

金沢大学理学部附属

低レベル放射能実験施設

研究概要・年次報告

1976.4～1977.3

Annual Progress Reports of
Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

感想（理学部長）・歩みはじめて（施設長）	2
開所のさいの写真	
Ge (Li) 検出器のバックグラウンド測定	3
In-Situ Ge (Li) スペクトロメトリーによる環境放射能の測定	4
南極氷中の放射性核種	6
中国核実験によるフォールアウト核種の測定	
標準岩石 JG-1 中の U, Th および K 含有量	7
諏訪湖底堆積物中の U, Th, K および ^{137}Cs	8
大阪湾海底堆積物中の U, Th, K および ^{137}Cs	9
牛乳中の ^{137}Cs の測定	
長寿命核種 ^{92}Nb の半減期測定	10
^{54}Mn に対する FOM 測定	
トロトラスト使用患者の生検肝臓の測定	11
^{99m}Tc 注射液中の残存放射能の γ スペクトル	
海洋におけるラジウム同位体 ($^{228}\text{Ra} / ^{226}\text{Ra}$ 比)	12
環境プルトニウムの放射化学分析法の検討実験	13
ベンゼン合成による C-14 測定	14
昭和52年度運営委員；研修員；昭和51年度施設設備品運営関係諸資料	15
昭和51年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

感 想

理学部長・施設運営委員会委員長
堀 尚一

柏原前理学部長の時代、関係各位の御努力により昭和50年度に設立を認められた低レベル放射能実験施設の瀟洒な建物が、都会の喧噪を離れた辰の口の山間の地に姿を現わしてから僅か一年余りしか経過していません。この短い期間における当実験施設の目覚しい成長ぶりは驚くばかりであります。私は当実験施設の開所式において、ここ数年は当実験施設の搖籃期であろうと申しました。ところが今や立派に一人前に着実に邁歩しております。

学内外の利用者の御協力もさることながら、短期間に幾多のすぐれた業績をあげられた施設長ならびに施設教職員のエネルギーには感嘆のほかありません。しかし現在の定員および実験設備はこのエネルギーを支えるには未だ充分ではありません。将来当実験施設がますます充実することを希望すると共に、名実ともに共同利用研究センターとして機能し、環境放射能研究所への道も開かれることを期待して止みません。

歩みはじめて

施設長
阪上正信

かねてから、全国の環境放射能研究者からの要望もあり、環境放射能研究所の概算要求も行っていた当大学に、ささやかながら理学部附属・実験実習施設として認められた本施設が、丁度飛躍の辰年にあたる昨年5月20日に、緑にかこまれた辰口町の校地に開所式を行って、あたかも辰のおとし子のような誕生をしてから1ヶ年を経過しました。さいわい諸関係各方面からの御協力と御好意にもめぐまれ、全国的にもユニークな、しかも多方面への応用がある低レベル放射能測定の研究と実験実習の設備と機能をもつ施設として、歩みはじめました。そして学内ののみならず学外の諸大学諸研究機関からの共同研究依頼も多く、これに応ずる施設専属の人々らの協力と努力にもささえられ、本報告にみられるような成果を少しづつ積み重ねてまいりました。今後も、先哲のことばにもある「宝とは道心なり、徑寸十枚これ宝にあらず、一隅を照すこれ国宝なり」を心がけ、本邦におけるかけがいのない役割をはたしつつ、歩みつけたいと念じております。その前進のため研究実験上の有意義な御要望、御指示を、またその成長のため御鞭撻と育成を謹んで期待しております。



開所にさいして：写真右上・環境放射能研究所設立準備委員会の学外および学内の委員などとともに。

写真上・開所式場にて、理学部長挨拶と、それより右へ辰口町長、学長、石川県知事。

Ge (Li) 検出器のバックグラウンド測定

Background Measurement of Ge (Li) Detectors

低レベル施設の主要測定器として購入した2つのGe (Li) 検出器について、遮蔽した状態でのバックグラウンド特性を測定した。1つは施設に常設する検出器(ORTEC製, Detector-I)で他は、野外におけるIn-Situ γ 測定を目的とする可搬型Ge (Li) 検出器(PGT製, Detector-II)である。バックグラウンド測定のため、遮蔽材として約2トンの鉄ブロックと鉛ブロック、アクリル容器に詰めた水銀(1.1cm厚), 無酸素銅板(1.4cm厚)等を用い、鉛換算で約15cmの遮蔽を行なった。

Fig. 1 および2に両検出器のバックグラウンドスペクトルを示す。バックグラウンド特性を表わす指標として、スペクトル中に見られるピークの計数率、コントン連続部分の高さ(10keVの平均)、エネルギー領域毎の全計数率を計算し、Table 1 (a), (b), (c)に示す。図やTableから明らかなように、Detector-IはIIに比べ ^{208}Tl , ^{212}Pb のピーク強度が5倍程度高い。ピーク計数率を、分岐率で割った見掛けの検出効率からDetector-IのTh系列のピークは、ほとんど吸収・散乱を受けていないことがわかった。したがって、不純物は検出器のGe結晶のすぐ近く、おそらくAl製のエンドキャップおよびクライオスタット部分の保護に使われているAlブロックによるものと推定される。(ORTEC社が改善検討中)。100~2700keVまでの全計数率は33.8cpmおよび30.4cpmで、同程度の検出効率と有効体積をもつ他のGe (Li) 検出器に比べかなり低く、遮蔽は一応成功したものといえる。しかし両検出器ともDewar部分の遮蔽がかなり薄いため、十分な遮蔽材を使用することにより、さらに下げる事が可能である。大型NaI(Tl)検出器による逆同時計数の試みも含め、バックグラウンドの改善を継続する予定である。

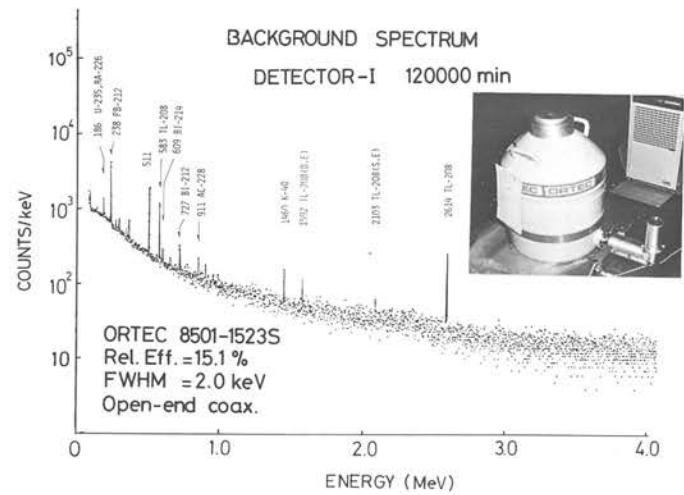


Fig. 1 Background spectrum of Detector-I

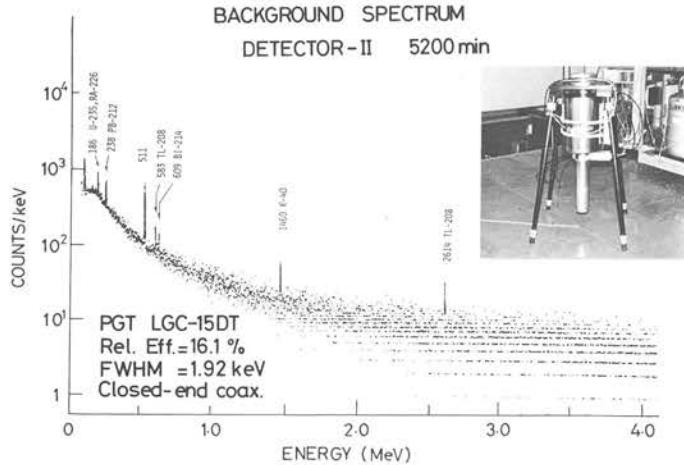


Fig. 2 Background spectrum of Detector-II

Table 1. Background of Ge (Li) detectors

(a) Areas of contaminant peaks			(b) Height of Compton continuum			(c) Gross count rate			
Gamma-ray energy (keV)	Nuclide	Peak area (cpm)		Energy (keV)	Background Continuum (cpm/keV)		Energy region (keV)	Gross count rate (cpm)	
		Detector-I	Detector-II		Detector-I	Detector-II		Detector-I	Detector-II
186	^{226}Ra , ^{235}U	.122 ± .006	.159 ± .013	150 ± 5	.077	.092	100 ~ 500	20.06	20.39
238	^{212}Pb	.696 ± .013	.133 ± .009	220 ± 5	.060	.066	500 ~ 1000	7.08	5.53
295	^{214}Pb	.014 ± .004	.014 ± .003	390 ± 5	.030	.026	1000 ~ 1500	2.97	2.14
352	^{214}Pb	.025 ± .005	.018 ± .003	550 ± 5	.018	.015	1500 ~ 2000	1.83	1.22
511	annihil.	.482 ± .013	.298 ± .012	662 ± 5	.018	.012	2000 ~ 2500	1.37	0.868
583	^{208}Tl	.195 ± .008	.038 ± .004	835 ± 5	.011	.0076	2500 ~ 3000	1.11	0.630
609	^{214}Bi	.023 ± .003	.017 ± .004	1173 ± 5	.0063	.0046	3000 ~ 4000	1.23	1.06
911	^{228}Ac	.012 ± .003	—	2000 ± 5	.0032	.0022	100 ~ 2700	33.76	30.41
1460	^{40}K	.022 ± .002	.017 ± .003						
2614	^{208}Tl	.061 ± .003	.015 ± .002						

