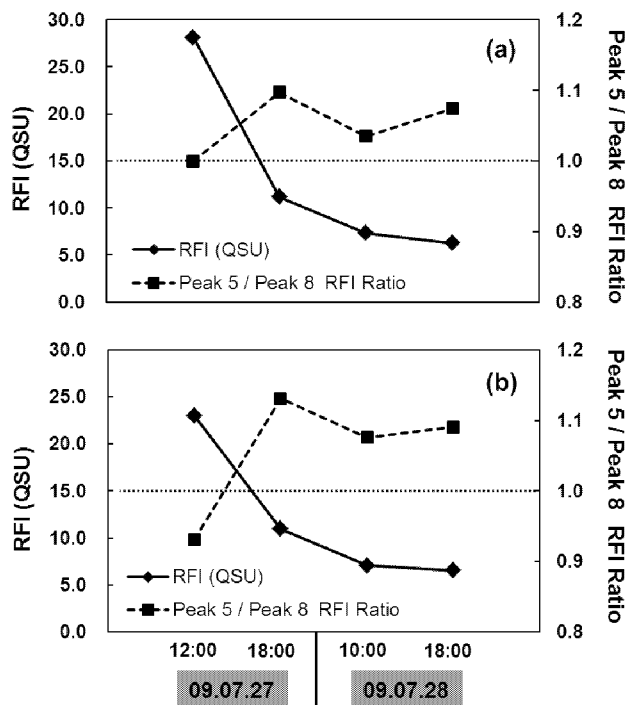


図 3. 腐植様物質のピーク強度と、相対蛍光強度比の経時変化

(a)は熊木川上流

Peak 5 (Ex / Em : 325 / 435 nm), Peak 8 (Ex / Em : 340 / 450 nm)

(b)は熊木川中流

Peak 5 (Ex / Em : 310 / 435 nm), Peak 8 (Ex / Em : 340 / 455 nm)

を示している。

旧ソ連セミパラチンスク核実験場周辺集落の放射能汚染と線量評価

川合健太¹、山本政儀¹、今中哲二²、星正治³

1 金沢大学 環日本海域研究センターLLRL

2 京都大学 原子炉実験所

3 広島大学 原爆放射線医科学研究所

K. Kawai¹, M. Yamamoto¹, T. Imanaka², M. Hoshi³

Retrospective studies on radionuclide contamination and dose estimation
in the vicinity of Semipalatinsk nuclear test site, Kazakhstan

【1. 序論】 低線量放射線被曝によるリスク評価をするにあたり、その対象となる低線量放射線を被曝した集団は非常に少ない。この問題解決に貢献できるフィールドとして数十万とも言われる幅広い年齢層の周辺住民が低線量率低線量で外部・内部被曝を受けてきた旧ソ連(現カザフスタン共和国)核実験場セミパラチンスク(SNTS)周辺住民が上げられる(Fig.1)。本研究施設ではこれまでに、最大の被曝があったとされるドロン村で詳細な土壌採取を行い、Cs-137とPu-239,240の分布を調査した。ドロン集落におけるCs-137の初期沈着量から計算した空間線量は、レンガのTL測定による線量やモデル計算による空間線量と比較的よく一致し、矛盾無く説明できた。このようにして、現在のCs-137沈着量から核実験当時の放射能汚染状況を再現し、過去から現在までの被曝線量を評価できる可能性がでてきた。

本研究では、核実験場の南東に位置するサルジャー、カラウル集落に焦点を当てた。これらの村は1953年の水爆(400 kt)の影響を強く受けたとされている。まずサルジャー、カラウル集落及びその周辺地域の詳細な放射能汚染状況を明らかにし、次にドロン集落で試みたCs-137の初期沈着量から空間線量を計算する手法をサルジャー、カラウル村に適用して空間線量の評価することを目指した。

【2. 方法】 2007年から2010年にかけて、SNTS南東に位置するサルジャー、カラウル集落周辺の89地点において土壌試料採取(深さ30 cm、直径4.7 cmコア、3試料/1地点)を行った。試料採取地点は、予想されるセンター軸に垂直になるように選んだ。すべての土壌試料は風乾し、2 mmメッシュの篩にかけた後に粉碎機で均一にした。この均一な土壌試料を用いてCs-137とPu-239,240を測定した。また核分裂生成物による被曝だけでなく、誘導放射性核種による被曝も考慮する目的でEu-152とCo-60を測定した。さらに核分裂生成核種のフラクシオネーションを検討するためにU-236及びNp-237(U-237)も測定した。本研究では線量率を計算するプログラムとして、Excel Visual Basicを利用したdecay chainを考慮に入れながら爆発後の任意の時間における各核種の放射エネルギーを計算するFPCOMPを使用した。核種のデータについては、日本原子力研究開発機構の核分裂生成物ライブラリーを用いた。

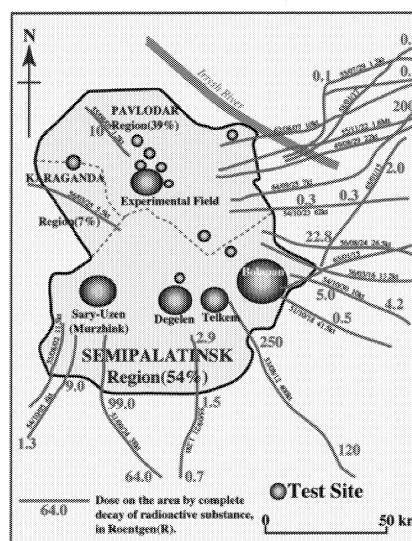


Fig.1 Chart of SNTS with the axes of most significant dose-forming local traces of radioactive pollution

【3. 結果と考察】 サルジャール・カラウル村周辺で得た測定結果を Fig.2 に示す。1 地点で 3 試料の測定値が得られるが、Fig.2 では 3 測定値の幾何平均値をプロットした。Cs-137、Pu-239,240 蓄積量はそれぞれ幅広い範囲でバラツクが、ピークのような分布を示していることが分かる。60 年近く経った今日でも放射性雲が通過した軌跡を確認できる。最大値を示す付近の場所が放射性雲のセンター軸であると考えられる。

