

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

1982.4～1983.3

Annual Progress Reports of

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

もう一つの仕事	2
現地測定実験状況とRCAスタディ・ミーティング写真	2
In-Situ γ 線測定による環境放射能調査	3
化石骨・化石歯中のU系列核種の放射平衡の状態と ^{230}Th 年代	4
たばこにおける ^{210}Pb と ^{210}Po の定量分析	5
南極バンダ湖のU濃度および $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比の深度分布および バーン岬のミラビライトの ^{230}Th 年代	6
異常に大きい $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比をもつ辰口温泉水とその周辺地下水の研究	7
大気浮遊塵中のアクチニド諸核種 (Am, Pu, U同位体)	8
日本の水田土壤中の $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am	9
長崎土壤中Puについての原爆寄与Puの推定	10
L X線と α 線との放射能比による環境試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の定量	11
約1600 B. C. の海洋における炭素同位体比の経年および季節変動	12
富山湾黒部川扇状地沖埋没林の放射性炭素年令	13
炭質物C-14ベンゼン年代測定法の検討とその適用	14
昭和57年度・施設備品・運営人事関係諸資料；研究報告	15
昭和57年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

も う 一 つ の 仕 事

施設運営委員・理学部教授 小 西 健 二

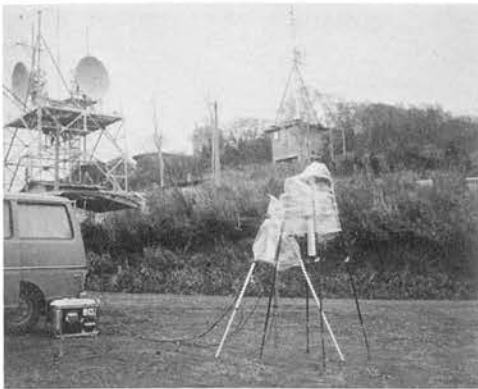
設置以来8年目を迎えた本施設の活発な研究活動は、7号を重ねた年次報告を通読されれば明らかな通りで、学界の評価も定着した感がある。時節柄slow but steadyは致し方ないといひながら、本年度も御母衣ダム発電所トンネル内の極低バックグラウンドでの常時測定がはじまるなど、新しい局面の研究の進展が期待されている。数年前に着手した放射性炭素法による年代測定や大気・海洋組成の経時変動の研究についても金沢大学LLRLは日本の中心の一つに成長した。

ところでもう一つの仕事として、本施設では、日本における環境放射能研究の推進力として活躍し、今は第一線から退いた歴史的な実験装置の保存・展示に着手しはじめた。幸い、同学の先輩諸氏の御理解と御協力を得て現在までに、次にあげるような貴重な品々を保管できるようになった。温故知新は、学問を志すものの辿る当然の道とはいえ、研究史の生証人ともいえるこれらの品々との触れ合いは、往々にして論文の行間からは読みとり難い多くの教訓を無言のうちに伝えてくれて、教育効果も大きい。

- (1) I. M. 泉効計 (fantactoscope); 飯盛里安氏考案, 下方鉦藏氏 (名工大) 使用。
- (2) Libby 型放射性炭素測定計数管; Libby 設計, 山崎文男氏作製, 浜田達二氏 (理研) 使用。
- (3) 金沢大学でのビキニの灰の研究において, 放射性同位元素総合研究室で使用された諸測定機器。木羽敏泰氏 (金沢大旧 R I 研) 等使用。(本施設年次報告LLRL-AR-3巻頭言参照)
- (4) α 放射体研究に活躍した格子付電離箱と初期の100チャンネル波高分析器。
- (5) 初期のゲルマニウム低エネルギー光子スペクトロメーター (LEPS)。

ここで私事を差挟ませて頂ければ、(4)と(5)はイシサンゴ化石の年代測定やイシサンゴ骨格年代学を用いた古環境解析に主役を演じた名優であった。

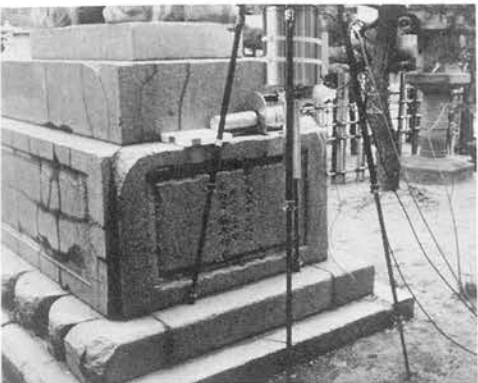
私達はおぼろげに、研究を通じて本施設の「環境放射能研究センター」への発展・拡充にむかって精進を続けるかたわら、化学史に造詣の深い阪上施設長を中心に、このような地道な努力も重ねている。研究資料展示の役割は、あくまで裏方であるが、あわせて、関係各位の一層の御指導と御支援を仰げれば幸いである。



能登半島・輪島・高州山頂での測定(P 3)



手取川よりの試料水採取、共沈捕集実験(P 7)

原爆被曝・花崗岩狛犬礎石の測定(P 3)
(広島護国神社)

RCA (IAEA)
Study Meeting on
Radiation Environment
の一行の見学・実習
(1982.9.1~2) (P16)



In-Situ γ 線測定による環境放射能調査Measurements of Environmental Radioactivities by In-Situ γ -Spectrometry

昭和57年度に可搬型 Ge(Li) 検出器による環境放射能調査を実施した地域は次のとおりである。

- (1) 能登島および能登半島北東部 (1982.11.6~11.12)
- (2) 広島市 (1982.11.20~26)
- (3) 石川県南部——加賀市・山中町 (1983.3.9~12)

これら地域で得られた空間 γ 線の成分別寄与の測定結果を Table 1 に示す。

1. 能登島および能登半島北東部の放射能調査

本年度調査では、地質的な差異を調べる目的で測定地点を選択した。放射能の観点から特徴をあげると次のようである。珪藻土層〔七尾市和倉(2)・珠洲市飯塚(15)〕は放射能が低く約 $3 \mu\text{R/h}$ であり、U の寄与が相対的に大きいのが特徴といえる。高洲山山頂近付(16) (安山岩熔岩)〔p 2 写真〕および横地(18) (玄武岩熔岩)の放射能レベルは更に低く $2.7 \mu\text{R/h}$ 程度である。建材として利用されている小木石の石切場(13)は花崗岩地帯の約1/3の $4.4 \mu\text{R/h}$ と比較的低い。一方、能登島の須曽一半ノ浦峠(4)、別所口(5)、佐波(6)の各露頭では局部的に放射能の高い箇所がみられ、 $8 \sim 10 \mu\text{R/h}$ に達するが、これはリン鉱に伴う U の濃縮によるものである。

2. 広島——原爆中性子による誘導放射能 ^{152}Eu の測定——

1976年8月の原爆ドーム内の In-Situ 測定で ^{152}Eu の存在を明らかにした (LLRL-AR-2) が最近、広島・長崎の原爆被曝線量の再評価により、従来の値と大きな差が指摘された。わが国でも科研費の研究班が組織され種々の角度から調査を行うことになった。今回の測定は1976年、1979年に続く3回目である。爆心より約150mの旧燃料会館 (現在レストハウス)、広島城石垣および現在城内に移転している旧護国神社のブロンズ製狛犬と石造の狛犬〔p 2 写真〕で測定を行った。Fig. 1 に得られた γ スペクトルの例を示す。今回の測定では爆心より約850mの城の石垣でも ^{152}Eu が検出可能であった。レストハウスではコンクリート壁面の4ヶ所で約15cm長のコアを採取し、 ^{152}Eu の深度分布を測定中である。

3. 石川県南部——加賀市・山中町の放射能調査

県内各地の放射能レベル調査の一環として本年度は、県南の加賀市・山中町の10地点の測定を行った。表中 U 系列の寄与および全線量の欄で、カッコ内に示した値 (21)~(24) および(7)、(17)、(18)——は雨中での測定のため、降雨による線量の増加を差し引いたものである。加南地方は概して放射能レベルが低く $3 \sim 4 \mu\text{R/h}$ の地点が多い。

〔能登調査は原子力安全研究協会から、また石川県南部の調査は石川県からの委託研究による。広島の調査は科研費総合研究により実施した。〕

Table 1. Exposure rates measured by In-situ γ -spectrometry.

Measured Locations	Exposure Rates ($\mu\text{R/hr}$)					
	U	Th	K	(Sum)	137Cs	Total
[Noto Peninsula, 6-12 Nov. 1982]						
[Shika Town]						
1 Hiuchidani (Nanao City)	2.31	1.41	2.52	6.24	0	6.24
2 Wakura (Notojima Town)	1.21	.80	.92	2.92	0	2.93
3 Hannoura Seibu El. Sch.	.62	1.09	2.68	4.39	.02	4.41
4 Suso-Hannoura Pass	5.31	1.92	2.65	9.88	.02	9.90
5 Betshoguchi Bus Stop	4.06	1.37	2.26	7.69	.04	7.73
6 Sanami	4.92	1.24	2.13	8.29	.02	8.31
7 Enome El. Sch.	2.09	1.55	2.14	5.78	.07	5.85
	(1.56)					(5.52)
[Anamizu Town]						
8 Seinen-no I'e (Uchiura Town)	1.84	3.34	1.55	6.73	.07	6.80
9 Hiyoriyama	1.48	2.54	1.57	5.59	0	5.59
10 Rinkai Jikkensho-1	.82	1.97	2.12	4.91	.04	4.95
11 Rinkai Jikkensho-2	.99	1.55	1.77	4.31	.04	4.35
12 Ishikiriba (3 pal Geom)	1.37	3.05	3.92	8.34	0	8.34
13 Ishikiriba	.90	1.66	1.88	4.44	.04	4.48
[Suzu City]						
14 Mitsukeyama	1.07	1.16	2.16	4.39	.04	4.43
15 Iizuka	1.54	.73	.87	3.14	0	3.14
[Wajima City]						
16 Koshuzan (h=480m)	.72	1.03	.96	2.71	.03	2.74
17 Sodegahama (Horaizan Pk)	1.26	1.34	1.23	3.83	.64	4.47
	(.61)					(3.82)
18 Yokoji (Kokawaji)	1.21	.81	1.30	3.32	.05	3.37
	(.58)					(2.74)
[Hiroshima City, 20-27 Nov. 1982]						
19 Rest House (East Wall)	1.27	2.31	4.11	7.69	0	7.69
20 Hiroshima Castle	2.16	4.93	6.02	13.16	0	13.16
[Kanan Area, Ishikawa, 9-12 Mar. 1983]						
[Kaga City]						
21 Igiri	1.4	1.31	1.97	4.7	.51	5.2
	(1.1)					(4.9)
22 Iburishashi	1.2	1.65	1.48	4.4	.03	4.4
	(.7)					(3.9)
23 Kurosaki	1.4	1.53	1.64	4.6	.13	4.7
	(.2)					(3.5)
24 Hatayama	1.1	1.54	1.42	4.1	.22	4.3
	(.6)					(3.8)
25 Udani	.72	1.13	1.25	3.10	.09	3.19
26 Hosotsubo	.86	1.55	1.52	3.93	.52	4.45
27 Sosori	.41	.87	1.45	2.73	.32	3.05
[Yamanaka Town]						
28 Kanan El. Sch.	1.20	1.42	2.50	3.92	0	3.92
29 Yamanaka	.99	1.35	1.56	3.90	.10	4.00
30 Sakamoshita	.75	.60	1.88	4.23	.11	4.34

Values in parenthesis show the exposure rates without contribution of rain estimated by two component model.