In-Situ Ge (Li) γ スペクトロメトリーによる環境放射能の測定

Measurement of Environmental Radioactivity by Means of In-Situ Ge (Li) γ Spectrometry

In-Situ γ 測定による環境放射能の測定は、試料を採取して実験室で測定する方法に比べ短時間で、しかも測定地点の平均的な値が得られる点で優れている。また検出器としてエネルギー分解能の高い Ge (Li) 検出器を用いることにより、U, Th, K など天然放射能の存在下で ^{137}Cs をはじめとするフォールアウト核種や人工放射性核種を感度よく検出することが可能となる。

金沢大学低レベル放射能実験施設の In-Situ γ 測定システムは、PGT製の可搬型 Ge (Li) 検出器、NAIG製 4096CH. PHA, カセットMT, プリンタ, 100 mまで伸ばすことが可能な測定用ケーブル類、電源を備えた測定車などで構成されている。

Table 1 に各地で稼動している In-Situ Ge (Li) 検出器の特性を比較して示す。検出器は、伸縮が可能な 3段式の 4脚で高さを 10 cmから 100 cmまで変えることができる。ヘッド部分は 30 cmと長く、大形のバケツに入れた温泉水や井戸水などの直接測定も可能である(Fig. 1)。検出器の検出特性の 1つとして点状の標準線源を用いて測定した γ 線入射角度と検出効率の相関を Fig. 2 に示す。検出効率は Ge 結晶の形状、ホルダー、AI 製エンドキャップによる吸収のため複雑な形をしているが、入射角度の関数として

$$\text{Eff} = a_1 + a_2 \cos(\theta) + a_3 \cos(2\theta) + \dots + a_6 \cos(5\theta)$$

で近似できる。

野外における In-Situ γ 測定は、ふつう検出器を地上 1 mの高さにセットして、一地点につき 30 分以上、平均 1 時間程度行なう。

これまでに調査をおこなった地点は

1. 人形峠、三朝、鳥取砂丘、玄武洞
(1976年3月26日—31日) 京大原子炉と共に
2. 大糸線沿線の温泉群
(6月18日—23日) 都立大・信州大と共に
3. 広島、秋吉台
(7月31日—8月8日) 山口大、広島大、神戸商船大と共に
4. 能登半島長手島周辺 (11月1日—2日)
5. 福井県美浜町、原子炉周辺 (11月15日—19日)
6. 京大原子炉、名大と共に (11月24日—31日)

である。この他、施設の周辺での In-Situ 測定を適宜行なった。

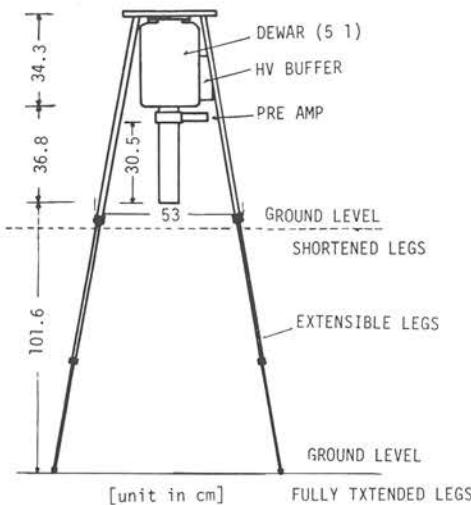


Fig. 1 Portable Ge (Li) detector of LLRL,
Kanazawa University

Angular dependence of peak detection efficiency

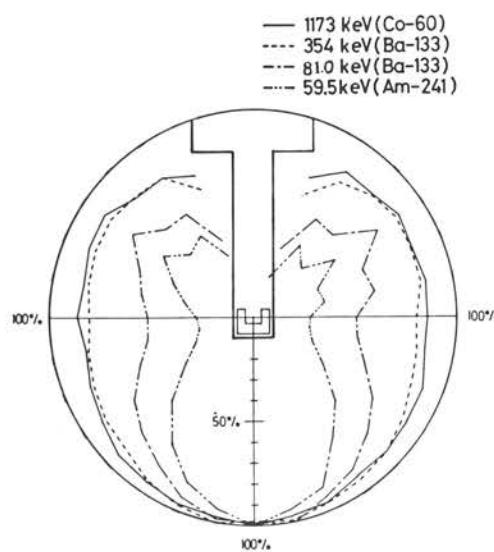


Fig. 2 Angular dependence of detection efficiency

Table 1. Comparison of In-Situ Ge (Li) detectors

	Closed end coaxial Ge(Li) detector						LLRL Kanazawa Univ.
Active volume [cm ³]	60	25	70	70	55	73	70
Diameter [mm]	43		40	44	44.5	48	50.5
Length [mm]	44		68	55	38	44.5	37.5
Cross section [cm ²]	14.5		12.5	15	15.8	18.1	20.0
Detection efficiency at 1332 keV (cps/photon/cm ^{sec})	2.17	0.82	1.4	2.9	1.44	3.65	3.50
Energy resolution (keV)	2.3*	2.3*	3.1*	3.0*	1.8*	2.4*	1.9*
* 662 kev gamma ray, * 1332 kev gamma ray							

1) H.L.Beach et al; NBSL-25B (1972)

2) P.L.Phelps et al; IEEE Trans NS-21 543 (1974)

3) S.Okano; Genshiryoku Kogyo 21 51 (1975)

4) E.Sakai et al; JAERI-M-6498 (1976)

In-Situ 測定で得られた γ スペクトルのうち特徴的なものを Fig. 3, 4, 5 に示す。Fig. 3 は能登半島調査の際、羽咋市の青年の家近くの山林で測定したスペクトルで ^{137}Cs 濃度が特に高く、中国核実験のフォールアウトが検出されたもの。Fig. 4 は京大原子炉の研究棟横の芝生でとった γ スペクトルで ^{41}Ar の検出されたもの、Fig. 5 は秋吉台の鐘乳洞内で得た ^{222}Rn の影響が著しいスペクトルである。

Fig. 6 にこれまでの調査地点の空間線量率をまとめて示す。ピーク計数率 (cpm) から線量率 ($\mu\text{R}/\text{h}$) への変換は Beck らの開発した方法に従って U 系列については ^{214}Pb , ^{214}Bi を, Th 系列については ^{208}Tl , ^{212}Pb , ^{228}Ac のピークを用いて行なった。この方法は平らな表面状態での放射性核種の分布を仮定した場合に成立するもので、平坦な地形の少ないわが国のような場合には、地形の状況を考慮した解析法の開発が必要である。Fig. 6 から明らかなように、線量率への寄与は、天然の U 系列—Th 系列および ^{40}K が大部分で ^{137}Cs の寄与は人手の入っていない山地や川原などを除いて $0.1\mu\text{R}/\text{hr}$ 以下である。また U, Th, K の相対的な寄与は、それぞれの地点の土壤を形成している地質によることが地域別のパターンから推定できる。

G関数を用いて γ スペクトルから線量を直接計算する方法も試み、建物内や洞内などの線量率計算に有効なことが確かめられた。

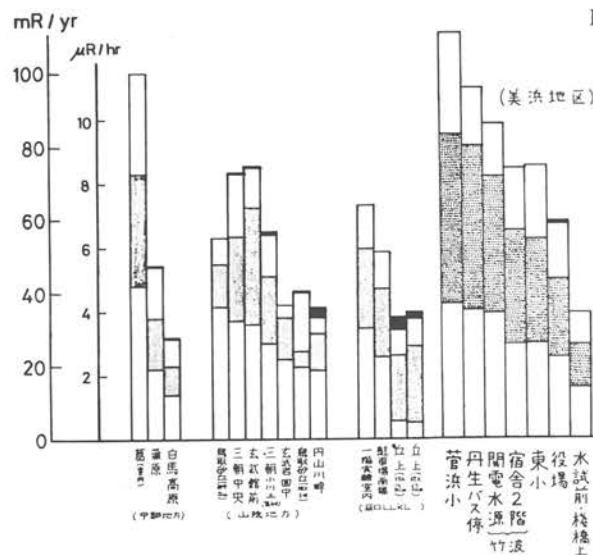


Fig. 6 Radiation dose rate measured by In-Situ γ -spectrometry (based on Beck's method)