計算した核分裂生成物および誘導放射性核種による空間線量率を Fig.3 に示した。各線量率の全空間線量率への寄与の割合は、時間によって変化することが分かる。爆発後 7 時間から 2 日の間では、FP Total と Induced Total の寄与率はそれぞれ約 50%と同程度になる。2 日以降は、Induced Total の大部分が短半減期核種であるために線量率は急速に減衰し、FP Total が支配的になる。5 日以降、U-237 の寄与率が上昇し、10 日での寄与率は 23%(FP Total : 77%)となる。1 年以降では Co-60 による線量率が支配的になる。

Table 1 に今回推定した全空間線量率と線量率データ (Archive data) との比較を示した。FP による線量率は、Cs-137 初期沈着量に依存するために幅広い範囲を持つことになる。Archive data は、本研究で推定した線量率と比較すると 1 - 8 倍高い値となっている。Archive data が本研究の計算値より高くなる理由として、まずフラクショナル効果と考えられる。一般的に FP の沈着放射能比は、核分裂収率から予想される放射能比 (理論値) と異なる。実際に Np-237 データを用いて沈着放射能比を計算すると理論値の 0.7-1.3 倍になる。下限の沈着比を用いると計算値はさらに低くなる。上限の沈着比を用いると計算値は最大で 2 倍ほどになる。他の理由としては Archive data の不確かさが考えられる。もし正確な位置情報が分かれば最適の Cs-137 初期沈着量を用いて比較することが可能となる。本研究で得られた値は、最終的に幅広い線量域での放射線による人体影響に関する研究に寄与できる。

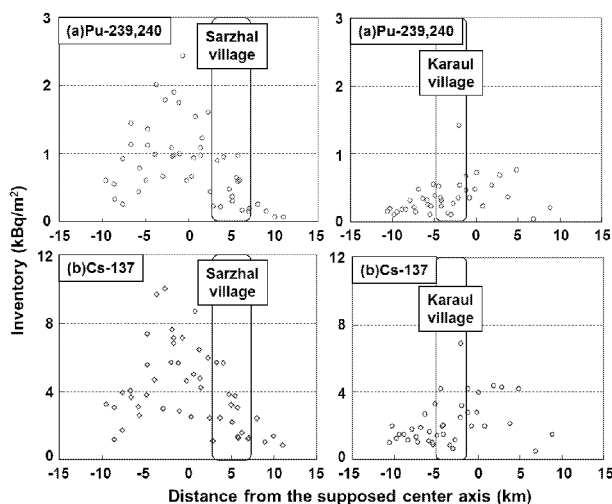


Fig.2 Spatial distributions of (a)Cs-137 and (b)Pu-239,240 inventories measured for soil samples taken from Sarzhal(left panel) and Karaul(right panel)

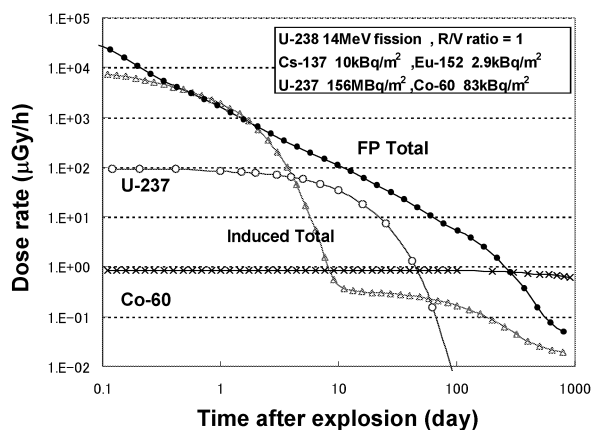


Fig.3 Comparison of calculated dose rates in air by FP Total, Induced Total, Co-60 and U-237

Table.1 Comparison of calculated total dose with archive data

Time after explosion	Dose rate (µGy/h)				Archive data	Monitoring location
	FP	Induced	U-237	Total		
H+2.5h	5800 - 43200	7400	90	13300 - 50700	105240	Karaul
H +24h	700 - 3400	1900	80	2700 - 5400	10787	Sarzhal
H+84h	70 - 500	100	70	240 - 700	1578	Karaul
H+218h	20 - 170	0	30	60 - 200	263	Karaul
H+360h	20 - 120	0	20	40 - 140	132 - 324	Sarzhal

高塩分地下水におけるラジウム同位体の挙動

高田貴裕¹、山本政儀¹、玉村修司²、張 勁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〒098-3221 北海道天塩郡幌延町栄町 5 番地 3 財団法人 北海道科学技術総合振興センター 幌延地圏環境研究所

³〒930-8555 富山県富山市五福 3190 富山大学理学部生物圏環境科学科

T.Takada¹, M.Yamamoto¹, S.Tamamura², J.Zhang³: Behavior of radium isotopes in high saline groundwater

1. はじめに

温鉱泉水中の Ra 同位体の研究は多数行われている。海外では塩濃度の高い地下水中から高濃度の ²²⁶Ra が見出され、塩濃度と ²²⁶Ra 濃度は正の相関関係を示すことが示唆されてきた。国内においては、近年の掘削技術の向上によって沿岸域において大深度(1000 m 以深)の掘削が可能となったことにより、高塩分の深部地下水が得られるようになった。先行研究はこのことに着目し、日本海沿岸域(新潟、富山、石川)のいくつかの高塩分地下水から高濃度の ²²⁶Ra を見出し、その成因について検討が行われた。本研究では、これまでの研究フィールド以外の地域で、本州よりも高塩分濃度の地下水が多数点在している北海道(西部:本研究、中央部:先行研究)を研究対象とし、地下水の特徴、塩分濃度と Ra 同位体濃度の関係を検討して、その起源や高濃度の ²²⁶Ra 成因について考察を行った。

