

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 2008.4～2009.3



蒼鷹丸日本海調査航海(2008年7～8月:水産総合研究センター)(小樽港にて)

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

目 次

1. 構成員	2
2. 活動報告	
2-1. 研究概況	3
2-2. 研究業績	6
2-3. 研究費	11
2-4. 研究指導	12
3. 研究報告	
薄いプラスチックシンチレータと波長変換ファイバーを用いた Ge 用宇宙線除去装置の開発	15
湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体：モンゴル・フブスグル湖	16
手取川流域の降水、地下水、河川水における ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs および Ra 同位体の分布	18
大深度掘削井から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体ー石川県沿岸地域ー	20
森林斜面の表面流における ^7Be の分配係数 - 現地観測と室内吸着実験 -	22
複数の放射性核種を用いた日本海における物質循環解明	24
日本海側における大気エアロゾルの Pb-210 と Be-7 濃度の粒径分布	26
Complexation of Am with size-fractionated soil humic acids	28
Carbon isotopes of POC in a small river in Bekanbeushi moor, northern Japan	29
Variations in $\Delta^{14}\text{C}$ values of POM in the Ishikari River	30
Ultra low level deep water ^{137}Cs activity in the South Pacific Ocean	31
4. 記録	
平成 20 年度見学来訪・出張の記録	32

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) (平成 21 年 1 月～)
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 福山泰治郎 (t_fukuyama@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
博士（農学） 専攻 砂防・環境放射能
- ・事務補佐員 中本美智代 (nakamoto@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・産学官連携研究員 西川方敏 (nisi@p2242.nsk.ne.jp)

学生

- ・博士後期課程 2 年 富田純平
- ・博士前期課程 2 年 中野佑介
- ・博士前期課程 1 年 美濃健太
- ・化学科 4 年生 川合健太
- ・化学科 4 年生 吉田圭佑

2. 活動報告

2-1. 研究概況

【低レベル放射能実験施設分野】

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。本年度は放射性核種をトレーサーとする地球化学研究に焦点を当て、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 半導体検出器の周り 2π sr に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た。若狭湾エネルギー研究センターの地上設置 Ge 検出器に応用し、100keV から 2000keV の BKG 成分の約 46% を除去できる事が確認された。一方、本システムによる宇宙線成分除去の有無による Pb-210(46keV)、Pb-212(238keV)、K-40(1462keV) のピーク面積変化は誤差範囲内で無視することができ、有効性が示された。

2) 尾小屋地下測定室の整備

5 年計画「極低レベル放射能測定による新研究領域開発と全国共同利用微弱放射能測定拠点の形成」の 4 年度目に当り、文科省特別教育研究経費 680 万円と学長特別研究経費 980 万円の交付をもとに尾小屋地下測定室の整備を行った。さらにトンネル内の路盤整備等を行った。

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、風上側のアジア大陸から日本海を経由して多量の自然・人為起源物質が日本列島さらに太平洋に輸送される。これらの輸送の実態把握と将来予測は気候変動の面からのみならず、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ーの蓄積を図っている。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、アンダーセンエアサンプラーを用いて、エアロゾルを粒径別に採取した。

4) 湖底堆積物から環境変動解析

自然-人間系の相互作用の結果としての環境変動変遷史の記録計として、地域の集水域を含む湖沼系を取り上げ、その湖底堆積物コアから過去数百年の自然変動と人間活動による環境変動を解読する時計を提示しその有効性を検証することを目的としている。湖底堆積物は、過去における流域の変動や湖内で生息した生物などの気候変動に絡む物理、化学、生物的变化をそれぞれの化石として記録している。化学成分は堆積後、続成作用の影響を

受けるものがあり、堆積当時を保存しているとは限らない。しかし基礎的な研究・検討を通じての適当な手法を用いれば、化学成分からも堆積環境変動解析が可能である。具体的には、従来の堆積物の物理・化学的測定に加えて、新規に堆積物中の天然放射性元素ウラン(トリウム) 同位体を指標にする。特に堆積物中のウランは、河川から流入する岩石・土壌に由来する成分と、湖内で溶存する成分が沈降堆積したものを含み、両者の含有割合が気候変動などによって大きく変動することが期待できる。数年前から陸域環境で気候変動に最も鋭敏なユーラシア東部を中心に、バイカル湖およびフズスグル湖で採取した堆積物コアを用いてウラン(トリウム) 同位体組成変動からの環境変動解析を検討している。また併せて堆積年代への応用も試みる。

5) 日本海固有水の多核種同時測定

ラジウム同位体、 ^{137}Cs は溶存成分として海水の動きを探るトレーサーとして、 ^7Be 、 ^{210}Pb および ^{228}Th は粒子に強く反応する核種としてこれら核種の海水からの除去過程、さらには粒子の挙動のトレーサーとしてこれら海水に存在する放射性核種は、古くから海洋化学に重要な役割を果たしてきた。これら半減期および地球化学的挙動の異なる複数の核種を組み合わせることにより海水の物質循環に関する総括的な議論が可能になる。

今年度は、平成 20 年 7-8 月の蒼鷹丸調査航海において、大和堆、対馬海盆の日本海混合層水および固有水を鉛直方向に採取、簡便な共沈法および低バックグラウンドガンマ線測定法により、海水試料における ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra および ^{228}Th の同時測定をおこなった。その結果より、日本海における水塊、粒子など物質循環に関する知見を引き出す。

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(気象研からの受託研究として共同で推進)で 150 試料を測定した。南半球深海 3500-4500m の南極終極深層水中に ^{137}Cs 濃度の高い地点が観測された。

7) 旧ソ連核実験場セミパラチンスク周辺の放射能汚染と住民への被曝線量評価

21 世紀の環境科学に課せられた最大の課題は、世界中に創りあげてきた環境問題、すなわち負の遺産の複雑現象を科学的に学び、将来に向けた新たな解決策を提示することである。こうした中、核被災や 10 年前から始まる劣化ウラン被災の住民、環境は最たるものである。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、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。

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

現在までに、広島原爆直後の中性子や γ 線による人体への直接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、“黒い雨”など爆発後の核分裂生成核種のローカルフォールアウト分布は、世界的な大気圏核実験由来のグローバルフォールアウトの影響により、60 年近く解明できない状況にある。我々は、広島原爆が原爆材料として ^{235}U を使用していることに着目し、 $^{235}\text{U}(n, \gamma)^{236}\text{U}$ 反応により生成したと考えられる ^{236}U から広島原爆由来のローカルフォールアウト分布を解明できないかと考えた。環境中

に存在する ^{236}U は非常に低濃度であるため、ウィーン大学加速器研究機関 (VERA) の加速器質量分析計 (TOF-AMS) で測定した (共同研究)。本年度は、土壌試料からの ^{236}U 抽出条件の検討し、人為的なローカルフォールアウトの影響がほとんどないと考えられる石川県能美市辰口の土壌を用いてグローバルフォールアウト由来の ^{236}U を評価した。

9) 大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉温鉱泉の 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)に含むことが世界各地で見出されている。日本では、近年の掘削技術の進歩により平野部や海岸地域において温泉井の開発が進み、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 型温鉱泉水が得られるようになった。我々は、これら高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉が ^{226}Ra を高濃度に含むのではないかと考え、Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体の地球化学的研究を始めた。その第一段階として、放射性廃棄物地層処分に絡む地下深部における放射性核種の長期移行・挙動解明の観点も鑑み、地層中に長期間閉じ込められている化石水に焦点を絞り、化石水を起源とする高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉が得やすい日本海沿岸地域を研究フィールドとした。本年度は、石川県沿岸地域の大深度掘削井から得られた Ra 同位体について報告する。また、東北地方 (青森県・秋田県・山形県) において温鉱泉水の、新潟県で岩石の採取を行った。

10) ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs および Ra 同位体からみた手取川流域水圏における水循環

降水および陸水には、宇宙線生成核種 (^3H , 12.3 年; ^7Be , 53.3 日; ^{22}Na , 2.60 年)、天然放射性核種 (^{226}Ra , 1600 年; ^{228}Ra , 5.75 年)、人工放射性核種 (^{137}Cs , 30.2 年) など様々な供給源、半減期をもつ放射性核種が含まれている。陸水におけるこれら核種濃度はその生成、供給、希釈、循環過程の壊変など水循環にともない、徐々に変化していくことから、水の履歴を探る重要な指標核種となりえる。本研究では、石川県西部に位置する手取川流域をフィールドとし、降水、地下水、河川水さらには沿岸海水試料に低バックグラウンドγ線測定法を適用、これら核種の分布から手取川流域における水循環のメカニズムを探った。

11) 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、土壌から分離精製したフミン酸と Am との錯形成の特徴を検討するため、限外濾過法により 5つの分子サイズ (450 nm-100kDa、100kDa-30kDa、30kDa-10kDa、10kDa-5kDa、<5kDa) に分画し、各分子サイズ画分のフミン酸と錯生成した Am の存在割合を比較した。その結果、両者には正の相関関係が存在した。このことは、土壌フミン酸の分子サイズの存在割合と錯形成に活性な官能基含有量と

に関連性が存在することが示唆された。

12) 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。

我々は、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。今年度は北海道の石狩川において 2004～2006 年の 3 年間に岩見沢大橋で 1～2 か月に 1 回河川水を採取し、懸濁態有機物の炭素同位体比を測定した。その結果、雪解け時期と降雨時に比較的古い有機物が河川を移行していることが明らかとなった。

13) 甲殻類の年齢の推定

若狭湾エネルギー研究センターとの共同研究で、甲殻類の脱皮後の年齢推定に Ra228-Th228 法が応用出来るかを検討した。本年度は 11 検体で測定を継続し、Ra228 から Th228 の成長が成長曲線とどの程度一致するか検討した。

2-2. 研究業績

1) 学術論文

- (1) Endo, S., Tomita, J., Yamamoto, M., Others 9: Iodine-129 measurement in soil samples from Dolon village near the Semipalatinsk nuclear test site. *Radiat. Environ. Biophys* 47, 359-365 (2008)
- (2) Fukushima, M., Shigematsu, S. Nagao, S: Oxidative degradation of 2,4,6-trichlorophenol and pentachlorophenol in contaminated soil suspensions using a supramolecular catalyst of 5,10,15,20-tetrakis (*p*-hydroxyphenyl) porphine-iron(III) bound to humic acid via formaldehyde polycondensation. *J. Environ. Sci. Health, Part A* (accepted)
- (3) Fukuyama, T., Onda, Y., Gomi, T., Yamamoto, K., Kondo, N., Miyata, S., Kosugi, K., Mizugaki, S.: Quantifying the impact of forest management practice on the runoff of the surface-derived suspended sediment using fallout radionuclides. *Hydrol. Processes* (accepted)
- (4) Fukuyama, T., Fujiwara, H.: Contribution of Asian dust to atmospheric deposition of radioactive cesium (^{137}Cs). *Sci. Total Environ.* 405, 389-395 (2008)
- (5) Fukuyama, T., Onda, Y., Takenaka, C., Walling, D.E.: Investigating erosion rates within a Japanese cypress plantation using Cs-137 and Pb-210_{ex} measurements. *J. Geophys. Res.* 113: F02007 (2008)
- (6) 福山泰治郎：人工林荒廃と水・土砂流出の実態、4 章 5 節「放射性降下物を用いたヒノキ林における土壌侵食量の推定」、pp.142-152, 恩田裕一編, 第 1 版、岩波書店、東京、ISBN978-4-00-005463-8 (2008)
- (7) Komura, K., Ahmed, N.K., El-Kamel, A.H., Yousef, A.M.M.: Variation of environmental