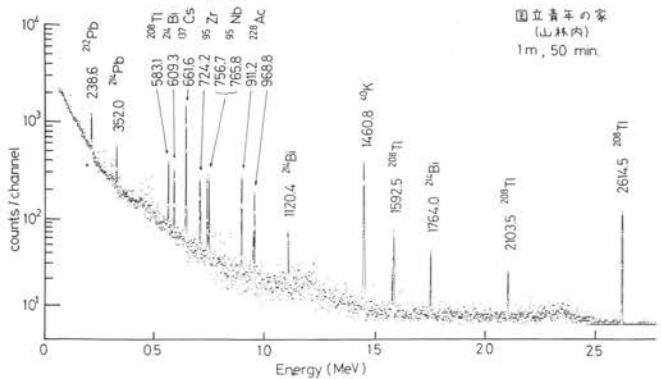


Fig. 3 In-Situ γ -spectrum taken in the forest near "Seinen-no-I'e", Hakui City

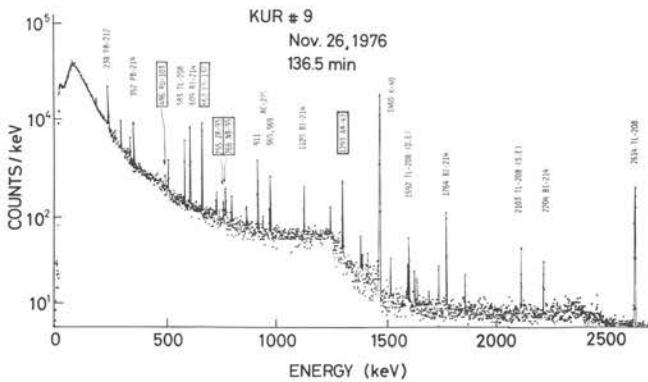


Fig. 4 In-Situ γ -spectrum taken at KUR

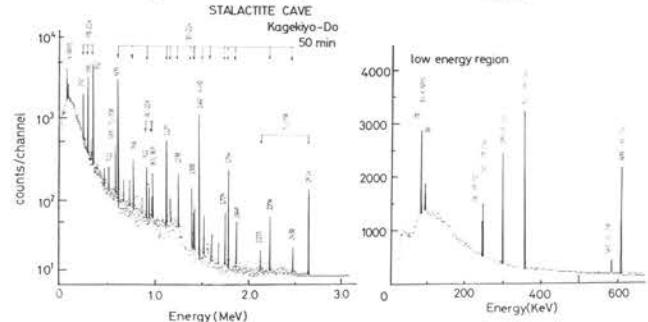
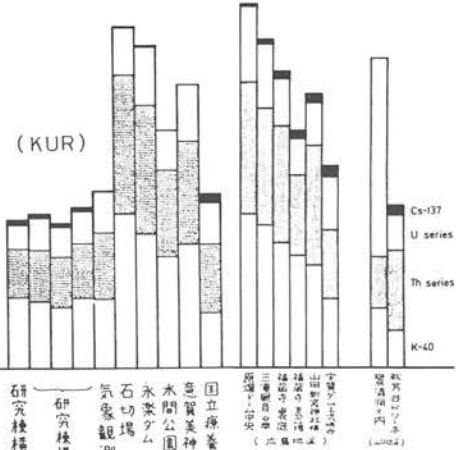


Fig. 5 In-Situ γ -spectrum taken in the stalactite cave "Kagekiyo-do" at Akiyoshi



〔本研究の一部はそれぞれその都度、昭和51年7月第29回温泉科学会大会で阪上により、同年8月京大原子炉、原子力安全研究専門研究会で阪上、小村により、同10月第19回日本放射線影響学会で小村により、また昭和52年6月第14回理工学における同位元素研究発表会で金大理・修士課程柳瀬信之により講演発表されるとともに、その詳細はKURRI-TR-155および156に印刷報告されている。〕

南極氷中の放射性核種

Radionuclides in Antarctic Ice Sample

極地方の氷は深海底堆積物とともに、古くから宇宙線生成核種²⁶Al や⁵³Mn の探索のために研究されている。これら核種の検出の可能性を探るための予備実験として、南極の氷、数 100 トンを溶解して得た約 2 kg の残渣のうち約 30 g について γ 測定を行なった。

3724 分測定で得られた γ スペクトルの 0 ~ 2 MeV 領域を図に示す。図から明らかなように、天然の U, Th 条列および⁴⁰K のほか、多量の¹³⁷Cs と⁶⁰Co, ¹²⁵Sb が検出された。試料の採取後、数年を経ているため、半減期の比較的長い核種しか検出されていないが、核実験によるフォールアウトが南極をもかなり汚染していることがわかる。宇宙線生成核種によるピークはこの程度の試料と測定時間では到底椣出できないが、このスペクトルは、宇宙線生成核種の探査に際してフォールアウト核種に対する十分な配慮が必要なことを示唆している。

〔南極の氷試料は東大核研・田中重男氏の好意による〕

中国核実験によるフォールアウト核種の測定

Measurement of Fall-out Nuclides by Chinese Nuclear Detonation

1976 年 9 月 26 日の中国核実験は各地に強い放射性降下物をもたらした。施設横の広場での *In-Situ* γ スペクトル (10 月 1 日) および秋田市で採取した Giant Particle の γ スペクトル (10 月 12—13 日) を Fig. 1, 2 に示す。検出された核種は下記のとおりである。

⁹⁵ Zr(65.5 d)	¹²⁶ Sb(12.5 d)	¹⁴⁰ Ba(12.8 d)
⁹⁵ Nb(35.1 d)	¹²⁷ Sb(3.85 d)	¹⁴⁰ La(40.3 h)
⁹⁷ Zr(17.0 h)	^{131m} Te(30.0 h)	¹⁴¹ Ce(32.4 d)
⁹⁷ Nb(72.0 m)	¹³¹ I(8.06 d)	¹⁴³ Ce(33.7 h)
⁹⁹ Mo(66.2 h)	¹³² Te(78.0 h)	¹⁴⁴ Ce(284 d)
^{99m} Tc(6.02 h)	¹³² I(2.28 h)	¹⁴⁷ Nd(11.1 d)
¹⁰³ Ru(39.5 d)	¹³⁷ Cs(30.0 y)	²³⁹ Np(2.35 d)

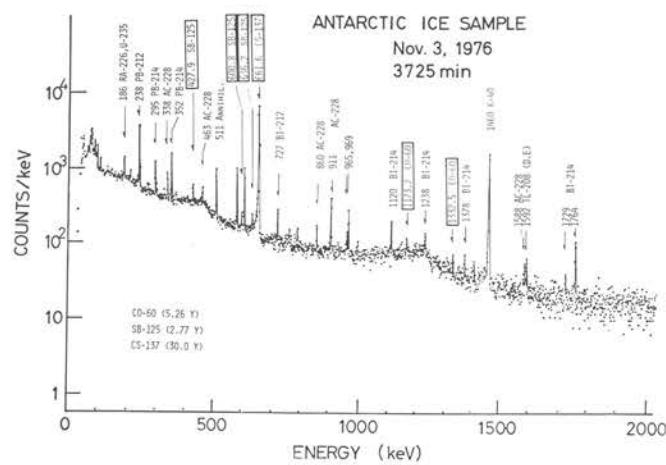


Fig. 1 γ -spectrum of Antarctic ice sample

中国核実験によるフォールアウトが南極をもかなり汚染していることがわかる。宇宙線生成核種によるピークはこの程度の試料と測定時間では到底椣出できないが、このスペクトルは、宇宙線生成核種の探査に際してフォールアウト核種に対する十分な配慮が必要なことを示唆している。

〔南極の氷試料は東大核研・田中重男氏の好意による〕

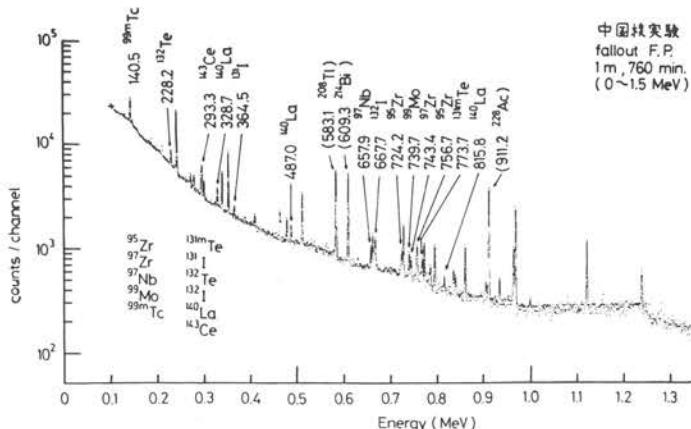


Fig. 1 In-Situ γ -spectrum taken at LLRL, 5 days after Chinese nuclear detonation

