

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

1986.4～1987.3

Annual Progress Reports of

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

辰口の丘に立ちて (学長)	2
大気中の ^{210}Pb と ^7Be の濃度測定とチェルノブイリ原子力発電所事故 による放射性降下物	3
自然放射線の超高感度写真フィルムに対する影響	4
神岡陽子崩壊実験所周辺の天然放射能のバックグランドレベル	5
CR-39 α -トラック法およびTLD-活性炭放置法による室内ラドン濃度測定	6
^{225}Ra 収率トレーサを用いた α -スペクトロメトリーによる 環境試料中の微量 ^{226}Ra の定量	7
環境中ネプツニウムの定量 (2)	8
石川県産珪藻土へのアクチニド元素の吸着特性	9
タバコ葉などにおける ^{210}Pb と ^{210}Po の定量	10
環境水中のリチウムの $^6\text{Li}(\text{n}, \alpha)\text{T}$ 反応による定量 ー第2報ー	11
「名水百選」にみる日本全国の陸水のトリチウム濃度分布	12
種々の試料中の ^{14}C 比放射能測定とその年代評価への応用	13
気候最良期における海洋環境の精密解析	14
昭和61年度・施設備品・運営人事関係諸資料; 研究報告	15
昭和61年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

辰 口 の 丘 に 立 ち て

金 沢 大 学 長 本 陣 良 平

昭和51年開設以来、当実験施設は11年の星霜を経過しました。念願の環境放射能研究センターは、多くの人々の努力にもかかわらず、実現には至りませんでした。まことに残念です。ただ61年度からは、助手1名、客員教授2名が定員化して、研究活動が一段と進展しましたことは、喜ばしいことであります。しかし、当実験施設の生みの親であり、常に研究推進の先頭に立って活躍してこられた阪上正信施設長が、62年3月末をもって定年退職され、施設を去られました。先生が科学者としてまた施設管理者として偉大であったが故に、私は羽をとられた鳥のような心境であり、まことに残念であります。先生の研究と教育に示された御努力と御成果に、厚く敬意を捧げるとともに、深く御礼を申し上げます。今後、先生にはますます御健勝にて、御活躍くださいますとともに、当実験施設の将来の発展に関し、温い御教示を賜りますようお願い申し上げます。幸に阪上教授の後任として、研究経験の豊かな上野 馨教授を、施設にお迎えすることができました。上野教授を中心に、施設が今後ますます発展することを念願してやみません。

題 金沢大学低水準放射能実験施設壁 (七言律詩、上平声四支韻)

学舎清窓麗日移 迎春可愛読書帷
白山峰影凌寒霁 手取河辺解凍怡
雨歇老鶯初朗朗 風収芳草已離離
潜心散帙研真処 放射窮尋一念孜

学舎の清窓、麗日移り、春を迎えて愛すべし読書帷。
白山の峰影、寒をしのぎてはれ、手取の河辺、凍をときてやわらぐ。
雨やんで、老鶯、はじめて朗朗、風おさまって、芳草、すでに離離。
心を潜め、帙を散じて、真をみがくの処、放射の窮尋ひとすじにつとめん。

惜別贈阪上正信先生 (七言絶、上平声一東韻)

圃畦雲散野村東 放射究堂松籟中
惜別君談研理妙 愚生端坐醉春風

圃畦、雲は散ず野村の東。放射の究堂、松籟の中。
別れを惜しみ、君は談ず理をみがくの妙。愚生、端坐して春風に酔う。



石川県内河川のトリチウム
濃度測定のため試料採取
(61.12.15)



立山地獄谷における環境放射能測定のため
試料採取 (61.7.29)



ドーム内ラドン測定のため試料採取
(東大宇宙線研究所神岡地下観測所
・神岡鉱業所茂住鉱にて) 62.1.21

大気中の ^{210}Pb と ^7Be の濃度測定とチェルノブイリ原子力発電所事故による放射性降下物

Concentration of ^{210}Pb and ^7Be in Surface Air and the Radioactive Fall-out due to the Chernobyl Accident.