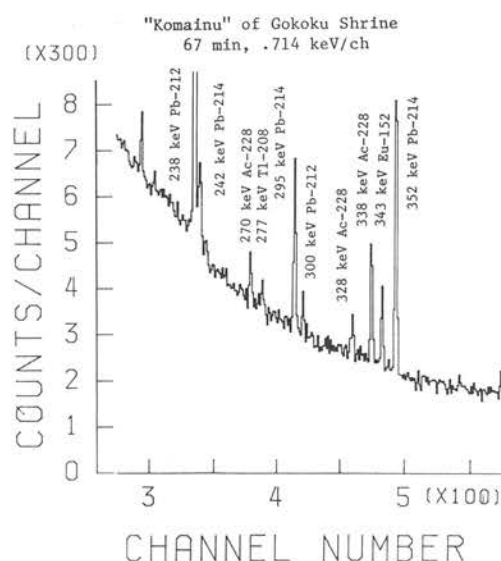


Fig. 1 In-situ γ -ray spectrum measured near the granitic "Komainu" of Gokoku Shrine, Hiroshima.

化石骨・化石歯中のU系列核種の放射平衡の状態と ^{230}Th 年代Radioactive Disequilibrium of Uranium Series Nuclides in Fossil Bones and Tooth, and Their ^{230}Th Ages

化石骨・化石歯などの試料には通常10～100 ppmのウランが含まれており、Ge-LEPS による非破壊 γ 線測定によって ^{238}U 、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb を比較的容易に定量できる。また試料によっては ^{230}Th の直接定量も可能である。そこで、従来より α 線測定によって行われていた $^{230}\text{Th}(\text{Io})$ 法による年代測定にかわり、非破壊 γ 測定によるこれら試料の年代測定の可能性を検討した。なお γ 線測定では定量困難な $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比および、 ^{230}Th については α スペクトロメトリもあわせて行い γ 測定の値との比較を行った。

〈試料および測定〉

周口店発掘の化石骨・馬の臼歯、およびダリ人・化石骨（山口大・池谷元何教授提供）を試料として用いた。

これら試料は汚染の少ない部分と着色部分や付着土壌等に分けそれぞれその5～15gをとり100メッシュ程度まで粉碎した後、油圧器を用いて直径35mmの測定線源を作成した。 γ 線測定には大口径（15cm $\times$ 7mm）のGe-LEPSを用い、各試料2～4日間の測定により ^{238}U 、 ^{230}Th 、 ^{226}Ra 、 ^{210}Pb を定量した。 γ 測定の後、試料の一部をとり ^{232}U （ ^{228}Th ）をトレーサーとして加えて、UおよびThの化学分離を行い、 α スペクトロメトリにより ^{238}U 、 ^{234}U 、 ^{230}Th を定量した。周口店化石骨のGe-LEPSスペクトルの例をFig 1に示す。

〈結果〉 γ および α スペクトロメトリの結果をTableにまとめて示す。表からわかる様に画法で得られたU含有量はよく一致しており、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 比も誤差の範囲内で一致している。化石骨（白色部）、化石歯とも放射非平衡の状態にあり、その傾向は $^{230}\text{Th} > ^{226}\text{Ra} \geq ^{210}\text{Pb}$ となっている。 ^{230}Th 以下の非平衡はこれらの試料では閉鎖系が成立していないことを示している。 ^{230}Th は地下水等の作用で系外に溶出するとは考えにくく、 ^{226}Ra の溶出や ^{222}Rn の揮散による損失を考える必要がある。一方、褐色部や付着土壌では $^{230}\text{Th} \approx ^{226}\text{Ra} \approx ^{210}\text{Pb}$ であり放射平衡に近い。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は周口店発掘の2試料では1.31～1.33、ダリ人骨では1.73～1.81と高い。この様に $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が高いので非破壊 γ 測定だけでは、年代の推定は困難であり、少なくとも α 線測定によって $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を定量する必要がある。

α 線測定により定量した $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ および $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 比から、周口店発掘の化石骨と化石歯に対し 32 ± 4 万年および 22 ± 3 万年の年代が得られた。これらの値は、従来いわれていた推定年代によく合っており妥当なものと考えられる。ダリ人骨では ^{230}Th が過剰にあり年代の推定はできなかった。

以上のほか、山口県宇部で発掘されたシカの角・骨などの化石試料（国立科学博物館松浦秀治氏提供）のU系列核種の測定も試みている。これらの結果については α 線測定の終了をまって報告する予定である。

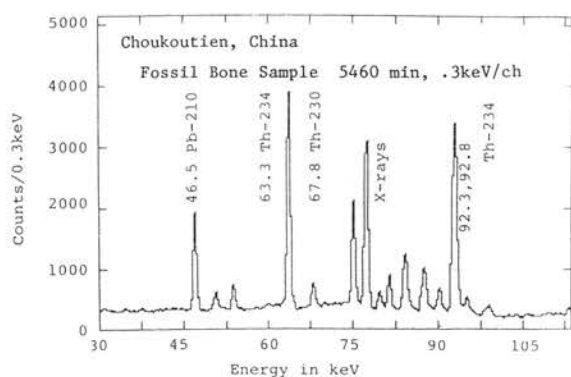


Fig. Ge-LEPS spectrum of fossil bone.

Table Uranium series nuclides in fossil samples.

G: Gamma Spectrometry A: Alpha Spectrometry							
Sample	Method of Analysis	Uranium Content (ppm)	Activity Ratios Relative to U-238				Th-230 Age (ka)
			U-234	Th-230	Ra-226	Pb-210	
[Choukoutien, China]							
(1) Fossil Bone							
White Portion (14.5g)	G	28.5/9 [#]		1.29/8	.49/4	.49/2	320/40
Brown Portion (6.0g)	A	26.9/6	1.31/2	1.32/3			
	G	10.0/3		.78/26	.86/5	.84/4	
(2) Fossil Tooth of Horse							
White Portion (15.9g)	G	30.3/9		1.23/9	.96/4	.76/9	220/30
	A	32.0/7	1.33/2	1.23/3			
[Dali, China]							
(3) Fossil Bone							
White Portion (12.5g)	G	172.3/5.1		2.35/12	1.21/4	.80/3	
	A	171.4/3.8	1.81/2	2.20/6			
Brown Portion (5.26g)	G	180.0/5.2		2.18/10	1.19/5	.87/3	
	A	177.3/3.8	1.73/3	2.07/5			
Soil	G	12.9/4		2.08/29	1.97/17	1.74/9	
# For convenience 28.5 + 0.9 is expressed by 28.5/9.							

[#] For convenience 28.5 $\pm$ 0.9 is expressed by 28.5/9.

〔本研究の成果は第5回地質年代学宇宙年代学同位体地質学国際会議（日光6月27日～7月2日）および第26回放射化学討論会（新潟10月2日～4日）で発表した。〕

たばこにおける ^{210}Pb と ^{210}Po の定量分析

Determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in Tobacco

喫煙による発ガンの原因として、化学物質の他に放射能として、 α 放射体である ^{210}Po （半減期138日）とその親核種で比較的長寿命の ^{210}Pb （半減期22年）が問題となっている。喫煙に伴い、 ^{210}Pb と ^{210}Po はメインストリームやサイドストリームとして体内に吸引され、とくに気管支上皮細胞に沈着した ^{210}Po は発ガンを促す可能性が高いとされており、たばこ葉中のこれら核種の研究は不可欠の課題である。これまで ^{210}Po の測定はかなりなされてきたが、それを生む ^{210}Pb は軟 β 放射体のため測定が面倒でデータが充分でない。しかし同時に放出される低エネルギー γ 線（46.5keV）が、最近のLEPSなど測定機器の進歩により非破壊で高分解の測定が可能となった。本研究では、それを「たばこ」にはじめて適用して ^{210}Pb の非破壊測定を行うとともに、同一試料から ^{210}Po を化学分離定量して、両核種の量比も検討した。

用いた試料は、生たばこ葉については石川県珠洲産(S)および愛知県岡崎産(O)の黄色種エムシー種で、各中葉(N)・本葉(H)の部所別。市販たばこについては、日本製品が(a)キャビン85、(b)マイルドセブン、(c)セブンスター、(d)ハイライト、(e)エコー、(f)ショートホープ、(g)ショートピース、(h)テンダーの8種、外国製品が(i)Marlboro、(j)John Player Specialの2種である。

^{210}Pb 定量では46.5keVの γ 線をLEPS（ $8\text{ cm}^2 \times 10\text{ mm}$ ）を用いて測定する際の線源調製法について検討した。Fig. 1に示すAでは測定効率が低く、同Cは灰化に時間がかかる上に損失や汚染のおそれがある等の理由から、今回の分析は試料を生のままDISKに圧縮して測定するBによった。なおその γ 線スペクトル例をFig. 2に示す。

^{210}Po はFig. 3に示す化学分離操作を行い、銀板上に電気化学的に析出させ、 α スペクトルを測定し定量した。電着は 90°C で4時間行ない、最終の収率は80~90%まであげることができた。トレーサーには従来の ^{208}Po （ $T_{1/2}=2.93\text{ y}$, $E_\alpha=5.11\text{ MeV}$ ）を用いず、それより半減期が長くエネルギーが低い ^{209}Po （ $T_{1/2}=103\text{ 年}$, $E_\alpha=4.88\text{ MeV}$ ）を今回初めて使用した。Fig. 3右の α スペクトルのように、 ^{210}Po のピークがトレーサーに妨害されることなく分離弁別測定できるようになった。

^{210}Pb と ^{210}Po の定量値をTable 1に示したが、両核種がほぼ放射平衡に達しているのわかる。これは、収穫から測定までに2~3年経過していることが理由と思われる。また珠洲産>岡崎産であるのは、日本海側が太平洋側よりフォールアウトが多いことが影響しているからと考えられる。さらに中葉>本葉、日本製>外国製、葉>葉柄の傾向があり、土壌・肥料・栽培期間等の検討を要す。製造年月日が異なるたばこにおける大きな差はみられなかった。同一生葉からの試料でも分析値はばらつき、測定核種の均一分布に問題がある。なお測定の計数統計誤差は ^{210}Pb で15%、 ^{210}Po で6%程度であった。

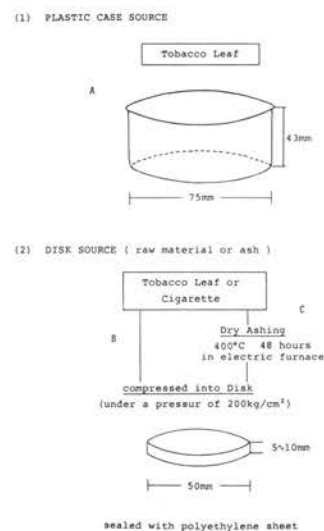


Fig. 1 Preparation of Various Counting Sources.