- neutron flux with the depth of water and soil. *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 9, 45-47 (2008)
- (8) Komura, K., Ahmed, N.K., El-Kamel, A.H., Yousef, A.M.M.: Some applications of the gold activation by environmental neutrons. *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 9, 49-52 (2008)
- (9) Matsunaga, T., Nagao, S.: Environmental behavior of plutonium isotopes studied in the area affected by the Chernobyl accident. *Humic Substances Research* (in press)
- (10) Mizugaki, S., Onda, Y., Fukuyama, T., Koga, S., Asai, H., Hiramatsu, S.: Estimation of sediment sources using ^{137}Cs and $^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$ in unmanaged Japanese cypress plantation watersheds, southern Japan. *Hydrol. Processes* 22 / 23, 4519-4531 (2008)
- (11) Nakano, Y., Inoue, M., Komura, K.: A simple coprecipitation method combined with low-background γ -spectrometry: Determination of ^7Be , ^{137}Cs , ^{210}Pb , and radium and thorium isotopes in small-volume coastal water samples. *J. Oceanogr.* 64, 713-717
- (12) Saitoh, Y., Kuma, K., Isoda, Y., Kuroda, H., Matsuura, Wagawa, T., Tanaka, H., Kobayashi, N., Nagao, S., Nakatsuka, T.: Processes influencing iron distributions in the coastal waters of the Tsugaru Strait, Japan. *J. Oceanogr.* 64, 815-830 (2008)
- (13) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Tomita, J., Mino, K., Sasaki, K., Kashiwaya, K., Kawai, T.: Uranium-series chronology for sediments of Lake Hovsgol, Mongolia, and the 1-Ma records of Uranium and Thorium isotopes from the HDP-04 drill core, Quaternary International, 2009. (accepted)
- (14) Sakaguchi, A., Kawai, K., Steier, P., Quint, F., Mino, K., Tomita, J., Hoshi, M., Whitehead, N., Yamamoto, M.: First results on ^{236}U levels in global fallout, Science of the Total Environment, 2009 (accepted)
- (15) Suzuki, T., Sugiyama, Y., Wada, C., Kumagai, T., Nagao, S., Kitano, T., Nakano, S., Mitamura, O., Matsuura, Y., Drucker, V. V., Fialkov, V. A., Sugiyama, M.: Role of allochthonous organic matter in Lake Bikal investigated using a 3-dimensional fluorescence excitation-emission matrix spectroscopy and high-performance liquid chromatography-mass spectrometry. *Verhandlungen*, 30, 469-476 (2008)
- (16) Nagao, S., Sakamoto, Y., Tanaka, T., Rao, R. R.: Effects of groundwater humic substances on sorption of Np (V) sandy materials. *Humic Substances Research* (in press)
- (17) 長尾誠也、関陽児、渡部芳夫：山形県金丸地区の地下水溶存有機物の蛍光特性。原子力バックエンド研究 (印刷中)
- (18) 長尾誠也、岩月輝希、濱克宏：岐阜県東濃地域の地下水から分離精製した溶存腐植物質の特性。原子力バックエンド研究 (印刷中)
- (19) 富田純平、佐竹 洋、佐々木圭一、坂口 綾、井上睦夫、浜島靖典、山本政儀：大深度掘削井から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中のラジウム (Ra) 同位体－石川県沿岸地域－。温泉科学 58, 244-258 (2009)
- (20) Yamada, Y., Yasuike, K., Komura, K.: Relationship between carbon-14 concentrations in tree-ring cellulose and atmospheric CO_2 . *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 9, 41-44 (2008)
- (21) Yamamoto, M., Oikawa, S., Sakaguchi, A., Tomita, J., Hoshi, M., Apsalikov, K. N.:

Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotopic ratio in human tissues collected from areas around the Semipalatinsk nuclear test site by sector-field high resolution ICP-MS. *Health Phys.* 95, 291-299 (2008)

2) 総説・資料・報告書

- (1) Kim, V. I., Makhinov, A. N., Nagao, S., Seki, O., Kawahigashi, M. (2008) Stream flow distribution between the sub-channels within the middle-Amur Plain: Report on Amur-Okhotsk Project, No.5, 31-35
- (2) Nagao, S., Seki, O., Kawahigashi, M. (2008) Geochemical behavior of dissolved iron in waters from the Amur River, Amur-Liman and Sakhalin Bay: Report on Amur-Okhotsk Project, No.5, 21-25
- (3) Onishi, T., Hibata, H., Nagao, S., Park, H., You, M., Shamov, V. V. (2008) Long-term trend of dissolved iron concentration and hydrological model incorporating dissolved iron production mechanism of the Amur River basin: Report on Amur-Okhotsk Project, No.5, 199-207
- (4) 長尾誠也 (2008)「放射性廃棄物処分研究のためのネットワーク」第1回情報交換会講演資料集 連携重点研究課題5 放射性廃棄物処分研究のためのネットワーク第1回情報交換会実行委員会: JAEA-Conf2008-002.
- (5) 長尾誠也 (2008)「環境中の腐植物質: その特徴と研究法」石渡良志・米林甲陽・宮島徹編、三共出版、東京 pp30-48, 98-106, 153-157.
- (6) 野村律夫、井上睦夫、瀬戸浩二、入月俊明、高田祐行: 中海の閉鎖性水域の開削に伴う湖水循環の変化と周辺域への影響. 平成19年度ニッセイ財団研究報告書

3) 学術発表

- (1) 阿部琢也、小池裕也、廣田昌大、小佐古敏荘、山口芳香、田中究、村田祥全、小村和久: メソスケール大気動態解析のための大気中放射性核種の高解像度同時観測. 日本保健物理学会、沖縄 (2008.6)
- (2) 福嶋正巳、長尾誠也: ヒドロキノン修飾した腐植酸への鉄ポルフィリン触媒の導入とその触媒活性の評価. 第24回腐植物質学会、札幌 (2008.11)
- (3) 福山泰治郎、恩田裕一、水垣滋: 貯水池堆積物の解析に基づいたヒノキ人工林流域の侵食履歴推定. 平成20年度砂防学会研究発表会、札幌 (2008.5)
- (4) 福山泰治郎、恩田裕一、水垣滋: 貯水池堆積物中の放射性降下物から推定したヒノキ人工林流域の侵食履歴. 第21回水文・水資源学会総会・研究発表会、東京 (2008.8)
- (5) Fukuyama, T., Onda, Y., Gomi, T., Yamamoto, K., Kondo, N., Miyata, S., Kosugi, K., Mizugaki, S., Tsubonuma, N.: Erosion processes in Japanese cypress plantation catchment estimated from the Cs-137 and Pb-210ex activities in suspended sediment. *Hydrochange 2008*, Kyoto (2008.10)
- (6) 福山 泰治郎、山本 政儀、井上 睦夫、恩田 裕一、水垣 滋、成沢 知広: 放射性核種 Be-7 (ベリリウム7) の表土トレーサーとしての適用性の検討. 第120回日本森林学会

- 大会、京都 (2009.3)
- (7) 浜島靖典、古沢優太：薄いプラスチックシンチレータと波長変換ファイバーを用いた Ge 用宇宙線除去装置の開発．第 52 回放射化学討論会、広島 (2008.9)
- (8) Inoue, M. and Nakamura, N.: Peculiar REE pattern in a granular-olivine inclusion from the Murchison (CM2) chondrite. 71th Annual Meeting of the Meteoritical Society, Matsue, Japan (2008.7-8)
- (9) 井上睦夫、中野佑介、福山泰治郎、小藤久毅、浜島靖典：手取川流域の降水、地下水、河川水における ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs および Ra 同位体の分布．第 52 回放射化学討論会、広島 (2008.9)
- (10) 井上睦夫、中野佑介、福山泰治郎、小藤久毅、横田喜一郎、浜島靖典： ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs および Ra 同位体をトレーサーとした水圏における水循環---手取川流域を例にとって---．日本陸水学会第 73 回大会、札幌 (2008.10)
- (11) 美濃健太、坂口綾、山本政儀、柏谷健二、中村俊夫：湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体：モンゴル・フブスグル湖．日本陸水学会第 73 回大会、札幌 (2008.10)
- (12) Mino, K, Sakaguchi, A., Krivonogov, S., Orkhonselenge, A., Nakamura, T., Kashiwaya, K., Yamamoto, M.: URANIUM AND THORIUM RECORDS IN THE HOLOCENE HIGH-RESOLUTION SEDIMENTS FROM BORSOG BAY IN LAKE HOVSGOL, MONGOLIA The 7th International symposium on Environmental Changes in East Eurasia and Adjacent Areas – High resolution records of terrestrial sediments, Hatgal, Mongolia (2008.8)
- (13) 三上裕、関宰、長尾誠也、福嶋正巳、荒巻能史、内田昌男、柴田康行、南秀樹、加藤義久、坂本竜彦、中塚武：オホーツク海表層堆積物における有機物の起源推定．日本地球化学会年会、東京 (2008.9)
- (14) Nagao, S., Aoyama, M., Watanabe, A., Tanaka, T.: Complexation of Am with size-fractionated soil humic acids, 5th International Conference Interactions Against Pollution, Kyoto (2008.6)
- (15) Nagao, S., Aramaki, T., Seki, O., Uchida, M., Shibata, Y.: Carbon isotopes of POC in a small river in Bekanbeushi moor, northern Japan 11th International Conference on Accelerator Mass Spectroscopy, Rome, Italy (2008.9)
- (16) Nagao, S., Itoh, S., Yoh, M., Yan, B., Zhang, B., Shiraiwa, T.: Spatial distribution of fluorescent organic matter in groundwaters at Sanjiang Plain. International Symposium on Hydrological Changes and Measurements from Headwater to the Ocean, Kyoto (2008.10)
- (17) Nagao, S., Aramaki, T., Ogurom, Y., Amano, H., Uchida, M., Shibata, Y.: Variations in $\Delta^{14}\text{C}$ values of POM in the Ishikari River, American Geophysical Union, Fall Meeting, San Francisco, America (2008.12)
- (18) 長尾誠也：北海道湿原域河川水の腐植物質の特徴と移行挙動．第 24 回日本腐植物質学会、札幌 (2008.11)
- (19) 長尾誠也、岩月輝希、吉川英樹：北海道幌延地域の深部地下水腐植物質の特徴．日本地球化学会年会、東京 (2008.9)

- (20) 中野佑介、井上睦夫、皆川昌幸、田中究、浜島靖典：日本海海水における ^7Be , ^{137}Cs , ^{226}Ra , ^{228}Ra および ^{228}Th の鉛直分布．第 52 回放射化学討論会、広島 (2008.9)
- (21) 関宰、長尾誠也、児玉宏樹、米林甲陽、宮島徹、中塚武、藤嶽暢英：土壌、堆積物および溶存腐植物質の水素同位体比．第 24 回腐植物質学会、札幌 (2008.11)
- (22) 鈴木智代、長尾誠也、楊宗興、閻百興：中国三江平原における溶存有機物の蛍光特性．地球惑星科学合同大会、幕張 (2008.5)
- (23) 玉村修司、長尾誠也：Eu(III) との錯形成による蛍光消光特性の腐植物質分子量依存性—三次元—蛍光スペクトルと高速液体サイズ排除クロマトグラフィーによる検討、第 24 回腐植物質学会．札幌 (2008.11)
- (24) 寺島元基、長尾誠也、福嶋正巳：フミン酸およびそのサイズ画分のカオリナイトへの協同吸着．第 24 回腐植物質学会、札幌 (2008.11)
- (25) 富田純平、山本政儀、佐竹洋：大深度掘削井から得られた Na-Cl 型温鉱泉の Ra 同位体：新潟県．日本温泉科学会、茨城 (2008.9)
- (26) 富田純平、井上睦夫、浜島靖典、佐竹洋、山本政儀：日本海沿岸地域の大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉の Ra 同位体．日本陸水学会第 73 回大会、札幌 (2008.10)
- (27) 遠藤暁、静間 清、星 正治、天野 光、富田純平、山本政儀、今中哲二、福谷 哲、田中憲一、川村秀久、河村日佐男：セミパラチンスク核実験場近郊から採取した土壌試料中 I-129 汚染量の測定．日本原子力学会、東京 (2009.3)
- (28) 山口芳香、阿部琢也、村田祥全、田中究、小村和久：大気中環境動態のトレーサーとしての極低レベル放射性核種の高解像度観測．日本保健物理学会、沖縄 (2008.6)
- (29) Yamamoto, M., Kawai, K., Mino, K., Tomita, J., Oikawa, S., Imanaka, T., Hoshi, M., Endo, S., Apsalikov, K. N., Sakaguchi, A., Steier, P.: Radionuclide Contamination of the Settlements where the Semipalatinsk historical cohort resided: Laying Stress on Sarzhal and Karaul settlements. 14th Hiroshima International Symposium-Semipalatinsk and related studies, Hiroshima (2009.3)