本年度もアンダーセンハイボリュームエアサンプラーとハイボリュームエアサンプラーを用いて大気浮遊塵の採取を行い、既報 (AR-9 p. 9, AR-10 p. 13) の方法で ^{210}Pb と ^7Be を定量した。1986年4月26日に起ったソ連のチェルノブイリ原発事故の影響も観測されたのであわせて報告する。

【ソ連・チェルノブイリ原発事故による影響】

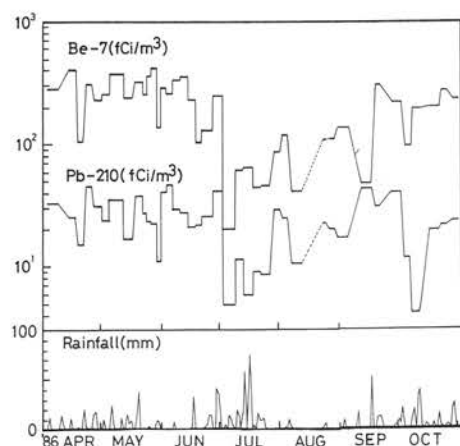
当施設においてチェルノブイリ原発由来のフォールアウト核種が初めて観測されたのは5月1日～5日の試料であり、観測された主な核種 (Fig. 1 に γ スペクトルの一例を示す) は $^{134,136,137}\text{Cs}$, ^{131}I , ^{132}Te -I, ^{129}Te , ^{103}Ru , ^{106}Ru -Rh, ^{140}Ba -La, ^{95}Zr , ^{144}Ce -Pr, ^{141}Ce , ^{99}Mo -Tc 等である。最もよく検出されたI同位体($^{131,132}\text{I}$)とCs同位体($^{134,136,137}\text{Cs}$)の濃度変化をFig. 2 に示す。CsとIの濃度は低下しながらもほぼ20日おきにピークが見られ、このことはこれら放射性同位体を含む空気塊が地球をひと回りするのに約20日間かかっていることを示唆している。

核燃料の燃焼度を知るのに有効な手がかりとなる $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比についてはサンプリング時で平均0.46と他の報告値とはそれほど違わなかった。

【大気中の ^{210}Pb と ^7Be 濃度について】

1986年度の短期間採取の ^{210}Pb 及び ^7Be の濃度変動をFig. 3 に示した。途中サンプラーの故障等で欠測もあるが、昨年の報告でもみられたように両核種濃度は雨や気団の影響を受けていることがわかる。特に8月下旬には台風の接近にともなう降雨や太平洋からの大気移動があり、両核種濃度の低下が観測された。

Fig. 4 にはサンプリング開始12時間前から終了までの積算降水量と大気中 ^{210}Pb 濃度を季節別にプロットした結果 (昨年度分も含む) を示した。データ数が多くないのではっきりとはしないが、夏 (特に梅雨時) において降水の増加にともなう ^{210}Pb 濃度の減少がよく見られ、このことはまた秋雨前線の活発な9月下旬から10月上旬においても同様の傾向がみられた。春については安定した天候が続かないために種々の気団の影響で測定点のはっきりした傾向を消してしまっていると思われる。



← Fig. 3 Variation of ^{210}Pb and ^7Be concentrations with time as compared with the rainfall.

Fig. 4 The relationship of ^{210}Pb concentration in air dust with the amount of rainfall in the period from 12 hours before sampling to the end of sampling.

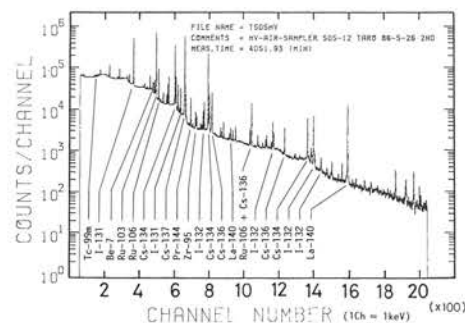


Fig. 1 γ -spectrum measured for air dust sample after the Chernobyl accident.

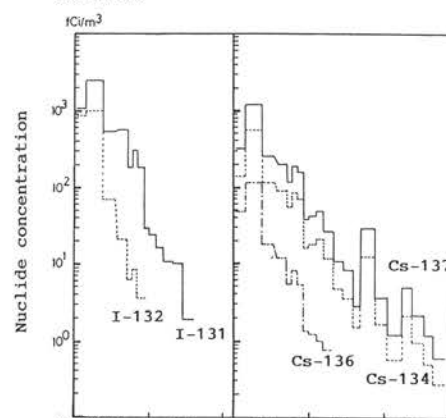
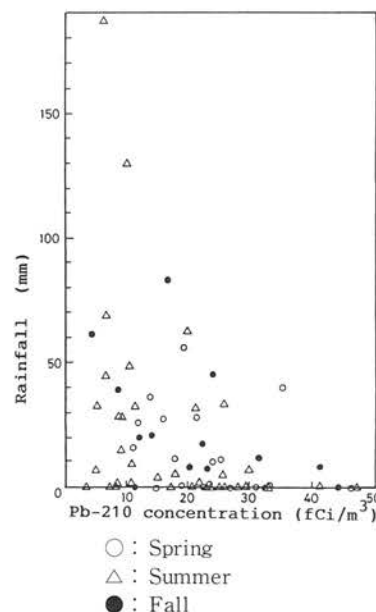


Fig. 2 Variation of radioactive Cs and I isotopes in air dust sample after the Chernobyl accident.