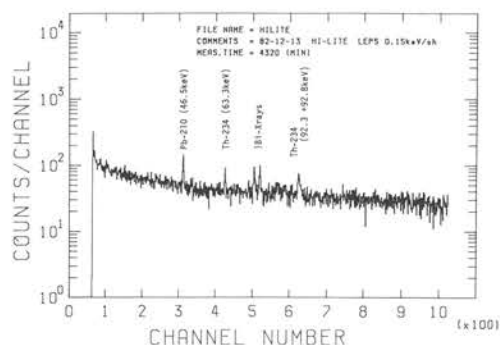


Fig. 2 Example of Low Energy γ Spectrum of Tobacco.

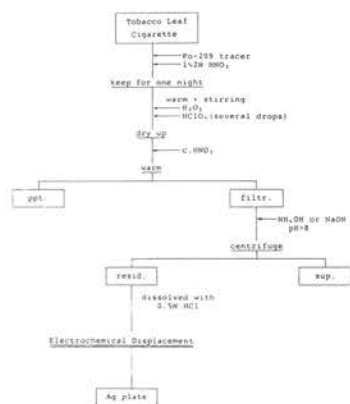


Fig. 3 Radiochemical Separation Scheme for ^{210}Po Analysis and an Example of α Spectrum.

Table 1 ^{210}Pb and ^{210}Po Contents in Tobacco.

	0	0.375	0.75	1.125	1.5 gCi/g
SN / 2					
SH / 2					
SN / 2					
SH / 2					
OR / 2					
OR / 2					
OR / 2					
OR / 2					
a / 2					
a / 2					
b / 2					
b / 2					
c / 2					
c / 1					
d / 2					
d / 2					
e / 1					
e / 1					
f / 2					
f / 2					
g / 2					
g / 1					
h / 4					
h / 2					
h / 2					
i / 1					
i / 1					
j / 1					

[本研究は、主として化学教室卒業生樹田武史によって、日本専売公社委託研究として行われた。]

南極バンダ湖のU濃度および $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比の深度分布およびバーン岬のミラビライトの ^{230}Th 年代Depth Profiles of Uranium Content and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ Ratio in Lake Vanda
and ^{230}Th Age of Mirabilite from Cape Barne in Antarctica

1979/80シーズンに南極のスコット基地（ニュージーランド）に滞在し、ロス島およびドライバレー各地で採取した各種地球化学試料の放射能測定が進行しており、得られた成果のうち地球化学的な観点から興味深いバンダ湖の深度別の水試料およびバーン岬のミラビライトの測定結果について簡単に紹介する。

1. バンダ湖水のU濃度および $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比の深度分布

バンダ湖の塩分濃度は成層をなす特異な深度分布をしており最深部は海水の約4倍である。塩分の起源については海水説、風送塩説、塩類堆積物説など諸説が出されている。そこで $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比からその起源について検討を試みた。分析試料は氷直下（3.5m）、30m、45m、50m、55m、60m、65mおよび67.5m（最深部）とバンダ湖に流入するOnyx川の川水で、それぞれ1～5ℓを用い、 ^{232}U をトレーサーとしてU含有量および $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を定量した。測定結果をTable 1に示す。U含有量は、すでに多くの測定がなされている他の塩類と同様の深度分布を示し、水深50mまで比較的ゆるやかに増加するが、55～60mで1桁以上急激に増加する。しかし最深部では表層水程度まで激減し、還元状態にある底層水ではUが安定に存在できないことを示している。

一方 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比はOnyx川の流入水が1.44と低いのにに対し、氷盤直下では2.1、深さとともに次第に増加し55～60mで最大4に達した後、最深部では3.1に減少しており $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比とU濃度深度分布はほぼ同様である。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が海水の1.15に比べずっと高いことから、現在の湖水中のUは海水起源説では説明できない。塩分濃度の成層構造は蒸発濃縮のくり返しを示すものであるが $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比にも同様の成層構造がみられることは興味深い。湖の生成期に $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比が4の塩類堆積物が存在していて、これがOnyx川の断続的な流入によってU濃度、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比ともに希釈されたものと考えられる。他の湖水のU同位体比の測定を継続中である。

2. ロス島バーン岬で採取したミラビライト（ $\text{Na}_2\text{SO}_4 \cdot 10\text{H}_2\text{O}$ ）の ^{230}Th 年代

バーン岬の海拔約60m地点で採取したミラビライトのUおよびTh同位体を測定結果をTable 2に示す。U含有量は極めて低く3.5ppbしかなく α 測定をそれぞれ約3週間行い定量を行った。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は 1.23 ± 0.07 であり誤差は大きい、ミラビライトの海水起源説から期待される 1.15 ± 0.02 と矛盾しない。 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 比から推定されるミラビライトの生成年代は 4700 ± 700 年である。ミラビライトは氷河の後退により浸入した海水が、地盤の隆起により蒸発濃縮して生成したものと考えられており、現在の海拔高度と ^{230}Th 年代より1.2cm/年の隆起速度が得られる。ミラビライトは、ドライバレー各地で見られることから、これらの年代測定は、この地域一帯の氷河の消長の歴史の解明に非常に有効と考えられ今後の分析が望まれる。

Table 1. Depth profiles of uranium content and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratios in Lake Vanda and Onyx river.

Sample	Depth (m)	U Content ($\mu\text{g/l}$)	U-234/U-238 Activity Ratio
Onyx River	0	$0.10 \pm .01$	$1.44 \pm .10$
Lake Vanda	3.5	$0.25 \pm .01$	$2.12 \pm .08$
	30	$0.53 \pm .03$	$2.47 \pm .12$
	45	$0.73 \pm .05$	$2.66 \pm .20$
	50	$1.24 \pm .07$	$3.16 \pm .14$
	55	$13.33 \pm .95$	$3.92 \pm .14$
	60	$16.73 \pm .95$	$4.06 \pm .10$
	65	$0.62 \pm .04$	$3.67 \pm .20$
	67.5	$0.27 \pm .03$	$3.12 \pm .36$

Table 2. Mirabilite analysis from Cape Barne.

Uranium Content	$3.53 \pm .20$ (ppb)
Estimated Age	4700 ± 900 (y)
Mean Upheaval Rate	12 ± 2 (mm/y)
[Isotope Data]	
U-238	$2.62 \pm .14$ (dpm/kg)
U-234	$3.21 \pm .20$ (dpm/kg)
Th-230	$0.135 \pm .022$ (dpm/kg)
[Activity Ratios]	
U-234/U-238	$1.23 \pm .07$
Th-230/U-234	$.052 \pm .010$

〔ミラビライトの分析は大学院生柳沢美樹男、バンダ湖水の分析は大学院生林 巧が行った。フォールアウト核種の測定結果とあわせ地球化学学会年会（沖縄10月18～20日）で報告した。〕

異常に大きい $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比をもつ辰口温泉水とその周辺地下水の研究Abnormally High $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ Ratio in Tatsunokuchi Hot Spring
against Ground Waters Around.

一般に水圏において、U同位体比 ($^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比=A.R.)が1以上である事が知られている。数年来、種々の温・鉱泉水(LLRL-AR-2)や川・湖等(LLRL-AR-6)のU分析をおこなってきた。中でも辰口温泉は、掘削直後の測定(LLRL-AR-2)同様、精度をあげた測定でも、周辺地下水の結果も示したTable 1に示すように大きなA.R.値を示した。Fig. 1にそれら試料採取地点をあげた。辰口温泉は昭和51年に600m以上のボーリングにより凝灰岩地層から湧出したもので、泉温40℃以上の含食塩・芒硝泉である。手取川は白山山系に水源を発し、周辺井戸水(火釜)は地下約50mより湧出する上水道水である。試料水(20ℓ~480ℓ)を塩酸酸性とした後、収率トレーサーとしての ^{232}U を加え、水酸化鉄共沈法またはリン酸アルミ共沈法を用いてU・Thを捕集、化学分離・電着し α スペクトロメトリーを行った。

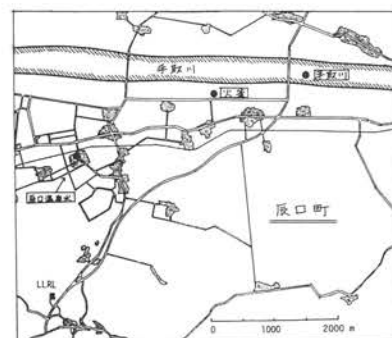


Fig. 1 Sampling locations of water samples.