4) 研究交流

・共同研究

- (1) 山本政儀、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) 長尾誠也、北東アジアの人間活動が北太平洋の生物生産に与える影響評価、総合地球環境学研究所、2003-現在
- (3) 長尾誠也、深部地質環境における生物化学特性の評価、産業技術総合研究所、2005-現在
- (4) 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

・ 海外渡航

- (1) 山本政儀、フブスグル湖周辺環境試料採取、モンゴル (2008.8)
- (2) 山本政儀、「旧ソ連核実験場周辺住民の被曝線量評価」の土壌試料収集、カザフスタン共和国 (2008.9)
- (3) 山本政儀、「平和研究と平和教育」に関する国際会議参加と現地状況調査、国立トムスク教育大学 (ロシア連邦) (2008.9)
- (4) 長尾誠也、河口域調査、アムール川、ロシア (2008.8)
- (5) 長尾誠也、American Geophysical Union の Fall Meeting、サンフランシスコ、アメリカ (2008.12)

5) 各種活動 (学会・社会)

・ 学会活動

山本政儀：日本放射線影響学会幹事、日本原子力学会中部支部幹事、日本放射化学会編集委員、日本温泉科学会編集委員

長尾誠也：日本腐植物質学会評議員、日本原子力学会学会誌編集委員、日本分析化学会北海道支部幹事

・ 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、核融合科学研究所重水実験安全評価委員会委員、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、石川県環境試料測定法調査検討委員

長尾誠也：日本原子力研究開発機構研究嘱託、日本分析センター「放射能分析確認調査」ワーキンググループ委員、地球科学技術総合推進機構「非破壊計測ワーキンググループ」委員

・ 招待講演および特別講演

- (1) 山本政儀、美濃健太：極微量放射能測定と放射年代測定への応用、名古屋大学タンデトロン加速器質量分析計シンポジウム (2009.1)
- (2) 長尾誠也：河川に流入した DOC の移行と生元素の運搬、日本土壌肥料学会愛知大会シンポジウム「土壌－河川－海生態系における溶存有機炭素(DOC)の動態と機能」、愛知 (2008.9)

2-3. 研究費

1) 科学研究費等

- (1) 山本政儀 (代表)、文部科学省特別研究、極低レベル放射能測定による新領域の開発と全国共同利用微弱放射能測定拠点の形成、6,800 千円
- (2) 山本政儀 (代表)、学長戦略経費 (重点研究経費)、極低レベル放射能測定による新領域の開発と全国共同利用微弱放射能測定拠点の形成、9,800 千円

- (3) 山本政儀（代表）基盤研究(B)、旧ソ連核実験場周辺住民の被曝線量評価の解決に向けて、3,100 千円
- (4) 長尾誠也（代表）基盤研究(B)、集中豪雨により放出される懸濁粒子の特徴と沿岸生態系への影響評価、277 千円
- (5) 長尾誠也（分担）科学研究費基盤研究 A、縁辺海（ベーリング海、オホーツク海、日本海）の基礎生産を支える鉄の挙動とその起原（代表：久万健志）、50 千円
- (6) 井上睦夫（代表）基盤研究(C)、短寿命宇宙線誘導核種をトレーサーとする水文科学研究、900 千円
- (7) 富田純平 特別研究員奨励費、安定・放射性同位体をプローブとする温鉱泉の地球化学的研究：油田塩水のラジウム異常、600 千円

2) 受託研究費等

- (1) 山本政儀、石川県受託研究、プルトニウム等 α 線放出核種の分布状況及び移行挙動調査、2,000 千円
- (2) 長尾誠也（北大） 日本原子力研究開発機構受託研究、原位置における有機物特性データ取得法の検討、3,000 千円
- (3) 長尾誠也（北大） 産業技術総合研究所受託研究、溶存有機物の核種移行への影響とりまとめ、5,000 千円
- (4) 浜島靖典、気象研究所受託研究、海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究、3,000 千円
- (5) 浜島靖典、若狭湾エネルギー研究センター共同研究、放射性同位元素分析によるズワイガニの年齢評価、525 千円

3) 奨学寄付金

- (1) 長尾誠也（代表）、福田水文センター、1,363 千円

2-4. 研究指導

1) 修士論文

- (1) 中野佑介、複数の放射性核種を用いた日本海における物質循環解明、自然科学研究科物質化学専攻、修士（理学）、小村和久、山本政儀
- (2) 鈴木智代（北大）、「中国三江平原における溶存有機物の蛍光特性」、修士（環境科学）、長尾誠也
- (3) 三上裕（北大）、「オホーツク海表層堆積物の有機物の起源推定研究」、修士（環境科学）、長尾誠也

2) 卒業研究

- (1) 川合健太、加速器質量分析計（AMS）による極微量 ^{236}U 測定：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、理学部化学科、学士（理学）、山本政儀
- (2) 吉田圭佑、日本海側における大気エアロゾルの Pb-210 と Be-7 濃度の流刑分布、理学部化学科、学士（理学）、山本政儀

- (3) 三上昌人 (北大)、「石狩川における粒子態有機物の特徴と移行挙動」、学士(理学)、長尾誠也

3. 研究報告

薄いプラスチックシンチレータと波長変換ファイバーを用いた Ge 用宇宙線除去装置の開発

浜島靖典, 古沢優太

〒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. and Furusawa, Y.: Cosmic ray BKG reduction system for Ge detector utilizing thin plastic scintillators and wavelength shifting fibers

【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、遮へい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、鉛遮へいの間に挿入する薄い PS と波長変換光ファイバー(WSF)を用いて Ge 検出器用の宇宙線除去装置の開発を試みた。

【装置】KURARAY 製 SCSN-81 PS (180×200 mm 厚さ 3 mm, ピーク発光波長 440 nm (青), 減衰長 1.4 m) の周囲に幅 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 ns, 減衰長 3.5 m 以上)WSF を挿入した。この WSF を浜松ホトニクス製 H3165-10 光電子増倍管 (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) に接続した。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。Ge 検出器の 2 π をカバーするため、この PS と WSF を 5 組用いる。5 本の WSF はまとめて 1 本の光電子増倍管に接続し、和事象とする事が可能であり、このための電子回路が不要となる。タイミング系の全回路を省略し、信号は全て直接岩通計測 A3100 に入力し list モード測定をテストした。

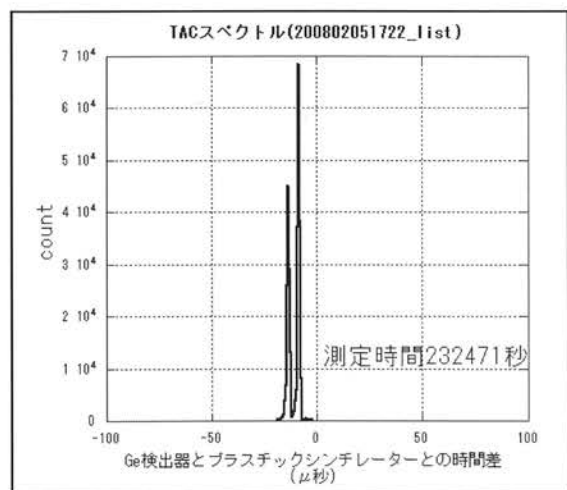
【結果と考察】Sr-90 線源を用いて PS の計数効率の入射位置による違いを測定したところ $\pm 20\%$ 程度の差が見られたが、実用性には問題ないと考えている。

図に Ge の事象を基準にした時間差スペクトルを示す。 -10μ 秒付近に 2 本のピークが観測されたが、時間幅を -20 から 0μ 秒とするとほぼ全ての同時事象を検出できる。右のピークと同時計数する Ge のエネルギーは 4MeV 以上のみ、左は 0-4MeV 全体に分布していた。

5PS シングル, 100%Ge シングル, 両者の同時事象の計数率はそれぞれ約 1k, 130 (BKG 高い), 50 cpm

で、厚さ 3 mm の PS でも十分にミュー粒子由来成分を検出でき、PS の計数率も下げることができた。しかし、同時計数率はまだ 50%以下であり、調整不足である。

Ge 検出器の 1 事象に対し複数個の PS 事象が観測される事があった。システム全体について検討すべき点はあるが、本装置は宇宙線除去装置として充分使用可能である。



湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体：モンゴル・フブスグル湖

美濃健太¹、山本政儀¹、柏谷健二²、中村俊夫³

¹〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学環日本海域環境研究センター LLRL

²〒923-1192 石川県金沢市角間町 金沢大学環日本海域環境研究センター

³〒464-8602 愛知県名古屋市千種区不老町 名古屋大学年代測定総合研究センター

K.Mino, M.Yamamoto, K.Kashiwaya, T.Nakamura: Uranium and thorium isotopes in the lacustrine sediments : Lake Hovsgol, Mongolia

[はじめに] 湖底堆積物は過去にその集水域で生じた環境変動の情報を物理・化学・生物的な変化として記録している。当研究室ではこれまでに、古代湖をフィールドとしたウラン(U)・トリウム(Th)同位体研究から湖底堆積物への U(Th)年代測定法の応用可能性を報告してきた。その中でフブスグル湖の堆積物試料(HDP04)からは、U 濃度が氷期・間氷期の気候変動に対応して分布することも見いだしている。Edgington et al., (1996)では堆積物中の U 濃度の増加は温暖・湿潤な気候で起源となる土壌・岩石からの U の流出が増加した事に起因すると説明されている。また Sakaguchi らは全 U の 50-80%が溶存層から沈降した U で占められており、逐次抽出の結果からバイオジェニックシリカフラクションに自生性 U は堆積しないことを示している。しかしながら、U の沈降メカニズムに関する研究例は少なく、依然として不明な点が多い。

本研究では完新世の情報を優れた時間分解能で保存していると考えられるフブスグル湖 BB03 堆積物試料を用いて、湖底堆積物への U(Th)同位体の堆積挙動を検討した。



Fig.1 Map of Lake Hovsgol showing coring site BB03

[方法] 2003 年にフブスグル湖東部に位置する Borsog Bay (Fig.1)から採取された BB03 コア(1233cm)を用いた。1 cm 毎に切断した 1233 試料のうち、10-15 cm 間隔で取り出した全 120 試料について全分解、化学分離後、 α 線測定により U・Th 同位体を測定した。また、溶存相から沈降した U (自生性 U)、河川などによって運ばれる土壌・岩石起源の U (陸源性 U) を評価するため、0.5N、2N 塩酸抽出による疑似アイソクロン法を用いて自生性 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比を求めた。また BB03 コアについて堆積年代を把握するため、名古屋大学タンデトロロンを用いて ^{14}C 年代測定を実施した。

[結果と考察] ^{14}C 年代測定の結果を Fig.2 に示す。図では TOC 年代の測定結果から矛盾の少ない年代の遷移直線を推定し示した。TOC での ^{14}C 年代は最表層で 2555 ± 31 yr BP、最下層で 8984 ± 43 yr BP の値が得られた。深度 80-180 cm、500-800 cm の試料からはそれぞれ同じ年代が得られており、これらの深度では一度に大量の堆積があったことが示唆される。また深度 638 cm で産出した木片の ^{14}C 年代は 4079 ± 29 yr BP であった。試料採取時に表層の欠損は報告されていない。

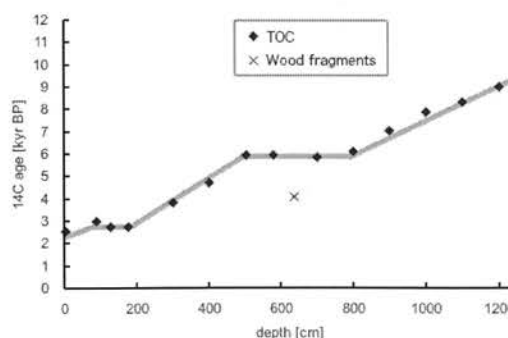


Fig.2 BB03 core depth - age model

最表層の TOC 年代が陸源性の土壤有機物と炭素のリザーバー効果により見かけ古い年代を示しているとする、その効果は約 2500 年と見積もられる。しかしながら、炭素の起源が明らかである木片の年代が真の年代を示しているとしたとき、木片の年代とこの木片が産出した深度の TOC 年代との差は約 2000 年となり、表層試料からの見積もりと一致しない。このずれの原因には、いずれかの試料が堆積時に乱れた可能性が考えられる。

