

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 2021.4～2022.3



調査船北光丸からみた釧路港と海氷

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	12
2-4. 研究指導	14
2-5. その他	14
3. 研究報告	
赤城大沼底層水における放射性セシウム濃度増加要因の検討	16
日本海表層における PAHs の経年変動解析	18
Study on fate of polycyclic aromatic hydrocarbons in coastal marine environments	20
4. 記録	
令和三年度見学来訪・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
- ・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 浜島 靖典 (hamajima@se.kanazawa-u.ac.jp)
- ・研究員 西川 方敏
- ・事務補佐員 茶木 春奈 (chaki@staff.kanazawa-u.ac.jp)

学生

- ・博士後期課程 3 年 Baterdene Ariunsanaa
- ・博士前期課程 2 年 亀山 紘旭
- ・博士前期課程 2 年 Rodrigo Jose Mundo Duenas
- ・博士前期課程 1 年 田中 さき
- ・化学科 4 年生 畠山 陽多
- ・化学科 4 年生 藤田 知樹
- ・化学科 4 年生 真下 海成

2. 研究活動

2-1. 研究概要

本低レベル放射能実験実験施設では、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、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。

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」の概念を導入して研究に取り組む必要がある。以下には、令和3年度の活動により、それぞれの調査研究で得られた成果を紹介する。

2-1-1. 能登半島における統合環境研究

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実施している。

能登半島中部に位置する七尾西湾において、表層堆積物および堆積物コア試料の大気由来放射性核種 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 、粒径、帯磁率の分布に基づいて七尾西湾での堆積環境を検討した。その結果、表層堆積物中 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 濃度、及びこれらのインベントリ（蓄積量）は、主要河川が流入する七尾西湾西部で高く、中央部と東部では低い傾向がみられ、河川の影響は主に西部に限定され、湾全体には及んでいないことが示唆された。また、中央部・東部では堆積物中 ^{137}Cs インベントリは、大気からの沈着量を示す陸上土壌中のインベントリよりも著しく低く、 ^{210}Pb インベントリは陸上土壌と同レベルか低い値を示した。このことから、中央部・東部での ^{210}Pb 、 ^{137}Cs の収支は蓄積（河川からの流入）よりも再浮遊等による侵食が卓越していることが示唆された。表層堆積物の粒径は中央部・東部で粗粒になっており、この海域では比較的強い流れにより、細粒堆積物が堆積しにくい環境であることが推定された。

2-1-2. 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、2021年4月から2022年3月まで1ヶ月に1回の水質観測を5測点で実施した。2021年1月から3月までの観測データも加えて、COD濃度変動に関与する有機物の動態の支配要因として重要な湖内の水質環境について、特に降雨の影響について検討した。その結果、木場潟の湖内生産は6月～9月にかけて活発となるが、降雨の影響として、初期には懸濁粒子流入量の増加が支配的であるが、大量の降雨2日～4日間は懸濁粒子濃度が低下する傾向が認められた。また、湖内に設置した連続採水器を用いた1時間毎、24時間の連続観測の結果、短時間に降雨ピークが複数回発生する場合には、段階的に水質の変化として反映されることが明らかとなった。降雨の影響を定量的評価するためには、降雨量とともに降雨の降り方による個別の解析が重要であり、降雨影響のシミュレーションの信頼性を向上するためには、継続しての観測が求められる。

2-1-3. 東アジアにおける動態解析研究

1) 西部北太平洋亜熱帯域における多環芳香族炭化水素類の水平分布解析

西部北太平洋亜熱帯域における表面海水中の溶存態多環芳香族炭化水素類（polycyclic aromatic hydrocarbons: PAHs）PAHs 濃度は、基本的に日本列島に近い沿岸側で低く、外洋の方で高い傾向が認められた。PAHs 水平分布を海洋モデル（塩分と海流）と比較した所、溶存態 PAHs 濃度は黒潮の主軸付近で特に高く、黒潮内側域と比べ黒潮外側域で高いことが分かった。この傾向は、2020 年の西部北太平洋亜熱帯域における PAHs 水平分布と矛盾しなかった。「みらい」研究航海による黒潮続流付近の PAHs の観測結果と合わせて、広域的な溶存態 PAHs の移行過程について、海水循環トレーサー（Ra-226, Ra-228, I-129）を用いて解析している。また、黒潮内側域での PAHs の濃度低下の要因について、除去過程（生物ポンプや分解など）を含めて検討している。

2) 河川水中の多環芳香族炭化水素類の溶存形態別分離手法の開発

本研究では、環境水中の PAHs の溶存形態の把握を目的とし、カチオン性ポリマーコーティング濾紙（PcGF）を用いて親水性画分としてふるまう PAHs の分離手法を検討した。堆肥とピート土壌から抽出したフミン酸を用い、PAH 混合溶液に添加してフミン酸と結合している画分（PcGF 吸着画分）とフリーの PAHs を分離した。BaP に関しては、水系のフミン酸（10-15%）とフミン酸（25%）との結合に比べて高い（60-90%）親水性画分の存在割合であった。また、堆肥抽出フミン酸は、ピート抽出フミン酸に比べて 1 桁高い PAH に対する結合のキャパシティーを示した。これは、フミン酸の特徴が PAHs の環境動態を支配する可能性があることを示唆している。

3) $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比からみた日本海の粒子吸着性成分の挙動

^{228}Th （半減期 1.91 年）は海洋環境において粒子吸着性であり、溶存性である親核種 ^{228}Ra との放射能比（ $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比）は、粒子吸着性成分の挙動を探る重要な指標となる。表層-水深 250 m においては、対馬海盆・大和海盆域に比べ、日本海盆域において 0.15–0.6 と高く変動幅の大きい $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比がみられた。日本海盆域の $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比は、リマン海流など他の水塊の寄与、およびその混合比の差を反映していることが考えられた。

2-1-4. 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・群馬県内河川・山岳湖沼での放射生セシウムの動態

群馬県内の利根川上流では群馬水試の協力の下に継続した調査を行った。令和 3 年度は、4 月、8 月、11 月、令和 4 年 2 月の計 4 回採水し、放射性セシウム濃度の濃度レベルとその変動を調べた。その結果、河川水中の放射能濃度は、降雨の影響のある調査を除いて平成 28 年度からほぼ横ばいで推移していた。また、福島県夏井川と鮫川の 2011 年から 2020 年までの観測結果をまとめて解析した。2011 年から溶存態と懸濁態を合計した ^{137}Cs 全放射能濃度は、降雨時の調査を除き、指数関数的に時間の経過とともに減少していた。一方、降雨時には放射能濃度が最大で 1 桁高くなり、その大部分が懸濁態の寄与であることが明らかとなった。一方、2016 年以降の平水時には、懸濁粒子濃度と放射性セシウム濃度には負の相関性が存在し、事故後 6 年目以降の放射性セシウムの移行動態は、河床堆積物とともに流域からの懸濁粒子の寄与が変動要因として考えられる。

赤城大沼の湖心で湖水の成層が系さされる 7 月、8 月、10 月に鉛直的に 5 層の湖水を採取し、放射性セシウム濃度を全濃度と溶存態濃度を測定し、その差分を懸濁態として分析した。その結果、夏季の成層期には、底層の放射性セシウム濃度が高く、7 月から 10 月にかけて増加した。また、アンモニウムイオン濃度と正の相関性を示したことから、有機物の分解により生成したアンモニウムイオンとのイオン交換反応により底層水の懸濁粒子、あるいは湖底堆積物より溶出した可能性が示唆された。

2) ^{134}Cs 濃度からみた北海道東沖の海水循環

水産資源研究所 (釧路分室) の協力により, 2020-2021 年に採取した表層海水の ^{134}Cs 濃度分布を求めた。 ^{134}Cs 濃度は、先に得られた 2018-2019 年に比べ、特に 2020 年に増加傾向がみられた (0.5-1 mBq/L)。これは、FDNPP から直接流出した放射性セシウムの垂寒帯循環による道東海域に流入の寄与が大きくなったことを反映する。