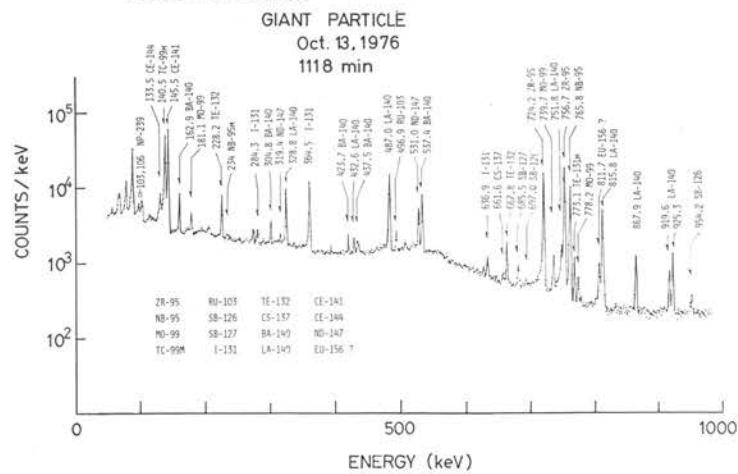


Fig. 2 γ -spectrum of giant particle collected at Akita city

〔Giant Particle の採取は秋田大医滝沢行雄研究室の久松俊一氏らが行ない、当施設の Ge (Li) 検出器で測定した。〕

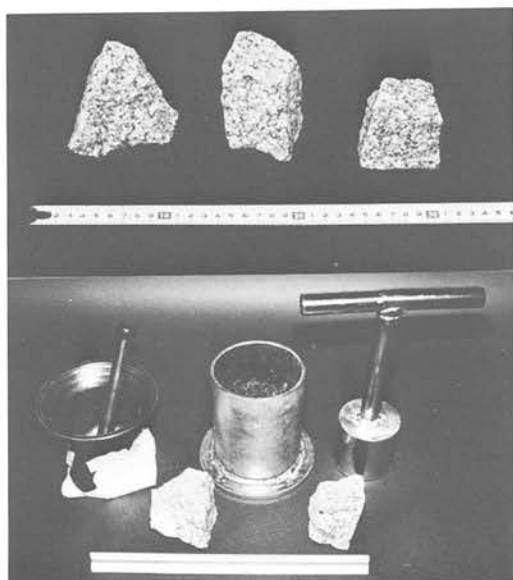
標準岩石JG-1 中の U, Th および K含有量

U, Th and K Contents in Standard Rock JG-1

低レベル放射能の測定では、一般に大量の試料を線源とすることが多い、非破壊 γ 測定では、密度、大きさ、化学組成の異なる様々な試料を扱うため、それぞれの試料に対する検出効率を求めておくことが必要になる。環境試料では、U, Th, K含有量の知られている標準線源が有効と考えられるので、U, Th をはじめほとんどすべての元素について色々な方法で測定されている標準岩石 J G—1（花崗閃綠岩）中のU, Th, Kの測定を試みた。

にぎりこぶし大の J G—1 の原石約 13 kg を手製のステンレス製粉碎器を用いて粉碎した。粒度による U, Th, K のフラクションを調べるために、ふるいを使い粗粒 (>1mm), 中粒 (1~0.25mm) 細粒 (>0.25mm) に分け、それぞれの U, Th, K 濃度を測定した。Table 1 に、測定結果を示す。表から明らかのように、細粒の U, および Th 量は他の約 2 倍で、分別がかなり著しいことがわかる。これは、U, Th を多く含み、硬度の小さな黒雲母が、粉碎され易いためと考えられる。このため、すべて 1 mm 以下に粉碎した後、注意深く四分法を繰り返しながらほぼ等量の 16 個に分け JG—1 のストック試料を作成した。このうち任意の 5 個を抽出して測定した結果を Table 2 に示す。U は 295, 352, 609, 1120 および 1764 keV γ 線より、Th は 238, 583, 911, 969, 2614 keV γ 線より得られる値を平均したものであり、K は ^{40}K の 1460 keV γ 線を用い、KCl 標準線源との比をとり、自己吸収の補正をして求めた。

Table 2 からわかるように、5 個の試料の測定結果は互によく一致している。これらの平均値として U = 4.00 ± 0.10 ppm, Th = 11.6 ± 0.6 ppm, K₂O = 3.95 ± 0.10 % が得られる。今回の Ge (Li) 測定の結果を NaI (Tl) による γ 測定および地調・安藤氏がまとめた種々の測定法による平均値とを Table 3 に比較した。表からわかる様に、K 以外の結果はかなり違っている。 γ 測定では計算に用いる γ 線の分岐率に結果が左右されること、われわれの用いた JG-1 原石と、いわゆる JG-1 標準試料との違いも考えられることなどから、この点からのつめを行う予定である。



Samples and Crushers

[JG-1 原石は地調・安藤厚氏よりいただいた。試料の粉碎および測定は金沢大・理・卒研生・酒井修が主として行なった。]

Table 1. Fractionation of U, Th and K

Size (mm)	U (ppm)	Th (ppm)	K ₂ O (%)	Weight (kg)
< 0.25	7.4	20.7	4.24	3.64
0.25-1.0	3.2	8.8	3.68	8.71
>1.0	3.7	11.6	4.22	0.30

Table 2. U, Th and K Content of JG-1 Sample

Sample No.	U (ppm)	Th (ppm)	K ₂ O (%)
1	3.90	11.3	3.90
3	3.98	11.5	3.89
6	4.04	11.7	4.00
11	4.03	11.5	4.02
16	4.10	12.2	3.91
Average	4.00 ± 0.10	11.6 ± 0.6	3.95 ± 0.10

Table 3. Comparison with Other Results

U (ppm)	Th (ppm)	K ₂ O (%)	
4.00	11.6	3.95	Present work (γ -counting)
4.67	13.4	4.03	Kanaya (γ -counting)
5.0	15.6	4.05	Adams (γ -counting)
3.4	13.5	3.96	Compiled by Ando (Average of all data)

諏訪湖底堆積物中の U, Th, K および ^{137}Cs U, Th, K and ^{137}Cs contents in the Sediment of Lake Suwa

諏訪湖のほぼ中央部の水深 6.8 m の湖底よりエックマンバージ型の採泥器を用いて採取した 2 本の柱状コア試料 (1976 年 12 月採取, 深度 18 cm, 1977 年 1 月採取, 深度 25 cm) について非破壊 γ 測定により U, Th, K および ^{137}Cs の深度分布を測定した。Fig. 1 に採取地点を示す。コアは 1 cm 間隔に切り, ポンプで引いて脱水した後, 110°C 乾燥して測定試料とした。

γ 線測定は試料 (17~30 g) を $47 \phi \times 30\text{mm}$ のプラスチック容器につめて 1000~2000 分おこなった。U は ^{214}Pb , ^{214}Bi のピーク面積より, Th は ^{208}Tl , ^{212}Pb および ^{228}Ac のそれより, それぞれ放射平衡にあるものと仮定して濃度を計算した。各系列の娘核種の半減期からすれば実際には U 系列では ^{226}Ra 濃度を, Th 系列では ^{228}Th および ^{228}Ra 濃度を測定していることになる。2 つのコア試料の測定結果を Fig. 2 および 3 に示す。図から明らかなように, U は 0.35~0.5 pCi/g, Th は 0.45~0.7 pCi/g, ^{40}K は 7~9 pCi/g の範囲でほぼ一定であり (この附近の地質のため, 次頁の大坂湾試料よりはそれぞれ濃度小), 湖底における泥の堆積は比較的静かに進行しているものと考えられる。これに対し, ^{137}Cs 濃度は深さとともに高くなり, 幅広いピークをつくった後, 再び減少するようにみえる。試料 1 では約 16~18 cm, 試料 2 では~11 cm にピークが存在する。湖に流入する泥・砂の滞留時間は十分短かいと考えられるので, ^{137}Cs 濃度は泥の堆積した時点でのフォールアウトの降下量を反映していることになる。核実験が最も激しく行われたのは 1961~1963 年であり, ^{137}Cs の濃度分布のデータが, そのための降下量を反映するとすれば両試料を採取した場所での堆積速度として~12 mm/yr および~8 mm/yr が得られる。

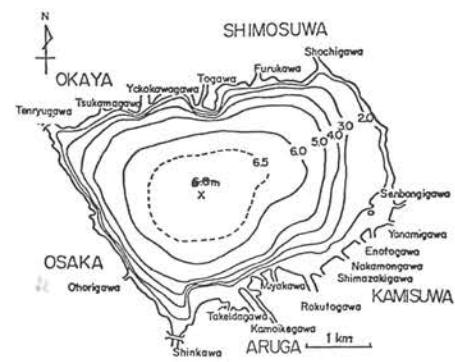


Fig. 1 Bathymetric chart of Lake Suwa.
X shows the sampling position.

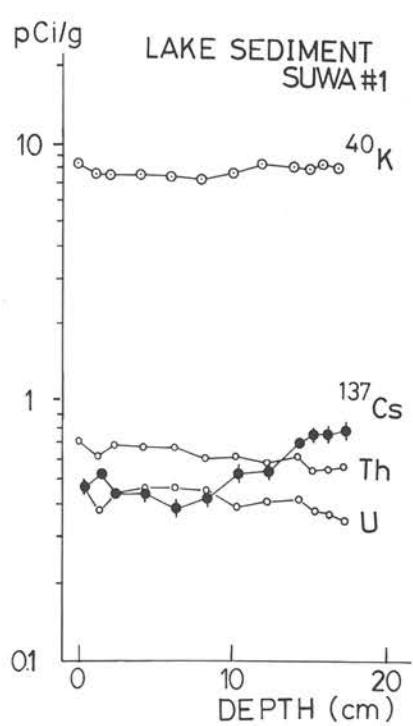


Fig. 2 Depth profiles of U, Th, K and ^{137}Cs in the Core #1

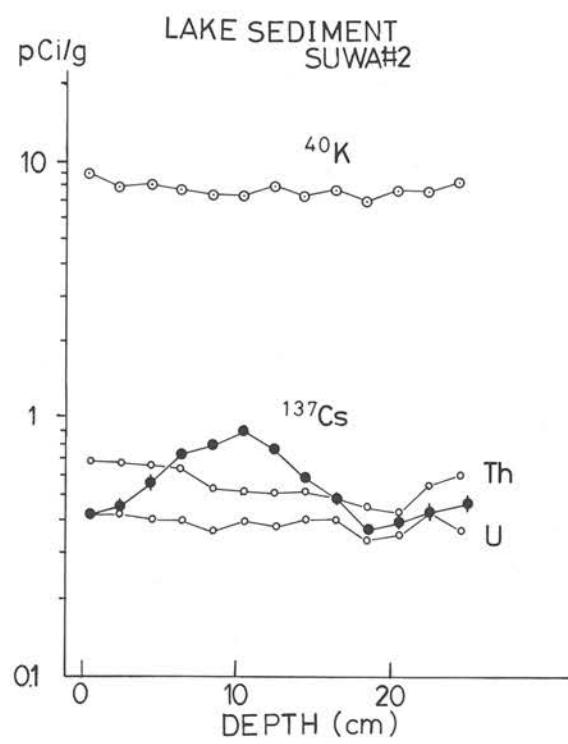


Fig. 3 Depth profiles of U, Th, K and ^{137}Cs in the Core #2

[この研究は, 名大水圈科学研小山忠四郎研究室の西村弥亞氏との共同で行われ, 金沢大・理・卒研生・酒井修が線源作成および放射能測定を主として行なった。]