2. 試料採取及び実験方法

研究対象とする北海道は中央部には新第三紀の堆積岩、西部には海底火山活動に由来する緑色凝灰岩が分布しており、多数の高塩分地下水が分布することが報告されている。

試料は源泉に近いところから 20 L 採水(2010 年 8 月)し、U, Ra 同位体を Fe, Ba 共沈にて分離・精製し、α線およびγ線測定を行った。また、温泉水を別途 100 ml 採水したものをイオンクロマトグラフと質量分析計(富山大学)にて主要イオンと水素・酸素安定同位体比の測定、硫酸標準液を用いてアルカリ度の測定も行った。

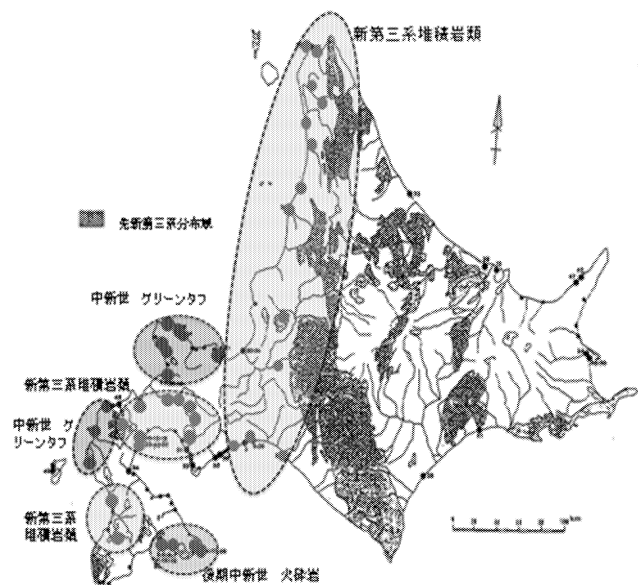


図 1 試料採取地点

3.結果と考察

本研究で得た温泉水とその付近で採取した河川水の水素・酸素同位体比の関係を図2に示す。北海道中央部での先行研究も含めてプロットしてある。河川水の値は世界の天水の平均値(GMWL)よりも高くなっている。これは日本海側冬季の降水による影響だと考えられ、報告されている日本海側冬季の降水の平均値($\delta^{18}\text{O}=8\delta\text{D}+26$)との間にプロットされている。温泉水の多くは天水と海水の混合線との間にプロットされ、これらは天水と海水の混合に由来すると考えられる。また $\delta^{18}\text{O}$ がプラス側にシフトしたのが見られるが、これは水-岩石相互作用によって酸素同位体が交換されたためであると考えられる。また主要イオン成分のダイアグラムより、ほぼすべての温泉水はアルカリ非炭酸塩型に分類され、海水と同様な組成比であることがわかった。以上のことから、本研究で得た温泉水はその大部分が海水または化石海水起源であると考えられる。

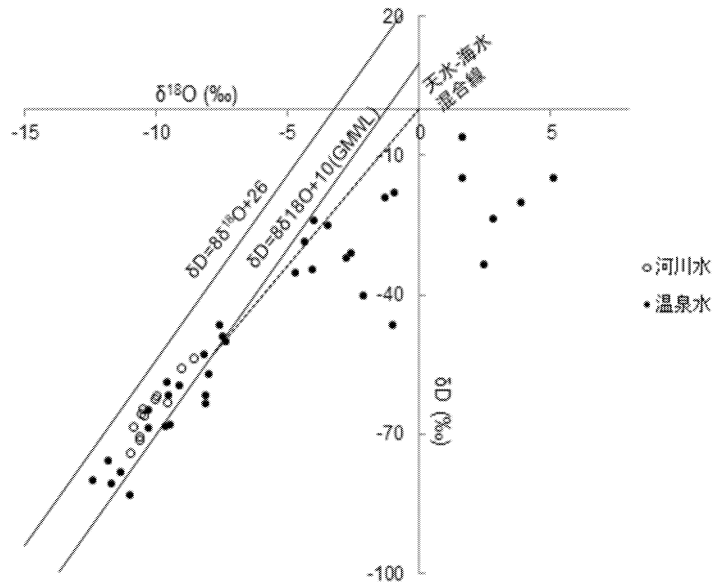


図2 水素・酸素安定同位体比

^{226}Ra 濃度は、3 - 4950 mBq/kg の広範囲で見出された。また ^{238}U は 0.01 - 283 mBq/kg であり、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比は放射平衡時の放射能比より高かった。これは地下水が還元雰囲気であるために U が不溶性の $\text{UO}_2(\text{IV})$ として水中から除去されていると考えられる。温泉水中の ^{226}Ra 濃度と塩分の間には正の相関関係が見られた(図3)。

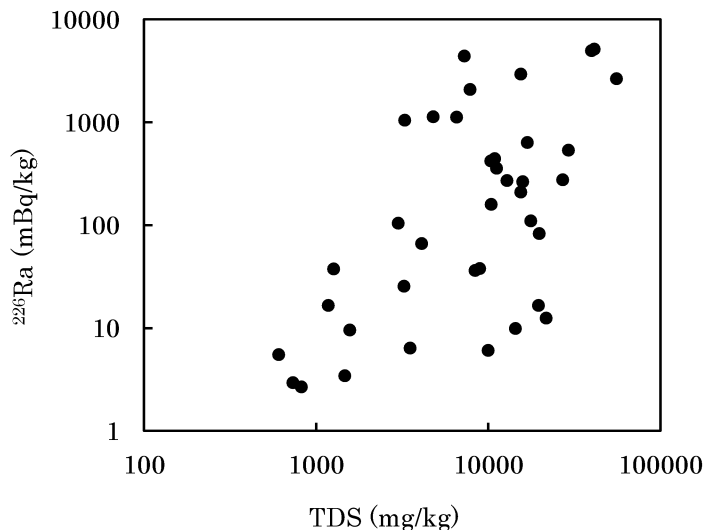


図3 塩分濃度と ^{226}Ra 濃度

高濃度の ^{226}Ra 成因について、水中の放射性核種は、水-岩石反応による岩石溶解や反跳により供給される。温泉水の胚胎している地下環境は一般に還元雰囲気であり、U, Th は水中より除去され、それらが沈着・濃集した表面コーティング層が存在し、壊変することで再び水中へと放出されるが、粘土鉱物への Ra の吸脱着が塩分濃度に依存しているといったプロセスから水中の高濃度 Ra を説明できるのではないかと考えている。今後、帯水層岩石の測定や Ra 同位体を用いたトレーサー実験を通してさらに検討する予定である。