2-2. 研究業績

(1) 学術論文

- 1) Inoue, M., Hanaki, S., Takehara, R., Kofuji, H., Matsunaka, T., Kuroda, H., Taniuchi, Y., Kasai, H., Morita, T., Miki, S., Seiya Nagao, S., 2021, Lateral variations of ^{134}Cs and ^{228}Ra concentrations in surface waters in the western North Pacific and its marginal sea (2018–2019): Implications for basin-scale and local current circulations. *Progress in Oceanography*, **195**, 102587.
- 2) Inoue, M., Hanaki, S., Kameyama, H., Kumamoto, Y., Nagao, S., 2022, Unique current connecting Southern and Indian Oceans identified from radium distributions. *Scientific Reports*, **12**, 1781.
- 3) Iwai, H., Yamamoto, M., Matsuo, M., Liu, D., Fukushima, M., 2021, Biodegradation and structural modification of humic acids in a compost induced by fertilization with steelmaking slag under coastal seawater, as detected by TMAH-py-GC/MS, EEM and HPSEC analyses. *Analytical Sciences*, **37**, 977-984.
- 4) Iwai H., Mundo R., Nagao S., 2021, A method for partitioning dissolved polycyclic aromatic hydrocarbons associated with humic substances using polyethylenimine-coated glass fiber filter. *RSC Advances*, **11**, 28704-28710.
- 5) Katsumi, N., Kusube, T., Nagao, S. and Okochi, H., 2021. The input–output balance of microplastics derived from coated fertilizer in paddy fields and the timing of their discharge during the irrigation season. *Chemosphere*, **279**, 130574.
- 6) Minami, M., Mori, T., Honda, Y., Ueno, K., Murakami, T., Matsunaka, T., Wang, J., Zhu, L., Takano, A., Nakane, T., 2022. Relationship between ephedrine alkaloid profile in *Ephedra gerardiana* and soil characteristics of glacial landforms in southeastern Tibetan Plateau, China. *Journal of Natural Medicines*, in press.
- 7) Misonou, T., Tsuruta, T., Shiribiki, T., Nakanishi, T., Nagao, S., Ochiai, S., Sanada, Y., 2021. Dynamics of radioactive cesium in coastal area linked with river discharge. *Journal of Coastal Research*, **114** (sp1), 315-319.
- 8) Mundo, R., Matsunaka, T., Iwai, H., Ochiai, S., Nagao, S., 2021. Geochemical Control of PAHs by Inflowing River Water to West Nanao Bay, Japan, and Its Influences on Ecological Risk: Small-Scale Changes Observed under Near-Background Conditions at an Enclosed Bay. *Int. J. Environ. Res. Public Health*, **18**, 10310.
- 9) Nagao, S., Kanamori, M., Shimamura, A., Morokado, T., Putra, D., Fujita, T., Tomihara, S., Ochiai, S., 2021. Temporal variation in radiocesium concentrations in waters of the Natsui and Same Rivers, south Fukushima Prefecture, Japan from 2011 to 2020. *Radiation Protection Dosimetry*, accepted.
- 10) Nakakuni, M., Loassachan, N., Ichimi, K., Nagao, S., Tada, K., 2022. Biophilic elements in core sediments as records of coastal eutrophication in the Seto Inland Sea, Japan. *Regional Studies in Marine Science*, **50**, 102093.

- 11) Nara, F.W., Watanabe, T., Matsunaka, T., Yamasaki, S., Tsuchiya, N., Seto, K., Yamada, K., Yasuda, Y., 2022. Late-Holocene salinity changes in Lake Ogawara, Pacific coast of northeast Japan, related to sea-level fall inferred from sedimentary geochemical signatures. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, **592**, 110907.
- 12) Ochiai, S., Fujita, A., Tokunari, T., Sakai, H., Nagao, S., 2022. Distributions of ^{210}Pb , ^{137}Cs , and physical properties in bottom sediments of West Nanao Bay, Japan, *Radiation Protection Dosimetry*, accepted.
- 13) Putra, D. I. P., Ochiai, S., Tomihara, S., Prihatiningsih, W. R., Makmur, M., Nagao, S., 2021. Determination of Low Level ^{137}Cs in Environmental Water Sample Using AMP Method and a Review Comparing with Other Adsorbents. *Journal of Hunan University (Nature Sciences)*, **48** (6), 600-1195-1-SM.pdf.
- 14) Tanaka, K., Nagao, S., Kitade, Y., Niki, M., Katsumata, T., Miyama, T. and Yoshinari, H., Spread of Fukushima-derived radiocesium over the coastal ocean in response to typhoon-induced flooding in September 2011. *Limnology and Oceanography*, accepted
- 15) Udaanjargal, U., Hasebe, N., Davaasuren, D., Fukushi, K., Tanaka, Y., Gankhurel, B., Katsuta, N., Ochiai, S., Miyata, Y., Gerelmaa, T., 2021. Characteristics of lake sediment from the southwestern Mongolia and comparison with meteorological data. *Geosciences*, **12**, 7.
- 16) Ueda, S., Hasegawa, H., Ohtsuka, Y., Ochiai, S., Tani, T., 2021. Ten-year radiocesium fluvial discharge patterns from watersheds contaminated by the Fukushima nuclear power plant accident. *Journal of Environmental Radioactivity*, **240**, 106759.
- 17) Watanabe, T., Ishii, C., Ishizaka, C., Niwa, M., Shimada, K., Sawai, Y., Tsuchiya, N., Matsunaka, T., Ochiai, S., Nara, F.W., 2021. Quantitative and semi-quantitative analyses using a portable energy dispersive X-ray fluorescence spectrometer: Geochemical applications in fault rocks, lake sediments, and event deposits. *Journal of Mineralogical and Petrological Sciences*, **116**, 140-158.
- 18) Xing, W.L., Yang, L., Zhang, H., Zhang, X., Wang, Y., Bai, P.C., Zhang, L.L., Hayakawa, K., Nagao, S., Tang, N., 2021. Variations in traffic-related water-soluble inorganic ions in PM_{2.5} in Kanazawa, Japan, after the implementation of a new vehicle emission regulation. *Atmospheric Pollution Research*, **12**, 101233.
- 19) Xing, W.L., Yang, L., Zhang, H., Zhang, X., Wang, Y., Bai, P.C., Zhang, L.L., Hayakawa, K., Nagao, S., Tang, N., 2022. Variations in traffic-related polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} in Kanazawa, Japan, after the implementation of a new vehicle emission regulation. *Journal of Environmental Sciences*, **121**, 38-47.
- 20) Zhang, L., Yang, L., Bi, J., Liu, Y., Toriba, A., Hayakawa, K., Nagao, S., Tang, N., 2021. Characteristics and unique sources of polycyclic aromatic hydrocarbons and nitro-polycyclic aromatic hydrocarbons in PM_{2.5} at a highland background site in northwestern China. *Environmental Pollution*, **274**, 116527.

(2) 本・総説・資料・報告書

- 1) Nagao, S., 2021. Impacts of Fukushima Nuclear Accident on Freshwater Environments. Springer, Songapore, p.247.
- 2) Matsunaka, T., Nagao, S., Inoue, M., Taniuchi, Y., Kasai, H., Takahashi, T., Matsumura, M., Sueki, K., Sasa, K., 2021. Surface distribution of iodine-129 in the Okhotsk Sea, *UTTAC ANNUAL REPORT 2020*, UTTAC-90, 20.

- 3) Matsumura, M., Sasa, K., Takahashi, T., Sakaguchi, A., Matsunaka, T., Sueki, K., 2021. The Performance of Iodine-129 AMS measurements at the University of Tsukuba (FY 2020), *UTTAC ANNUAL REPORT 2020*, UTTAC-90, 21-22.
- 4) Matsumura, M., Sasa, K., Takahashi, T., Sakaguchi, A., Matsunaka, T., Sueki, K., 2021. Assessing of iodine-129 in the chemical sample preparation rooms for AMS, *UTTAC ANNUAL REPORT 2020*, UTTAC-90, 23.
- 5) Ochiai, S., Ueda, S., Nagao, S., Tsuji, H., Tomihara S., Watanabe, S., Suzuki K., 2021. Spatial and temporal changes of ^{137}Cs concentrations in river waters and correlation with the radiocesium inventory in Fukushima and adjacent areas, In Nagao S. (eds) *Impacts of Fukushima Nuclear Accident on Freshwater Environments*, Springer, Singapore, 51-64.
- 6) Ueda, S., Hasegawa, H., Kakiuchi, H., Ochiai, S., 2021. Spatial and temporal fluctuations of nuclear accident-derived tritium concentration in river waters in eastern Fukushima, Japan, In Nagao S. (eds) *Impacts of Fukushima Nuclear Accident on Freshwater Environments*, Springer, Singapore, 35-49.
- 7) Nagao, S., Ueda, S., Nohara, S., 2021. Introduction: Overview of research with dynamics of radiocesium in freshwater environment. In Nagao S. (eds) *Impacts of Fukushima Nuclear Accident on Freshwater Environments*, Springer, Singapore, 1-7.
- 8) Nagao, S., Kanamori, M., Uemura, H., Tado, S., Shimamura, A., Morokado, T., Tomihara, S., Watanabe, S., Suzuki, K., Ochiai, S., 2021. Differences in radiocesium export in river systems 1 and 5 years after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. In Nagao S. (eds) *Impacts of Fukushima Nuclear Accident on Freshwater Environments*, Springer, Singapore, 11-33.
- 9) Watanabe, S., Suzuki, K., Tsunoda, K., Mori, M., Nohara, S., Okada, Y., Nagao, S., 2021. The dynamics of radiocesium in the Lake Onuma ecosystem, Mt. Akagi. In Nagao S. (eds) *Impacts of Fukushima Nuclear Accident on Freshwater Environments*, Springer, Singapore, 199-226.
- 10) 落合伸也, 2021. 木場潟, 石川ふるさと遺産, 北國新聞社, 358.