大阪湾海底堆積物中の U, Th, K および ^{137}Cs

U, Th, K and ^{137}Cs contents in the Sea Sediment from Osaka Bay

大阪一神戸間の魚崎沖で 1976 年 6 月に採取された柱状コア試料の表面から 60 cmまでの 6 点について U, Th, K および ^{137}Cs の深度分布を測定した。

γ スペクトルの解析結果を図に示す。U, Th, K 含有量は、諏訪湖底堆積物の場合と同様、深度による変化は少なく、それぞれ $0.4 \sim 0.6 \text{ pCi/g}$, $1.4 \sim 1.8 \text{ pCi/g}$, $19 \sim 22 \text{ pCi/g}$ の範囲にある。この海域の堆積物は、六甲を形成している花崗岩の風化により供給されると考えられる。比較のために標準岩石 J G-1 (花崗閃緑岩) の値もプロットした。U 量が J G-1 に比し著しく低いのは、U 系列の ^{226}Ra が風化の際に溶出しているためと考えられる。 ^{137}Cs 濃度は 10—12.5 cm のフラクションが最も高く、更に深いところで急激に減少し、60 cm では検出できなかった。ピークがフォールアウト降下量の多かった 1962—1964 年に対応するものとすれば、堆積速度 $\sim 8 \text{ mm/yr}$ が得られる。

[本研究は昭和 51 年度文部省特定研究「海洋環境保全の基礎的研究」としてなされ、大阪湾海底試料の採取は神戸大理・安川克巳氏による。なお放射能測定は金沢大・理・卒研生・酒井修が主として行なった。]

牛乳中の ^{137}Cs の測定

Determination of ^{137}Cs from Milk

牛乳中の ^{137}Cs を従来の方法で化学分離して β 線計測で定量するさいは、牛乳中に $0.5 \sim 3.5 \text{ ppm}$ 含まれているルビジウム中の放射性同位体 ^{87}Rb も共沈測定される懸念がある。 γ 線スペクトロメトリーによればこのおそれはないので、従来の化学分離で塩化白金酸セシウム [Cs_2PtCl_6] として沈殿させたものを薄いポリフィルムによりラミネートし、本施設の低バックグランド高性能 Ge (Li) 検出器に密着して測定した。

従来法で β 線計測による定量値のある北海道と岩手の試料についての結果を右表に比較して示す。今回は一部を除き ^{87}Rb の影響はみられず、公定法を多少変更した化学分離法の有効なことを認める一方、数 pCi/l の低レベル ^{137}Cs も、充分 Ge (Li) γ スペクトロメトリーで 0.662 MeV のピークで、従来の β 計測で必要とされた沈殿の自己吸収補正の必要もなく、適確に定量しうることが確認され、今後は本測定法に切り替えるべきことも考えられる。

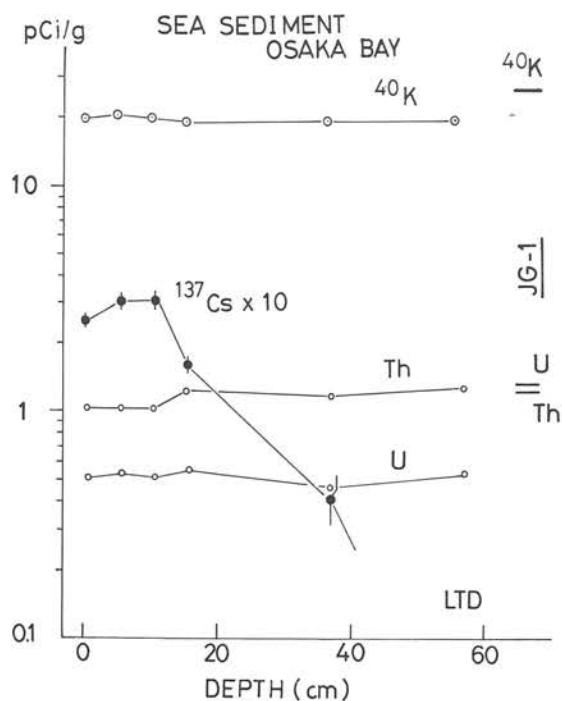


Fig. 1 Depth profiles of U, Th, K and ^{137}Cs in sea sediment core of Osaka bay

Month	Detector	Hokkaido pCi/l	Iwate pCi/l
'75 Apr.	SSD	16.3 ± 1.3	10.4 ± 1.6
	LBC	16.3 ± 1.1	13.0 ± 1.0
Jun.	SSD	20.7 ± 2.8	11.1 ± 1.7
	LBC	25.2 ± 1.7	14.5 ± 1.2
Aug.	SSD	20.0 ± 1.9	20.5 ± 2.2
	LBC	18.2 ± 1.2	21.0 ± 1.2
Oct.	SSD	58.1 ± 5.7	16.6 ± 1.9
	LBC	60.9 ± 2.1	16.2 ± 1.1
Dec.	SSD	19.4 ± 2.5	10.3 ± 1.0
	LBC	21.1 ± 1.4	10.2 ± 1.1
'76 Feb.	SSD	6.1 ± 0.7	3.5 ± 1.1
	LBC	4.8 ± 0.8	2.6 ± 0.6

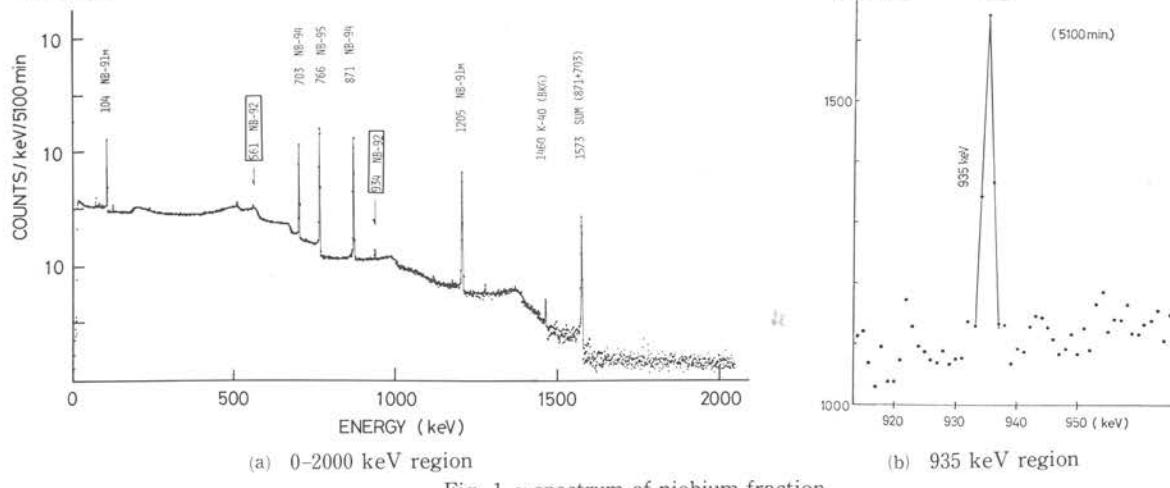
SSD = Ge(Li) Detector

LBC = Low Back ground Counter

[農林省畜産試験場の三橋俊彦氏との共同研究。同氏により昭和 51 年科技庁放射能調査研究発表会で講演発表された。]