〔本研究は主として大学院生多田哲郎の協力によって行われた。〕

自然放射線の超高感度写真フィルムに対する影響

Effect of Natural Radiation on Super-sensitive Photographic Film.

最近これまではフラッシュ光なしでは撮影困難であった暗い場所でもそのまま撮影でき、また動きの速い被写体でも極短時間の露光で撮影のできる超高感度フィルム(ISO感度1000~1600)が製作市販されるようになった。しかし従来は無視されていた自然放射線のこれらフィルムのカブリに対する影響が問題となってきた。そのため当施設の設置した岐阜県御母衣(ミボロ)ダム地下発電所トンネル内の極低レベル放射能測定室(LLRL-AR-8 p. 7参照)も利用して、種々のフィルム(フジカラーHR100, 400, 1600)を種々の期間保存したときの影響が研究された。実験は昭和59年5月より開始されたが、その後3ヶ月, 6ヶ月, 1年, 1年半, 2年間各位所に保存したフィルムについて現像後の各色層の濃度が比較された。そのさいの最高感度のHR1600フィルムを1年間保存したときの結果をFig. 1に示す。カラーフィルムには青, 緑, 赤に感光する3つの乳剤層があるが、たとえば緑感層(GL)についての結果をみると、御母袋地下で鉛ブロック厚さ10cmの遮蔽を行った空間内(放射線量年間0.1mR以下)に保存した場合(a印)が最もカブリ少く、同所でも鉛ブロック外(90mR/年)だとかなり大地放射線のためのカブリが大きく、一方地上で鉛ブロックで遮蔽しても宇宙線の影響のためカブリは御母袋地下に比し大きいことが判明した。なお、各種フィルムを御母袋地下鉛遮蔽外に2年間保存したときの緑感層のカブリ増加のちがいをFig. 2上部に、HR1600の各所における保存期間とカブリ増加の関係をFig. 2下部に示す。

これらの結果は、フィルム感光層のミクロンオーダーのハロゲン化銀結晶が、放射線吸収により発生した高エネルギー電子、さらにそれにより生じた多数の2次電子が感光核に捕獲され、格子間銀イオンが還元されて銀原子となる過程が多数生じ銀クラスターが成長し、いわゆる潜像が形成され、ハロゲン化銀が現像可能となるためと考えられ、放射線により感光したフィルムの粒状は可視光線による感光より荒れている。なお医療用X線、 ^{60}Co , ^{226}Ra からのX線によるシミュレーション実験も行われた。

以上の結果をもとに、可視光線に対する感度が高くなると自然放射線によるフィルム性能劣化が大きくなるという弱点を改良するため、富士写真フィルム足柄研究所では、乳剤層の放射線吸収量をなるべく少なくするため、ハロゲン化銀の総体積量を減少させ(粒子径小)、光感度はそのままエネルギーの大きい電子を発生させる放射線の影響を従来の約半分としたスーパーHR1600を開発し、それらによる実験も現在さらに続行中である。

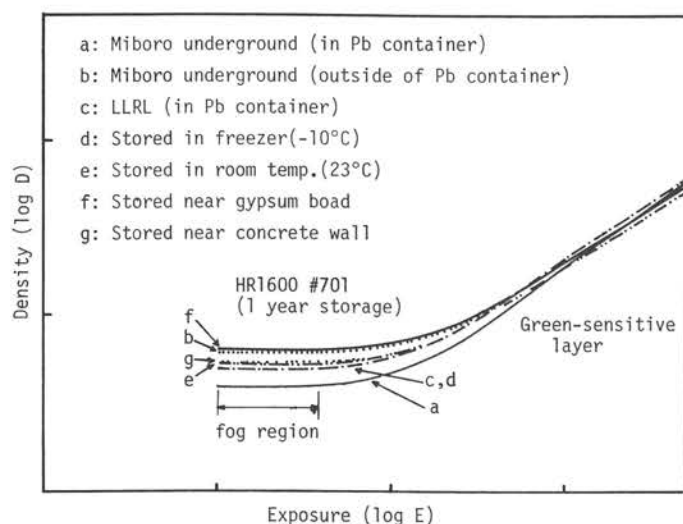


Fig. 1 Relationship of green-sensitive layer and exposure.