(3) 学会発表

- 1) 井上睦夫・真下海成・長尾誠也, 日本海における Cs-134 濃度の経年変動 (2011–2020), 2021 年度日本海洋学会秋季大会, 柏, 千葉, オンライン (2021.9.13-17).
- 2) Inoue, M., Hanaki, S., Kameyama, H., Kumamoto, Y., Nagao, S., Spatial distributions of ^{226}Ra and ^{228}Ra in the western Indian and Southern Oceans and their implications for current systems. Joint International symposium: To the New Stage of Collaboration, Kanazawa, online (2021.11.30-12.2).
- 3) Inoue, M., Mashita, K., Takehara, R., Kameyama, H., Kaeriyama, H., Miki, S., Nagao, S., Spatial distribution of ^{134}Cs concentration in the southwestern Sea of Okhotsk in 2019–2021. 6th International Conference on Environmental Radioactivity (Envira 2021), online (2021.12.6-10).
- 4) 亀山紘旭・井上睦夫・諸角季生・城谷勇陸・花木祥太郎・古澤佑一・小藤久毅・森田貴己・三木志津帆・長尾誠也, $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 放射能比の空間分布からみた日本海の粒子吸着性成分の挙動. 日本放射化学会第 65 回討論会, 東京都立大学, オンライン (2021.9.22-24).
- 5) 真下海成・竹原亮成・井上睦夫・亀山紘旭・谷内由貴子・黒田 寛・埴山秀樹・三木志津帆・長尾誠也, 北海道道東海域における ^{134}Cs の空間分布と経年変動 (2018–2021). 日本放射化学会第 65 回討論会, 東京都立大学, オンライン (2021.9.22-24).
- 6) Mashita, K., Inoue, M., Takehara, R., Kameyama, H., Kaeriyama, H., Miki, S., Taniuchi, Y., Kuroda, H.,

- Nagao, S., Spatial variations of ^{134}Cs concentrations off eastern Hokkaido (2018–2021). IER international symposium "Fukushima 10 years: Forest, River, Ocean, and Food –Remaining issues for restoration–", Fukushima, hybrid (2021.10.11-12).
- 7) Matsunaka, T., Nagao, S., Inoue, M., Taniuchi, Y., Kasai, H., Takahashi, T., Matsumura, M., Sueki, K., Sasa, K., Surface distribution of iodine-129 in the southwestern Okhotsk Sea in 2018. AMS15, Sydney, on-line (2021.11.15-19).
 - 8) Matsunaka, T., Nagao, S., Ochiai, S., Matsumura, M., Takahashi, T., Sueki, K., Sasa, K., Anthropogenic iodine-129 depositions at the Sea of Japan and Pacific sides of the Japanese archipelago, during 2017-2018. AMS15, Sydney, on-line (2021.11.15-19).
 - 9) Matsunaka, T., Marine pollution by PAHs in the East Asian marginal seas and Arctic Ocean. POI&KINET Joint symposium: Understanding Present Environmental Situation of Marginal Sea (III), Kanazawa, on-line (2022.2.15).
 - 10) 松中哲也・井上睦夫・猪股弥生・長尾誠也, 南大洋における PAHs と放射性核種の動態. 第 24 回南極エアロゾル研究会, 福岡, オンライン (2021.8.4-5).
 - 11) 松中哲也, 有害有機物による海洋汚染の現状 ～日本海から北極海～, 市民講演会「豊かな海を守るには??-海洋における地球環境問題と SDGs への取り組み/持続可能な社会環境構築を目指して-」, 金沢 (2021.10.23).
 - 12) 松中哲也・落合信也・高橋努・松村万寿美・笹 公和・末木啓介, 湖沼堆積物に記録された 1950 年以降の I-129 と Cs-137 の沈着量変動. 放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点 2021 年次報告会, 弘前, オンライン (2022.2.14).
 - 13) 松中哲也, 海洋の越境汚染研究, 日本海 3 大学部局間連携協定キックオフシンポジウム (新潟大・金沢大・島根大環境シンポ), 島根, オンライン (2022.3.25).
 - 14) Matsumura, M., Sasa, K., Sakaguchi, A., Matsunaka, T., Takahashi, T., Sueki, K., Status report of the Tsukuba 6 MV multinuclide AMS system: Progress in iodine-129 AMS. AMS15, Sydney, on-line (2021.11.15-19).
 - 15) Matsumura, M., Sasa, K., Ochiai, Y., Matsunaka, T., Tosaki, Y., Takahashi, T., Sueki, K., Status report of the Tsukuba 6 MV multinuclide AMS system: Progress in iodine-129 AMS. AMS15, Sydney, on-line (2021.11.15-19).
 - 16) Mundo, R., Matsunaka, T., Inoue, M., Tanaka, S., Nagao, S., Surface currents, primary production and anthropogenic PAHs dynamics: observations from the southern Okhotsk Sea. Joint International Symposium To the New Stage of Collaboration, Kanazawa, on-line (2021.11.30-12.3).
 - 17) Mundo, R., Study on PAHs surface dynamics at the Japan Sea and Okhotsk Sea from 2017 to 2020. POI&KINET Joint symposium: Understanding Present Environmental Situation of Marginal Sea (III), Kanazawa, on-line (2022.2.15).
 - 18) Mundo, R., Evaluation of environmental risks of polycyclic aromatic hydrocarbons in West Nanao Bay. 第五回富山湾研究会, 富山, オンライン (2022.3.7-8).
 - 19) 長尾誠也・西岡 純・白岩孝行・的場澄人・厚岸研究 G, 北海道東域における陸海結合システム. 第五回富山湾研究会, 富山, オンライン (2022.3.7-8).
 - 20) Nagao, S., Ariunsanaa, B.-E., Sakaguchi, K., Matsunaka, T., Ochiai, S., Katsumi, N., Fukushi, K., Seasonal variation of carbon isotope composition of particulate organic matter as a small and shallow lake, Kiba-gata during 2016-2019. *Radiocarbon in the Environment III*, Online (2021.7.5-9).

- 21) Nagao, S., Miyasaka, S., Watanabe, S., Suzuki, K., Ochiai, S., Deposition of radiocesium from atmosphere to mountain lakes after the Fukushima accident in 2011. KU-PKU Joint Workshop, On-line (2022.3.16).
- 22) 長尾誠也・西岡 純・白岩孝行・的場澄人・厚岸研究 G, 沿岸域の生物生産特性を制御する栄養物質のストイキオメトリー. 北海道大学低温科学研究所開拓型課題研究研究集会, 北海道大学低温科学研究所, オンライン (2022.3.2).
- 23) 長尾誠也・B.-E. Ariunsanaa・岩井久典・福士圭介, 炭素同位体比から解析した浅い・半閉鎖性湖沼における有機物の生成機構. 日本陸水学会第 85 回大会, 東京農工大学, オンライン (2021.9.20-22).
- 24) 長尾誠也・D.I.P.Putra・南 貴大・藤生 慎・富原聖一・落合伸也, 福島県沿岸海岸砂における放射性セシウムの鉛直分布. 日本放射化学会第 65 回討論会, 東京都立大学, オンライン (2021.9.22-24).
- 25) 長尾誠也, 共同利用・共同研究拠点事業 (2016-2021) のとりまとめ. 金沢大学環日本海域環境研究センター2021 年度共同研究成果報告会, 金沢大学, オンライン (2022.3.10-11).
- 26) Nagao, S., Outline of Chozen Project Joint International Symposium: To the New Stage of Collaboration, Kanazawa, on-line (2021.11.30-12.2).
- 27) Nagao, S., Next stage of the Joint usage/ Research of the INET. POI&KINET Joint Symposium: Understanding Present Environmental Situation of Marginal Sea (III), Kanazawa, on-line (2022.2.15).
- 28) Ochiai, S., Fujita, A., Tokunari, T., Kawamura, K., Sakai, H., Nagao, S., Distributions of ^{210}Pb , ^{137}Cs , and physical properties in bottom sediments of West Nanao Bay, Japan. International Symposium on the Environmental Dynamics of Radionuclides and Biological Effects of Low Dose-Rate Radiation, on-line (2021.9.27-29).
- 29) 落合伸也・酒井英男・ト部厚志・鶴岡幹矢・丹保俊哉・飯田 肇, 堆積物の放射性核種と物理・磁化特性を用いた土砂流出イベント履歴の復元, 2021 年度 新潟大学災害・復興科学研究所 共同研究成果報告会, オンライン (2022.2.26).
- 30) Ochiai, S., Tahara, R., Matsunaka, T., Matsuki, A., Nagao, S., Transport processes of atmospheric radionuclides in the Kumaki River, Japan. KU-PKU Joint Workshop on Environmental Issues, on-line (2022.3.16).
- 31) Sasa, K., Ochiai, Y., Tosaki, Y., Matsunaka, T., Takahashi, T., Matsumura, M., Sueki, K., Chlorine-36 deposition at Tsukuba, Japan, after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. AMS15, Sydney, on-line (2021.11.15-19).
- 32) Sasa, K., Matsumura, M., Matsunaka, T., Takahashi, T., Satou, Y., Kinoshita, N., Matsuzaki, H., Sueki, K., Determination of I-129/I-131 in surface soils related to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. AMS15, Sydney, on-line (2021.11.15-19).
- 33) 笹 公和・落合悠太・松村万寿美・高橋 努・松中哲也, 加速器質量分析法を用いた長半減期放射性ハロゲン ^{36}Cl と ^{129}I の高感度検出による降下量変動の比較研究, 第 82 回応用物理学会秋季学術講演会, 名城大学, オンライン (2021.9.10-13).
- 34) Sueki, K., Ohta, Y., Yokoyama, H., Ochiai, Y., Hosoya, S., Honda, M., Satou, Y., Matsunaka, T., Takahashi, T., Matsumura, M., Sasa, K., Chlorine-36 and Iodine-129 inventories in difficult-to-return zone in Fukushima. AMS15, Sydney, on-line (2021.11.15-19).
- 35) 田中さき・松中哲也・Mundo, R.・井上睦夫・谷内由貴子・黒田 寛・熊本雄一郎・滝川哲太郎・守田昌哉・Ho, T.Y.・長尾誠也, 日本近海表層における多環芳香族炭化水素類の水平分布と経年変