長寿命核種 ^{92}Nb の半減期測定 Half-life of Long-lived ^{92}Nb

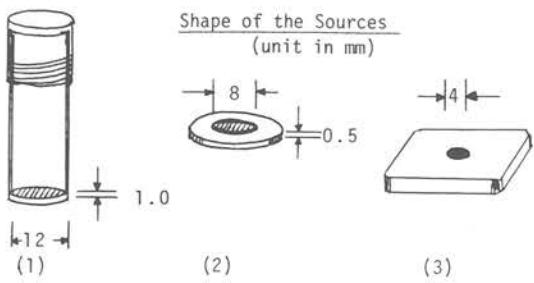
高性能の低バックグラウンド Ge(Li) 検出器を用い長寿命核種 ^{92}Nb の半減期測定を行なった。 ^{92}Nb は、6 g の金属 Mo を高中性子束の JMTR で照射し $^{92}\text{Mo}(\text{n},\gamma)^{92}\text{Nb}$ 反応により製造した。大量の Mo からの Nb の無担体分離には陰イオン交換法を用いた。Nb フラクションは目的とする ^{92}Nb のほか半減期 2.03×10^4 年 ^{94}Nb および短寿命で放射能的に非常に多量の ^{91m}Nb (62d), ^{95}Nb (35d) を含むため、1 年以上冷却して妨害の ^{91m}Nb , ^{95}Nb の大部分を壊変させた後に Ge(Li) 測定を行なった。Fig. 1(a) に 5100 分測定して得られた γ スペクトルの全体の様子を、(b) に ^{92}Nb の 934KeV 付近の拡大図を示す。 ^{91m}Nb および ^{95}Nb による妨害 (コンプトン散乱線) はまだ高いが、 ^{92}Nb の 934keV, 561keV ピークが十分確認できる。 γ 測定による $^{92}\text{Nb}/^{94}\text{Nb}$ の放射能比と質量分析による $^{92}\text{Nb}/^{94}\text{Nb}$ の原子数の比および、 ^{94}Nb の半減期 (2.03 ± 0.16) $\times 10^4$ 年から ^{92}Nb の半減期として $(3.3 \pm 0.5) \times 10^7$ 年を得た。

Fig. 1 γ -spectrum of niobium fraction

[本研究は東大物性研の牧野友子・本田雅健氏が行ない、 γ 測定には当施設の Ge(Li) 検出器を用いた。Physical Review 誌に投稿中である。]

^{54}Mn に対する FOM 測定 Measurement of FOM for ^{54}Mn

宇宙線生成核種 ^{53}Mn は $^{53}\text{Mn}(\text{n},\gamma)^{54}\text{Mn}$ 反応による放射化によって、極めて高感度の測定ができる。月の石、深海堆積物中の極微量の ^{53}Mn の測定を目的として、 ^{54}Mn の 835keV γ 線に対する FOM (Figure of merit) を測定した結果を Table に示す。なお NaI(Tl)によるアンチコンプトン測定を行えば FOM を 3 倍程度上げることができるのでその準備を行なっている。

Table. Figure of Merit for ^{54}Mn

Source	Efficiency (%)		
	PGT Ge(Li)	ORTEC Ge(Li)	PGT/ORTEC
1	$3.31 \pm .06$	$2.67 \pm .05$	1.24
2a	$4.14 \pm .05$	$3.42 \pm .05$	1.21
2b	$4.38 \pm .05$	$3.66 \pm .05$	1.20
3	$4.60 \pm .06$	—	—
BKG (cpm/keV)	$.0076 \pm .0004$	$.0108 \pm .0004$.70
FWHM (keV)	1.6	1.7	
Figure of Merit*			
1	0.30	0.20	
2a	0.37	0.25	
2b	0.40	0.27	
3	0.42	—	

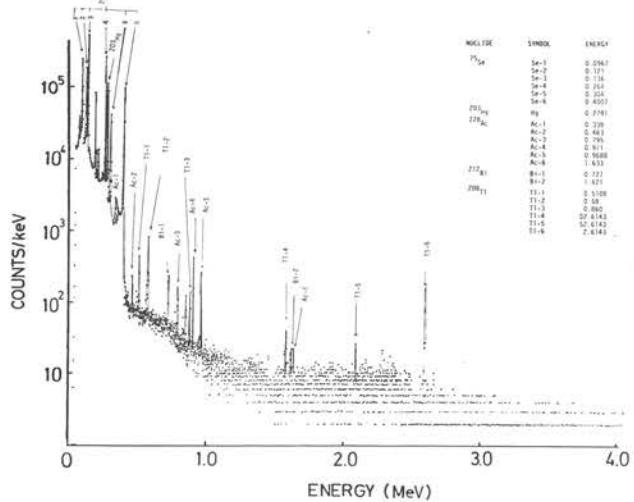
* Figure of merit = (Efficiency)/(FWHM \times BKG) $^{1/2}$

[^{54}Mn の標準線源は立教大理の西泉邦彦氏 (source 1,2) および東大核研の今村峯雄氏 (source 3) によって作成されたものを当施設の Ge(Li) 検出器で測定した。]

トロトラスト使用患者の生検肝臓の放射能測定 Radioactivity in the Liver Specimen of Thorotrast Patient

二酸化トリウムのコロイド溶液であるトロトラストは、1928年よりX線診断造影剤として用いられていたが、Thとその壊変系列娘諸核種による放射能障害として白血病や肝硬変等の発生がみられるようになった。今回金沢大学病院に入院した約38年前にトロトラスト注射をうけた患者がトロトラスト晩発障害としての肝悪性血管内皮腫の疑いから、精密検診のため開腹生検をうけ、その楔状生検で得られた人肝試料について感度のよい当施設における γ スペクトロメーターで肝臓中のTh量の評価を行った。なお標準として ThO_2 25%のHeyden社製ゾルから3種類の希釈標準試料をつくり、人肝試料とは同一の幾何効率になるようにして測定した。

^{208}Tl の0.58 MeVのピーク、 ^{228}Ac の0.911 MeVのピークを相互に比較して検量線をつくり、右図に示す0.8 gの人肝試料のスペクトルにつき約 5.65 ± 0.20 mg ThO_2 を評価した。なお本スペクトルにみられる ^{75}Se や ^{203}Hg は以前に行われたRI検査によるものである。一方、 $^{228}\text{Ac}/^{208}\text{Tl}$ 比は 2σ の誤差範囲では一致し、とくに著しい ^{228}Ra の肝内代謝による消失は認めなかった。



海洋におけるラジウム同位体 ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比) Radium Isotopes ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ Ratios) in the Ocean

海洋における水塊の性質と混合拡散の動きを知るには適切な半減期をもつ2種の同位体²²⁶Ra ($T_{1/2}=1620$ 年)と²²⁸Ra ($T_{1/2}=6.7$ 年: 5.7年のデータもある)を、多数の海水試料について測定することが有効である。このため、従来の放射化学分離測定法にかわる適確簡便な両同位体の同時測定法を、当施設にある極低バックグラウンドの効率のよい γ スペクトロメーターを用いて開発し、この方法を東大海洋研白鳳丸K H-76-1航海に乗船して採水されたインド洋等の海水試料に適用し、国際的にも海洋学上で意義深い興味ある成果を得た。

船上で採水した 800~960 ℓ の試料水は 80 ℓ バケツに分取し, Fig 1 に示す BaSO₄, Fe(OH)₃ 共沈を行う。なお後に Pu の分析定量を行うため²³⁶Pu 一定量を予め添加し, また若干の試料については²²³Ra (T_{1/2}=11.4 日) を用い共沈率の評価も行った。上澄液を船上で捨て実験室に持帰った試料から沈殿を集めてのち Fe(OH)₃ を HCl で溶解してえられる BaSO₄ を乾燥後, 一定量を容器に入れ γスペクトロメトリーを行う, 測定までの Ra の化学収率は, 80 ℓ 海水あたり 0.281 g 添加した Ba²⁺ 担体 (共存²²⁶Ra の少い BaCl₂ 試薬より調製) によった。

^{226}Ra 量は γ スペクトルの ^{214}Bi 609keV ピークのほか、 ^{214}Pb 352keV, 295keV をもとに、それぞれの分岐比、計数効率、バックグラウンド（352keV では約 0.026cpm）のほか、担体の Ba^{2+} 中の ^{226}Ra 量も配慮して求め、試料中の ^{226}Ra と娘諸核種の放射平衡確認のためには 186keV ^{226}Ra ピークも用いた。 ^{228}Ra 量は ^{228}Ac 911keV ピーク（これまでのバックグラウンド約 0.019cpm）によった。

Fig 2(a)に本研究によって得られたフィリッピン周辺、アンダマン海、インド洋についての²²⁸Ra測定値を外国研究者による値(○)等とともに示す。Fig 2(b)は本研究による²²⁶Ra濃度を示し、それには本研究で採水された深層水の²²⁶Ra濃度(□)も示すが、それは同一箇所の表面水に比して高く、従来からいわれている海底からの²²⁶Raのゆっくりした拡散を支持する。²²⁸Ra/²²⁶Ra比について考察すると、太平洋やインド洋の値は低いが、陸地に近く海底も浅いアンダマン海などの値は高く、とくに南緯30°附近を境として南方海水と北方海水に明確な違いがみられ、両者の混合が少く、南部海水は独立に循環し年令が古いと結論された。