一般に、A.R.値の異常の原因として、反跳効果により易溶性となった ^{234}U の選択的な溶出や ^{238}U の α 壊変による娘(^{234}Th)の直接水系への放出などが考えられる。今回は、A.R.値異常の実験的証明へのアプローチとして、ボーリングコアの溶出実験等も検討した。コア試料は、深度175mの角礫凝灰岩を用い、Table 2の条件で溶出した。結果はTable 3に示し、 α スペクトル例をFig. 2に示した。このほかに、 ^{238}U の α 壊変による直接反跳効果で水系に供給される ^{234}Th 量を調べるため、 ^{234}Th の鉄共沈捕集を行い、LEPS(低エネルギー光子スペクトロメーター)による ^{234}Th の63keV γ 線測定・定量を試みた。しかし100ℓ採水では、バックグラウンドに比し、有意の結果は得られず、 ^{234}Th が ^{238}U 平衡量よりもかなり過剰に存在することは確認できなかった。一方溶出実験においては、①(模擬温泉水)と③(4% Na_2CO_3 液)でかなり高いA.R.値が認められた。また、④(蒸留水)でも高いA.R.値が認められる事と、②(8N- HNO_3 液)ではA.R.値が低い事から、強酸性条件では ^{238}U 、 ^{234}U ともに溶出されるが、他の条件では、 ^{234}U が選択的に溶出される事がわかる。また①及び③と④との比較より、含有塩類の差による(錯体化等の差)溶出の違いもわかる。

以上のことにより、異常に高いA.R.値の主な原因は、反跳効果を受けた ^{234}Th から成長した ^{234}U が、岩石表面などで易溶性の状態にあり、その選択的な溶出によるものと考えられる。

Table 1 Uranium Isotopes in Natural Waters.

Sample	U-238 (pCi/100 l)	U-234 (pCi/100 l)	U-234/U-238	date
Tatsunokuchi s.w.	0.95 $\pm$ 0.07	7.97 $\pm$ 0.10	8.40 $\pm$ 0.51	81.12
	0.79 $\pm$ 0.08	8.05 $\pm$ 0.12	10.19 $\pm$ 1.07	82.3
			9.98 $\pm$ 0.49	82.8
Tedori river	3.24 $\pm$ 0.14	4.82 $\pm$ 0.18	1.49 $\pm$ 0.06	81.11
Higama ground w.	1.78 $\pm$ 0.09	2.19 $\pm$ 0.11	1.33 $\pm$ 0.07	81.12

Table 2 Experimental Conditions of Leaching Experiments for the Boring Core of Tatsunokuchi.

- * 試料 角礫凝灰岩 50 g
深度 [175.5m~175.7m]
- * 溶出液(各1000mℓ使用)
 1. 模擬温泉水 4 g ($\text{NaCl}:\text{Na}_2\text{SO}_4:\text{CaCl}_2=3.5:3:1$) / 1000mℓ (モル比)
 2. 8N- HNO_3
 3. Na_2CO_3 液 4 g / 1000mℓ
 4. 蒸留水
- * 溶出温度 60~70℃
- * 溶出時間 12時間
- * 分析法 温かい間に東洋No5C + 0.45ミリボアでろ過ろ液をリン酸アルミ法により分析

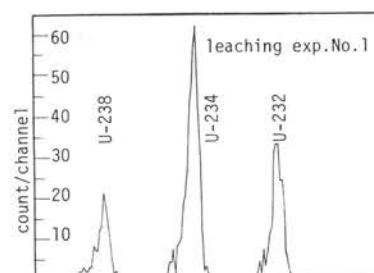


Fig. 2 An Example of Alpha Spectrum.

Table 3 Uranium Isotopes in Leaching Experiment Solutions.

Solution	U-238(pCi/l)	U-234(pCi/l)	U-234/U-238
No.1	0.82 $\pm$ 0.09	2.51 $\pm$ 0.22	3.08 $\pm$ 0.31
No.2	3.16 $\pm$ 0.98	2.61 $\pm$ 0.83	0.83 $\pm$ 0.21
No.3	2.63 $\pm$ 0.23	8.83 $\pm$ 0.67	3.36 $\pm$ 0.18
No.4	0.24 $\pm$ 0.02	0.64 $\pm$ 0.05	2.63 $\pm$ 0.18

[本研究は、主として大学院生・林 巧の協力により行われ、一部は82年度、日本地球化学会年会で発表された。又、一部を第四回・水-岩石相互作用国際集会(於・三朝温泉会館・島根県・1983年8月30日~9月3日)に発表予定である。]

大気浮遊塵中のアクチニド諸核種 (Am, Pu, U 同位体)

Actinide Nuclides in Air Dust.

大気浮遊塵中のAm, Pu同位体などの α 放射体の測定等を大気連続サンプリングの口紙について行い、その量比・時間的変動などの知見をもとに、地表からの舞上がり寄与の程度を評価する研究を、人体への吸入摂取による将来の内部被曝線量評価に必要なパラメーターをうるための基礎として行った。

試料は京都府舞鶴市近郊の吉坂と福井市福井大(工)('82.1~3のみ)にて口紙(東洋HE-40T)上に集められた。10,000~15,000 m^3 分を採取した口紙を灰化(450 $^{\circ}\text{C}$)、まずケイ光X線(Fig. 1)及びLEPS(低エネルギー光子スペクトロメーター)測定(Fig. 2)、通常の γ 線測定(Fig. 3)を行う。つぎに、収率補正用トレーサ ^{243}Am , ^{242}Pu , ^{232}U , ^{228}Th を加え、酸分解8N- HNO_3 試料溶液を調製し、陰イオン交換分離法(Dowex1 $\times$ 8)を用い、Pu, U, Thをそれぞれ精製・電着する。Amは1N- HNO_3 -93%メタノール(Dowex1 $\times$ 4)系で分離・精製後、電着する。それぞれの電着線源の α スペクトロメトリにより諸核種を定量した。

各核種濃度の測定値を試料採取時期ごとに示すと、Fig. 4となる。ただし ^{241}Am 濃度は測定時の値のほか、試料採取後分析測定までに ^{241}Pu から成長した量*の見積りを減じた値も示した。(* $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は1977-8年で12.2, 1979年で11.0; 福井県衛生研屋上採水の雨水の分析による。)1978年5月前後の ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am など人工放射性核種濃度が他の時期に比し、いずれも少し高いのは、下軸に矢印で示した種々の事件のうち1978年3月13日の第23回中国核実験の影響が大きいと考えられる。一方U及びThの値は口紙ブランク値の寄与が大きく、今回は正確には浮遊塵中の値を評価できなかった。ただ、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比がFig. 5に示すように1978年5月前後のものについて 1.23 ± 0.09 と1より大きいことは核実験の影響と考えられる。地上からの舞上がり成分寄与評価などにも有意義な、その他各核種間の放射能比(Fig. 5)をみると、 $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比はいずれも0.07~0.14程度の値であり、現在の土壌表面の値0.3程度よりかなり低いので、舞上がり成分の寄与が大きいとは判断されない。一方 $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$ 比も100前後でフォールアウト中の量比である。 $^{137}\text{Cs}/^{210}\text{Pb}$ 比の大きな変動は、両核種の由来が人工と天然と異なるためで、核実験の影響が大きい場合はこの比も大きくなっている。今後は、採取地点の高度比較、粒度別評価・地上からの舞上がり、無機元素(Fe, Al, Ca, U, Th)のブランクの少ない口紙による研究が必要である。

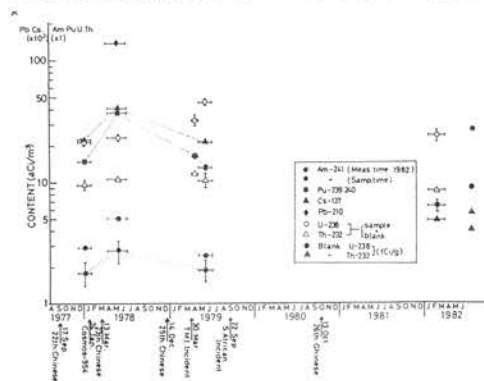


Fig. 4 Concentration of various radionuclides of air-dust-filter.

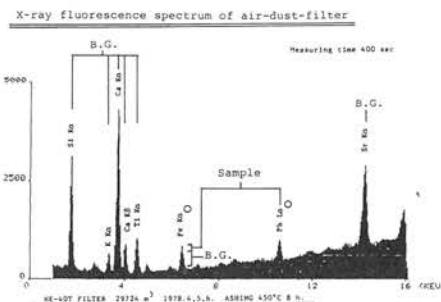


Fig. 1 X ray fluorescence spectrum of air-dust-filter.

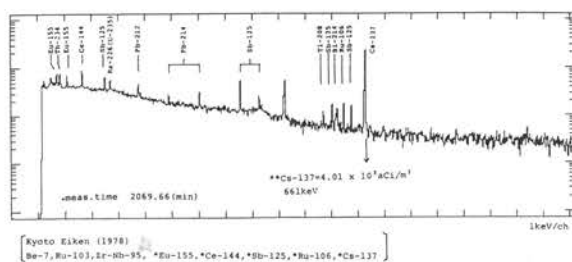


Fig. 2 γ ray spectrum by LEPS.

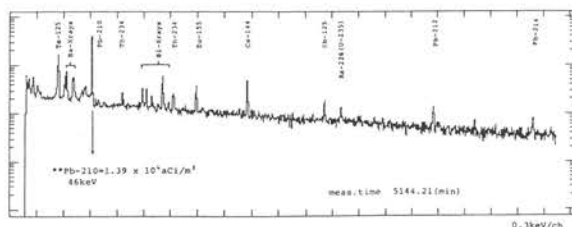


Fig. 3 γ ray spectrum by Ge(Li).

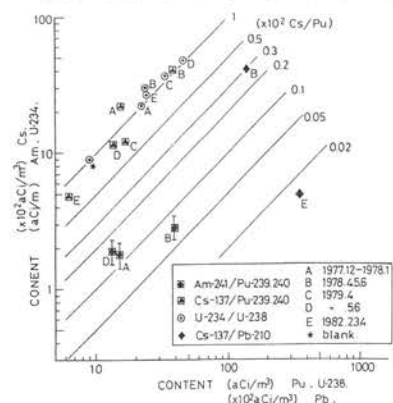


Fig. 5 Activity ratio of various radionuclides.