動. 日本地球化学会第 68 回年会, 弘前, オンライン (2021.9.1-15).

- 36) Tanaka, S., Matsunaka, T., Mundo, R., Inoue, M., Kumamoto, Y., Takikawa, T., Morita, M., Ho, T.Y., Nagao, S., Interannual variability of polycyclic aromatic hydrocarbons in East Asian marginal seas during 2017-2021. Joint International Symposium, To the New Stage of Collaboration, Kanazawa, on-line (2021.11.30-12.3).
- 37) Tanaka, S., Matsunaka, T., Mundo, R., Inoue, M., Taniuchi, Y., Kuroda, H., Kumamoto, Y., Takikawa, T., Morita, M., Ho, T.Y., Nagao, S., Interannual variation of polycyclic aromatic hydrocarbons in surface seawater in the western North Pacific and its adjacent seas, Ocean Science Meeting 2022, Honolulu, on-line (2022.2.24-3.4).
- 38) Wakiyama, Y., Matsumura, M., Matsunaka, T., Hirao, S., Sasa, K., Behavior of ^{129}I in the Abukuma River water during two high-flow events in 2018. EGU21, on-line (2021.4.19-30).

(4) 研究交流

・共同研究

- 1) 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. 水産研究・教育機構
- 2) 井上睦夫: 放射性核種からみた日本海の物質循環. 水産研究・教育機構
- 3) 長尾誠也, 落合伸也: 福島県河口沿岸域における粒子態放射性セシウムの移行動態. 日本原子力研究開発機構
- 4) 松中哲也: 湖沼堆積物に記録された 1950 年以降の I-129 と Cs-137 の沈着量変動. 筑波大学 (末木 啓介)
- 5) 松中哲也: 南大洋・インド洋における I-129 の海洋動態研究. 筑波大学 (笹 公和)
- 6) 松中哲也: 阿武隈川および新田川における出水時の ^{129}I 動態. 福島大学 (脇山義史)
- 7) 松中哲也: 噴火の潜在性を秘めた静穏な火口湖の活動度評価の試み. 東北大学 (後藤章夫)
- 8) 松中哲也: 日本海における多環芳香族炭化水素類の供給経路に関する研究. Academia Sinica (Tung-Yuan Ho)

・共同研究・共同利用 (文科省)

- 1) 長尾誠也: Study on dynamics of nutrients, organic matter and heavy metals in lakes at semi-arid region of Mongolia (重点研究), モンゴル国立大学 (教授 Ochir ALTANSUKH)
- 2) 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 (一般研究), ロシア極東連邦大学 (主任 Olga V.Nesterova)
- 3) 長尾誠也: Historical reconstruction of persistent organic pollutants (POPs) in lakes sediments of Himalayan region of Pakistan (一般研究), クエイド・イ・アザム大学 (教授 Riffat N. Malik)
- 4) 長尾誠也: PAHs pollution in the Sea of Japan marine environment (一般研究), ロシア科学アカデミー極東支部 (研究員 Tatiana Chizhova)
- 5) 長尾誠也: 大気浮遊じんの粒径分布と放射性核種の移動性に関する研究 (一般研究), 日本原子力研究開発機構 (技術員 阿部智久)
- 6) 長尾誠也: 天然放射性核種を用いた海洋における粒子フラックス分布解明 (一般研究), 東京大学 (准教授 乙坂重嘉)

- 7) 長尾誠也：NOM の固体励起-蛍光スペクトルデータベースの拡充（一般研究），中央大学（教授 山村 寛）
- 8) 長尾誠也：農耕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）
- 9) 長尾誠也：複数の化学トレーサーを用いた東シナ海外部陸棚域の水塊形成と時空間的物質輸送過程の把握（一般研究），富山大学（教授 張 勁）
- 10) 長尾誠也：ラジウム同位体を用いた沿岸海域における陸水影響評価（若手研究），福井県立大学大学院（博士後期課程 1 年 中島壽視）
- 11) 長尾誠也：日本海を含む縁辺海における越境汚染の現状理解と将来予測（研究集会），ロシア科学アカデミー極東支部（所長 V. B. Lobanov）
- 12) 長尾誠也：隆起源物質が沿岸海域に及ぼす影響評価（その 3）（研究集会）北海道大学（准教授 白岩孝行）
- 13) 井上睦夫：日本の東西沿岸海水における放射性 Cs 濃度を支配する要因の定量的評価（一般研究），福島大学（特任准教授 高田兵衛）
- 14) 井上睦夫：放射性核種を用いた環日本海域の宝石サンゴの成長速度の推定（一般研究），公益財団法人海洋生物環境研究所中央研究所（研究参与 山田正俊）
- 15) 井上睦夫：襟裳岬周辺地域において検出された福島第一原発事故由来放射性セシウムの日本海及び太平洋からの寄与の推定（一般研究），公益財団法人海洋生物環境研究所（研究員 城谷勇陸）
- 16) 井上睦夫：南極におけるベリリウム 7 の観測と日本海域との比較研究（一般研究），岐阜大学（准教授 中村 琢）
- 17) 落合伸也：堆積物の Pb - 210 と Cs-137 年代測定に基づく古気候代替指標の確立（一般研究），岐阜大学（准教授 勝田長貴）
- 18) 落合伸也：海洋底地球ニュートリノ観測に向けた検出器の極低放射性物質環境化（一般研究），東北大学（助教 渡辺寛子）
- 19) 落合伸也：鉛 210・セシウム 137 法による琵琶湖コアの年代モデル構築（一般研究），滋賀県立大学（准教授 堂満華子）
- 20) 松中哲也：能登半島における 1950 年以降の原子力施設由来放射性ヨウ素 129 の沈着量変動（一般研究），筑波大学（教授 笹 公和）
- 21) 松中哲也：（一般研究），名古屋大学（日本学術振興会特別研究員 奈良郁子）湖底堆積物中の微量元素分布に基づく 1950 年以降の能登周辺における重金属汚染と黄砂の影響評価

・研究集会

- 1) 長尾誠也：環日本海域環境研究センター共通政策課題分：先導的越境汚染解析・共同研究 03（研究集会：V. B. Lobanov），令和 3 年度，日本海を含む縁辺海における越境汚染の現状理解と将来予測，0 円。）
- 2) 長尾誠也：環日本海域環境研究センター共通政策課題分：先導的越境汚染解析・共同研究 03（研究集会：白岩孝行），令和 3 年度，隆起源物質が沿岸海域に及ぼす影響評価（その 3），0 円。）

(5) 各種活動

・学会活動

- 1) 長尾誠也：日本腐植物質学会理事（2015～現在）
- 2) 長尾誠也：日本腐植物質学会 Humic Substances Research 編集委員（2011～現在）
- 3) 長尾誠也：国際腐植物質学会日本支部長（2012～現在）
- 4) 長尾誠也：日本放射化学会「Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences」編集委員（2016～現在）
- 5) 井上睦夫：日本放射化学会「放射化学」編集委員（2019～現在）