全分解による堆積物中の U、Th 同位体濃度測定の結果を Fig.3 に示す。全 ^{238}U 、 ^{232}Th 濃度はそれぞれ 19-103 Bq/kg、7-46 Bq/kg の範囲で変動した。短期間に大量の堆積があったと考えられる深度 80-180 cm、500-800 cm の範囲では U 濃度は極小となる。

深度 80-180 cm、500-800 cm の範囲では $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は、特に深度 500-800 cm で、放射平衡の値(=1)に近づいている。本試料においても陸源性 U 系列核種に放射平衡を仮定すると、これらの時期では陸域から大量の土砂が流入し堆積したことが考えられる。また、全岩粒度分布測定の結果からも、これらの時期は比較的に粒径が大きくなっており、さらに深度 500-800 cm では少なくとも 4 回、粗粒化、細粒化のサイクルが見いだされている。これらの結果から、この深度で見られた堆積速度の極端な増加は、陸域から大量の土砂が流入する、例えば洪水のようなイベントが断続的に存在していたことによるものと考えられる。

堆積物中の U 濃度の変動とこれらイベントとの関係を検討するため、全分解による U 濃度から陸源性 U、自生性 U の識別を行った。15 試料については塩酸抽出の疑似アイソクロン法から自生性 U 濃度を求め、全 U 濃度を測定した試料については陸源性 U 系列に放射平衡を仮定し、Th を陸源性物質の指標として識別を試みた(Fig.5)。疑似アイソクロン法により求めた自生性 ^{238}U 濃度は、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 放射能比を過去一定と仮定し推定した自生性 ^{238}U 濃度の遷移曲線上にプロットされた。Th を陸源性物質の指標と見なす推定法は、陸源性 U 系列に放射平衡を仮定する上では妥当であるといえる。自生性 ^{238}U 濃度は堆積物中全 ^{238}U 濃度の最大 66% を占め、全 ^{238}U と同様の変動を見せる。この堆積物中の全 ^{238}U 濃度の変動は自生性 ^{238}U 濃度の変動に起因するものと考えられる。

現在、イベント時の溶存 U 濃度と吸着剤の親和性を検討すべく、吸着剤に鉄・マンガンの水和酸化物や有機物を想定した吸着実験を予定している。

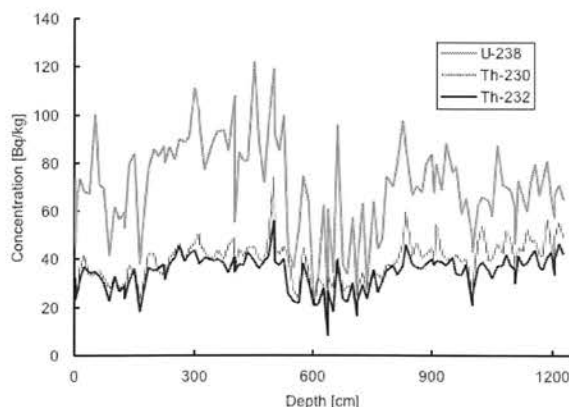


Fig.3 Vertical distribution of U-238, Th-230 and Th-232

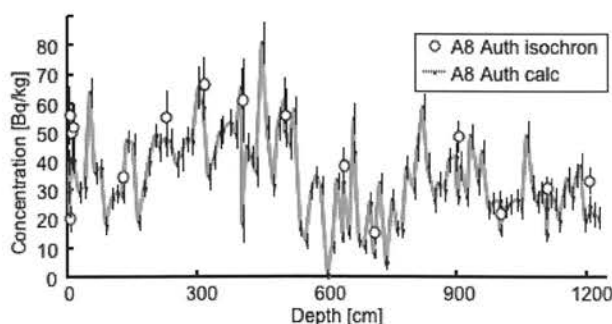


Fig.4 Vertical distribution of authigenic U-238

手取川流域の降水、地下水、河川水における ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs および Ra 同位体の分布 井上睦夫¹、小藤久毅²、中野佑介¹、浜島靖典¹、山本政儀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LLRL

²〒035-0064 青森県むつ市港町 日本海洋科学振興財団

Inoue, M., Nakano, Y., Kofuji, H., Hamajima, Y. and Yamamoto, M.:

Distributions of ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs and Ra isotopes in rain water, ground water and river water of the Tedor River Basin

【はじめに】

降水として地表にもたらされた水は地下水、河川水の供給源となり、その後も循環を続ける。それら降水および陸水には、宇宙線生成核種 (^3H , 12.3 年; ^7Be , 53.3 日; ^{22}Na , 2.60 年)、天然放射性核種 (^{226}Ra , 1600 年; ^{228}Ra , 5.75 年)、人工放射性核種 (^{137}Cs , 30.2 年) など様々な起源、半減期をもつ放射性核種が含まれている。陸水におけるこれら核種濃度はその生成、供給、希釈、循環過程の壊変など水循環にともない、徐々に変化していくことから、水の履歴を探る重要な指標核種となりえる。降水の ^7Be などの例外を除き、これら核種は陸水中には極めて微量にしか存在しておらず、低バックグラウンドγ線測定においても、数百リットル以上の地下水が必要となるなど、その測定は困難とされてきた。本研究では、石川県西部に位置する手取川流域を研究フィールドとし、降水、地下水、河川水さらには沿岸海水試料を採取、低バックグラウンドγ線測定法を適用、これら放射性核種の分布を探る。さらに、この測定結果が、降水の涵養時の土壌との相互作用、陸水の循環メカニズム (特に、降水、河川水、沿岸海水とのこれら核種濃度の比較からみた地下水の履歴) にもたらす知見について議論する。

【試料と実験】

本研究で使用した水試料の採取地点を Fig. 1 に示した。採取地点におけるイオン交換樹脂 (主に Powdex 樹脂) を使用したバッチ法 (一部、研究室での共沈法) により、300 L の地下水、100 L の河川水試料および 20 L の降水、沿岸海水試料より目的核種を分離した。これら試料に対し、尾小屋地下測定室 (水深換算 270 m) に設置したゲルマニウム検出器を使用した低バックグラウンドγ線測定法を適用した。 ^3H 濃度については、電解濃縮後、β線計測をおこなった。

【結果と考察】

手取川流域の降水、地下水、河川水における ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs および Ra 同位体の分布を Fig. 2 にまとめた。

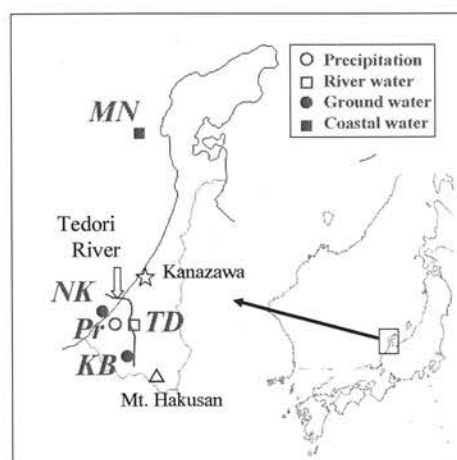


Fig. 1 Sampling locations for water samples

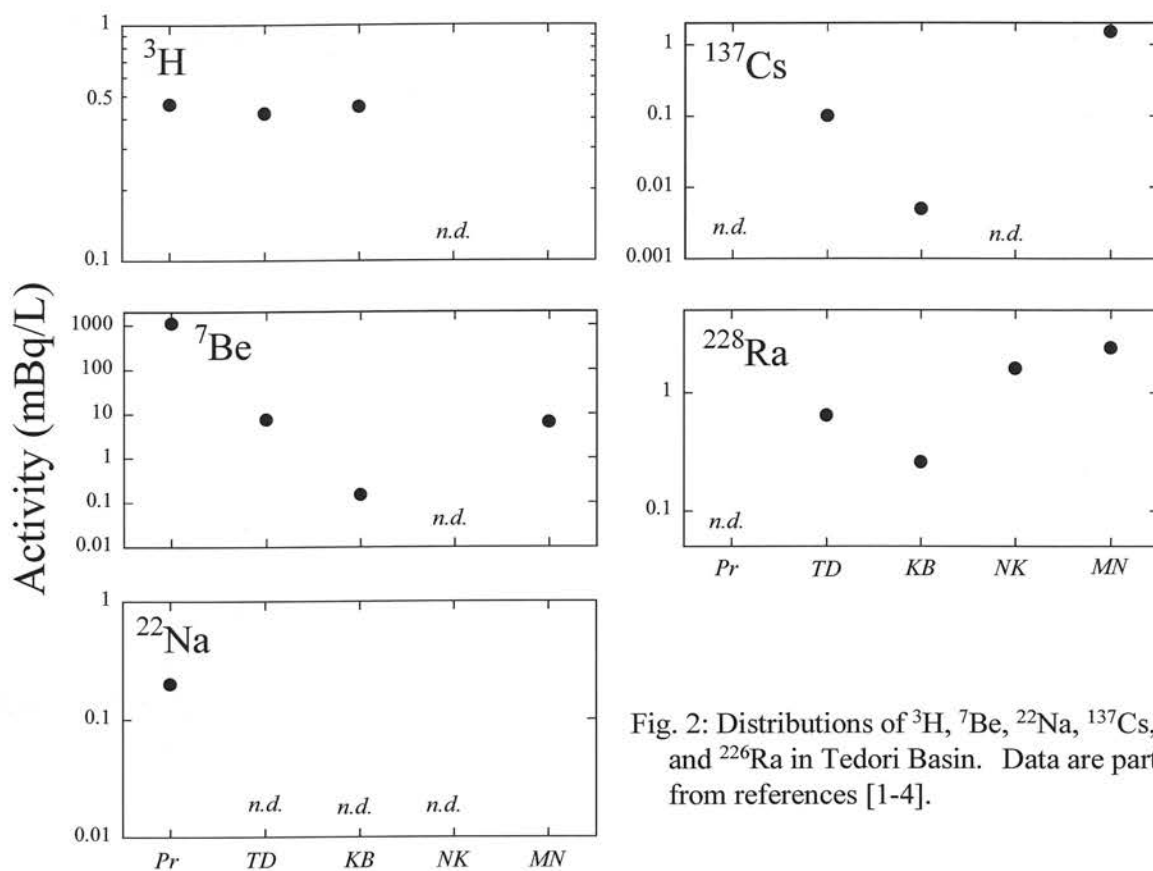


Fig. 2: Distributions of ^3H , ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs , and ^{226}Ra in Tedor Basin. Data are partly from references [1-4].