Measurement of Global Fallout ^{236}U in Surface Soil by Accelerator Mass Spectrometry (AMS)

Aya SAKAGUCHI^{1,3}, Kenta KAWAI², Peter STEIER³, Francesca QUINTO³,
Kenta MINO², Jumpei TOMITA², Masayoshi YAMAMOTO²

¹Research Institute for Radiation Biology and Medicine, Hiroshima Univ., Hiroshima 734-5883, Japan

²Low Level Radioactivity Laboratory, K-INET, Kanazawa Univ., Ishikawa 923-1224, Japan

³VERA-laboratorium, Institut für Isotopenforschung und Kernphysik, Universität Wien, Währinger Str. 17, A-1090 Wien

Recently, uranium isotopes ^{236}U ($T_{1/2} = 2.342 \times 10^7$ y, α -decay) has been recognized as one of the “environmental uranium (U) isotopes” due to the development of instruments and measuring techniques of ^{236}U , and applications which use ^{236}U as proxy/tool for environmental and geochemical uranium studies are developing.

The occurrence of ^{236}U on the surface of the Earth’s crust is mainly due to four origins: nuclear reactions of $^{235}\text{U}(n,\gamma)$ mainly induced by (1) the (α,n) reactions on light elements such as Na and Mg and by (2) thermal neutrons derived from cosmic rays, (3) anthropogenic ^{236}U which was found e.g. around nuclear reprocessing facilities, the vicinity of Chernobyl and the depleted uranium (DU) contaminated areas in Kosovo at relatively high $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ atom ratios from 10^{-7} - 10^{-3} , and (4) global fallout of ^{236}U produced by nuclear or thermonuclear atomic bombs, in which the most significant contribution will originate from $^{238}\text{U}(n,3n)^{236}\text{U}$.

Due to its low specific activity, ^{236}U is not measured with sufficient sensitivity by conventional counting techniques, but it can be determined by thermal ionization mass spectrometry (TIMS) and accelerator mass spectrometry (AMS).

In this paper, we report the first results on global fallout ^{236}U in surface soil by AMS. Emphasis was placed on the evaluation of the level and depth distribution of global fallout ^{236}U by using soil samples, coupled with the use of global fallout ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$.

In February 2009, a 30 cm core with 4.7 cm in diameter was taken at the site named T3 in Sakaguchi et al. (2009) at the forest near LLRL. The core was subdivided into 6 parts of 0-5, 5-10, 10-15, 15-20, 20-25 and 25-30 cm depth. The top layer (0-5 cm) of this core was soil of fresh organic appearance and contains only a small amount of inorganic soil compared with the other layers. ^{137}Cs was determined by γ -ray spectrometry using an Ge-detector. Pu isotopes were determined by α -spectrometry after chemical separation and purification. For U analysis, a portion (3-5 g) of soil samples was leached with 8M HNO_3 on a hot plate with continual agitation. The total amount of solution leached was weighed and separated into two aliquots: 1) one third for determining the total amount of leached ^{238}U by α -spectroscopy and 2) two thirds for determining the $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ atom ratio by AMS. For the AMS measurements of $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$ at the VERA facility at the University of Vienna, U in the solution was separated and purified in the same manner as above, but without the addition of ^{232}U tracer. The sputter targets for the AMS measurement were prepared with an iron oxide matrix by calcination at 800°C for two hours after co-precipitation with $\text{Fe}(\text{OH})_3$. These targets were prepared with ^{238}U concentration of 2-3 $\mu\text{g mg}^{-1}$ Fe oxide. The resultant $^{238}\text{U}^{7+}$ currents ranged from 20 to 100 pA, compared to typically 50 nA observed for pure U_3O_8 samples. To achieve sufficient precision of the current measurement, the integration time for $^{238}\text{U}^{7+}$ was extended to up to 1 s. More information on the measurement of ^{236}U by AMS is given by Steier et al. (2010). VERA reaches an abundance sensitivity of $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 10^{-13}$.

Results on ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{236}U in the Ishikawa core sample are presented in Tables 1 and 2. As seen from Table 1, ^{236}U was detected even in the deepest layer of 25-30 cm depth, and ^{236}U concentration was found to be in the range from 7.62×10^6 to 7.62×10^8 (atom g^{-1}), and $(3.85 \pm 0.63) \times 10^{11}$ to $(9.24 \pm 0.43) \times 10^{12}$ (atom m^{-2}) for all of the layers measured. The depth profiles of ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{236}U had a subsurface maximum in the 5-10 cm depth layer below the top fresh-organic soil layer (0-5 cm), and then decreased steeply deeper than this depth. These depth profiles demonstrate that 80% of the ^{137}Cs , 62% of the $^{239+240}\text{Pu}$ and 58% of the ^{236}U remained in the 0 to 10 cm layer out of the total radioactivity up to 30 cm depth. One hundred percent of ^{137}Cs and 98% of ^{236}U and $^{239+240}\text{Pu}$ were in the top 25 cm. Considering these depth profiles, it can be assumed that substantially all deposited ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{236}U have been recovered using the 30 cm core. It is also noted from the depth profiles of the $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ and $^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$ ratios (Table 2) that the downward migration behavior of ^{236}U in the soil is apparently similar to that of $^{239+240}\text{Pu}$. The ^{137}Cs is liable to be retained in upper layers compared with ^{236}U and $^{239+240}\text{Pu}$. The accumulated areal inventories of ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{236}U were 4.340 Bq m^{-2} for ^{137}Cs and 141 Bq m^{-2} for $^{239+240}\text{Pu}$ and $1.48 \times 10^{13} \text{ atoms m}^{-2}$ for ^{236}U . The ratios of $^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$ and $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ were $(4.10 \pm 0.12) \times 10^9$ and $(1.26 \pm 0.04) \times 10^{11} \text{ atoms Bq}^{-1}$, respectively. These values are consistent with previous measurements (Sakaguchi et al., 2009).