[本研究は、大学院生・林 巧が協力し、北陸大・薬, 山本政儀氏の研究として行われたもので、日本放射線影響学会第25回(1982)に発表された。]

日本の水田土壌中の $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am ^{241}Am and $^{239,240}\text{Pu}$ in Japanese Rice-field Soils

日本の15地点から主に1963年と1976年に採取した30の水田土壌、及び高田、秋田で1957～1980年間に定期的に採取した15の水田土壌中の ^{241}Am 、 ^{240}Pu 、 ^{137}Cs 濃度を測定し、日本全体の水田土壌中のこれら核種の濃度と蓄積パターン、そして $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比の時間的変化を評価した。

試料の採取地点等を Table 1, Fig. 1 に示す。 γ 線スペクトロメトリーにより ^{137}Cs を定量した後、収率補正用のトレーサーとして一定量の ^{242}Pu 、 ^{243}Am を添加し、PuとAmの逐次放射化学的分離、精製を行ない、 α 線スペクトロメトリーにより $^{239,240}\text{Pu}$ (^{238}Pu)、 ^{241}Am を定量した。

全国水田土壌についての測定結果を Table 2(濃度)と Fig. 1(蓄積量)に示す。これらの表、図から明らかなように、 $^{239,240}\text{Pu}$ や ^{241}Am の蓄積量は、各地点でかなり異なっており、日本海側での値が太平洋側とくらべて2.5～3倍高い傾向が認められる。Fig. 2には、1957～1980年の試料について得られた $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比を、丹生湾(福井県)の沿岸堆積物についての結果も含めて示してある。1957～1958年試料に対しての比(平均0.44)は、1961～1980年試料に対しての比(平均0.30)より明らかに高く、1952～1958年頃に主にアメリカによって行なわれた核実験の影響を反映しているものと考えられる。Fig. 3には、丹生湾の堆積物についての $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比と $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比の値とそれらの回帰曲線(実線)、及び $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比をもとに求めた今回の試料(秋田、新潟高田)の採取日での $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比を示してある。1963年以降の水田土壌の $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比が、Krey等の未耕地土壌の結果を含めて、丹生湾の堆積物からの回帰曲線に非常によくフィットしている。なお図中にはBennettの推定した $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比及び $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比の時間的変化(点線)も併せて示してあるが、丹生湾からの結果ともよく一致している。

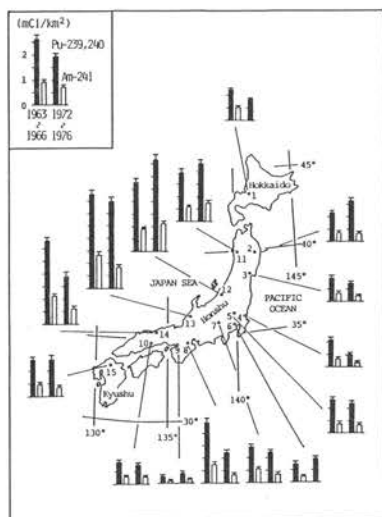


Fig. 1 Accumulation of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in Japanese rice-field soils.

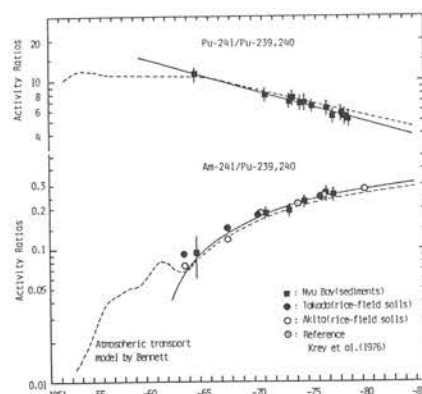


Fig. 3 Time variations of the estimated $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios at sampling dates in rice-field soils.

Table 1 Sampling locations, year of sampling and soil-layer depths.

Regions	Site Number	Prefectures	Cities	Year of Sampling	Depth cm
Hokkaido	1	Hokkaido	Sapporo	1963, 1976	0-12
Pacific coast of Honshu	2	Iwate	Morioka	1963, 1976	0-20
	3	Miyagi	Sendai	1963, 1976	0-10
	4	Ibaragi	Mito	1963, 1976	0-13
	5	Saitama	Kohnosu	1963, 1976	0-14
	6	Tokyo	Tachikawa	1963, 1973	0-10
	7	Yamanashi	Kofu	1966, 1976	0-15
	8	Mie	Tsu	1963, 1972	0-14
	9	Osaka	Habikino	1963, 1976	0-12
	10	Okayama	Okayama	1963, 1976	0-13
Japan Sea coast of Honshu	11	Akita	Akita	1963, 1976	0-12
	12	Niigata	Joetsu	1963, 1976	0-12
	13	Ishikawa	Kanazawa	1963, 1976	0-16
	14	Tottori	Tottori	1965, 1973	0-16
Kyushu	15	Fukuoka	Takushino	1963, 1976	0-14

Table 2 Concentrations of $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs in Japanese rice-field surface soils and their activity ratios.

Locality	Concentrations			Activity ratios	
	Pu*	Am-241	Cs-137	Am-241/Pu*	Pu*/Cs-137
[1963's soils]					
Hokkaido	11.1/7	4.7/4	0.87/6	0.42/4	0.013/1
Iwate	12.6/10	4.1/7	1.02/6	0.32/6	0.013/1
Miyagi	8.8/8	3.0/3	0.64/4	0.34/5	0.014/1
Ibaragi	9.0/9	2.8/3	0.58/6	0.31/5	0.016/2
Saitama	10.4/9	3.1/4	0.75/6	0.30/5	0.014/1
Tokyo	9.3/8	3.2/5	0.69/5	0.34/6	0.016/2
Yamanashi	8.5/7	3.3/3	0.54/6	0.39/5	0.016/2
Mie	15.6/8	4.9/4	1.23/6	0.32/3	0.013/1
Osaka	2.1/2	0.8/2	0.21/6	0.40/10	0.010/3
Okayama	5.9/5	2.0/2	0.44/3	0.34/4	0.013/1
Akita	23.0/26	7.1/9	1.81/7	0.31/5	0.013/1
Niigata	27.8/15	9.1/6	2.67/10	0.33/3	0.010/1
Ishikawa	22.1/10	7.7/6	1.64/10	0.35/3	0.013/1
Tottori	18.6/9	6.3/5	1.53/7	0.34/4	0.012/1
Fukuoka	9.7/6	3.1/3	0.69/5	0.32/4	0.014/1
[1976's soils]					
Hokkaido	5.0/4		0.33/3		0.015/1
Iwate	16.6/11	3.6/4	0.93/6	0.22/3	0.018/2
Miyagi	5.1/5	1.5/3	0.24/2	0.30/7	0.021/3
Ibaragi	4.6/6	1.4/2	0.27/3	0.31/6	0.017/3
Saitama	9.9/8	3.0/4	0.55/3	0.30/4	0.018/2
Tokyo	10.9/11		0.70/3		0.016/2
Yamanashi	5.0/2	1.5/2	0.26/2	0.29/4	0.019/1
Mie	8.1/8	2.3/3	0.45/3	0.28/5	0.018/2
Osaka	2.9/3	0.9/2	0.18/2	0.30/8	0.016/2
Okayama	5.2/4	1.8/2	0.38/4	0.34/5	0.014/2
Akita	21.7/15	6.7/5	1.20/5	0.31/3	0.018/1
Niigata	26.2/18	7.5/5	1.56/8	0.29/3	0.017/1
Ishikawa	25.2/12	5.6/5	1.46/7	0.22/2	0.017/1
Tottori	11.6/10	3.6/4	0.68/5	0.31/4	0.017/2
Fukuoka	11.2/10	2.6/3	0.62/3	0.23/4	0.018/2

Pu*: $^{239,240}\text{Pu}$. The number behind slant denotes the pre-assessed counting error of one-sigma: $11.1/7 = 11.1 \pm 0.7$. The ^{137}Cs activities are corrected for decay to the date of collection, while the ^{241}Am activities are given by the values at the analytical date (end of 1981 to the beginning of 1982).

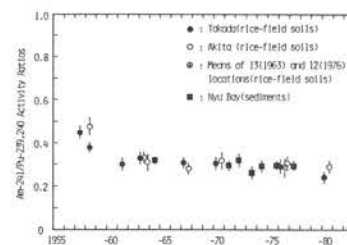


Fig. 2 $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios at analytical dates (May 1982) in rice-field soils collected during 1957-1980.

[本研究は北陸大・山本政儀氏の協力で行なわれ、水田土壌は足利工大、小平潔教授より提供された。研究成果はJ. Radiat. Res. に投稿中である]

長崎土壤中Puについての原爆寄与Puの推定

Discrimination of the Plutonium due to Atomic Explosion in 1945
from Global Fallout Plutonium in Nagasaki Soil

長崎県西山地区からの土壤中Puについて、世界的な核実験によるグローバル・フォールアウトPuと、Pu爆弾からの直接のフォールアウトPuの寄与割合を、試料中の $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Pu , ^{241}Am の放射能濃度とグローバル・フォールアウトのそれらの分析にもとづき、右下に示す式を用いて解明した。

用いた試料の採取地点をFig. 1に示す。Ge(Li)検出器による γ スペクトロメトリーを行った後(^{137}Cs 分析), 収率補正用のトレーサーとして一定量の ^{242}Pu , ^{243}Am を添加し, PuとAmの逐次放射化学的分離, 精製を行ない α 線スペクトロメトリーにより ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am を定量した。 ^{241}Pu については, 上記のPu電着板を1.5~2年間保存し, その間に ^{241}Pu (β -decay)から成長した ^{241}Am を放射化学的に分離し, 測定を行ない間接的に求めた。

このようにして求めたPu同位体, ^{241}Am , ^{137}Cs 濃度とそれらの放射能比をTable 1に示す。表から明らかなように, いずれの放射能比も一般環境中で見いだされる放射能比, ($^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 0.03~0.04, $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 5~6, $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ $\approx$ 0.30, $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ $\approx$ 0.02)と非常に異なり, かなり多くの原爆Puがこれらの試料中に含まれていることが示唆される。

Table 2には, Table 1に示した $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比と $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比, そして代表的なグローバル・フォールアウト $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比(0.30 $\pm$ 0.03)を用いて, その上にあげた式より求めたそれぞれのPuの寄与割合を示してあるが, 今回始めて原爆寄与Puの割合が95~97%と非常に多いことが明らかになった。なお $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比(No.1試料に対して0.042 $\pm$ 0.014)の検討からも, 上記の数式的アプローチから得た値の妥当性がほぼ確認された。Table 3には, 上記で得た原爆寄与Puの割合を基にして求めた原爆寄与Puの $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比及び $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比を示してある。現在, 西山地区以外の地域に対しても検討を行なっている。

Table 1 Concentrations of Pu isotopes, ^{241}Am and ^{137}Cs , and their activity ratios in Nishiyama soils at January 1981.