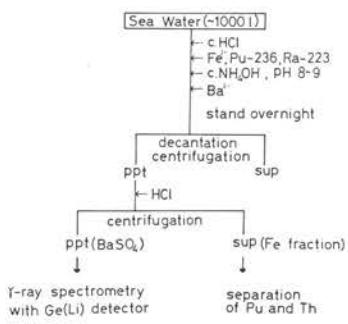


Fig. 1 Amalytical scheme

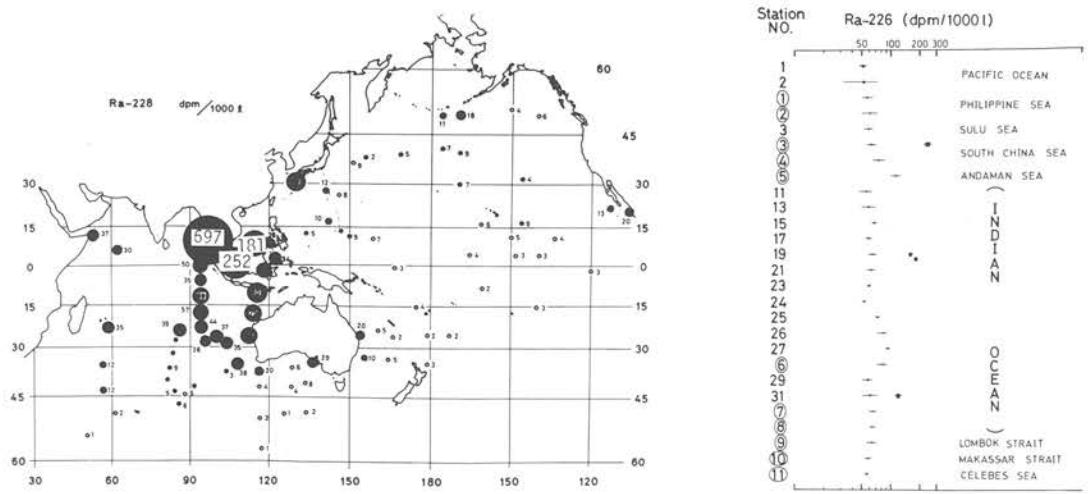


Fig. 2 a) Concentrations of ^{228}Ra (dpm/1000 l)

b) Concentrations of ^{226}Ra (dpm/1000 ℓ)

〔本研究は金沢大理・阪上正信、古山和徳および神戸商船大・大久保隆、道嶋正美の連名で「海洋環境保全の基礎的研究」第3回総合シンポジウムで講演発表されるとともに、金沢大理・古山和徳修士論文に詳細がある。〕

環境プルトニウムの放射化学分析法の検討実験研究

Experimental Studies on Radiochemical Analysis of Environmental

環境試料中のプルトニウムの分析法は今までに多数報告されているが、その多くには微妙な分析操作が組み込まれており、基準的方法とされるようなものは少ない。昭和51年度に、科学技術庁が日本分析センターに委託した「放射性核種分析法の基準化に関する対策研究」の「プルトニウム分析法の作成」研究は環境試料中のプルトニウムの基準分析法の作成を目的として組織され、基準分析法の試案が作成された。当実験施設では、試案の問題点の指摘と基準分析法作成の基礎となるデータの提供を目的として、水底堆積物・土壤試料・生物試料についての試案(Fig. 1)に従って、共通試料(海底土、海砂、ひどく、かじめ)の分析を行なった。このクロスチェック分析で、当施設において検討した点は、水底堆積物・土壤についての処理法、及び濃縮の段階での鉄、アルミニウム、ウラン除去操作を組み込んだ方法、生物灰についてのHF分解を省略する方法、プルトニウムを化学分離・精製するための陰イオン交換樹脂カラム法とTOA溶媒抽出法の比較、プルトニウムを単離するための溶離液・逆抽出液としてのNH₄I-HClの効果、電着収率、全分析操作を通じての回収率(Pu-236トレーサー使用)、分析所要時間などである。

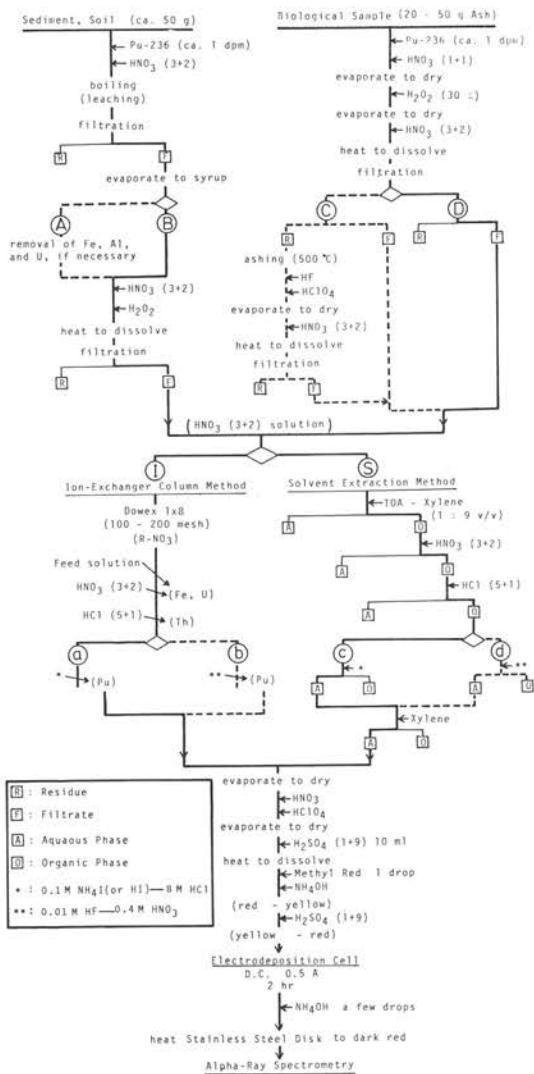


Fig. 1 Analytical scheme for environmental plutonium.

The standard analytical scheme is shown by solid line.

共通試料の分析結果を他の研究者によるものと比較しながら Fig. 2 に示す。付帯誤差は α 線スペクトロメトリの統計誤差 ($\pm 1\sigma$) のみによるもので、このレベルのプルトニウムの分析結果としては、ほぼ満足できる。本研究の結果などに基づいて作成された水底堆積物・土壤、生物試料の基準分析法を Fig. 1 に実線で示す。

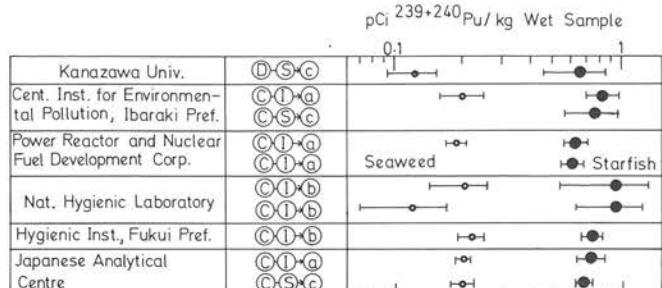
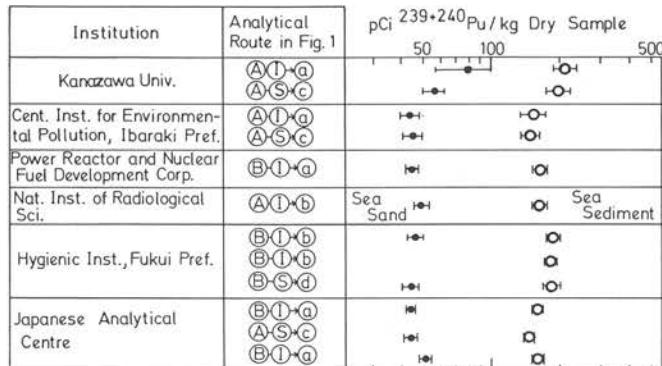


Fig. 2 Results of crosscheck analysis.

〔金沢大学における共通試料のクロスチェック分析は、金沢大理中西孝、同修士課程の柳瀬信之により実施された。本研究は、昭和52年9月6日、第26回国際純正応用化学連合化学会議で口頭発表される。なおプルトニウム分析法作成委員会(委員長・阪上正信、国内の9研究機関参加)の協議作成による「プルトニウム分析法」放射能測定法基準化委員会編が、昭和52年3月印刷配布されている。〕

ベンゼン合成による C-14 測定

Measurement of C-14 by Synthesizing Benzene from Samples

考古学・地質学の絶対年代測定に有用な C-14 法は、1947 年の W.F.Libby らによる固体炭素塗付測定にはじまり、その後低バックグラウンド比例計数管に試料から調製した CH_4 や C_2H_2 などの有機ガスを導入して計数する方法に発展し、感度も向上して測定年代も C-14 の少くなる数万年にまで到達できるようになり、わが国での実施個所である GAK(学習院)、TK(東大)、N(理研)もこの方法によっている。しかし最近バックグラウンドの低い、Bialkali 光電子増倍管の開発などにともない液体シンチレーション法がガス計数法にまさるとも劣らぬ有効な方法〔計測の Figure of Merit(F)=($\epsilon \cdot M / \sqrt{B}$)² において効率 ϵ は劣るとしても計測試料にもちこむ C-14 量 M 大で B 小〕となりつつあり、しかも液体測定試料は保存容易で再測定が可能であり、そのさい C-14 をベンゼンとして計測することは C_2H_2 7.5 ℥、または CO_2 15 ℥ が、ベンゼン 13g と少量に相当することからも有利である。

C-14 年代測定を要望する試料件数が増加したわが国において、それに応ずる新しい測定拠点を設けるさいは本法の検討採用が有効とみとめ、本施設においてこれを研究することとなった。