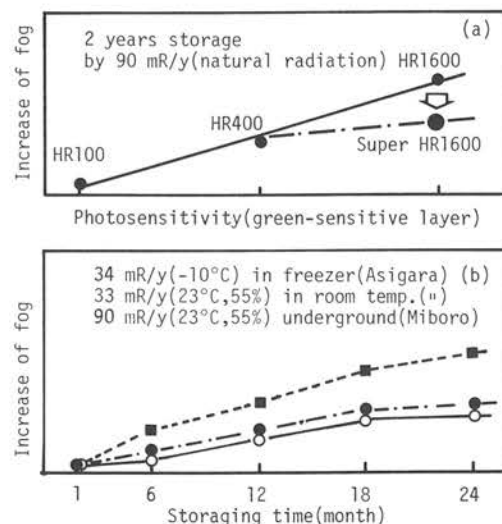


Fig. 2 Relationships of (a) increase of fog (green-sensitive layer) and photosensitivity of film, and (b) increase of fog and storing time for HR1600 film.

[本研究は本施設が研究協力して富士写真フィルム足柄研究所・井駒秀人、野沢靖氏などが主として行われたものであり、写真工業誌、1986年11月号に実写感光後の粒度比較の口絵グラビア写真とともにp.92~96に特別レポートとしての解説記事がある。]

神岡陽子崩壊実験所周辺の天然放射能のバックグラウンドレベル

Background Levels of Natural Radioactivities surrounding the Kamioka Proton Decay Experiment Facility.

岐阜県の神岡鉱山（神岡鉱業所茂住鉱）の地下約1000m（2700m. w. e.）の深さにFig. 1の下部に示すような世界でもユニークな巨大な水槽（直径15.5m、高さ16m、純水3000t、約1000個の直径20インチの大口径光電子増倍管）を用いた装置の地下宇宙線観測所がある。現在、この装置で東大理学部、高エネルギー物理学研究所および東大宇宙研究所が協力して陽子崩壊、宇宙線ニュートリノ、天体ニュートリノなどの観測を行っている。

本研究は、このような稀な頻度でしか起らない放射線の物理測定にさいして、バックグラウンド要因の1つとしての天然放射能の影響を評価するための基礎データを提供することを主目的に、観測所周辺の大気、岩石、地下水中のU, Th, Ra, Rnなどの測定を行った。

〔測定法〕 大気中のラドンは、昨年度報告〔AR-10, p. 6, 7〕に述べた活性炭放置と冷却活性炭トラップ法を併用して測定した。岩石や水試料中のU, Th同位体、 ^{226}Ra (^{210}Po) の定量は収率トレーサ ^{232}U , ^{229}Th 、 ^{225}Ra , ^{209}Po を添加後、逐次放射化学分離・ α -スペクトロメトリーにより、また水中のRnの定量は、トルエン抽出-液シン法により行った。

〔結果〕 ドーム内外の大気中のラドン濃度は、Fig. 1に示すように夏場で $\approx 2000\text{Bq/m}^3$ と高く、冬場で $200\sim 500\text{Bq/m}^3$ と低くなる傾向にある。ドーム内の湿度は90%以上で、気温は $13\sim 14^\circ\text{C}$ とほぼ一定である。尚、トロンの測定も実施したが検出されず、娘の ^{212}Pb 濃度は $1\sim 2\text{Bq/m}^3$ （1987年1/22）であった。Table 1に観測所建設時にドーム中央より採取した岩石（飛驒変成岩）の分析結果の一例を示すが、 ^{226}Ra まではほぼ放射平衡にあり、U, Thともに 0.1pCi/g 前後で花崗岩類の $\approx 1\text{pCi/g}$ と比べて1/10レベルである。次に最も重要な水試料についての結果をTable 2, 3に示す。Table 2の値は、実験に用いる地下原水についてであり、その水約3000tを高性能フィルター、陰・陽イオン、キレート樹脂カラム、紫外線照射カラムに流速 $5\text{m}^3/\text{h}$ で循環させながら純水化している。

Table 3に示すように、実験に用いている純水中の ^{238}U や ^{226}Ra は、 10^{-4} オーダーでほぼ目的とするレベルに漸近しつつある。現在、実験水槽に蓋を取り付けるなど、さらなるバックグラウンド低減化を行っており、放射能測定も継続して実施している。

Table 1. Contents of U, Th and K in Hida metamorphic rock from the center of experimental dome.