・社会活動

- 1) 長尾誠也：小松高校 SSH 運営委員会委員（2011～現在）
- 2) 長尾誠也：環境技術研究所大気海洋排出放射性物質影響調査委員会委員（2021）
- 3) 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（2019～現在）
- 4) 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）
- 5) 長尾誠也：弘前大学被ばく医療総合研究所戦略会議委員（2019～現在）
- 6) 長尾誠也：東京大学大気海洋研究所協議会委員（2019～現在）
- 7) 長尾誠也：島根大学海洋科学部門隠岐臨海実験所教育関係共同利用運営委員会委員（2019～現在）
- 8) 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（2019～現在）
- 9) 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（2019～現在）
- 10) 長尾誠也：総合地球環境学研究所 運営委員会委員（2020～現在）
- 11) 長尾誠也：総合地球環境学研究所 人事委員会委員（2020～現在）
- 12) 長尾誠也：総合地球環境学研究所 機関拠点型基幹研究プロジェクト外部評価委員会委員（2021）
- 13) 長尾誠也：石川県原子力環境安全管理協議会委員（2020～現在）
- 14) 長尾誠也：石川県環境放射線測定技術委員会委員（2020～現在）
- 15) 長尾誠也：石川県温排水影響検討委員会委員（2020～現在）
- 16) 長尾誠也：JST 創発的支援事業書類審査委員（2020～現在）
- 17) 井上睦夫：石川県「環境中の放射性物質の実態及び挙動調査研究検討会」（2018～現在）

・招待講演および特別講演，依頼講演

- 1) 長尾誠也，地球環境と放射能～地球誕生から現在まで～，北陸原子力懇談会（オンライン講演会），2021 年 7 月 15-17 日（招待講演）
- 2) Nagao, S., Temporal Variation of Cs-134 and Cs-137 Radioactivity in Waters from Natsui and Same Rivers in South Fukushima Prefecture in Japan. Institute for Environmental Sciences International Symposium on Environmental Dynamics of Radionuclides and Biological Effects of Low Dose-Rate Radiation, Aomori, Japan, 2021.9. 26. 招待講演

2-3. 研究費

(1) 科学研究費等

- 1) 長尾誠也，基盤研究（B），福島原子力発電所事故由来のセシウムからみた北太平洋北域の溶存汚

染物質循環（代表者：井上睦夫），分担者，令和3年度～令和5年度，250千円。

- 2) 井上睦夫，基盤研究（B），福島原子力発電所事故由来のセシウムからみた北太平洋北域の溶存汚染物質循環，代表者，令和3年度～令和5年度，6,300千円。
- 3) 落合伸也，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，600千円。
- 4) 落合伸也，基盤研究（A），湖沼地域から砂漠への変遷過程の解明と乾燥化対策へのシーズ探索（代表者：長谷部徳子），分担者，令和3年度～令和6年度，500千円。
- 5) 落合伸也，基盤研究（B），南北両半球の堆積物を用いた年レベルの偏西風経路復元と地球温暖化影響の検出（代表者：長島佳菜），分担者，平成30年度～令和3年度，200千円。
- 6) 松中哲也，若手研究，地球温暖化に応答する日本海深層循環の評価法：放射性ヨウ素 129 をトレーサーとして，代表者，令和2年度～令和5年度，800千円。
- 7) 松中哲也，基盤研究（B），福島原子力発電所事故由来のセシウムからみた北太平洋北域の溶存汚染物質循環（代表者：井上睦夫），分担者，令和3年度～令和5年度，250千円。
- 8) 松中哲也，基盤研究（C），噴火の潜在性を秘めた静穏な火口湖の活動度評価の試み（代表者：後藤章夫），分担者，令和3年度～令和5年度，130千円。
- 9) 岩井久典，基盤研究（C），小型フローカラムアクアリウムを用いた製鋼スラグから海水への鉄溶出挙動解析，代表者，令和3年度～令和5年度，1,300千円。

(2) 共同研究費

- 1) 長尾誠也，共同研究：(株)KANSO 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，令和2年～4年度，300千円。
- 2) 落合伸也，2021年度 新潟大学災害・復興科学研究所共同研究，堆積物の放射性核種と物理・磁化特性を用いた土砂流出イベント履歴の復元，令和3年度，290千円。
- 3) 松中哲也，共同研究：筑波大学 放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究，湖沼堆積物に記録された1950年以降のI-129とCs-137の沈着量変動，令和3年度，120千円。

(3) 受託研究費

- 1) 長尾誠也，受託研究：(株)KANSO テクノス，極微量放射能の分布に関する研究，令和3年度，2,730千円。
- 2) 長尾誠也，受託研究：小松市，木場潟の水質改善調査，令和3年度，1,800千円。

(4) その他

- 1) 長尾誠也，機能強化経費：共通政策課題分，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，令和3年度，1,000千円。
- 2) 松中哲也，寄附金（研究助成金）：公益財団法人クリタ水・環境科学振興財団，日本海における有害有機物（PAHs）の動態と生態リスク評価，期間（令和3年10月～令和4年9月），980千円。
- 3) 松中哲也：環日本海域環境研究センター機能強化促進分：戦略的研究推進プログラム 燦燈プロジェクト（海外連携支援），令和3年度，日本海における多環芳香族炭化水素類の供給経路に関する研究，1,000千円。

2-4. 研究指導

(1) 修士論文

- 1) 亀山 紘旭, $^{228}\text{Th}/^{228}\text{Ra}$ 比からみた東シナ海から日本海への粒子吸着性成分の運搬. 自然科学研究科物質化学専攻, 修士 (理学), 井上睦夫
- 2) Rodrigo Jose Mundo Duenas, Study on fate of polycyclic aromatic hydrocarbons in coastal marine environments. 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) 畠山 陽多, ラジウム同位体からみた北海道道東沿岸～沖合表層の海水循環. 理工学域物質化学類化学コース, 学士 (理学), 井上睦夫
- 2) 藤田 知樹, 赤城大沼底層水における放射性セシウム濃度増加要因の検討. 理工学域物質化学類化学コース, 学士 (理学), 長尾誠也
- 3) 真下 海成, オホーツク海南西域における ^{134}Cs 濃度の鉛直分布 (2019-2021). 理工学域物質化学類化学コース, 学士 (理学), 井上睦夫

2-5. その他

(1) 新聞等報道

- 1) 長尾誠也, 2021 年 7 月 26 日 (北國新聞朝刊 26 面), 海洋保全に理解 金大センター
- 2) 長尾誠也, 2021 年 7 月 30 日 (電気新聞第 29325 号), 北陸原懇 地球との関わり解説 ウェブで放射線講演会
- 3) 松中哲也, 2021 年 10 月 24 日 (北國新聞朝刊 24 面), 海洋汚染に理解 金大が市民講演会

3. 研究報告

赤城大沼底層水における放射性セシウム濃度増加要因の検討

藤田知樹¹、長尾誠也¹、岩井久典¹、落合伸也¹、鈴木究真²、阿久津崇²、杉本亮³

¹ 〒923-1224 石川県能美市和気町オ 24 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 〒371-0036 群馬県前橋市敷島町 13 番地 群馬県水産試験場

³ 〒917-0116 福井県小浜市堅海 49-8-2 福井県立大学 生物資源学研究所

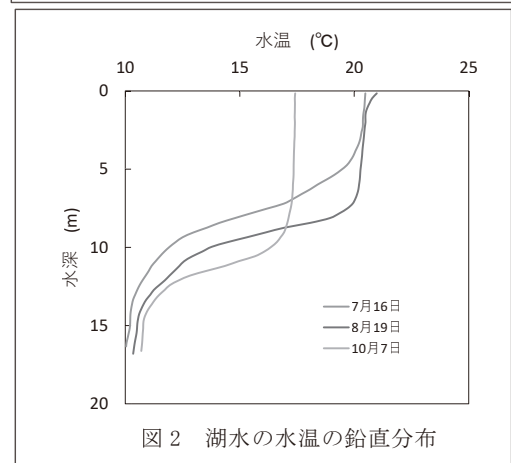
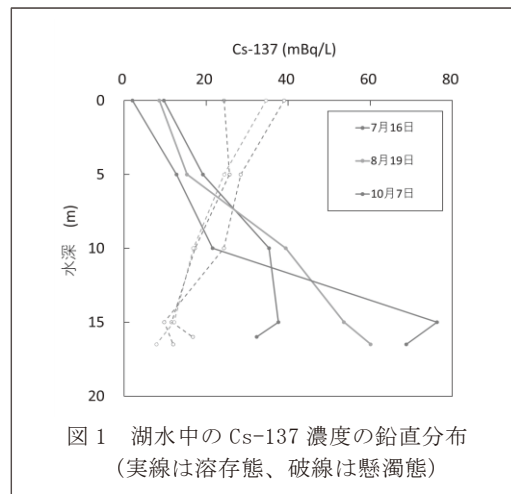
T. Fujita¹, S. Nagao¹, H. Iwai¹, S. Ochiai¹, K. Suzuki², T. Akutu², R. Sugimoto³ : Factors controlling increase in radiocesium concentration in bottom water from Lake Akagi-Onuma