降水 (Pr)

宇宙線生成核種 ^7Be 、 ^{22}Na は、河川水 (TD)、地下水 (KB) より明らかに高濃度であったが、より半減期の長い ^3H には濃度差はみられなかった。

中流河川水 (TD)

降水 (Pr) および地下水 (KB, NK) の特徴が同時にみられた。

山間中腹部地下水 (KB)

微弱であるが ^7Be (~ 0.1 mBq/L), ^{137}Cs の検出 (~ 0.01 mBq/L) に、それぞれ降水、および表層堆積物の寄与がみられなど、浅層移動の若い年齢が反映された。河川水と同レベルの ^3H 濃度 (~ 0.45 mBq/L) は、これと矛盾しない。

平野部地下水 (NK)

手取川さらに海岸線に近く湧出するが、 ^3H 、 ^7Be 、 ^{137}Cs が検出限界以下、さらに高いラジウム濃度は長く深い流路における周囲からの溶出を反映するなど、中腹地下水 (KB) に比べ、長い滞留時間が推測される。

参考文献: [1] Komura et al. (2007) *J. Environ. Radioactivity* **96**, 103-109; [2] 笠原ほか (2007) 新潟県放射線監視センター年報 **5**, 28-34; [3] Sugihara et al. (2007) *8th Inter. Conf. ^3H Sci. Tech.* poster; [4] Inoue et al. (2007) *Mar. Chem.* **107**, 559-568

大深度掘削井から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体—石川県沿岸地域—

富田純平¹, 佐竹 洋², 佐々木圭一³, 坂口 綾⁴, 井上睦夫¹, 浜島靖典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〒930-8555 富山県富山市 富山大学理学部; ³〒920-1392 石川県金沢市 金沢学院大学美術文化学部 ⁴〒734-8553 広島県広島市 広島大学原爆放射線医科学研究所

J. Tomita¹, H. Satake², K. Sasaki³, A. Sakaguchi⁴, M. Inoue¹, Y. Hamajima¹, M. Yamamoto¹: Radium Isotope in Na-Cl Type Saline Waters from Deep Wells around Coastal Area in Ishikawa Prefecture, Japan

【はじめに】

温鉱泉水中の放射性核種, 特に Ra および Rn 同位体の研究は盛んに行われてきた. その結果, 現在までにいくつかの ^{226}Ra を高濃度に含む温鉱泉水が見出されている. 例えば, 花崗岩地帯から湧出する有馬温泉 (^{226}Ra : ~ 6.2 Bq/kg; 横山, 1955) および増富温泉 (^{226}Ra : ~ 1.4 Bq/L; Kanai, 1988), ウラン鉱床付近から湧出する三朝温泉 (^{226}Ra : ~ 0.55 Bq/L; 横山, 1955) などが代表的な温鉱泉である. 近年, 掘削技術の進歩により平野部や沿岸地域の大深度掘削井から海水や化石海水を起源とする高塩濃度の Na-Cl 型温鉱泉が多数得られるようになった (宮崎ら, 2007). 世界の油田・ガス田池帯など海水よりも高塩濃度の塩水中に 100 Bq/kg を超える ^{226}Ra が見出されていること (Sturchio et al., 2001), また一部の地域では ^{226}Ra 濃度が塩濃度と良い相関を示すことから, わが国においても平野部や沿岸地域の大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉中に ^{226}Ra を高濃度に含む温鉱泉が存在することは十分予想できる. そこで, 我々は高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉が得易い沿岸地域での Ra 同位体の地球化学的調査・研究を開始した. 本年度は, 石川県沿岸地域の大深度掘削井から採取した Na-Cl 型温鉱泉の Ra 同位体について報告するとともに, Na-Cl 型温鉱泉水中の U 濃度, 水素・酸素同位体比および主要化学成分の結果も踏まえ, Ra 同位体の水相への供給メカニズムについて議論する.

【試料採取および実験方法】

試料採取地点および表層地質を図 1 に示す. Na-Cl 型温鉱泉水の試料採取は石川県沿岸地域から計 23 地点において行った. 大部分の温鉱泉水は 1000 m 級の大深度掘削井から得られたものである. また, 5 地点において河川水の採取も行った. 温鉱泉水中の Ra および U 同位体は, それぞれ BaSO_4 および $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法により回収し, それぞれ γ 線および α 線スペクトロメトリーにより定量した. 水素同位体比 (δD) および酸素同位体比 ($\delta^{18}\text{O}$) は安定同位体比用質量分析計, 主要化学成分はイオンクロマトグラフにより測定した. Alkalinity 測定は 0.1 M HCl 滴定法で行った.

【結果と考察】

$\delta\text{D}-\delta^{18}\text{O}$, $\delta\text{D}-\text{Cl}$, $\delta^{18}\text{O}-\text{Cl}$ の関係から, Na-Cl 型温鉱泉水は海水と地域の天水の混合物であることが示された. また, 一部の温鉱泉では SO_4/Cl 比が海水と比べ著しく減少しており, これら温鉱泉水は化石

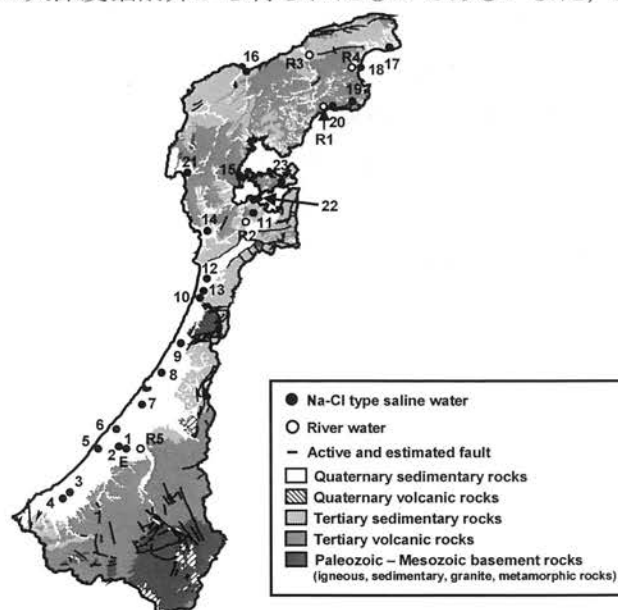


図1 試料採取地点と表層地質

海水起源であると考えられる。図2に ^{226}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の測定結果を示す。Na-Cl型温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度は、1.78~2143 mBq/kgと幅広い値であり、我々が当初予測したように ^{226}Ra を高濃度（温泉法の基準である 1×10^{-8} mg/kg、放射能強度で ^{226}Ra が370 mBq/kg以上）に含む温鉱泉水が存在した。

$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は0.83~4.9であり、日本の

代表的な岩石の $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比（花崗岩: 0.4~2.9, 玄武岩: 0.8~2.2, Miyake et al., 1975）と同程度からやや高い値であった。また、 ^{226}Ra 濃度は塩濃度が高くなると高くなる傾向が見出された（図3）。これはRa濃度が塩濃度依存性の吸着/脱離反応により支配されていることを示す。温鉱泉水中の ^{238}U 濃度は、検出限界以下~2.04 mBq/kgと非常に低濃度であった。これは、温鉱泉水が還元環境に胚胎していることが示唆される。以上の測定結果から、Ra同位体は、岩石（鉱物）表層（岩石-水境界）に存在するTh同位体の α 壊変に伴う α 反跳により水相へ供給され、Ra濃度は塩濃度依存性の吸着/脱離反応により支配されていることが明らかとなった。また、温鉱泉水中のRa同位体が高濃度となるには、塩濃度のみならず、Ra同位体の親核種であるTh同位体が粘土のような粒径の小さい鉱物に存在するか、岩石（鉱物）表層に濃集している、またはその両方である必要性が示唆された。

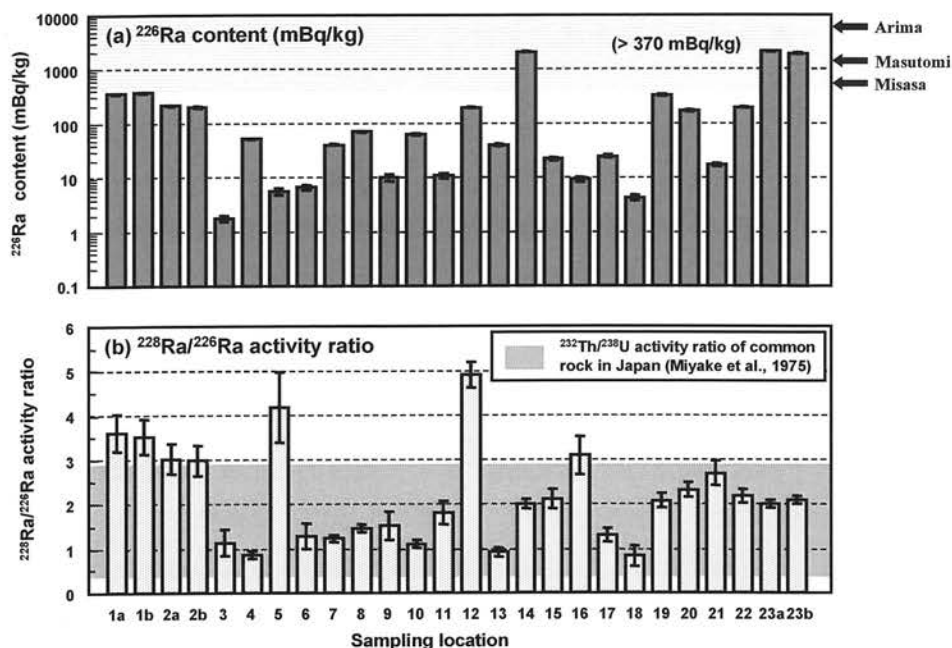


図2 Na-Cl型温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比

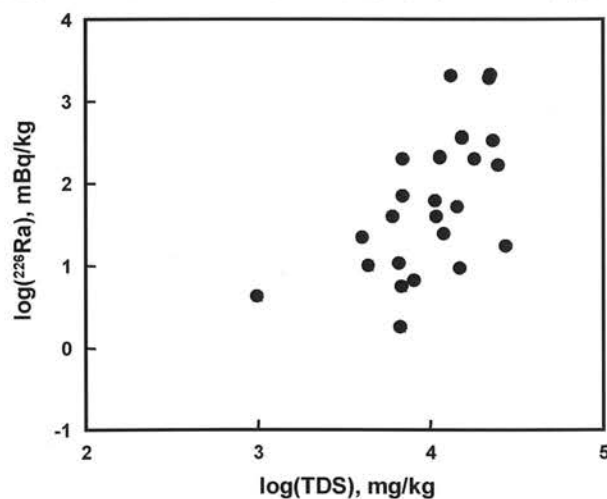


図3 ^{226}Ra -TDSの関係

【参考文献】

- Kanai, Y. (1988): *Geochem. J.*, 22, 285-292.
- 鮎野義夫 (1993): 新版・石川県地質図. 石川県.
- Miyake, Y., Sugimura, Y., Hirao, Y. (1975): *Proc. 2nd. Inter. Symp. Natural Radiat. Environ.*, 535-558.
- 宮崎哲郎, 柴田智郎, 秋田藤夫, 高橋徹哉, 青柳直樹, 中山憲司, 内野栄治, 橋爪 清, 甘露寺泰雄 (2007): *温泉科学*, 57, 99-114.
- Ohwada, M., Satake, H., Nagao, K., Kazahaya, K. (2007): *J. Volc. Geotherm. Res.*, 168, 55-67.
- Sturchio, N.C., Banner, J.L., Binz, C.M., Heraty, L.B., Musgrove, M. (2001): *Appl. Geochem.*, 16, 109-122.
- 横山祐之 (1955): *日化誌*, 76, 558-562.

森林斜面の表面流における⁷Beの分配係数 - 現地観測と室内吸着実験 -

福山泰治郎¹, 井上睦夫¹, 山本政儀¹, 恩田裕一²

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〒305-8572 茨城県つくば市 筑波大学大学院生命環境科学研究科

T. Fukuyama, M. Inoue, M. Yamamoto, Y. Onda: Distribution coefficient of ⁷Be in overland flow along a forested hillslope: field measurements and laboratory batch experiments

[はじめに]

⁷Beは、下部成層圏及び上部対流圏において恒常的に生成される放射性核種で、53日の半減期を有する。主に降雨によって地表に降下し、表層の土壤粒子に吸着される。¹³⁷Csや²¹⁰Pbなどの放射性降下物と同様に、表土の標識として、土壤侵食・輸送・堆積・底質の巻き上げなどの研究に用いられてきた。これらの研究では、湖水や河川水における⁷Beの分配係数(K_d : 固相の⁷Be濃度/液相の⁷Be濃度)が高い(約 10^4 - 10^6 ; e.g. Hawley *et al.*, 1986)という知見に基づいて、地表に降下した⁷Beが速やかに粒子に吸着され、輸送中も粒子に吸着し続けるという仮定が置かれている。しかしながら、降水中の⁷Beは溶存態が主であるとされている(Osaki *et al.*, 2007)。このことは、降水の一部が土壤に浸透せず、表面流として地表面を流下した場合、表面流に含まれる⁷Beが溶存態で輸送されている可能性を示唆している。したがって、土壤粒子の標識として⁷Beを用いるためには、表面流における分配係数を明らかにする必要がある。本研究では、森林斜面で発生する表面流に含まれる⁷Beの分配係数を調べるために、樹冠通過雨と表面流を採取し、溶存態と粒子態の⁷Be濃度を測定した。さらに、実験室において、新しい(⁷Beを含んだ)降水と古い(⁷Beの無くなった)森林表土を用いて⁷Beの吸着実験を行った。

[方法]