U: 0.32 ± 0.02 ppm, Th: 1.31 ± 0.05 ppm, K: $1.15 \pm 0.03\%$, Th/U: 4.1 (0.11pCi/g) (0.14pCi/g)				
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$	$^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$
1.00 ± 0.05	0.71 ± 0.06	0.94 ± 0.05	0.95 ± 0.08	0.90 ± 0.07

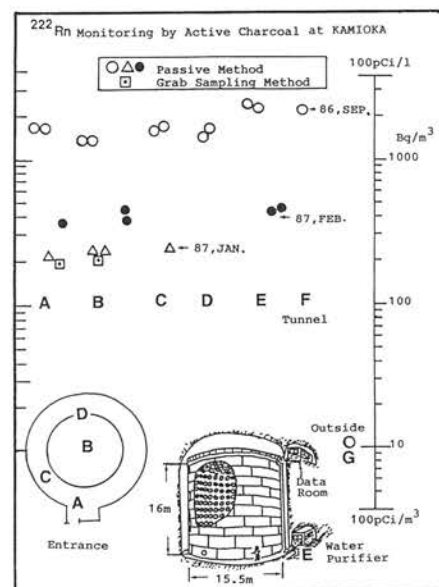


Fig. 1 Design of Kamioka proton decay experiment facility and radon monitoring in air by active charcoal.

Table 2. Concentrations of natural radionuclides in groundwater.

Nuclides	Sampling date			
	'86/8/7	'86/10/14	'86/12/19	'87/1/21
^{238}U	$(1.72 \pm 0.12) \times 10^{-1}$	$(2.13 \pm 0.18) \times 10^{-1}$		$(1.84 \pm 0.09) \times 10^{-1}$
^{234}U	$(1.84 \pm 0.13) \times 10^{-1}$	$(2.41 \pm 0.20) \times 10^{-1}$		$(1.91 \pm 0.10) \times 10^{-1}$
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	1.07 ± 0.11	1.13 ± 0.13		1.04 ± 0.07
$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$		0.043 ± 0.011		0.047 ± 0.007
^{226}Ra	$(1.61 \pm 0.22) \times 10^{-2}$			$(1.55 \pm 0.24) \times 10^{-2}$
^{222}Rn			191 ± 2	217 ± 7
^{210}Po	$(7.4 \pm 0.5) \times 10^{-2}$			$(3.8 \pm 0.2) \times 10^{-2}$

Concentration: pCi/l

Table 3. Concentrations of natural radionuclides in water of the experiment facility.

Nuclides	Sampling date				
	'86/4/20	'86/8/23	'86/10/14	'86/12/10	'87/1/21
^{238}U	$(4.4 \pm 1.3) \times 10^{-2}$	$(2.11 \pm 0.36) \times 10^{-3}$	$(2.29 \pm 0.30) \times 10^{-3}$	$(5.16 \pm 0.95) \times 10^{-4}$	$(3.62 \pm 0.78) \times 10^{-4}$
^{234}U		$(2.95 \pm 0.31) \times 10^{-3}$	$(2.40 \pm 0.31) \times 10^{-3}$	$(3.71 \pm 0.79) \times 10^{-4}$	$(3.80 \pm 0.76) \times 10^{-4}$
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$		1.40 ± 0.28	1.05 ± 0.19	0.72 ± 0.20	1.06 ± 0.32
^{226}Ra		$(7.6 \pm 1.1) \times 10^{-3}$		$(1.2 \pm 0.4) \times 10^{-3}$	$(2.6 \pm 1.5) \times 10^{-4}$
^{210}Po				$(1.0 \pm 0.1) \times 10^{-2}$	

^{222}Rn : below the detection limit ($2\sim 3\text{pCi/l}$), Concentration: pCi/l

〔本研究は、東京大学宇宙線研究所 須田英博助教授、手嶋政広博士との協同研究で行われ、中国核工業部放射防護研究所からの留学生馬吉増が大気中のラドン測定に、また福井県衛生研究所五十嵐修一氏が水中のラドン測定に協力した。〕

CR-39 α -トラック法およびTLD-活性炭放置法による室内ラドン濃度測定Measurement of Indoor Radon by CR-39 α -Track and TLD-Passive Charcoal Method.

1982年の国連委員会の報告以来、生活環境場中のラドンおよびその娘核種の吸入による内部被曝問題が世界的に注目されるようになりこれまでに多くの研究が行われてきた。当研究施設においても、昨年度報告 (AR-10, p. 6, 7) に述べたような簡便な活性炭放置 γ 線測定法を開発し、種々の箇所のラドンレベルを評価してきた。今年度は、長期的な平均ラドン濃度レベルを評価するため、Fig. 1に示す固体飛跡検出器CR-39を用いた α -トラック法による方法について検討し、金沢市内およびその近郊の屋内ラドン濃度評価を試みた。さらに、低BG γ 線測定のかわりに放射線を積算するTLDを活性炭内に併置する有効性についても検討した。

(1) α -トラック法：図1に示す開放型カップ (Bare法) とフィルタ付きカップ (Cup法) を用い、一定期間放置・エッチング後、光学顕微鏡でトラックを計測した。種々の基礎的検討を行ったが、その一例としてトラック法と α -スペクトロメトリーの同時測定 (Fig. 2) によるラドンと娘核種の α -トラック 寄与評価の興味ある結

Table 1. Comparison of the alpha-spectrometry and alpha-track method.