Table 1 Depth distribution of concentration and inventory for ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{236}U in 30 cm soil core from Ishikawa in 2009.

Depth (cm)	Total W. (g)	Concentration			Inventory					
		^{137}Cs (mBq/g)	$^{239+240}\text{Pu}$ (mBq/g)	^{236}U (atom/g)	^{137}Cs (Bq/m ²)	%	$^{239+240}\text{Pu}$ (Bq/m ²)	%	^{236}U (atom/m ²)	%
0-5	14.77	45.4 ± 0.23	0.9 ± 0.04	$(1.31 \pm 0.07) \times 10^8$	387 ± 2	8.9	7.63 ± 0.3	5.4	$(1.12 \pm 0.06) \times 10^{12}$	6.3
5-10	56.45	94.54 ± 0.84	2.46 ± 0.07	$(2.84 \pm 0.13) \times 10^8$	3076 ± 27	70.9	80.0 ± 2.4	56.5	$(9.24 \pm 0.43) \times 10^{12}$	52.0
10-15	75.60	12.39 ± 0.11	0.6 ± 0.02	$(7.69 \pm 0.47) \times 10^7$	540 ± 5	12.4	26.0 ± 0.7	18.4	$(3.35 \pm 0.20) \times 10^{12}$	18.9
15-20	69.75	3.73 ± 0.09	0.22 ± 0.01	$(3.04 \pm 0.22) \times 10^7$	150 ± 3	3.5	8.68 ± 0.3	6.1	$(1.22 \pm 0.09) \times 10^{12}$	6.9
20-25	125.93	2.58 ± 0.04	0.22 ± 0.01	$(3.39 \pm 0.25) \times 10^7$	187 ± 3	4.3	16.3 ± 0.5	11.5	$(2.46 \pm 0.18) \times 10^{12}$	13.8
25-30	87.55	N.D.	0.06 ± 0.00 ₃	$(7.62 \pm 0.12) \times 10^6$	N.D.	0.0	2.94 ± 0.2	2.1	$(3.85 \pm 0.63) \times 10^{11}$	2.2
Total					4340 ± 28		141.5 ± 3		$(1.78 \pm 0.05) \times 10^{13}$	

N.D.: Not Detected

Table 2 Depth profile of activity/atom ratios among ^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{236}U in 30 cm soil core from Ishikawa in 2009.

Depth (cm)	Total weight (g)	$^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ (A.R)*	$^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$ (atom/Bq)	$^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$ (atom/Bq)
0-5	14.8	0.0197 ± 0.0008	$(2.89 \pm 0.17) \times 10^9$	$(1.46 \pm 0.10) \times 10^{11}$
5-10	71.2	0.0260 ± 0.0008	$(3.00 \pm 0.14) \times 10^9$	$(1.15 \pm 0.06) \times 10^{11}$
10-15	146.8	0.0481 ± 0.0014	$(6.21 \pm 0.38) \times 10^9$	$(1.29 \pm 0.09) \times 10^{11}$
15-20	216.6	0.0579 ± 0.0023	$(8.16 \pm 0.61) \times 10^9$	$(1.41 \pm 0.11) \times 10^{11}$
20-25	342.5	0.0867 ± 0.0027	$(13.1 \pm 0.98) \times 10^9$	$(1.52 \pm 0.12) \times 10^{11}$
25-30	430.1	N.A	N.A	$(1.31 \pm 0.24) \times 10^{11}$
	1221.9	0.0326 ± 0.0006	$(4.10 \pm 0.12) \times 10^9$	$(1.26 \pm 0.04) \times 10^{11}$

*: Activity Ratio

N.A.: Not Analysis

Sakaguchi A, Kawai K, Steier P, Quinto F, Mino M, Tomita J, Hoshi M, Whitehead N, Yamamoto M: First results on ^{236}U levels in global fallout, Science of the Total Environment, 407, 4238-4242 (2009).

放射性炭素を用いた十勝川水系における溶存有機物の移行挙動研究

長尾誠也¹、藤嶽暢英²、田中孝幸³、荒巻能史⁴、児玉宏樹⁵、山本政儀¹、
内田昌男⁴、柴田康行⁴

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〒657-8501 兵庫県神戸市灘区六甲台 神戸大学大学院農学研究科

³〒035-0064 青森県むつ市港町 日本原子力研究開発機構青森研究開発センター

⁴〒305-8506 茨城県つくば市小野川 国立環境研究所化学環境研究領域

⁵〒840-8502 佐賀県佐賀市本庄町 佐賀大学総合分析実験センター

NAGAO, S., FUJITAKE, N., TANAKA, N., ARAMAKI, T., KODAMA, H., YAMAMOTO,
M., UCHIDA, M., SHIBATA, Y.

Study on transport of dissolved organic matter in the Tokachi River system using radiocarbon.