現地観測：四万十川水系・葛箆(つづら)川流域のヒノキ人工林(高知県四万十町)において、幅1m、斜面長3mの斜面流出プロットを設置し、枠内で発生した表面流をタンクに貯留した。また、プロット付近に水盤を設置し、樹冠通過雨を採取した。試料は約1ヶ月ごとに回収し、現地で0.5 μ mのフィルターで濾過した。ろ液に陽および陰イオン交換樹脂を加えて攪拌し、沈殿物を実験室に持ち帰った。

室内実験：土壤試料を、四万十川水系・葛箆川流域のヒノキ人工林(高知県四万十町)で採取した後、屋内で約2年間保管した表層土壌を実験に用いた。採取から実験開始まで13半減期以上経過しているので、⁷Beは採取時の約0.01%程度まで減少したと考えられる。雨水試料は、LLRL屋上において実験開始直前に捕集し、直ちに0.5 μ mのフィルターで濾過したものを用いた。雨水試料を土壤試料に加え、振とうしたのち0.45 μ mメンブレンフィルターでろ過した。土砂濃度は、100 mg L⁻¹, 10 g L⁻¹、振とう時間は1時間に設定し、各3回繰り返した。濾紙上の土壌および濾紙を灰化し、固相の試料とした。ろ液に陽および陰イオン交換樹脂(Powdex-PCH, -PAO)を加えて攪拌し、沈殿した樹脂を液相の試料とした。固相と液相の試料はそれぞれ封入し、Ge半導体検出器で γ 線を測定した。固相および液相の⁷Be濃度(Bq ml⁻¹)から、分配係数 K_d を求めた。

[結果]

表面流の⁷Be、¹³⁷Cs、²¹⁰Pb濃度について、土砂濃度と吸着態の放射性核種の割合をプロットした(Fig.1)。

表面流の ^7Be の K_d は、 $1.2\text{--}7.6 \times 10^4$ だった。この値は、アメリカの河川・河口・沿岸で報告された K_d ($7 \times 10^3\text{--}2 \times 10^5$) (Olsen *et al.*, 1986) と同様の値で、 ^7Be が highly adsorptive であることを示している。表面流の ^{137}Cs と ^{210}Pb の K_d は、どちらも $10^3\text{--}10^5$ オーダーだった。室内実験の土砂濃度と吸着態の放射性核種の割合をプロットした (Fig.2)。 ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb いずれも、土砂濃度 10 g/L 程度で 98% 以上が粒子に吸着された。 ^7Be の K_d は、 $6.6 \times 10^3\text{--}1 \times 10^4$ で、現地で観測された表面流の分配係数と一致した。 ^{137}Cs 、 ^{210}Pb は、おおむね $K_d = 10^4\text{--}10^5$ であった。これらの結果は、 ^7Be の分配係数が高く、土壌粒子に吸着されやすいことを示しているが、土粒子の移動のトレーサーとして用いるためには、 ^7Be によって標識された土粒子が流域内の斜面から流れ下る過程で、脱着が生じるのかを明らかにする必要があると考えられる。

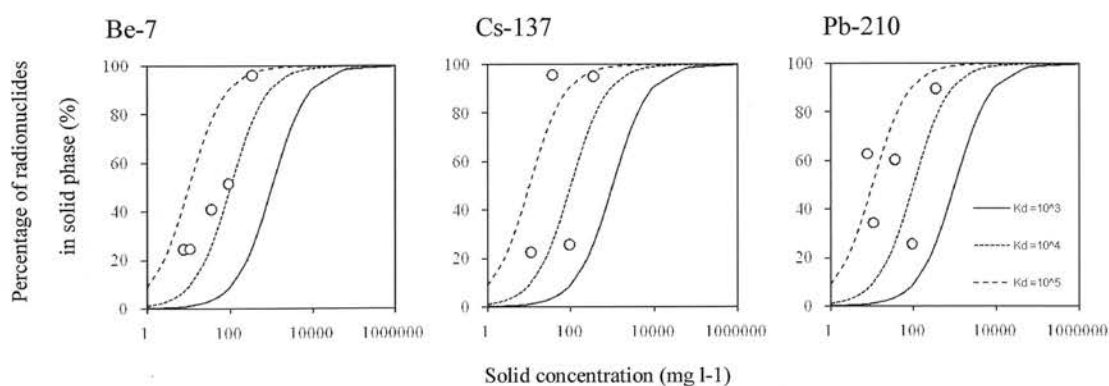


Fig. 1 Percentage of radionuclides in particulate form

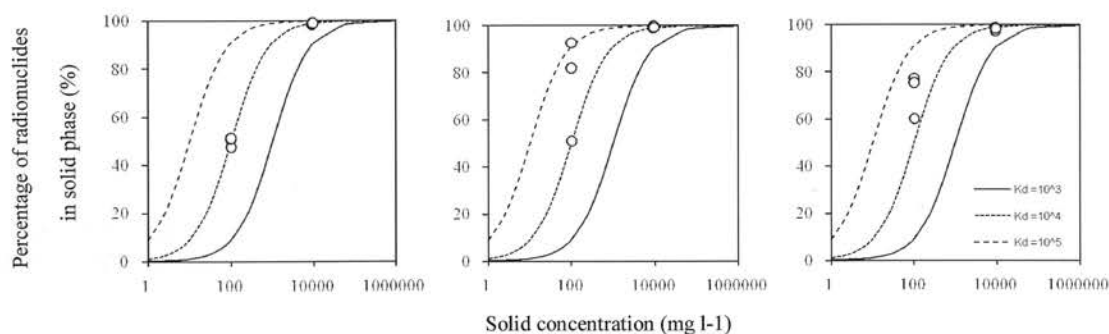


Fig. 2 Percentage of radionuclides in particulate form after batch experiment

[引用文献] Hawley N, Robbins JA, Eadie BJ. *Geochim. Cosmochim. Acta* 50, 1127-1113 (1986); Osaki S, Sugihara S, Maeda Y, Osaki T. *J Radioanal. Nucl. Chem.* 272(1), 147-152 (2007); Olsen CR, Larsen IL, Lowry PD, Cutshall NH, Nichols MM. *J. Geophys. Res.* 91, 896-908 (1986)

複数の放射性核種を用いた日本海における物質循環解明

中野佑介¹・井上睦夫¹・皆川昌幸²・濱島靖典¹・山本政儀¹

¹〒923-1224 石川県能美市 金沢大学 LLRL, K-INET

²〒236-8648 神奈川県横浜市 独立行政法人水産総合研究センター中央水産研究所

Y. Nakano, M. Inoue, M. Minakawa, Y. Hamajima and M. Yamamoto: Implications for geochemical cycles within the Sea of Japan using multiple radionuclide

<はじめに>

¹³⁷Cs (30 年), ²²⁶Ra (1600 年), ²²⁸Ra (5.75 年) および ²²⁸Th (1.91 年) といった海水中に微量に存在する天然および人工放射性核種は、古くから海洋化学の分野で重要な役割を果たしてきた。ラジウム同位体は主に沿岸堆積物からの溶出によりもたらされる。²²⁶Ra は水塊の水平輸送あるいは深層水の流動トレーサーとして、²²⁸Ra は沿岸堆積物もしくは大陸棚浅層水の影響を見積もるトレーサーとして利用されてきた。¹³⁷Cs は核実験由来のフォールアウト核種であり、溶存核種であることから、水塊の移動を探るトレーサーとして利用される。²²⁸Ra の娘核種である ²²⁸Th は溶存性であるラジウム同位体とは異なり、粒子と強く反応する性質をもち、沈降粒子と共に深層水にもたらされる。そのため、²²⁸Th は海水中における粒子物質の挙動を見積もるトレーサーとしての利用が期待される。しかし、これらの核種はその有用性にもかかわらず、非常に低濃度であることから、通常のγ線測定では 500-1000 L もの海水試料を必要とする。そのため、海洋における、これらの核種の時間的にも空間的にも十分なデータの蓄積は無い。当研究室では、ラジウム同位体、¹³⁷Cs については尾小屋地下測定施設を利用した低バックグラウンドγ線測定法を採用し、少量 (~20 L) の海水試料を用いた測定が可能である。

本研究では、これまでの測定法を改良し、トリウム同位体の測定も同時に行なう。この測定法を日本海海水試料に適用し、これらの核種がもたらす水塊の移動あるいは粒子物質輸送のメカニズムに関する知見を得ることを目的とした。

<海水試料採取および実験>

ラジウム同位体から黒潮・東シナ海大陸棚水混合の季節変動のメカニズムを明らかにするために、対馬東水道 (TE) および九州西岸沖の 3 地点 (YK1; N 30°30' E 126°, YK2; N 31°45' E 127°15', YK3; N 31°45' E 128°45') で表層海水を各 20 L 採取した (Fig. 1)。採取は、TE で 2008 年の 1 ヶ月毎に、YK では 2, 4, 7, 10 月におこなった。また、日本海の代表的海域での ²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ¹³⁷Cs および ²²⁸Th の鉛直分布を求めるため、日本海盆 (YR1; N40°50', E138°00'; 3685 m depth, SY07; N41°02', E138°10'; 3700 m depth)、大和海盆 (YR5; N39°22', E136°30'; 2610 m depth)、大和堆 (SY06 および SY08A; N39°25', E135°40'; 367 m depth) および対馬海盆 (SY08B; N36°11', E132°20'; 1161 m depth) で海水 50-60 L を採取した。さらに、日本列島沿岸域 (HK, NI, IS, FKE, FKW, SM, SG; 65-475 m depth) において、表層海水と海底直上水で 30 試料 (各 20 L) 採取した。採取期間は 2005-2008 年の 7-8 月である。

採取した海水試料を濃硝酸で pH 1 に調整した後、リンモリブデン酸アンモニウム (AMP) を加え、¹³⁷Cs を AMP に吸着させた。これを回収、乾燥し、γ線測定用試料とした。



Fig. 1 Locations of sampling sites for seawater samples within the Sea of Japan

次にバリウム担体を加え、 BaSO_4 を生成させ、ラジウム同位体を共沈回収した。その後、鉄担体を加え、アンモニア水で pH 7 に調製し、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ を生成させ、トリウム同位体を共沈回収した。生成した BaSO_4 , $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 沈殿を回収し、測定用試料とした。 γ 線測定は尾小屋地下測定施設の Ge 検出器を用いて行なった。核種回収後の海水試料の上澄み液にもう一度同様の実験操作を行なう方法と、 BaSO_4 と Fe_2O_3 の回収率を測定する方法で、目的核種の回収率を補正した(Ra: 77-91%, Th: 89-92%, ^{137}Cs : 97%)。

<結果>

東シナ海大陸側海水は、黒潮と比べ、著しく高い ^{228}Ra 濃度を示すことが知られている。東シナ海では、九州から離れるにつれ、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比が高く (YK1)、同一地点においては夏期ほど $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比が高いという顕著な特徴がみられた。7 月に ^{228}Ra に富む大陸側海水が九州側 (YK2, YK3) に張り出す一方、2、4、10 月には大陸側の (YK2 以西の) ^{228}Ra に富む海水が対馬海峡にもたらされると推測される。当施設の先の研究で日本海沿岸分枝の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比が初夏に最小、秋から冬に最大を示すことが報告されたが、これは各季節における大陸側海水の黒潮に対する混合比を反映していることが、明らかになった。

対馬海盆、大和堆、大和海盆、日本海盆における ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{137}Cs および ^{228}Th 濃度の鉛直分布を Fig. 2 に示した。 ^{226}Ra , ^{228}Ra 濃度の鉛直分布は、各地点で類似した傾向がみられたが、例外的に対馬海盆の混合層において、 ^{228}Ra 濃度が他の海域よりも非常に高い値 (約 4 mBq/L) を示した。海水試料が採取された夏に ^{228}Ra 濃度が非常に高い東シナ海大陸棚水が対馬海峡を通して対馬海盆表層に流れ込むためである。下部固有水におよぶ ^{228}Ra の存在は海水の鉛直混合による直接的な輸送あるいは沈降粒子を介在させた輸送メカニズムを反映する。

下部固有水における ^{137}Cs 濃度の鉛直分布は混合層と同様に各海域ごとに大きな変動をみせた。これは海表面にもたらされてから約 50 年経過した現在でも、 ^{137}Cs が水平、鉛直ともに均質化された状態には至っていないということである。