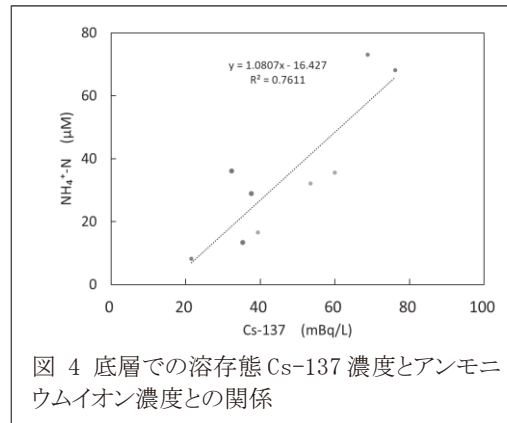
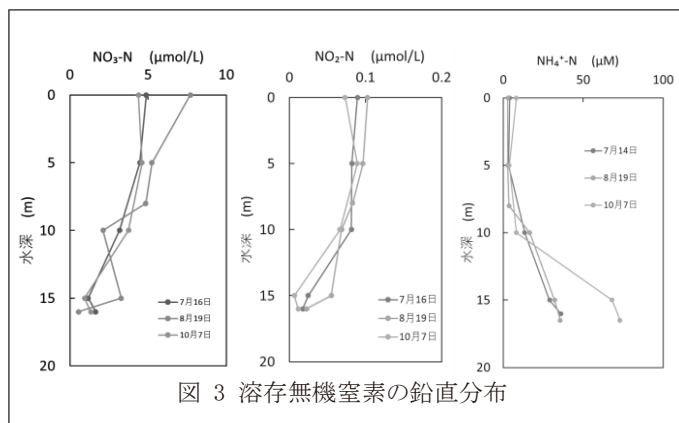
【はじめに】

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災とそれに伴う津波によって発生した東京電力福島第一原子力発電所事故により、大量の放射性セシウムが大気中・海洋中に放出された。群馬県の上野湖沼、赤城大沼における湖水中の全放射性セシウム濃度レベルは、2013 年 12 月の時点で 2011 年の約半分に減少したが、他の水系の 10 倍以上であった[1,2]。その原因は湖沼の閉鎖性による低い湖水交換能に起因すると考えられている。また、群馬水試との共同研究として、表層 0m、8m、15m の湖水中の溶存態、懸濁態に含まれている放射性セシウムの季節変動を 2012 年から 2016 年にかけて観測した結果、夏季の底層では放射性セシウムが懸濁態に比べ溶存態に多く存在することが明らかとなり、底泥からの放射性セシウムの溶出が湖水濃度の下げ止まりに関与することが示唆された[3]。本研究では、赤城大沼底層水中の放射性セシウム濃度が増加する原因・溶出機構を解明するため、成層化が進行する夏季に底層水を約 1 ヶ月毎に 3 回採取し、放射性セシウムの濃度の増加傾向とその支配要因を検討した。

【試料採取・測定】

2021 年 7 月、8 月、10 月に赤城大沼の湖心において、水深 5m 間隔で表層から 4 点・底層の計 5 点で湖水試料を水中ポンプにより採取した。湖水は硝酸酸性にした後、リンモリブデン酸アンモニウム沈殿法を用いて放射性セシウムを分離・回収した。その後、ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線測定法を適用して Cs-134 と Cs-137 放射能濃度を測定し、採取時に壊変補正した値を用いた。また、栄養塩の濃度についてはアンモニウムイオン態窒素は比色分析計 Trilogy Laboratory Fluorometer を用いたイン





ドフェノール法、亜硝酸態窒素、硝酸態窒素、ケイ酸態ケイ素については連続流れ分析装置 QuAAtro39 にて測定した。

【結果・考察】

湖水中の Cs-137 放射能濃度の鉛直分布データを図 1 に示す。溶存態 Cs-137 濃度は水深が深くなるほど増加したが粒子態 Cs-137 濃度は減少した。また、底層 15 m 以深では、7 月から 10 月にかけて溶存態 Cs-137 濃度が増加した。図 2 には水温の鉛直分布を示した。水深 10 m 付近に水温躍層があることで表層と底層での鉛直混合が起らずに成層化していた。溶存無機窒素の鉛直分布を図 3 に示した。水深 15m 以深においては還元環境によりアンモニウムイオン態窒素が亜硝酸態窒素、硝酸態窒素に比べて卓越している。また水深 10 m 以深の溶存態 Cs-137 濃度とアンモニウムイオン濃度との関係をプロットした結果、両者には正の相関関係が存在した (図 4)。このことは夏季の成層化において底層で有機物の分解により生成したアンモニウムイオンとのイオン交換反応により放射性セシウムが湖底堆積物等から溶出した可能性が考えられる。

【参考文献】

- [1] K. Suzuki, S. Watanabe, Y. Yuasa, Y. Yamashita, H. Arai, H. Tanaka, T. Kuge, M. Mori, K. Tsunoda, S. Nohara, Y. Iwasaki, Y. Minai, Y. Okada, S. Nagao : Radiocesium dynamics in the aquatic ecosystem of Lake Onuma on Mt. Akagi following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Science of The Total Environment*, 622-623, 1153-1164 (2018)
- [2] 相澤省一・森勝伸・小池優子・角田欣一：福島第一原子力発電所事故により赤城大沼一帯に降下した放射性セシウム. *分析化学*. 66, 217-279 (2017)
- [3] S. Watanabe, K. Suzuki, K. Tsunoda, M. Mori, S. Nohara, Y. Okada, S. Nagao : The dynamics of radiocesium in the Lake Onuma ecosystem, Mt. Akagi. *Impacts of Fukushima Nuclear Accident on Freshwater Environments* (ed. S. Nagao), Springer, Singapore, pp 199–226 (2021)

日本海表層における PAHs の経年変動解析

田中さき¹、松中哲也¹、Rodrigo Mundo¹、井上睦夫¹、
滝川哲太郎²、守田昌哉³、長尾誠也¹

¹〒923-1224 石川県能美市和気オ 24 金沢大学環日本海域環境研究センター低
レベル放射能実験施設

²〒852-8521 長崎県長崎市文教町 1-14 長崎大学大学院水産・環境科学総合研究
科

³〒905-0227 沖縄県国頭郡本部町瀬底 3422 番地 琉球大学熱帯生物圏研究セン
ター瀬底研究施設

Tanaka, S., Mastunaka, T., Mundo, R., Inoue, M., Takikawa, T., Morita, M., Nagao, S.
: Interannual variation of PAHs in the Sea of Japan.

【はじめに】

多環芳香族炭化水素類 (polycyclic aromatic hydrocarbons: PAHs) は、発癌性と変異原性をもつ成分が多いため、米国環境保護庁の優先取組汚染物質に指定されている。環境中の PAHs の主な起源は、化石燃料やバイオマスの不完全燃焼、および原油であり、2007 年の東アジアにおける PAHs 大気排出量が、世界 (504 kt) の 22% を占めた^[1]。日本海における PAHs は、アジア大陸と周辺海域 (東シナ海・太平洋) を供給源とし、主に大気輸送 (モンスーン・偏西風) と海洋輸送 (対馬海流) を介して供給される。2019 年冬以降の COVID-19 の世界的流行によって、中国では産業や社会活動が低下し、大気汚染が減少した^[2]。豊かな漁場である日本海における PAHs の動態把握は、人為起源 PAHs の生態学的リスクを評価する上で必要不可欠である。モンスーン・偏西風と対馬海流の影響を受ける対馬海峡から日本海中央域における詳細な PAHs 動態研究は実施されていない。本研究は、2017 年から 2021 年の日本海表層における PAHs 経年変動を解析し、海洋表層の PAHs 挙動と東アジア諸国からの越境汚染を把握することを目的とした。

【試料と方法】

日本海の計 29 点において、2017 年 7 月～2021 年 7 月 (主に夏季) に実施された国内研究機関の研究航海にて 10–15 L の表面海水を採水した。試料はグラスファイバーフィルター (孔径: 0.5 μm) で粒子を分離後、溶存有機物を固相抽出 C18 ディスクで濃縮した。捕集した粒子態と溶存態の PAHs は、それぞれ CH_2Cl_2 で抽出し、HPLC (蛍光検出器) で分離・測定した。前処理過程の PAHs の回収率は平均で 90–95% (粒子態) と 68–75% (溶存態) であり、ブランクは 0.07 ng L^{-1} (粒子態) と 0.19 ng L^{-1} (溶存態) であった。粒子態と溶存態の 3–6 環をもつ 14 種の PAHs に