Sampling Location	Sampling Date	Concentrations (pCi/g.dry)					Activity Ratios			
		Pu*	Pu-238	Pu-241	Am-241	Cs-137	$\frac{\text{Pu-238}}{\text{Pu}^*}$	$\frac{\text{Pu-241}}{\text{Pu}^*}$	$\frac{\text{Am-241}}{\text{Pu}^*}$	$\frac{\text{Pu}^*}{\text{Cs-137}}$
No.1 (0-5 cm)	July 1979	1.38/3	0.076/7	0.61/12	0.056/3	5.80/5	0.055/5	0.44/9	0.041/3	0.24/1
No.2 (0-10 cm)	May 1976	0.76/3	0.043/5	0.27/6	0.050/2	2.21/5	0.056/6	0.36/8	0.040/3	0.34/1
No.3 (0-10 cm)	May 1976	0.67/2	0.037/2	0.26/4	0.028/3	2.40/5	0.055/3	0.39/6	0.042/5	0.28/1

Pu*: $^{239,240}\text{Pu}$.

The number behind slant denotes the propagated counting error of one-sigma:
1.38/3 = 1.38 $\pm$ 0.03.

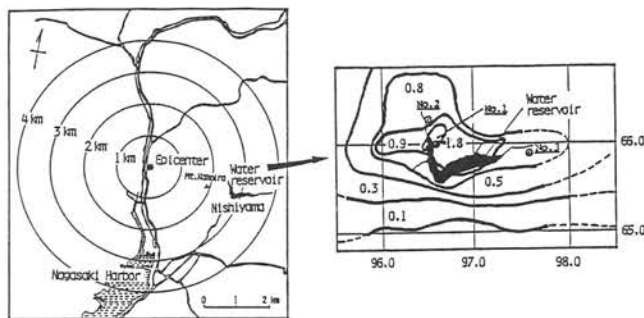


Fig. 1 Sampling Locations of Nishiyama Soils and Isodose Curves of Fallout in mR/hr, October 1945.

a Mathematical approach

$$X = 1 - \frac{a_1 \cdot R_{1S} - a_2 \cdot R_{2S}}{(a_2 - a_3) \cdot R_G}$$

X: the ratio of the concentration of Nagasaki Atomic Bomb $^{239,240}\text{Pu}$ to the measured total $^{239,240}\text{Pu}$ in sample

R_{1S} : $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio in sample

R_{2S} : $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio in sample

R_{3S} : $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio from global fallout, 0.29 $\pm$ 0.03 (1981)

a_1 : $k_2/(k_1 - k_2) = T_1/(T_1 - T_2) = 14.4/(433 - 14.4) = 0.0344$

a_2 : $e^{-k_2 t_2}/(e^{-k_2 t_2} - e^{-k_1 t_2}) = 0.6348$, t_2 : the elapsed times until analytical date from 1960 = 20 years

a_3 : $e^{-k_1 t_1}/(e^{-k_2 t_1} - e^{-k_1 t_1}) = 0.2372$, t_1 : the elapsed times until analytical date from August 1945 = 35.5 years

Table 2 Contribution of Pu from Nagasaki Atomic Bomb in Nishiyama Soils.

Sampling Location	$\frac{(\text{Pu})_N}{(\text{Pu})_S}$ (%)	pCi/g(mCi/km ²)	
		(Pu) _N	(Pu) _G
No.1	95 $\pm$ 2	1.31 $\pm$ 0.05	0.07 $\pm$ 0.04
No.2	97 $\pm$ 2	0.74 $\pm$ 0.03 (44 $\pm$ 2)	0.02 $\pm$ 0.02 (1.1 $\pm$ 1.1)
No.3	97 $\pm$ 2	0.64 $\pm$ 0.02 (35 $\pm$ 1)	0.02 $\pm$ 0.01 (1.2 $\pm$ 0.6)

Subscripts S, N and G refer to sample, Nagasaki atomic bomb fallout and global fallout.

Table 3 Activity Ratios of Pu Isotopes for Nagasaki Atomic Bomb corrected for Decay to August 1945.

Sampling Location	Pu-238 Pu-239,240		Pu-241 Pu-239,240	
No.1	0.074 $\pm$ 0.007		1.06 $\pm$ 0.36	
No.2	0.075 $\pm$ 0.005		1.26 $\pm$ 0.31	
No.3	0.074 $\pm$ 0.005		1.31 $\pm$ 0.30	
Ave. $\pm$ S.D.	0.074 $\pm$ 0.001		1.21 $\pm$ 0.13	

[本研究は, 昭和57年度文部省科研費奨励研究A「プルトニウムの環境汚染由来評価に関する研究」(57780185: 山本政儀)により行われ, 成果は, 山本(北陸大), 小村, 阪上(金沢大 LLRL)の連名で第25回日本放射線影響学会で発表し, J. Radiat. Res. に投稿中である。]

L X線と α 線との放射能比による環境試料中の $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の定量

Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ Ratio for Environmental Samples by the Measurement of LX/ α -Ray Activity Ratio

環境試料中に検出されるPuは質量数が238から242の同位体からなっている。Puの同位体組成はその起源（核実験由来のフォールアウト、核爆弾の材料、核燃料再処理Pu）によって異なるので、その由来を知るには同位体組成を測定するのが有効である。通常行われているSi検出器による α 線測定ではエネルギーの近接している ^{239}Pu と ^{240}Pu の分離は出来ず、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の測定は、ほとんどが質量分析器を使ってなされている。

本研究では ^{239}Pu と ^{240}Pu から放出されるLX線の放出率の違いを利用し、Ge-LEPSによるLX線測定とSi検出器による α 線測定を組み合わせることによる $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の測定法を検討し、環境レベルの試料に適用できることを明らかにした。

《測定法の原理》 α 線測定によって得られる $^{239,240}\text{Pu}$ の全放射能 $[\alpha]$ に占める ^{239}Pu および ^{240}Pu の割合をそれぞれ f および $1-f$ とし、 $^{238}\text{Pu}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比を β とする。一方、 ^{238}Pu 、 ^{239}Pu および ^{240}Pu からのLX線の放出率を l_8 、 l_9 、 l_0 とし、LX線の全放射能を $[LX]$ であらわせば(1)、(2)式が得られる。

$$[\alpha] = [\alpha] \cdot f + [\alpha](1-f) \quad (1)$$

$$[LX] = [\alpha]l_9f + [\alpha]l_0(1-f) + [\alpha][\beta]l_8 \quad (2)$$

$$(1)(2) \text{ 式より } [LX]/[\alpha] = l_9f + l_0(1-f) + [\beta]l_8 \quad (3)$$

$$\text{従って } f = \frac{[LX]/[\alpha] - (l_0 + [\beta]l_8)}{l_9 - l_0} \quad (4)$$

l_8 、 l_9 、 l_0 の値は、既知であるから $[LX]/[\alpha]$ 比および $[\beta]$ を測定すれば f を求めることができ、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比の算出が可能である。 $[LX]/[\alpha]$ 比の絶対値は $[LX]/[\alpha]$ 比の正確に知られている ^{241}Am を同一条件で測定し、これで規格化すれば容易に求められる。

《測定例》Fig. 1(a)(b)(c)にGe-LEPSで得られたビキニの土壌、福井県丹生湾の海底土および測定系のバックグラウンドを、Fig. 2に $[LX]/[\alpha]$ 比および $[\beta]$ 値から、 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ の放射能比および原子数比を求めるためのノモグラフと実際の測定例を示す。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 比が同一な場合、 ^{238}Pu の寄与は図中の斜線に沿う変化で示される。この斜線との交点が ^{238}Pu の寄与のない $[LX]/[\alpha]$ 比に相当し、これから直下に引いた直線とノモグラフ直線との交点から $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 放射能比および原子数比が得られる。長崎土壌およびThuleの海底土では原子比で0.05、ビキニ関連試料では、非常に高く0.3、他の試料は核実験による地球規模のフォールアウトの値0.18とほぼ一致する。

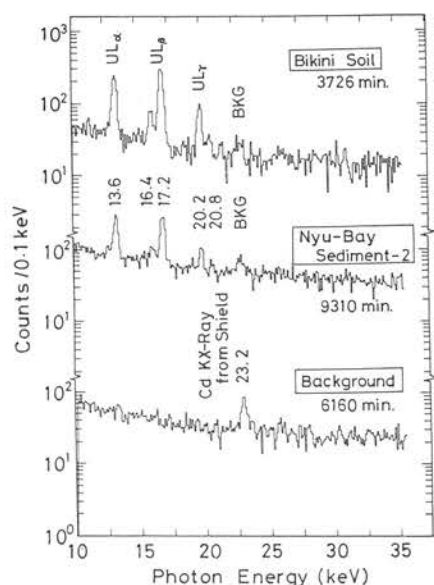


Fig. 1 Examples of 10–30 keV region spectra.
(a) Bikini soil. (b) Nyu Bay sediment
(c) Background.

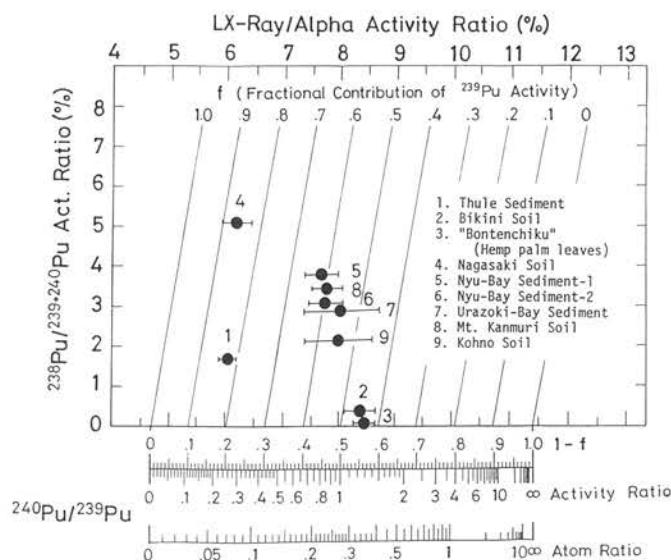


Fig. 2 Measured LX/ α -ray ratios and nomograph for obtaining $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ratios on the activity and atomic bases.

〔本研究は北陸大学薬学部山本政儀との共同研究でなされた。Health Physics 誌に投稿中である。〕

約1600 B. C. の海洋における炭素同位体比の経年および季節変動

Annual and Seasonal Variation of Carbon Isotope Ratios in
Surface Seawater around 1600B. C.