日本海南部 (大和海盆、対馬海盆) の混合層海水における ^{228}Th 濃度は日本海北部 (日本海盆、大和堆) と比較すると低い値となった。これら日本海南部混合層は、北部に比べスカベンジの寄与が大きい、または非常に高い粒子フラックスをもつ東シナ海大陸棚浅層水を起源とする対馬沿岸分枝によって大部分が占められているためと考えられる。

本研究の一部は笹川科学研究助成によっておこなわれた。

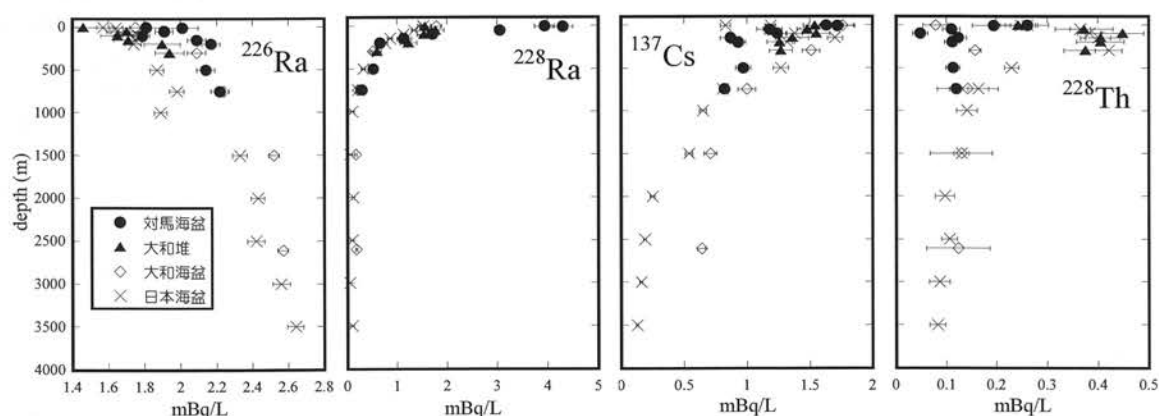


Fig. 2 Vertical profiles of ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{137}Cs and ^{228}Th activities of the Tsushima, Yamato and Japan Basin and Yamato Rise

日本海側における大気エアロゾルの Pb-210 と Be-7 濃度の粒径分布

吉田圭佑、福山泰治朗、浜島靖典、山本政儀

〒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

K.Yoshida, T. Fukuyama, Y. Hamajima, M. Yamamoto: Size distributions of Pb-210 and Be-7 contents in atmospheric aerosol at the Japan Sea side

[はじめに]

陸源性 ^{210}Pb (半減期 22.3 年) と宇宙線起源の ^7Be (半減期 53.3 日) は、それぞれ地表及び成層圏(対流圏上層)を起源としている。これらの放射性核種は生成後、周囲のエアロゾルに付着し、エアロゾルとほぼ同じような挙動を取ると考えられている。半減期、生成源の違いにより大気塊のトレーサーとして ^{210}Pb と ^7Be は用いられ、多くの研究が行われてきた。

エアロゾルの挙動はエアロゾル自身の物理的・化学的性質により支配される。特に物理的性質である粒径分布はエアロゾルの滞留時間を決定する重要な要素であり、ゆえに粒径分布はエアロゾル挙動の解明に不可欠な要素である。

日本は偏西風の卓越する極東アジアの中緯度に位置し、特に冬季には季節風の影響を強く受ける。冬季に大陸からの冷たい乾燥した空気塊が日本海を通過するとき、海面から大量に熱と水蒸気の補給を受け湿潤な空気塊に変質する。本研究は、この日本海側でのエアロゾルの変質過程を解明することを目的として、大気エアロゾル中 ^{210}Pb と ^7Be 濃度の粒径分布の季節変動を検討した。

[実験]

サンプリングにはアンダーセンエアサンプラー(SIBATA AH-600F)を用いた。50%分離径は、7.0、3.3、2.0、1.1 μm である。サンプリングは2008年6月から実施し、採取間隔は7日から10日である。採取した各段の石英フィルターは、乾燥後加圧成型し、当実験施設及び尾小屋地下測定室のGe検出器で γ 線測定を行った。

[結果と考察]

^{210}Pb と ^7Be 濃度の粒径別および $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ 放射能比の経時変化を Fig.1 に示す。 ^{210}Pb と ^7Be 共に 1.1 μm 以下フラクションに 70-80% 存在した。T 検定により、3.3-2.0、2.0-1.1、1.1 μm 以下の粒径において ^{210}Pb と ^7Be の有意な差が認められ、両核種の挙動の違いが示唆された。全ての粒径を合計した濃度はそれぞれ 0.15-0.68 mBq/m^3 、0.96-3.82 mBq/m^3 であった。10 月に ^{210}Pb と ^7Be 濃度が高くなる傾向が見られ、 ^{210}Pb については不明であるが、 ^7Be については濃度の高い成層圏の空気塊が対流圏界面褶曲によりもたらされることによると思われる。冬季(12 月、1 月)には、中国の北京や韓国のソウルで ^{210}Pb 濃度が 5-10 mBq/m^3 と非常に高濃度になるが、その大陸起源の空気塊がもたらされる日本海側では ^7Be 濃度とともに ^{210}Pb 濃度の顕著な増加は見られない。これは日本海上空で起こる空気の変質と降水により、エアロゾル中の ^{210}Pb と ^7Be が除去されたためであると考えられる。 $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ 比は 0.12-0.32 の間で変動し、夏季に高く、冬期に低くなる傾向が見られる。夏季には太平洋高気圧により、 ^7Be 生成割合の低い低緯度の空気がもたらされるため、 $^{210}\text{Pb}/^7\text{Be}$ は低くなったと思われるが、冬期に低くなる要因も含めて、同時に測定している降水データを交えて検討中である。

Fig.2 に各サンプルにおける空気力学的放射能中央径、AMAD(activity median aerodynamic diameter)を示した。AMAD は、粒径分布を知るための指標である。殆どの試料で ^7Be の AMAD(0.35-0.67 μm) が ^{210}Pb のそれ(0.32-0.58 μm) より大きく、特に対流圏界面褶曲のおこる 10-11 月にこの傾向は顕著である。一方、同時期の ^{210}Pb の AMAD には顕著な増加傾向は見られない。このことは、主に成層圏で生成する ^7Be が、成層圏内でのエアロゾルに付着しその滞留時間が長いことによる凝集作用でサイズが成長すること、 ^{210}Pb が主に対流圏内で生成する滞留時間の短いエアロゾルに付着することによる挙動の違いを示唆する。さらなる議論を行うにはより細かく粒径を分けてサンプリングを行うことが必要である。

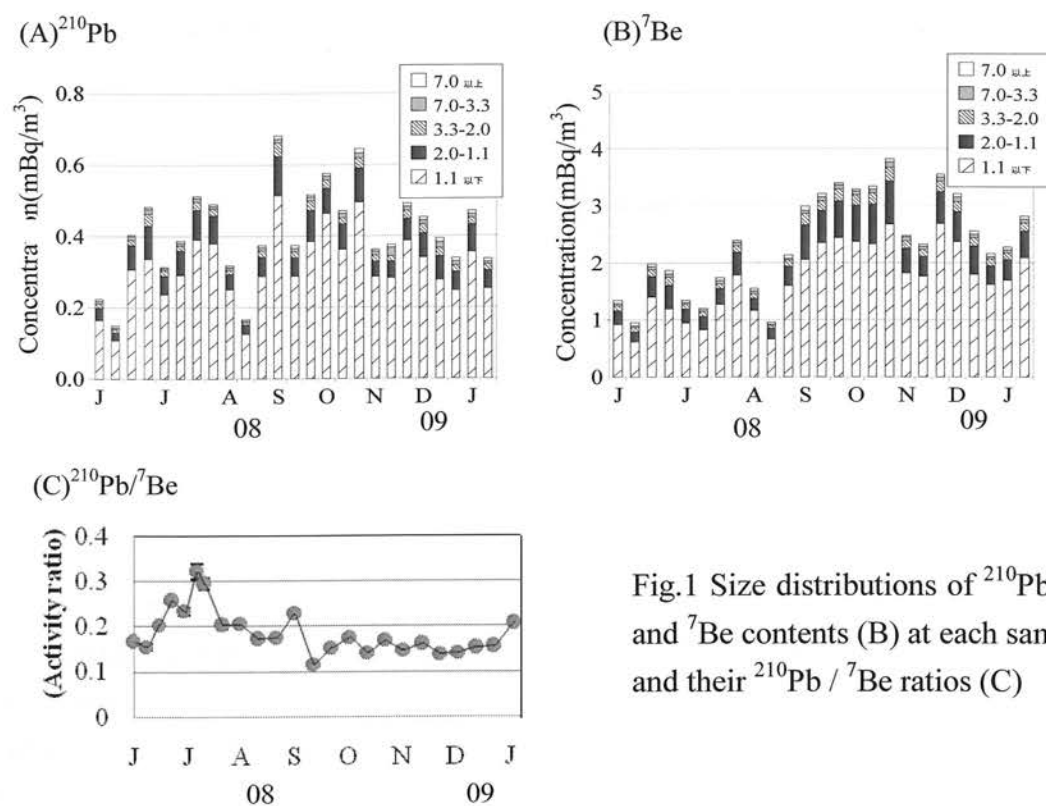


Fig.1 Size distributions of ^{210}Pb (A) and ^7Be contents (B) at each sample, and their $^{210}\text{Pb} / ^7\text{Be}$ ratios (C)

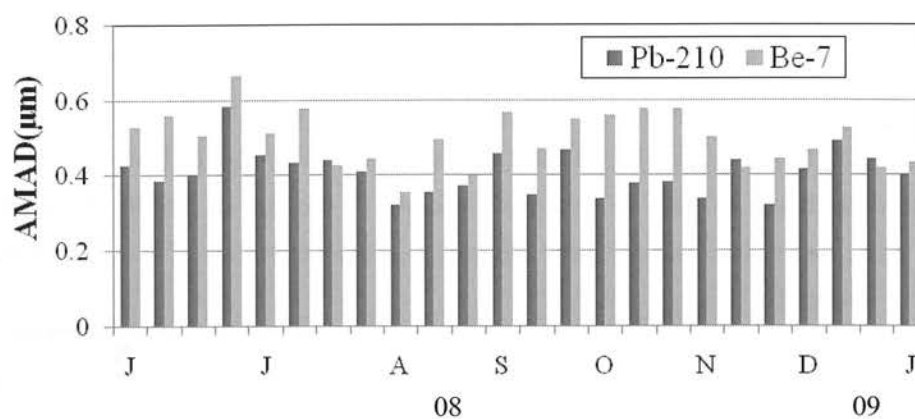


Fig.2 AMAD of each sample

Complexation of Am with size-fractionated soil humic acids

S. Nagao¹, M. Aoyama², A. Watanabe³, T. Tanaka⁴

¹Faculty of Environmental Earth Science, Hokkaido University,

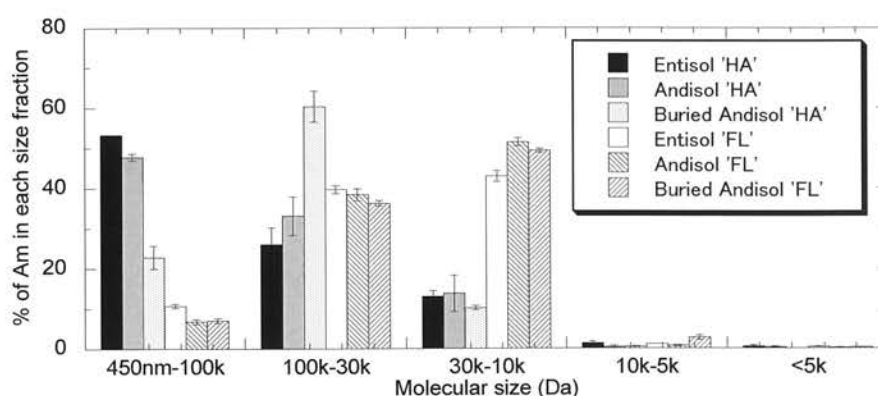
²Faculty of Agriculture and Life Science, Hirosaki University,

³Graduate school of Bioagricultural Sciences, Nagoya University,

⁴Tokai Research and Development Center, Japan Atomic Energy Agency

Humic substances (humic and fulvic acids) are ubiquitous in nature and have many beneficial effects on soils and aquatic environments. They play important role in geochemical behavior of trace elements such as actinides from fallout and local sources in aquatic environments. Therefore, characteristics of actinides bound to humic and fulvic acids can yield information on the geochemical role of humic substances in the migration of actinides. In this study, the association properties of Am with humic substances were studied on the basis of structural feature of humic substances. We separated two humic acids ('HA': fluorescence-poor and higher molecular size fraction, 'FL': fluorescence-rich and lower molecular size fraction) with different structural features from humic acids prepared from three types of soils (andisol, entisol and buried andisol) by Sephadex G-25. The association experiments were carried out in a medium of 0.01M NaClO₄ solution at a humus concentration of 10 mg/l and pH6-8. After finishing the association experiments, ultrafiltration was used to size-fractionate Am in the humus solutions. Figure 1 shows molecular size distribution of Am in the presence of size-fractionated HAs. The dominant size fractions of Am in the presence of 'HA' were 450nm-100k Da (48-53% for the andisol and entisol) and 100k-30k Da (60% for the buried andisol). On the other hand, 43-51% of Am was presented in the size of 30-10k Da in the 'FL' HA solutions from three soil types. These results indicate that characteristics of size-fractionated humic acids are related association properties with Am.