Trial (Exp. Time)	Detector	Bare Method (/cm ² .h)	Cup Method (/cm ² .h)	Ratio (Cup/Bare)
1st (105 h)	α -Track	39.5 $\pm$ 2.5	11.1 $\pm$ 1.3	0.28 $\pm$ 0.04
	α -Spec.	55.7 $\pm$ 0.3*		
2nd (210 h)	α -Track	38.3 $\pm$ 2.2	11.9 $\pm$ 1.0	0.31 $\pm$ 0.03
	α -Spec.		15.8 $\pm$ 0.1**	

Contribution: *) Rn-222 (16%), Po-218 (43%), Po-214 (41%)
**) Rn-222 (46%), Po-218 (36%), Po-214 (18%)

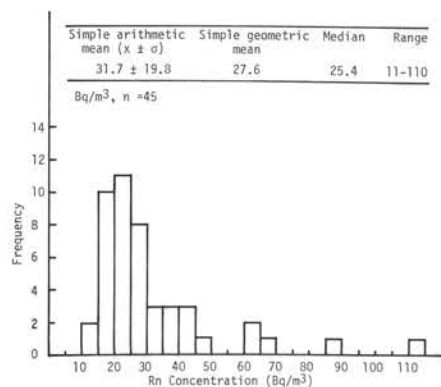


Fig. 4 Frequency distributions of measured indoor Rn concentrations in Kanazawa City.

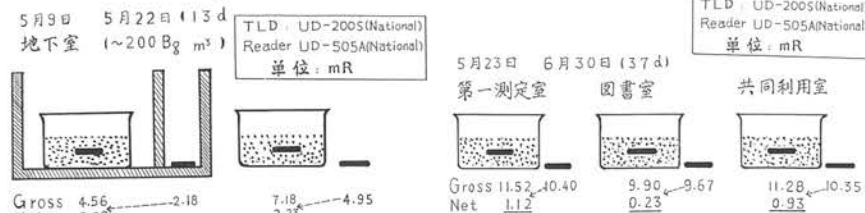


Fig. 5 Monitoring of indoor Rn levels by passive method using activated charcoal together with embedded TLD.

[α -トラック法に関する研究は、石川県環境部委託研究として行われ、一部金沢大・理、中西、樋口の協力を得た。TLD-活性炭放置法は主として中国核工業部放射防護研究所からの留学生馬吉増により行われ、両者ともに第29回日本放射線影響学会 (於金沢) の席上口頭発表された。]

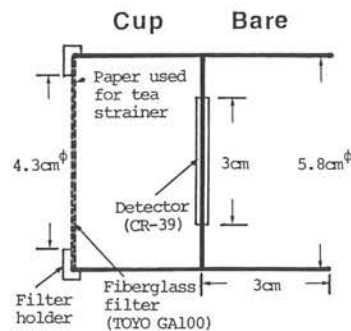


Fig. 1 Design of Rn measurement by CR-39.

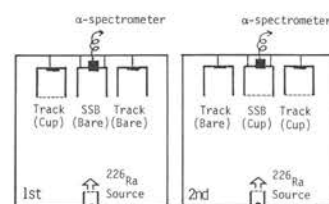


Fig. 2 Comparative measurements of Rn by Si (Au) and CR-39 detectors.

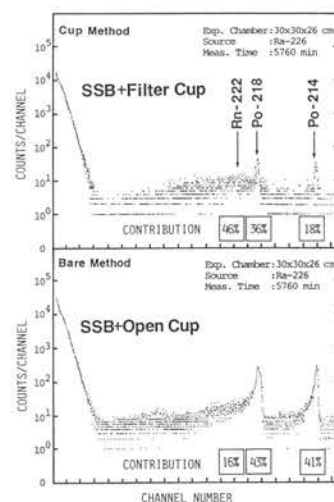


Fig. 3 Alpha spectra of Rn and its daughters by Si(Au) detector in plastic cup with and without filter covering.

^{225}Ra 収率トレーサを用いた α -スペクトロメトリーによる環境試料の微量 ^{226}Ra の定量

Determination of Low-Level ^{226}Ra in Environmental Samples by α -Spectrometry using ^{225}Ra as Yield Tracer.