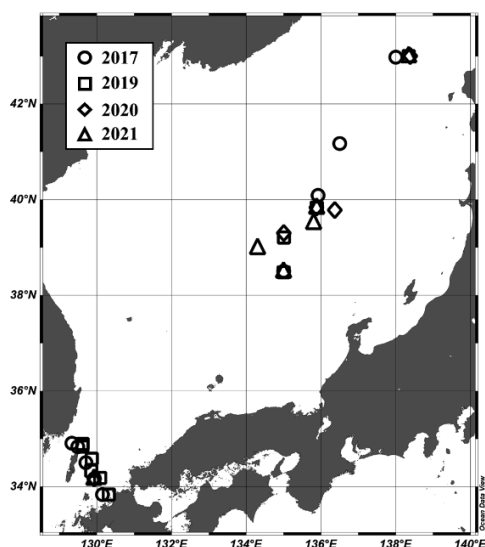


図 1 日本海における採水地点

ついて、回収率とブランクの補正を行い定量した。全溶存態 PAHs は $\Sigma_{14}\text{PAH}_{\text{diss}}$ で表し、測定誤差は 6%以下であった。

【結果と考察】

日本海中央域における各年（夏季）の平均 $\Sigma_{14}\text{PAH}_{\text{diss}}$ を図 2 に示した。2020 年における平均 $\Sigma_{14}\text{PAH}_{\text{diss}}$ は、2019 年と比べ有意に低下した。日本海には長江の影響を受けた東シナ海からの浅層海水（低塩分・高 PAHs）と太平洋からの黒潮海水（高塩分）が対馬海峡から対馬海流を介して流入し、夏季に浅層海水の寄与が高くなる^[3]。2020 年における PAHs 低下の要因として、1) 浅層海水の PAHs 低下、2) 黒潮海水の PAHs 低下、3) 浅層海水の寄与低下、および 4) 大気中の PAHs 低下が挙げられる。まず、沖縄本島瀬底沖における黒潮海水の PAHs は 2020 年で低下する経年変動を示した。また、対馬海峡

表 1 対馬海峡におけるフラクション

年	f_k	f_e
2017	33%	6%
2019	42%	58%
2020	47%	53%
2021	6%	38%

f_k : 黒潮の寄与率
 f_e : 浅層海水の寄与率

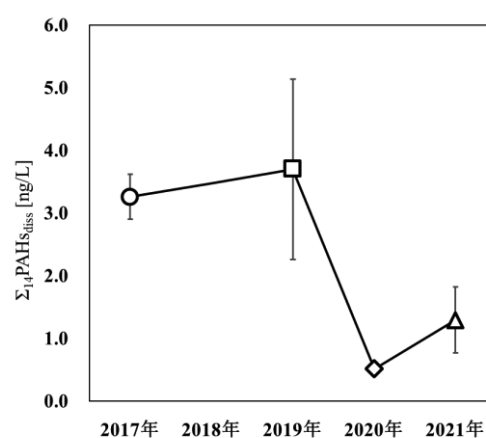


図 2 日本海における $\Sigma_{14}\text{PAH}_{\text{diss}}$ の経年変動

における塩分と海流シミュレーションの結果、長江の影響を受けた浅層海水（低塩分・高 PAHs）の寄与は、2020 年の方が 2019 年と比べて若干低かった（表 1）。一方、東アジア諸国からの越境汚染を観測している能登半島輪島ステーションにおける 2020 年の大気中 PAHs は、COVID-19 流行の影響によって、2019 年と比べて低下した^[4]。

以上の事から、日本海表層における 2020 年の PAHs 低下は、黒潮海水の PAHs 低下、浅層海水（高 PAHs）の寄与低下、および大気中 PAHs の低下によって引き起こされた可能性が示唆された。

【参考文献】

- [1] Shen, H. et al. (2013) *Environ. Sci. Technol.*, 47, 6415–6424
- [2] Xu, K et al. (2020) *Aerosol and Air Quality Research*, 20: 915–929
- [3] Inoue, M. et al. (2010) *Journal of Oceanography*, 66, 425–428
- [4] Zhang, L. et al. (2020) *Aerosol and Air Quality Research*, 20: 2035–2046

【謝辞】

海水採取にご協力いただいた蒼鷹丸・長崎丸の関係者に感謝いたします。

Study on fate of polycyclic aromatic hydrocarbons in coastal marine environments

沿岸域における多環芳香族炭化水素類の動態解明研究

Rodrigo Mundo ¹, Tetsuya Matsunaka ^{2,*}, Hisanori Iwai ², Shinya Ochiai ² and Seiya Nagao ²

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

² Low Level Radioactivity Laboratory, Institute of Nature and Environmental Technology,
Kanazawa University, Nomi 923-1224, Japan Rodrigo Mundo

[Introduction]

Polycyclic aromatic hydrocarbons (PAHs), released to the environment from fuels incomplete combustion as well as the leakage of petroleum derivatives, are hazardous pollutants with adverse carcinogenic and/or mutagenic potential.

Located in a remote rural area in Ishikawa Prefecture, 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 shallow waters (2–3 m). In the north-east part of the bay, a sandy seafloor, and deeper waters (8–15 m) are characteristic. Due 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.

In concrete, this study aims to elucidate (1) levels, (2) emission sources, (3) environmental pathways and (4) 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 seawater. Seasonal sampling was conducted between May 2019 and September 2020. Water quality parameters (e.g. salinity, turbidity, etc.) were recorded simultaneously on the field.

[Experiment]

Seawater (10 L) was collected from 15 sampling points and stored in stainless well-closed containers 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 filters and solid phase extraction Empore C18 disks. Deuterated standards were used to adjust extraction recoveries. Samples were analyzed with a HPLC-fluorescence detector. Chromatographic separation was performed using an Inertsil ODS-P column at 30 °C. The mobile phase was a mixture of acetonitrile and water operated under a gradient elution, starting at 55% and increasing to 99% acetonitrile over 6 min at a flow rate of 1 mL min⁻¹

[Results and Discussion]

The annual all-points average $\Sigma_{14}\text{PAHs}$ in surface seawater samples was 11.01 ng L⁻¹, of which 43.9% was particulate phase and 56.1% was dissolved phase. Based on the salinity and turbidity spatial distribution, riverine runoffs were determined to be a major, and continues transportation pathway of particulate PAHs towards the bay. Highest particulate PAHs and

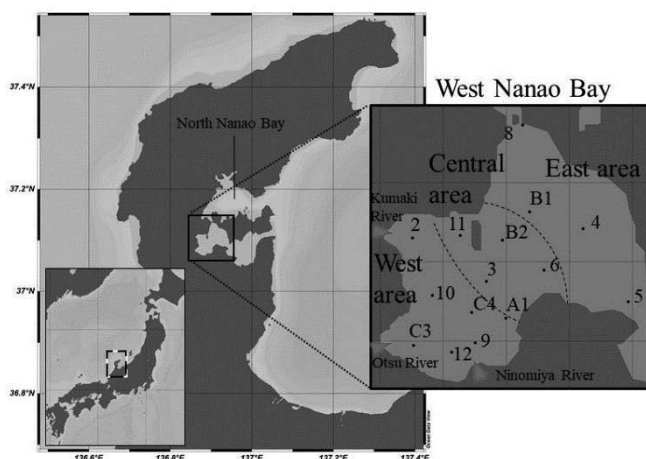


Figure 1. Sampling points at West Nanao Bay, Noto Peninsula, Japan. May 2019 – September 2020

turbidity were observed in the west area, the decrease towards the east area was the general trend (Fig. 2, dark gray dotted and triangle-marked solid lines, respectively). Per-area-average salinity (Fig. 2, circles-marked solid lines) had opposite trends. Poor correlation of salinity and dissolved PAHs in the surface layer was observed. That and river water samples at rain and rainless periods suggest that dissolved PAHs would have same input routes as particulate PAHs but within rain-dominated pulses. Furthermore, dissolved PAHs did not follow significantly change with depth even at stratified water columns. The results can be attributed to long retention time of the water mass of the semi-enclosed bay. Based on [Flu] / [Flu + Pyr] and [BaA] / [BaA + Chr] ratios, and a varimax rotated PCA, it was established that biomass combustion was the principal source to the particulate phase and liquid fossil fuel combustion to the dissolved phase. The risk coefficients ($RQ_{\Sigma 14PAHs (NCs)}$) (0-84.53) indicated that PAHs represented a very low to low environmental risks in the surface layer. $RQ_{\Sigma 14PAHs (NCs)}$ (0-174.04) in the vertical profiles indicated that PAHs risks increase towards the bottom layer but would still represent a very low to low environmental risks.