各種試料からベンゼン合成にいたる経路を右図上に示すが、サンゴなど炭酸塩については(3)から出発することとなる。このさい(6)の過程では収率、副反応、取扱いの点での触媒の選択が重要であるが、これについては東工大資源化学研の池田朔次教授らの研究室で検討されてきた活性化を行ったアルミナ担体に酸化バナジウム触媒を保持される方法によることとした。

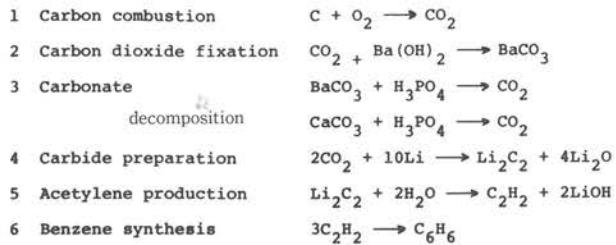
本施設に設置されたベンゼン合成装置ガラス管系統を右図に示す。なお、 CO_2 と金属 Li の反応は金属性低圧反応容器で行う。まづ出発試料としてドライアイス、試薬 CaC_2 や CaCO_3 も用い、 C_6H_6 の合成までの収率等を種々検討した(1 例を下表に示す)。

	CaCO_3	CO_2 (0°C latm)	C_2H_2 (")	react. C_2H_2 (")	C_6H_6 (total yield) (")
Dry ice		24546.6	8796.3 (71.7%)	4691.0 (53.3%)	6.2 (38.2%)
CaC_2	(33g)		9570.3 (82.9%)	8580.4 (89.7%)	11.3 (74.3%)
Coral-limestone	100.0g	10441.1 (46.6%)	2451.8 (46.9%)	2334.6 (95.5%)	3.1 (20.8%)

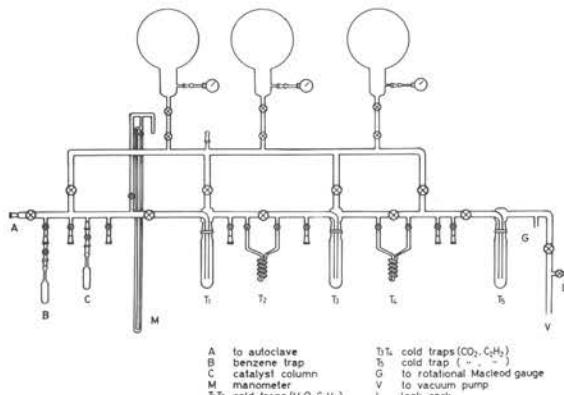
さらに実際のサンゴ 100 g を用いて行ってえられたベンゼンの液体シンチレーションによる測定(京産大・山田助教授の好意による)の結果を右図下に示す。測定された年代は同一サンゴ試料を用い、ガス計数法により理研で求められた年代と矛盾しなかった。今後合成収率向上と種々な年代の試料について本研究を発展させる計画である。

[本研究は昭和 51 年度科研費特定研究「放射年代測定法の開発と改良による考古試料の測定と編年」として金沢大・理・卒研究生中村哲の協力で主として行なわれ、同特定研究研究会で発表されるとともに同年次報告に所載。]

Reaction Process for Benzene Synthesis



APPARATUS FOR BENZENE SYNTHESIS



Coral limestone	H (cpm)	Channel C (")	P (")
cpm - B.G.	16.3 ± 0.2	15.9 ± 0.2	15.6 ± 0.2
cpm/g of C	$7.12 \pm 1.2\%$	$6.94 \pm 1.2\%$	$6.81 \pm 1.2\%$
dpm/g of C	$7.74 \pm 1.2\%$	$7.73 \pm 1.2\%$	$7.78 \pm 1.2\%$

average 7.75 dpm/g of carbon

$$N = N_0 e^{-\lambda t} \quad t = \frac{1}{\lambda} \ln \frac{N_0}{N} \quad T_{1/2} = 5730 \text{ yr} \quad --- \quad t = 4560 \text{ yr}$$

$$T_{1/2} = 5568 \text{ yr} \quad --- \quad t = 4430 \text{ yr}$$

主要研究設備

《検出器関係》

Ge(Li) 検出器—ORTEC 8501—1523 S
 可搬型 Ge(Li) 検出器—PGT LGC—15DT
 低エネルギー・フォトン検出器—ORTEC 1013—16300
 9"×9" NaI(Tl) 検出器—BICRON 9HSW9/(8)3AL
 3"×3" NaI(Tl) 検出器—BICRON 3M3/3
 α 用 Si-SSD ORTEC-BA-040-150-100
 大阪電波ダブルグリッド α 線エネルギー分析装置

《波高分析器》

4096 CH 波高分析器 ORTEC—6240
 4096 CH 波高分析器 NAIG
 1024 CH 波高分析器 CANBERRA 8100/e

《データ処理関係》

PDP-11/05 ミニコンピュータ (16 k メモリ)
 フロッピディスク装置 ORTEC-FD-2
 カセットMT装置 NAIG-CMT-1
 プリンタ HP-5055 A
 XYプロッタ HP-7004 B

《測定車》

可搬型 Ge(Li) γ スペクトロメータシステム塔載
 ニッサン・キャラバン V E-20 A型
 (放射能測定のための走行距離 51 年度 3760 km)

《その他》

上皿直示天秤 (ザートリウス 2255 型)
 低圧反応装置 (耐圧硝子工業)
 遮蔽材, 鉄 (6 t), 鉛ブロック (1 t), 水銀 (150 kg)

液体窒素、光熱、水道等使用量

液体窒素 (51.9—52.3) 1170 ℥
 A 重油 (51.11—52.3) 1352 ℥
 電 気 (51.4—52.3) 87490 KWH
 水 道 (51.4—52.3) 1202 m³

人 事

《施設職員》

施設長 阪上正信 (併任)
 助教授 小村和久
 技官 加藤岩夫
 事務補佐員 中本美智代

《運営委員》(任期 52.5—54.5)

理学部 小西健二 寺田喜久雄
 医学部 久田欣一 米山良昌
 薬学部 堀川正克 宮崎元一
 工学部 平井英二 山本善一
 教育学部 瀬嵐哲夫
 教養部 定塚謙二
 医療技術短大 安東醇

《研修員》

山守志朗 (金沢中央高校教諭)
 51.4—52.3, さらに 52.4—53.3
 金沢大学科学教育研修員
 アリ・ジャナビ (イラク)
 52.2.21—52.10.31
 IAEA 計画による技術研修員

施設関係

52.1.13 核燃料物質の使用の承認
 (環境レベル Pu の研究のため)
 [科技庁 51 安 (核規) 第 2581 号]。
 52.3.25 車庫完成 (51.12 m²)



昭和51年度 会合・調査出張・見学来訪の記録

- 昭和51 3.26~31 〔中国地方（人形峠・三朝・鳥取砂丘・玄武洞）環境放射能調査〕
 4.8 ◎昭和51年度第1回運営委員会
 5.10 辰口町小中学校教員13名見学
 5.20 ◎開所式（石川県知事・辰口町長・学内外関係者来所）
 5.24 東大理学部・斎藤信房教授、東京都立大理学部・村上悠紀雄教授来所
 6.12 石川県理科教員3名見学
 6.18~23 〔白馬山麓（蒲原・北安曇郡小谷村・大町市葛温泉）環境放射能調査〕
 6.26 辰口町和氣町民50名見学
 7.26 ◎昭和51年度第2回運営委員会
 7.31~8.8 〔中国地方（広島・山口）環境放射能調査〕
 8.13 高校理科教材カリキュラム研究会
 8.25 文部省より見学、学長以下6名来所
 8.28~29 安全教育（VTR利用）に関する研究会（教育学部教育工学センターと共催）
 9.23 辰口町婦人会25名見学
 10.5 青山学院大理工学部、栗屋隆助教授来所
 10.18 理学部化学科第3学年生（35名）学生実験来所・見学と実習
 10.29 北陸地区国立学校施設担当者協議会27名見学
 11.1~2 〔羽咋市滝・長手島周辺 環境放射能調査〕
 11.15~19 〔福井県三方郡美浜町、敦賀市浦底 環境放射能調査〕
 11.23~30 〔京大原子炉実験所周辺 環境放射能調査〕
 11.26 文部省、久我調査官見学のため来所
 12.4 京大原子炉実験所々長柴田俊一教授来所
 北陸三県教員原子力教育講習会参加者30名見学
 12.16 石川県高校理科教育研修講座（県教育センター）参加者見学講習
 昭和52.2.5 名大水圈科学研、北野康教授来所
 2.21 IAEA研修員、アリ・ジャナビ氏受入
 3.7 ◎特定研究「放射年代測定法の開発と改良による考古試料の測年と編年」研究連絡会開催
 （各大学・研究機関より9名、金沢大より5名参加）
 3.18 ◎昭和51年度第3回運営委員会
 3.24 能美郡川北村中島小学校教員6名見学

低レベル放射能実験施設 昭和51年度研究概要年次報告 1977年7月1日発行

〒923-12 石川県能美郡辰口町字和氣才24 TEL (076151) 4440

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Tatsunokuchi, Ishikawa Pref., JAPAN