海成堆積物のうちで、おそらく時間的解像力の最も高いと思われるイシサンゴ群体骨格年代学を用いて（本施設報告書LLRL-AR-5, 14頁参照）、今まで研究例のなかった、完新世でも人類の社会活動の影響の生ずる以前の約3500 y. B. P. (1600 B. C. 頃)の海洋環境の時間経過の変動解析を試みた。

分析した試料は、喜界島の隆起サンゴ礁産ハマサンゴ *Porites* aff. *lutea* の、半径約2 mで群体年令170年に達する半球型の群体化石で、主に炭素同位体組成 ($\delta^{13}\text{C}$ 及び $\Delta^{14}\text{C}$) の経年及び季節変動を測定した。

レントゲン写真の示す120年間を通じた年間成長速度は (4~8) mm/y と変化するが、その極小値 (低成長) 部は周期性を示し、イシサンゴ骨格形成に大きな影響を及ぼすような環境変動が周期的に起っていたことが推定できる (Fig. 1)。このことに着目して同位体組成を測定した結果は次の如く要約される。

- (1) $\delta^{13}\text{C}$ 値は一部のずれはあるものの全体として成長速度変化と明瞭に相関している。イシサンゴ骨格中の $\delta^{13}\text{C}$ 値はゾーザンセラ (褐虫藻) の光合成速度に全面的に左右され (Goreau, 1977)、測定した化石群体がその成長速度の限定因子としての日照量の変化に敏感に反応していることを示すものである。
- (2) $\Delta^{14}\text{C}$ 値については、100年を越す周期の増減が見られ、この変動は大気中で観測された太陽活動による約200年周期の変動に対応するものであろうと考えられる。また $\delta^{13}\text{C}$ 同様にサンゴ群体の低成長部と対応して $\Delta^{14}\text{C}$ 値が低下している。大気中の ^{14}C 濃度の変化からはまだこのような短周期の変動は報告されていないが、太陽黒点活動の約11年周期の変動と対応する可能性が大きいと考えられる。

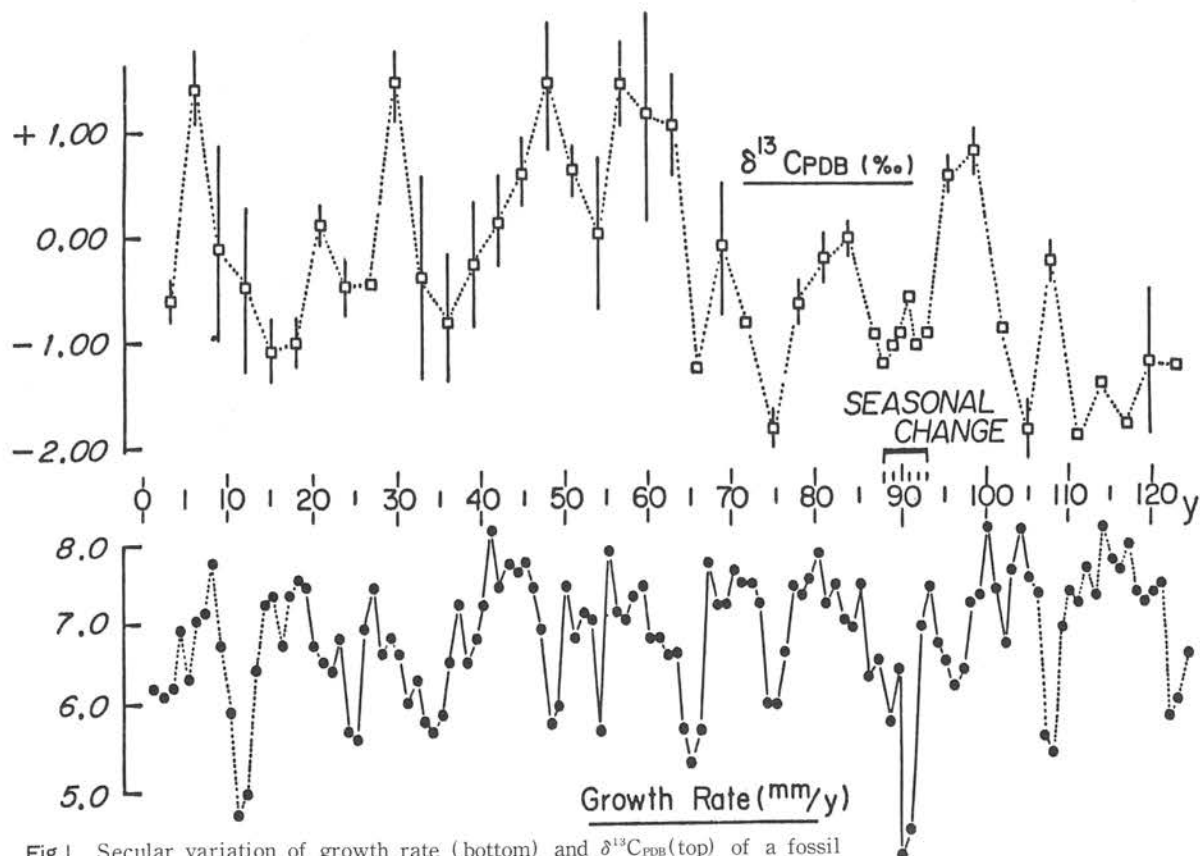


Fig.1 Secular variation of growth rate (bottom) and $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ (top) of a fossil *Porites* from Kikai-jima

〔本研究は昭和57年度文部省科研費特定「海洋底の第四紀古環境」(57110004; 代表者: 高柳洋吉)の分担課題「珊瑚礁による海洋底古環境解析」(小西健二)の一部として、理学部地学教室井口真仁・岩原豊起・佐藤野広(何れも卒研究生)の協力で行われ、上記3名と小西の連名で、1983年日本古生物学会年会(S.58.1.23)及び第90回日本地質学会学術大会(S.58.4.4)の席上口頭発表された。〕

富山湾黒部川扇状地沖埋没林の放射性炭素年令

Radiocarbon Dates of the Submerged Forest

off Kurobe Delta, Toyama Bay

昭和55年5月入善町吉原沖水深40mから採取された化石樹幹の研究を契機に着手された、表記“埋没林”（沈水林）の調査の一環として、金沢大学理学部地学教室は、樹幹の放射性炭素年代測定を分担し、現在までに12試料（内10試料は直立）が分析された。

測定試料の種名（島倉已三郎・島地謙、両教授同定）・産出位置・水深などは Table 1 と Fig. 1 に示した通りである。

ただし Table 1 には学習院大学木越研究室による5試料の測定結果も併記してある。この5試料のうち4試料は、同一試料を両研究室でクロスチェックしたもので、誤差の範囲で、夫々近似した値が得られている。最も古い年代は11590±230y.B.P. GaK-9091) で、一方最も若い年代は7850±420 (KL-180) である。産出地域別を無視し、深度と年代の関係を大局的にみると、深度をますごとに年代値も古くなるという傾向を認めることができる。測定された樹種

(ハンノキ *Alnus japonica* とヤナギ類 *Salix* sp.) は、水湿低地を生育適地とするもので、扇状地の末端で、泥炭が形成されるような環境下で生育したと推定されており、富山湾の完新世前期における海水準変動を伝える貴重な資料である。

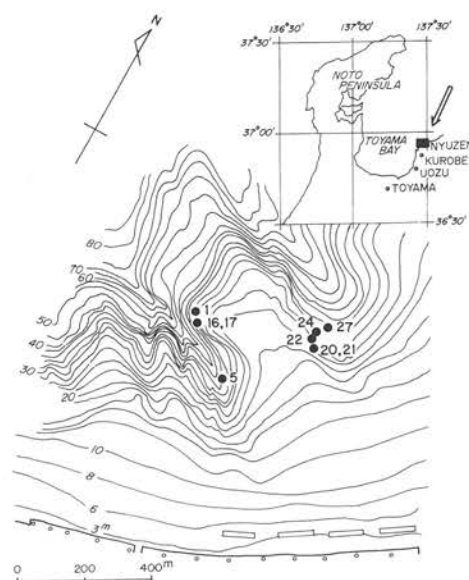


Fig. 1 Location of the Samples radiocarbon-dated off Kurobe Delta.

Table 1 Radiocarbon Dates of Submerged Forest off Kurobe Delta.

Sample No.	Code No.	Species	Depth (m)	Location	¹⁴ C Age (T _{1/2} =5568 y.)
21-1	KL-132	<i>Salix</i> sp.	-22	137°28'8.2"E; 36°56'9.4"N	8030±140
29-2	GaK-9909	<i>Alnus japonica</i>	-22	137°28'8.2"E; 36°56'9.4"N	8480±150
29-2	KL-180	<i>Alnus japonica</i>	-22		7850±420
20	GaK-9906	<i>Salix</i> sp.	-22	137°28'8.2"E; 36°56'9.4"N	9230±190
22-1	GaK-9907	<i>Alnus japonica</i>	-27	Site 22	11590±220
22-1	KL-123	<i>Alnus japonica</i>	-27	Site 22	8120±90
27-3-4	GaK-9908	<i>Alnus japonica</i>	-25	Site 27	8360±180
22-4	KL-130	<i>Alnus japonica</i>	-27	Site 22	7990±150
24	KL-129	<i>Alnus japonica</i>	-29	Site 24	8070±150
16-1	GaK-10253	<i>Alnus japonica</i>	-37	137°28'6.0"E; 36°56'9.0"N	8990±220
	KL-128	<i>Alnus japonica</i>	-37	137°28'6.0"E; 36°56'9.0"N	8630±150
16-5	KL-131	<i>Alnus japonica</i>	-37	137°28'6.0"E; 36°56'9.0"N	8870±150
16-9	KL-177	<i>Alnus japonica</i>	-37	Site 16	8700±490
5-2	GaK-9905	<i>Alnus japonica</i>	-38	Site 5	9880±200
	KL-127	<i>Alnus japonica</i>	-38		8920±130
17-3	GaK-10254	<i>Alnus japonica</i>	-40	137°28'6.0"E; 36°56'9.0"N	9300±220
	KL-124	<i>Alnus japonica</i>	-40	137°28'6.0"E; 36°56'9.0"N	9080±90
Site 1 (no. 32)	KL-121	<i>Alnus japonica</i>	-(40±5)	137°28'6.0"E; 36°56'9.0"N	9060±80
Site 1	KL-122	<i>Alnus japonica</i>	-(40±5)	137°28'6.0"E; 36°56'9.0"N	8480±70
	GaK-9090	<i>Alnus japonica</i>	-40		10150±230