【はじめに】

陸域から海洋へ供給される溶存態および懸濁態有機物は、地球表層での炭素循環において重要な移行成分と考えられている。特に溶存態有機物の40～80%を占める高分子電解質の有機酸である腐植物質（フミン酸、フルボ酸）は難分解性であり、炭素の貯蔵媒体と考えることが出来る。また、腐植物質は微量金属イオンとの錯形成能が高く、微量金属のキャリアとして作用し、陸域及び海洋沿岸域における生物地球化学的な反応に関与している。近年の土地利用変化に伴い、河川流域土壌の流出、土壌有機物の分解等が進行し、生態系への影響評価が重要な検討課題と考えられている。そのため、地球表層での物質循環に重要な役割を担っている溶存腐植物質の特徴、移行挙動及び起源を推定することが重要となる。

$\Delta^{14}\text{C}$ と $\delta^{13}\text{C}$ 値とを組み合わせた解析評価手法は、陸域での有機物の移行動態を検討するトレーサーとしての有効性が報告され、溶存有機物、腐植物質、懸濁態有機物に適用され始めた (Raymond and Bauer, 2001, Nagao et al., 2004, 2005 等)。本研究では、溶存有機物の大部分を占める腐植物質に着目し、北海道十勝川の上流、中流および下流で採取した腐植物質の放射性炭素と炭素安定同位体比を測定し、流下方向での腐植物質の特徴から、輸送機構を検討した結果を報告する。

【実験】

河川水中の溶存腐植物質は、北海道の十勝川上流の共栄橋において2004年と2005年の6月、下流の茂岩橋では2003年9月と2005年6月、十勝川中流に位置する支流の小河川、売買川では2005年6月にDAX-8樹脂等を用いて河川水から分離した(図1)。DAX-8樹脂に吸着した腐植物質は水酸化ナトリウムで脱離させ、塩酸でpH1に調整し、沈殿するフミン酸と溶液に溶存するフルボ酸に分離した。フルボ酸は再度DAX-8樹脂に吸着させ、その他の有機物と分離し、陽イオン交換樹脂、浸透膜を用いて精製した。最終的には、真空凍結乾燥により粉末状の試料を得た。C-14/C-12の測定は、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、及び国立環境研究所の加速器質量分析計を使用した。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。腐植物質の炭素・水素・窒素含量は元素分析計により測定した。

【結果と考察】

十勝川水系の河川水フミン酸(HA)とフルボ酸(FA)試料の測定結果は図2に示した。十勝川河川水の腐植物質は、 $\delta^{13}\text{C}$ 値が $-27.7 \sim -26.5\text{‰}$ 、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は $-247 \sim +23\text{‰}$ と比較的大きな変動幅を示した。河川水のフルボ酸はフミン酸に比べて $\delta^{13}\text{C}$ 値は低く、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値は高い傾向であった。上流の共栄橋では $\Delta^{14}\text{C}$ 値がプラスであり、核実験以後の有機物が流域から供給されていることを示唆している。フミン酸とフルボ酸の炭素同位体比が異なるのは、土壌

からの溶出部位の違い、あるいは、起源の違いが関与している可能性が考えられる。

また、十勝川下流の腐植物質の $\Delta^{14}\text{C}$ 値はフミン酸とフルボ酸ともに上流に比べて低く、支流の売買川が一番低い値であった。このことは、上流から下流に流下するまでに、比較的古い腐植物質の河川への供給量が増加することが考えられる。

謝辞

本研究での放射性炭素の分析の一部は、日本原子力研究開発機構の施設利用において実施した。記して感謝する。

文献

- Raymond, P.A. and Bauer, J.E. (2001) Riverine export of aged terrestrial organic matter to the North Atlantic Ocean. *Nature*, 409, 1707-1717.
- Nagao, S., Aramaki, T., Fujitake, N., Matsunaga, T. (2004) Radiocarbon of dissolved humic substances in river waters from the Chernobyl area. *Nucl. Instr. Method Phys. Res. B*, 223-224, 848-853.
- Nagao, S., Usui, T., Yamamoto, M., Minagawa, M., Iwatsuki, T. and Noda, A. (2005) Combined use of $\Delta^{14}\text{C}$ and $\delta^{13}\text{C}$ values to trace transportation and deposition processes of terrestrial particulate organic matter in coastal marine environments. *Chem. Geol.*, 218, 63-72.



図1 十勝川水系における観測地点

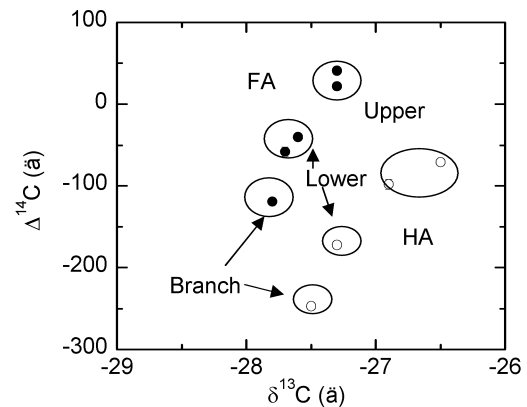


図2 十勝川河川水フミン酸とフルボ酸の $\Delta^{14}\text{C}$ と $\delta^{13}\text{C}$ 値

九頭竜川流域における放射性核種を用いた河川懸濁粒子の流出挙動

金森正樹¹、長尾誠也¹

〒923-1224 石川県能美市 金沢大学環日本域環境研究センターLLRL

M.Kanamori,S.Nagao

Transport Behavior of River Suspended Solids in Kuzuryu River Basin using Radionuclides as tracers

[はじめに]

陸域から沿岸海洋への物質動態において、河川の果たす役割は非常に大きい。河川は周辺土壌を浸食し河川懸濁粒子として海域へと流去させる。河川懸濁粒子には様々な物質が吸着しているため、陸域－海域における物質運搬の担い手となる。そのため、河川懸濁粒子の濃度と特徴を分析することにより、陸域－海域の物質動態を把握することができる。しかし、日本において、河川懸濁粒子の特徴に着目した研究例は少なく、流域スケールでの研究もほとんど行われていない。本研究では、福井県に位置する九頭竜川流域における物質動態を評価するために、放射性核種の ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ 、 ${}^{137}\text{Cs}$ をトレーサーとして検討することを試みた。上記の3核種は大気から土壌表層へと沈着し、微細な土壌粒子に吸着し、河川に負荷されても容易に脱着しないことが知られている。また、粒子の供給源毎の放射能濃度比が異なることから、その流出挙動においてトレーサーとして用いた。

[方法]