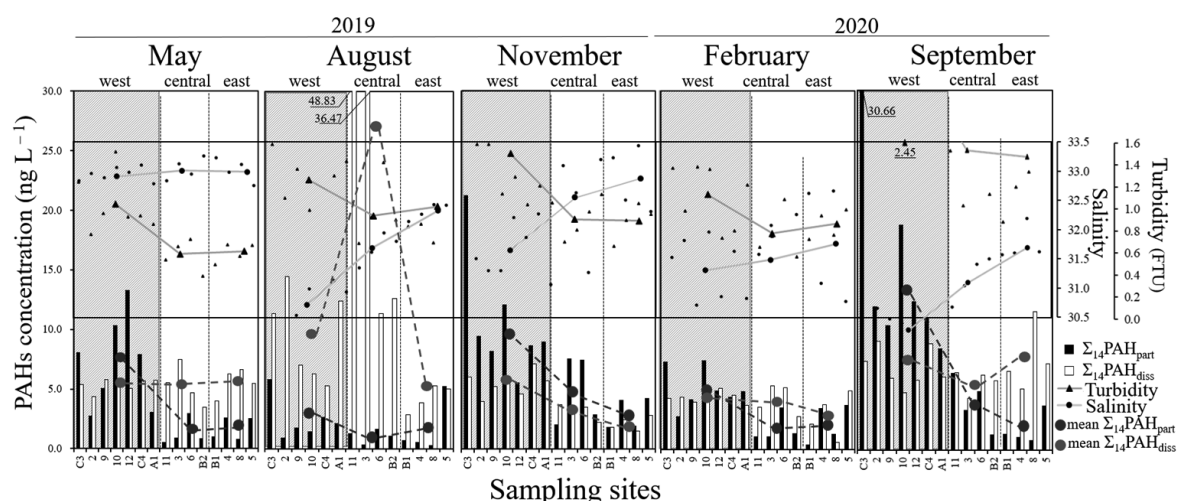


Figure 2. Variations in particulate ($\Sigma_{14}PAH_{part}$, black) and dissolved ($\Sigma_{14}PAH_{diss}$, white) PAHs in West Nanao Bay, Japan; May 2019–September 2020. Mean $\Sigma_{14}PAH_{part}$ and $\Sigma_{14}PAH_{diss}$ by area is marked in dark and light gray, respectively. Mean turbidity (FTU) and salinity by area is marked as triangles and circles, respectively.

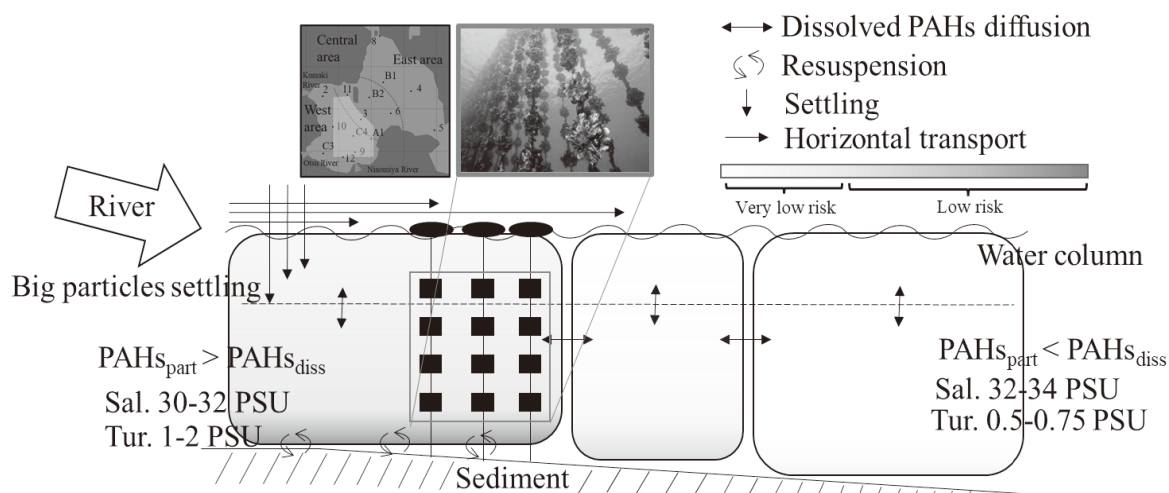


Figure 3. Schematic representation of spatial distribution of polycyclic aromatic hydrocarbons in West Nanao Bay and their implication in environmental risks

令和3年度見学来訪・出張の記録

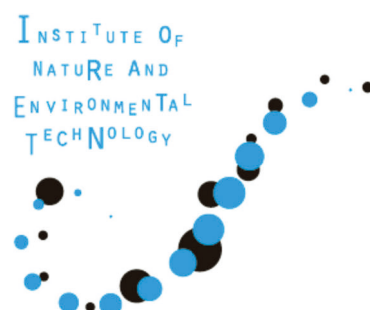
- 4.21 金沢大学 助教 本田 匡人 氏,学生2名,PAH分析のため来所
- 4.30 滋賀県立大学 准教授 堂満 華子 氏,4年 臼杵 達也 氏,全国共同利用研究 打合せ,試料処理のため来所
- 4.30 金沢大学 教授 塚脇 真二 氏,共同研究打ち合わせのため来所
- 5.28 国立研究開発機構 日本原子力研究開発機構 吉田 圭佑 氏,研究打ち合せ,尾小屋地下実験室見学のため来所
- 6.7-6.8 金沢大学 助教 本田 匡人 氏,学生1名,PAH分析のため来所
- 6.8 国立研究開発機構 日本原子力研究開発機構 吉田 圭佑 氏, 研究打ち合せのため来所
- 6.11 金沢大学 助教 本田 匡人 氏,学生1名,PAH分析のため来所
- 6.17 金沢大学 助教 本田 匡人 氏,学生1名,PAH分析のため来所
- 6.25 国立研究開発機構 日本原子力研究開発機構 吉田 圭佑 氏, 奥山 慎一 氏,尾小屋地下実験室見学,研究打ち合せのため来所
- 6.29 岐阜大学 准教授 勝田 長貴 氏, 全国共同利用研究 打合せ
- 7.2 金沢大学 助教 本田 匡人 氏,学生1名,PAH分析のため来所
- 7.12 国立研究開発機構 日本原子力研究開発機構 吉田 圭佑 氏, 研究打ち合せのため来所
- 7.12 大学院自然科学研究科自然システム学専攻1年生10名 環日センター主催 2021年度サマースクールのため、低レベル放射能実験施設、尾小屋地下実験室見学
- 7.14 理工学域物質化学系3年生33名実習、低レベル放射能実験施設 見学
- (9.29 石川県保健環境センター 主任研究員 内田 賢吾 氏,石川県の放射能分布に関する研究打ち合わせ)
- 9.30 金沢大学 助教 本田 匡人 氏, PAH分析のため来所
- (11.2 小松市役所 嘉官 功賀 氏,小林 与志次 氏,高岡 弘幸 氏,木場潟汚濁起源調査 打合せ)
- 11.18 福島大学 環境放射能研究所 特任准教授 高田 兵衛 氏, 共同研究打ち合わせ
- 11.24-11.26 滋賀県立大学 准教授 堂満 華子 氏,准教授 後藤 直成 氏,4年 臼杵 達也 氏,修士2年 瀬戸川 正和 氏,共同研究打合せ,試料分析、尾小屋施設見学のため来所
- 11.26 公益財団法人 日本分析センター 業務高度化推進部門 部門長 太田 裕二 氏, 田中 博幸 氏,岡山 杏奈 氏,施設見学、研究打ち合わせ、尾小屋施設見学のため来所
- 12.23-12.24 公益財団法人 海洋生物環境研究所 海洋環境グループ 研究参与 山田正俊 氏,研究員 城谷 勇陸 氏,立正大学 教授 岩崎 望 氏, 国立研究開発法人 産業技術総合研究所 地質調査総合センター 研究グループ長 鈴木 淳 氏,産総研特別研究員 喜瀬 浩輝 氏, 産総研特別研究員 小坂 由紀子 氏, 共同研究打ち合わせ、尾小屋施設見学のため来所
- 12.27-12.28 金沢大学 環日本海域環境研究センター 附属植物園,学生2名,PAH分析のため来所
- 1.6-1.7 筑波大学 准教授 笹 公和 氏,技術職員 高橋 努 氏,技術職員 松村 万寿美 氏,共

同利用研究に際した研究打ち合わせおよび実験のため来所

1.13 国立研究開発法人 日本原子力研究開発機構 廃炉環境国際共同研究センター 阿部
智久 氏,吉村 和也 氏,中西 貴宏 氏,共同利用研究打ち合わせのため来所

1.17 金沢大学 助教 本田 匡人 氏,学生 1 名,PAH 分析のための研究地合わせのため来所

2.1 金沢大学 助教 本田 匡人 氏,学生 1 名,PAH 分析のため来所



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