Ra同位体、とりわけウラン系列の ^{226}Ra の測定は、その系列の非平衡についての核地球化学的な知見を与えるのみならず、近年関心の高まっているラドンとの量的関係、さらにそれ自身長寿命 α 放射体であるため内部被曝の関点からも重要視されている。一方、測定面では、Ge(Li) 検出器による非破壊もしくは BaSO_4 共沈試料の γ 線測定のほか、 ^{226}Ra からのラドン測定、放射化学分析、 α あるいは液シンによる測定など種々の方法が開発されている。

本研究では、微量の ^{226}Ra をできるだけ正確に定量するため、収率用トレーサとして ^{225}Ra ($T_{1/2}=14.8\text{d}$, β^-)を用い、放射化学的分離・ α 線スペクトロメトリーによる方法を検討した。

Fig. 1にRa分析のフローシートを示す。 ^{225}Ra は親核種 ^{229}Th ($T_{1/2}=7\times 10^3\text{y}$, α)からミルキングせずに ^{229}Th 溶液(^{225}Ra と平衡)をそのまま用いた。 ^{232}U トレーサも添加して、試料中のU, Th同位体、 ^{226}Ra が逐次的に分離・定量できるようにした。RaとBaの分離にはCyDTAを用い(Fig. 2)、精製したRaは HCl -エタノール溶液からAg板上に電着し、 ^{225}Ra からの娘核種 ^{217}At の成長(1~2週間)を待って α -スペクトロメトリーにより定量した(Fig. 3)。Table 1, 2に分析に用いる試薬類の ^{226}Ra 汚染レベル、および水試料500mlを用いての分析フローシート通しての ^{226}Ra バックグラウンドレベルを示す。Ca試薬については、通常不必要だが、特にCaレベルの低い水試料を対象とする場合を考慮して検討した。いずれのCa試薬もかなりの ^{226}Ra を含ん

でいるので BaCrO_4 共沈をくり返して ^{226}Ra freeのCa溶液を調整した。Ba試薬については、 ^{226}Ra 量の少ない $\text{Ba}(\text{OH})_2\cdot 8\text{H}_2\text{O}$ を用いた。この分析法について、既知 ^{226}Ra を用いて分析した結果をTable 3に示すが、測定値はスパイク量と非常によく一致を示した。現在この方法を用いて、神岡地下水、南極の湖水、岩石などの ^{226}Ra をU, Th同位体とともに定量しつつある。

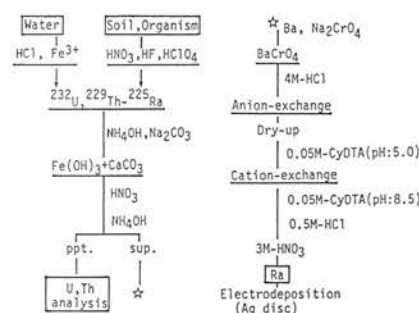


Fig. 1 Separation scheme of ^{226}Ra in environmental sample.

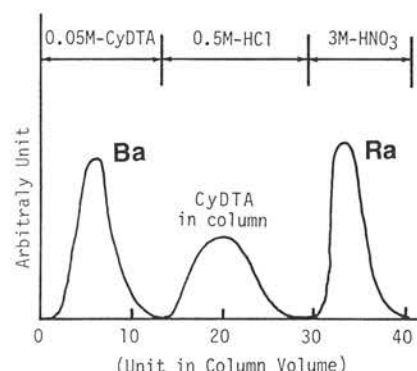


Fig. 2 Elution diagram of Ba, CyDTA and Ra from cation exchange column.

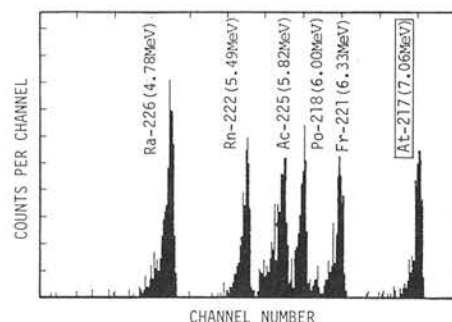


Fig. 3 Alpha spectrum of radium fraction due to ^{225}Ra tracer (2 weeks after electrodeposition)

Table 1. ^{226}Ra contamination levels in chemical reagents.