[本研究は昭和55年度文部省科研費一般C「富山湾黒部川扇状地沖埋没林の緊急調査研究(554301・代表者; 奈須紀幸)と昭和56・57年度文部省科研費総研A「富山湾黒部川扇状地沖埋没林の研究」(56390011・代表者; 藤井昭二)の分担課題「放射性炭素による年代測定」(小西健二)の一部として、田中武男(東大海洋研・院生)、信定智子(金沢大理学部専攻生)、佐藤野広(金大理学部卒研生)の協力で行われ、第89回(S57.5.2)と、第90回(S.58.4.4)の日本地質学会学術大会の席上、藤井ほか連名で、口頭報告された。また成果の一部はNasu, N. et al., 1983 Remnants of an ancient forest on the continental shelf of northwest Japan. Boreas (Norway) 12, 13, として公表されている。]

《施設職員》

施設長(併) (教授)	阪上正信
教授	阪上正信
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 56年5月～58年5月)

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	二階堂修	正宗行人
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	

《文部省留学生》

Tan Kok Leong [陳国龍] (マレーシア)
58.1～

新規納入設備

(主として科
研費等による)

- ・マイクロコンピュータ関連備品
ソードM23マークIII (2システム)
アップルII (1システム)
- ・ガスクロマトグラフ: 島津GC-8APT
- ・ハイボリウム・エアサンプラー:
柴田HV-2000
- ・低圧反応槽: 耐圧硝子T-57118
- ・岐阜県御母衣地下設置
「極低バックグラウンド放射能測定設備」

人
事使用
量

液体窒素	6,000 l	A重油	2,577 l
電気	160,763 KWH	水道	1,621 m ³

研
究
報
告
・
解
説

- 阪上正信, 化学史の化学教育における意義と役割, 化学教育, **30**(2), p. 7～13 (1982).
- 阪上正信共著, 放射線はどこまで危険か, マグロス出版, p. 1～155 (1982).
- 阪上正信, 環境放射能とその測定のあゆみ, 化学の領域, **36**(7), p. 499～504 (1982).
- 阪上正信, 金銀(鍍金・箔)と鉛(瓦・顔料)の材料科学, 材料科学, **19**(2), p. 73～79 (1982).
- H.M.Lau, M. Sakanoue and K. Komura, Absolute Determination of Uranium Concentration by Hyperpure Germanium LEPS, Nuclear Instruments and Methods, **200**(2,3), p. 561～565 (1982).
- M. Sakanoue, K. Komura, Depth Profiles of ²¹⁰Pb, ¹³⁷Cs and ^{239,240}Pu in OZEGAHARA Core Samples, "Ozegahara: Scientific Researches of the Highmoor in Central Japan" p. 109～117 (1982).
- K. Komura, M. Tsukamoto and M. Sakanoue, Non-Destructive Measurements of Cosmogenic ²⁶Al, Natural ⁴⁰K and Fallout ¹³⁷Cs in Antarctic Meteorites, Memoirs of National Institute of Polar Research Special Issue, **25**, p. 178～187 (1982).
- M. Yamamoto and M. Sakanoue, Interaction of Humic Acid and Am (III) in Aqueous Solution, Journal of Radiation Research, **23** (3), p. 261～271 (1982).
- K. Megumi, T. Oka, K. Yasukawa, M. Sakanoue, Contents of Natural Radioactive Nuclides in Soil in Relation to Their Surface Area, Journal of Geophysical Research, **87** (13), p. 10857～10860 (1982).
- M. Honda, K. Nishiizumi, M. Imamura, N. Takaoka, O. Nitoh, K. Horie and K. Komura, Cosmogenic Nuclides in the Kirin Chondrite, Earth and Planetary Science Letters, **57**, p. 101～109 (1982).
- 阪上正信, 超ウラン元素の舞上り効果の研究, 文部省科学研究費総合研究(A)報告書 "長寿命放射性核種の放射生物学的挙動とその被ばく線量評価に関する研究" p. 23～24 (1982).
- 工藤 洸, 穴山 汎, 阪上正信他, LSI構成材料中のウラン, トリウム, α 放射体の評価, RADIOISOTOPES, **31** (9), p. 490～499 (1982).
- 阪上正信, 中西 孝, 工藤 洸, 低レベル α 線および α 放射体の評価法, 日本電信電話公社電気通信研究所, 昭和55, 56年度委託研究報告, p. 1～18 (1982).
- 桂山幸典, 阪上正信他, 天然および人工放射性核種の分布と挙動特性に関する試験研究, 原子力安全研究協会昭和56年度科学技術庁原子力平和利用研究委託費成果報告書, p. 1～63 (1982).
- T. Sekine, M. Sakanoue, T. Nakamura and K. Yoshihara, Chemical Effects Due to the (γ , n) Reaction and Isomeric Transition Studied by a Vacuum Sublimation Technique, Bulletin of the Chemical Society of Japan, **55** (12), p. 3795～3799 (1982).
- 阪上正信, 小村和久, 石川県における放射性核種分布に関する調査研究, 昭和56年度石川県委託研究 "環境放射能調査報告書" p. 35～50 (1982).
- 山守志朗, 環境と放射能 (IV. G. M計数管装置による空气中自然放射能の測定), 昭和55年度石川県理化研究会研究紀要, p. 1～13 (1980).
- 阪上正信, 飯盛里安先生のあゆみを偲んで, 地球化学, **16** (2), p. 7～11 (1982).
- M. Sakanoue, Y. Maeda, K. Shimazaki, S. Matsuzaki and K. Komura, Carbone-14 Dating by Liquid-Scintillation Counting of Benzene and its Application to the Quaternary Geochronology in Japan, Abstracts Fifth International Conference on Geochronology, Cosmochronology, Isotope Geology, June 27-July 2, Nikko National Park, Japan, p. 333 (1982).
- K. Komura, M. Sakanoue, J. Sakurai and K. Konishi, Non-Destructive Uranium-Series Dating of Fossil Samples and Sediments by Gamma-Spectrometry, 同上, p. 188 (1982).
- なお昨年度 Second Special Symposium on Natural Radiation Environment として掲載の研究報告, (Rapid Measurements of ²²²Rn and Other Radionuclides in Water by In-situ Ge (Li) Spectrometry) は "Natural Radiation Environment" Wiley Eastern Limited, p. 376～387, (1982) として出版された。
- 昨年度 IAEA-SM-257/11 として掲載の研究報告 (Distribution and Characteristics of Pu and Am in Soil) は "Environmental Migration of Long-lived Radionuclides" IAEA, Vienna, STI/PUB/597, p. 481～489 (1982) として出版された。

昭和57年度 見学来訪・調査出張の記録

- 昭和57. 4.19 近畿大学理工学部 堀部 治氏来所
 4.23～25 広島大学原爆放射能医学研究所D.C. 高田 純氏測定のため来所
 4.26 大阪府立大学工学部 安部 巖氏、学生2名研究ゼミ
 5. 7 電々公社茨城電気通信研究所 工藤 洸氏研究打ち合せ来所
 5.18 薬学部学生40名見学・実習
 5.25 薬学部学生40名見学・実習
 5.28 放射線医学総合研究所 小柳 卓氏研究打ち合せ来所
 6.12～29 阪上教授、日米セミナー「放射化学の手法のライフサイエンスにおける応用の最近の進歩」等のためアメリカ合衆国・カナダに出張
 6.25 南カルフォルニア大学（米国）T.L.Ku教授来所
 7.4 南カロライナ大学（米国）D. F. Williams 教授夫妻来所
 7.5 ハーウェル原子力研究所（英国）M. Ivanovich 氏来所
 7.11 工学部学生38名見学・講義
 7.21 北信越四大学教養部間相互交流合宿教育参加者55名見学・講義
 7.28 名古屋大学プラズマ研究所所長 垣花秀武教授来所
 7.29 文部省大臣官房会計課 小林和久氏見学
 7.31 石川県社会教育センター科学講座受講者50名見学
 8.13 放射線医学総合研究所 阿部史朗氏、国立公衆衛生院 岩島 清氏、原子力安全研究協会 蛭沢重信氏研究打ち合せ来所
 8.19 慶北大学（韓国）姜 榮浩教授研究打ち合せ来所
 8.21 名古屋大学アイソトープ総合センター中井信之氏学生2名見学
 9.1～2 国際協力事業・環境スタディミーティング参加、国外研究者12名、国内研究者6名見学・研究会
 9. 7～10 〔福井県三方郡美浜町にて環境放射能調査〕
 9.16 IAEA（モナコ・海洋放射能実験施設）深井麟之助氏見学・研究交流来所
 9.27～29 〔近畿大学原子力研究所にて共同研究〕
 10.28 名古屋大学理学部 古川路明助教授研究打ち合せ来所
 11. 6～11 〔能登環境放射能調査〕
 11.20～28 〔広島環境放射能調査〕
 12. 2 石川県庁講習会参加者25名見学
 12. 3 理学部化学科3年生35名見学・実習
 12. 4 医療技術短期大学学生40名見学・講義
 12.14 京都大学防災研究所北陸微小地震観測所 竹内文朗氏、平野憲雄氏来所
 12.15 東京大学農学部 清水 誠助教授、原子力安全研究協会 佐藤貞明氏研究打ち合せ来所
 12.16 華北放射線防護調査団 李 徳平氏、陳 始松氏、邢 国長氏、李 旺長氏、曹 淑媛氏、鄒 傑氏見学
 12.21～1.8 福井県衛生研究所 吉岡満夫氏測定のため来所
 昭和58. 1.17～19 山形大学理学部 高岡宣雄教授研究打ち合せ来所
 1.24 通産省工業技術院地質調査所 松本英二氏研究打ち合せ来所
 1.26～28 〔近畿大学原子力研究所にて共同研究〕
 1.27 東京大学原子力研究総合センター川西俊男技官、川口敏夫技官見学
 1.29 福井県環境放射線監視センター早川博信氏研究打ち合せ来所
 2.22 名古屋大学アイソトープ総合センター中村俊夫氏研究打ち合せ来所
 3. 8 ◎昭和57年度運営委員会（於理学部）
 3. 9～13 〔加賀市山中町環境放射能調査〕
 3.31 東京大学海洋研究所 野崎義行助教授、D. C. 梁氏見学

低レベル放射能実験施設 昭和57年度研究概要・年次報告 1983年5月30日発行

〒923-12 石川県能美郡辰口町和気

TEL (0761) 51-4440

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Wake, Tatsunokuchi, Ishikawa 923-12, JAPAN