九頭竜川水系は146の支流から構成されている。本研究では、主要な支流の日野川と九頭竜川本流の下流域の各1地点において河川水約120Lを流心から採取後、連続遠心機を用いて河川水から懸濁粒子のみを分離し、凍結乾燥した。これらの試料を均質化した後に封入し、 γ 線スペクトリーにより ${}^7\text{Be}$ 、 ${}^{137}\text{Cs}$ 及び ${}^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ を定量を行った。なお、検出限界以下であった試料に関しては、尾小屋地下実験施設のGe半導体検出器を用いて定量分析を行った。

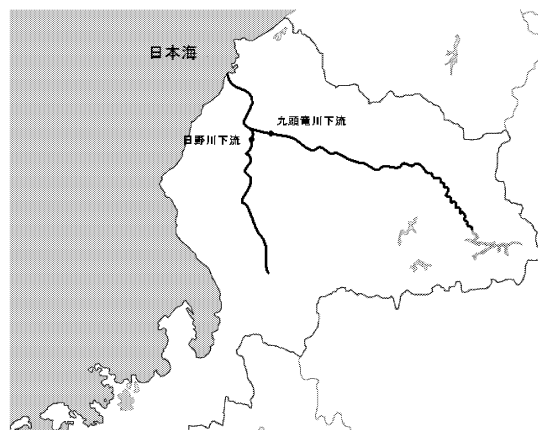


図1 九頭竜川流域における試料採取地点

[結果と議論]

採取日の河川水流量と懸濁粒子量の関係を表1に示す。九頭竜川では、流量の増加とともに緩やかに増加するが、流量 $130\text{ m}^3/\text{s}$ 以上では逆に減少した。一方、日野川では、流量の増加とともに急激に増加する変動を示した。これは、流域周辺に

林が多い九頭竜川に比べて、日野川では比較的平野の面積が多いため、懸濁粒子の流出挙動に違いが存在する。

それぞれの核種の放射能濃度と懸濁粒子量の関係を図2に示す。九頭竜川では懸濁粒子量が増加した場合、 ^7Be 、 $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ の濃度も増加する傾向が見られた。しかし、 ^{137}Cs の濃度変化と懸濁粒子量に相関性は見られず流量に関係なくほぼ一定値となった。また日野川では、懸濁粒子量と放射能濃度には相関性が見られなかったが懸濁粒子量が多い場合でも、放射能濃度の増加は認められなかった。これは、流量が増加した際には土壌浸食量が増加し、これらの3核種の濃度が低い土壌の浸食量が増加するため希釈されること、あるいは、3核種の濃度が低い土壌からの寄与が大きいためであることが考えられる。そのため、九頭竜川では表層流去によって、土壌表面の粒子が河川懸濁粒子として供給されることが主な供給プロセスと考えられる。日野川では、九頭竜川とは異なり、表層流去よりも土壌浸食が大きな因子となっていると考えられる。

これらの結果から、河川に負荷される懸濁粒子は河川流域環境や水の供給経路等の特徴に関連して変動することが明らかになった。

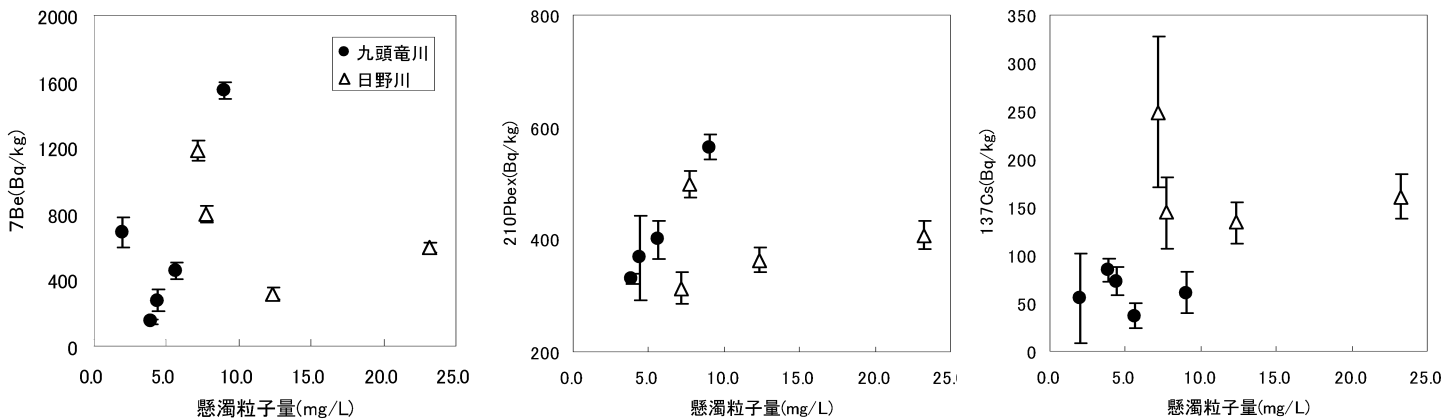


図2 懸濁粒子濃度と放射性核種濃度との関係

表1 九頭竜川河川懸濁粒子の放射性核種濃度		流量 (m^3/s)	SS量 (mg/L)	^7Be (Bq/kg)		$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ (Bq/kg)		^{137}Cs (Bq/kg)	
採取日時									
九頭竜川	2010/6/17	83.1	5.6	454	± 49	400	± 34	9	± 2
	7/6	165.5	4.4	276	± 66	367	± 75	8	± 2
	9/14	134.4	9.0	1546	± 48	565	± 21	18	± 3
	10/26	71.0	3.9	147	± 18	331	± 9	8	± 2
	11/22	45.2	0.6	1090	± 105	453	± 83	9	± 4
	2011/4/13	96.2	2.1	171	± 11	120	± 6	14	± 3
日野川	2010/6/14	27.8	7.7	797	± 52	498	± 23	15	± 5
	7/6	47.0	12.3	318	± 38	364	± 21	14	± 4
	9/14	48.2	23.2	599	± 29	408	± 26	18	± 3
	10/26	48.0	7.2	1181	± 60	313	± 28	41	± 9
	11/22	18.2	1.3	842	± 87	445	± 75	3	± 3
	2011/4/13	10.4	8.2	597	± 25	336	± 13	15	± 1

薄い逆同時計数用プラスチックシンチレータによる Ge 検出器の宇宙線成分の除去

浜島靖典

〒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

HAMAJIMA, Y.