Fig. 1 Size distribution of Am in the presence of HAs.



Carbon isotopes of POC in a small river in Bekaubeushi moor, northern Japan

S. Nagao¹, T. Aramaki², O. Seki¹, M. Uchida², Y. Shibata²

¹Faculty of Environmental Earth Science, Hokkaido University, N5W10, Kita-ku, Sapporo
060-0810, Japan

²Environmental Chemical Division, National Institute for Environmental Studies, 16-2
Onogawa, Tsukuba 305-8506, Japan

An important part of global organic carbon cycle is the flux of terrestrial organic carbon from the continents to the oceans. Small rivers and streams have potential significance in the transport of sediments and organic matter, and its export flux is estimated as ~40% of riverine global organic carbon. Knowledge of organic carbon dynamics in river basins is required to study the role of rivers in global biogeochemical cycles and organic carbon flux. For better understanding the transport of organic carbon, carbon isotopes of particulate organic carbon (POC) are useful tools as tracers of the sources and behavior.

The objective of this study is to understand the transport behavior of POC from terrestrial region to ocean. We selected a small river, lower turbidity in a year except for spring snowmelt period, in Bekaubeushi moor located in Hokkaido, northern Japan. Water sampling was carried out at a fixed point from summer in 2004 to April 2008. Suspended solids samples were concentrated from 45-90 L of river waters by a single-bowl flow continuous centrifuge technique. We used carbon isotopes ($\Delta^{14}\text{C}$ and $\delta^{13}\text{C}$ values) and lignin composition of POC.

The $\Delta^{14}\text{C}$ values of Bekaubeushi POC range from -12‰ to $+9.7\text{‰}$ at summer and winter season and -164‰ at snowmelt season. The $\delta^{13}\text{C}$ values have a very narrow range of -29.1‰ to -28.7‰ . The C/N ratio is 10.9-12.4. The paired $\Delta^{14}\text{C}$ vs. $\delta^{13}\text{C}$ distributions are different from the Tokachi and Zengjiang Rivers (Nagao et al., 2005, Gao et al., 2007). The Bekaubeushi $\Delta^{14}\text{C}$ and $\delta^{13}\text{C}$ values show younger and lighter than the others. These results suggest that freshly produced organic matter is supplied from the moor to the small river except for snowmelt period.

Variations in $\Delta^{14}\text{C}$ values of POM in the Ishikari River

S. Nagao¹, T. Aramaki², Y. Oguro¹, H. Amano³, M. Uchida², Y. Shibata²

¹Faculty of Environmental Earth Science, Hokkaido University, N5W10, Kita-ku, Sapporo
060-0810, Japan

²Environmental Chemical Division, National Institute for Environmental Studies, 16-2
Onogawa, Tsukuba 305-8506, Japan

³Aomori Research and Development Center, Japan Atomic Energy Agency, 4-24 Minato,
Mutsu 035-0064, Japan

Particulate organic matter (POM) is the terrigenous component directly incorporated into continental margin sediments. For better understanding the origin, forms, and fate of POM, it is important to study the characteristics of riverine POM because of its heterogeneous mixtures of organic matter. Information on characteristics of POM in river basins is required to quantify the role of rivers in global biogeochemical cycles.

We have been investigated at the Ishikari River system, which is 268 km long from the source to mouth and a drainage basin of 14330 km², in northern Japan. The Ishikari River has two peaks of water discharge at spring snowmelt and autumn rain events. In this study, water samples were collected four times at three stations (Osamunai, Sorachi, and Iwamizawa-Ohashi) from April to October in 2006. The Osamunai and Iwamizawa-Ohashi are located at the upstream and downstream of Ishikari River, respectively. The Sorachi is located at the downstream of Sorachi River, which is the largest tributary of the Ishikari River. We discussed the dynamics of POM within the Ishikari River basin on the basis of $\Delta^{14}\text{C}$ and $\delta^{13}\text{C}$ values of POM.

The variations in $\Delta^{14}\text{C}$ values of riverine POM are different from each station. In the Iwamizawa-Ohashi, the $\Delta^{14}\text{C}$ values were -273‰ for the spring snowmelt season, and $-210 \sim -130\text{‰}$ for the normal flow condition. In the Sorachi, the $\Delta^{14}\text{C}$ values were -369‰ for the spring snowmelt season, $-150 \sim -41\text{‰}$ for the normal flow condition and -447‰ for the heavy rain event in autumn. On the other hand, POC of the Osamunai shows opposite variation trend. The POM had $\Delta^{14}\text{C}$ of $-95 \pm 89\text{‰}$ and $-145 \pm 10\text{‰}$ at high and low water discharge, respectively. These results suggest that the sources and supply processes of POM from watershed are different from the upstream and downstream. The variations in $\Delta^{14}\text{C}$ values also appear to be correlation with water discharge.

Ultra low level deep water ^{137}Cs activity in the South Pacific Ocean

M. Aoyama¹, Y. Hamajima²

¹Meteorological Research Institute

²Low level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

We are measuring ^{137}Cs concentrations of deep water samples in the subtropical gyres in the South Pacific collected during the BEAGLE2003 cruise (Aoyama et al., 2006) at an underground facility (Ogoya Underground Laboratory: OUL, Hamajima & Komura, 2004; Komura & Hamajima, 2004) to achieve extremely low background γ -spectrometry using Ge detectors with high efficiency and low background materials. A detection limit of ^{137}Cs at the OUL is 0.18 mBq for a counting time of 600000 seconds (Hirose et al., 2005). There is a residual problem of underground γ -spectrometry for ^{137}Cs measurements. AMP adsorbs trace amounts of potassium when Cs is extracted from seawater, therefore trace amounts of ^{40}K cause elevation of background corresponding to energy range of ^{137}Cs due to Compton scattering of ^{40}K . To remove ^{40}K from the AMP/Cs compound, a precipitation method including insoluble platinate salt of Cs was used (Aoyama and Hirose, 2008).

We did 1500000 seconds to 2500000seconds measurements for combined samples from deep water to reduce counting error for the samples of which net activities were around 0.5 - 1 m Bq. We have obtained reliable value of ^{137}Cs activity in the deeper layers. ^{137}Cs activity at the layers between 2000-4500 m ranged from 14 $\pm$ 5 mBq m⁻³ to 21 $\pm$ 9 mBq m⁻³. The inventory of ^{137}Cs from surface to 1000 m depth ranged from 270 $\pm$ 100Bq m⁻² to 1050 $\pm$ 130 Bq m⁻², while the inventory from 2000 m to the sea bottom is estimated to be about 50 to 80 Bq m⁻² in this region.

Aoyama M., and K. Hirose, Y. Igarashi (2006), J. Environ. Monit., 8, 431-438.

Aoyama M., and K. Hirose (2008), Analysis of Environmental Radionuclides, Radioact. Environ., 11, 137-162.

Hirose K., M. Aoyama, Y. Igarashi, and K. Komura (2005), J. Radioanal. Nucl. Chem., 263, 349-353.

Komura K., and Y. Hamajima (2004), Appl. Radiation Isotopes, 61, 185-189.

Hamajima Y., and K. Komura (2004), Appl. Radiation Isotopes, 61, 179-183.

平成20年度見学来訪・出張の記録

- 平成 20. 4.23 筑波大学生命環境科学研究科 准教授 恩田 裕一 氏 研究打ち合わせ
- 4.30-5.8 山本教授「タンデム加速器による U-236 測定研究」打ち合わせのためウィーン大学へ出張
- 5.7, 6.2, 7.2, 7.28, 8.28, 9.29, 10.31, 11.27, 12.26,
21.1.6, 1.28, 2.26 金沢工業大学 南戸秀仁教授研究室 湯田 勝義 氏 測定のため
当施設、尾小屋地下測定室 来所
- 6.5 人間社会研究域学校教育系 教授 井原 良訓 氏、3 年生 15 名 尾小屋地下測定室見学
- 6.17, 10.16, 12.25 (財)若狭湾エネルギー研究センター 小野 真宏 氏 研究打ち合わせ
- 7.23 カリフォルニア大学(米国) 西泉 邦彦 博士 尾小屋地下測定室見学
- 7.25 (財)環境科学技術研究所 大塚 良仁 氏、(財)海洋生物環境研究所 及川 真司 氏
研究打ち合わせ
- 7.28-8.1 井上助教「第 71 回 国際隕石学会」(松江市)で研究発表
- 8.1 日本原子力発電(株) 伊藤 成 氏 研究打ち合わせ
- 8.5~6 名古屋大学年代測定総合研究センター 教授 中村 俊夫 氏(客員教授)「タンデム加速器質量分析計を用いた ^{14}C 年代測定および地球化学研究」講義のため来所
- 8.18 京都大学原子炉実験所 助教 今中 哲二 氏 研究打ち合わせ
- 8.21-29 山本教授 フブスグル湖周辺環境試料採取のためモンゴルへ出張
- 8.25 名古屋大学工学研究科 助教 森泉 純 氏 研究打ち合わせ
- 9.4-13 山本教授「旧ソ連核実験場周辺住民の被曝線量評価」の土壌試料収集のため
カザフスタン共和国へ出張
- 9.9 東京大学宇宙線研究所神岡宇宙素粒子研究施設 教授 中畑 雅行 氏 尾小屋地下
測定室で測定
- 9.16-17 岡山大学理学部地球学科 学生 32 名 尾小屋地下測定室見学
- 9.21-28 山本教授「平和研究と平和教育」に関する国際会議参加と現地状況調査のため
国立トムスク教育大学(ロシア連邦)へ出張
- 9.26, 10.20, 10.21, 12.3
北陸大学薬学部 准教授 山田 芳宗 氏 測定のため来所
- 10.8 東京大学宇宙線研究所神岡宇宙素粒子研究施設 准教授 竹内 康雄 氏 尾小屋地下
測定室で測定
- 10.16-17 静岡県環境放射能監視センター 鈴木 敦夫 氏、河村 浩史 氏 研究打ち合わせ
- 10.21 理工研究域物質化学系 3 年生 41 名実習、尾小屋地下測定室見学
- 12.5 岡山大学自然生命科学研究支援センター 准教授 小野 俊朗 氏、助教 花房 直志 氏、
永松 知洋 氏、尾小屋地下測定室見学
- 12.20-21 島根県産業技術センター 主任研究員 中島 剛 氏 研究打ち合わせ
- 平成 21. 1.16 名古屋大学 大屋 紀之 氏 研究打ち合わせ
- 1.23 石川県保健環境センター 翫 幹夫 氏 研究打ち合わせ
- 1.29 水産総合研究センター中央水産研究所 皆川 昌幸 氏 研究打ち合わせ
- 2.26-27 気象研究所 青山 道夫 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