Reduction of the cosmic ray components of the Ge detector utilizing the thin plastic scintillators for anticoincidence

【緒言】 Ge 検出器のバックグラウンド(BKG)成分の一つに、2 次宇宙線成分のミュー粒子に由来する成分がある。この成分を除去する一手段として、遮への外側に数センチ厚のプラスチックシンチレータ(PS)を設置し、Ge 検出器との逆同時計数が行なわれる。この方法では PS の事象が 1k cps 以上と多いため、Ge の真の事象を逃すことがある。この問題を解決するため、また、簡便な取扱いと安価に製作する目的で、Ge 検出器近くの内側鉛遮への間に挿入する薄い PS、波長変換光ファイバー(WSF)、小型の光電子増倍管 (PM) を用いて Ge 検出器用の宇宙線除去装置の実用機を作成し宇宙線成分の除去を試みた。2008 年本会報告 (1P22) の基本設計を一部変更し基礎データと共に報告する。

【装置】 PS は KURARAY 製 SCSN-81 が入手困難なため、ELJEN TECHNOLOGY 社 EJ-200 (180×180 mm 厚さ 3 mm, ピーク発光波長 425 nm (青)) に変更した。PS 周囲に幅 1.2 mm 深さ 2.0 mm の溝を彫り、BICRON 社の BCF-91A (直径 1.0 mm, ピーク発光波長 494 nm (緑), 減衰時間 12 n sec, 減衰長 3.5 m 以上)WSF を挿入し先端に光コネクタを取り付けた。PS は酸化チタン反射材を塗布したフィルムで覆い遮光した。PM は細く小型の浜松ホトニクス製 H3165-10 (1/2 インチ; バイアルカリ光電面, 感度波長 300-650 nm, ピーク 420 nm) で、先端に



【結果と考察】 基礎データは 2008 年に本会で報告した。追加変更した PS, 光コネクタ, クリアファイバーによる性能, 検出効率等を改めて報告する。

PS 表面の保護等も行ったので、本装置は宇宙線除去装置として充分実用機として簡便に使用可能である。

PS 表面の保護等も行ったので、本装置は宇宙線除去装置として充分実用機として簡便に使用可能である。

平成22年度見学来訪・出張の記録

- 平成 22. 4.27、4.30、6.28、7.29、8.26、9・30、10.29、12.17、23.1.17
金沢工業大学 南戸秀仁教授研究室 小林 晴紀 氏 当施設、尾小屋地下測定室で測定
5.10-12 国立環境研究所 研究員 松田 あゆり 氏 研究打ち合わせ
5.14 山口大学農学部 教授 進藤 晴夫 氏 研究打ち合わせ
5.16-20 長尾教授「IAP2010（第6回環境汚染におけるコロイド界面現象と界面科学の取り組み国際会議）」参加のため中国へ出張
5.24-27 長尾教授「AOCRP-3(第3回アジア・オセアニア地区放射線防護国際会議)」(千葉) 参加
6.26-7.3 長尾教授「第15回国際腐植物質学会国際会議」参加のためスペインへ出張
5.30 神戸大学 教授 藤嶽 暢英 氏 奥山 優衣 氏、川端 訓功 氏 研究打ち合わせ
7.8-9、9.13-17、12.7~12、23.2.14
(財) 海洋生物環境研究所 及川 真司 氏 共同研究のため来所
7.21 日本原子力研究開発機構 田中 忠夫氏、寺島 元基氏、東京大学 助教 斉藤 拓巳氏、東北大学 助教 桐島 陽 氏 研究打ち合わせ
7.29 石川県水産総合センター 仙北屋 圭 氏、田中 正隆 氏、辻 俊宏 氏 研究打ち合わせ
8.1-3 環境放射能・放射線夏の学校開催 (金沢)
8.30 香川大学農学部 教授 多田 邦尚 氏 研究打ち合わせ
9.13 国立環境研究所 荒巻 能史 氏 研究打ち合わせ
9.19-29 山本教授「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、
The IV International Conference on "Medical and biological and radio-ecological problems on uranium- and oil-producing regions"参加のためカザフスタン共和国へ出張
10.6-10 長尾教授、落合博士研究員「The 7th East Asia International Workshop Present Earth Surface Processes and Long-term Environmental Changes in East Asia」参加のため韓国に出張
10.13-15 長尾教授「第5回地球研国際シンポジウム」(京都) 参加
10.17-20 長尾教授、落合博士研究員「The 4th International Symposium on Environment of Rim of the Japan/East Sea」参加のため韓国へ出張
10.23-30 井上助教「Environmental Radioactivity 2010」参加のためイタリアへ出張。
10.25-30 浜島助教「Environmental Radioactivity 2010」参加のためイタリアへ出張。
12.1 厚生労働省健康局総務課 課長補佐 名越 究 氏 研究打ち合わせ
12.2 国立台湾大学 林 俊全 氏 研究打ち合わせ
12.10 海洋生物環境研究所 森菌 繁光 氏 共同研究打ち合わせ
12.14 理学部化学科3年生43名実習、尾小屋地下測定室見学
- 平成 23. 1.26-27 気象研究所 青山 道夫 氏 研究打ち合わせ
1.11-14 山本教授「第16回広島国際シンポジウムー広島の高い雨と関連する課題ー」(広島)参加
1.14-16 長崎大学大学院医歯薬学総合研究科原爆後障害医療研究施設 助教 七條 和子 氏 研究打ち合わせ
1.19-22 長尾教授「International Symposium on the Sustainability and Productivity of Coastal Resources」(長崎) 参加
3.2-9 産業技術総合研究所 島村 道代 氏 共同研究のため来所
3.13-15 広島大学 助教 坂口 綾 氏 研究打ち合わせ
3.22-24 (財) 海洋生物環境研究所 及川 真司 氏 研究打ち合わせ



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