Reagents	Activity (dpm)	Remarks
G ¹ CaCO_3	$0.59 \pm 0.08/\text{g.Ca}$	Lot No.(030-00385,WA11976) [#]
G $\text{CaCl}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$	$0.45 \pm 0.05/\text{g.Ca}$	Lot No.(3-43,LL0348) [#]
G $\text{CaCl}_2\cdot 2\text{H}_2\text{O}$	$0.51 \pm 0.04/\text{g.Ca}$	Lot No.(031-00435,LAJ3705) [#]
SSG ² CaCl_2	$0.44 \pm 0.04/\text{g.Ca}$	Lot No.(034-00501,WK07744) [#]
Purified Ca ^{**}	$< 0.01/\text{g.Ca}$	Lot No.(031-00435,LAJ3705) [#]
G Na_2CO_3	N.D.	Lot No.(199-01585,STR3420) [#]
G Na_2CrO_4	N.D./25% _{20ml}	Lot No.(605A1076) ^{##}
G BaCl_2	$26.3 \pm 1.4/\text{g.Ba}$	(?) [#]
EP ³ BaCl_2	$18.2 \pm 1.2/\text{g.Ba}$	(?) [#]
G $\text{Ba}(\text{OH})_2\cdot 8\text{H}_2\text{O}$	$6.45 \pm 0.38/\text{g.Ba}$	Lot No.(911R1166) ^{##}

¹: Guaranteed Reagent,²: Super Special Grade Reagent,³: Extra Pure Reagent,^{**}: Ra-226 in Ca stock solution was separated by the procedure of co-precipitation with BaCrO_4 . #: Wako Pure Chem. In., LTD.
##: Kanto Chemical Co., INC.

Table 2. ^{226}Ra background level through the analytical scheme.

Reagents	Activity (dpm)	Average
Ba^{2+} 20 mg	0.128 ± 0.013	$\bar{x} \pm \sigma$
Fe^{3+} 10 mg	0.130 ± 0.010	
25% Na_2CrO_4 10 ml	0.129 ± 0.009	
	0.128 ± 0.008	0.129 ± 0.004
Above Reagents	0.130 ± 0.012	$\bar{x} \pm \sigma$
+ Na_2CO_3 20 mg	0.127 ± 0.010	
	0.127 ± 0.010	
Ba^{2+} 8 mg	0.052 ± 0.006	$\bar{x} \pm \sigma$
Fe^{3+} 10 mg	0.051 ± 0.006	
25% Na_2CrO_4 10 ml	0.052 ± 0.005	

Table 3. Analytical results of ^{226}Ra for spiked samples.

^{226}Ra added (dpm)	^{226}Ra found (dpm)	^{226}Ra corrected [*] (dpm)
0.043 ± 0.001	0.097 ± 0.007	0.05 ± 0.01
0.230 ± 0.003	0.283 ± 0.022	0.23 ± 0.02
0.459 ± 0.006	0.508 ± 0.030	0.46 ± 0.03
1.148 ± 0.016	1.182 ± 0.046	1.13 ± 0.05

^{*}: corrected by subtracting the back ground value (0.052 ± 0.003 dpm).

環境中ネプツニウムの定量(2)

Determination of Neptunium in the Environment (2)

昨年度報告(AR-10, p. 8)で述べたように、環境試料(特に土壌)中の核実験に由来する極微量の ^{237}Np を放射化学分離し、 α 線スペクトロメトリで測定できることを確認した。しかしながら、Npの分析法において化学収率の点で、若干問題があった。そこで本年度は、この問題点を検討するとともに、主として深さ20cmまでの土壌試料中のNpをPuと同時に定量して、核実験による ^{237}Np の全降下量の推定を試みた。

〔Np分析法の検討〕

これまでのNpの分析は、試料中のNpを $\text{HCl} + \text{HNO}_3$ で抽出し、TOA抽出、 LaF_3 共沈、そして陰イオン交換樹脂カラム操作を行い、分析の最終段階として極微量のUを完全に取り除くために(Npの α 線スペクトロメトリで妨害)Npを5価に調製し、0.5M HCl系からの陽イオン交換樹脂カラム法を用いてきた。この方法をいくつかの土壌試料に適用してきた結果、陽イオン交換の段階でNpの収率が、かなりばらつくことが新たに見出された。

そこで本年度は、その酸化方法として東北大学の栃山らの方法、すなわち $\text{HClO}_4 + \text{HNO}_3$ で蒸発乾固、さらに酸性度をなくすために水で蒸発乾固し、その後、水を加えてしばらく放置することによりNpを5価に調製するという方法を用い、0.5M HCl系での陽イオン交換樹脂(Dowex 50X 8, 100~200mesh)カラム操作によるNpの化学収率の検討を行った。実験は ^{239}Np を用い、蒸発乾固はすべてホットプレート上(150℃~200℃)で行った。

$\text{HClO}_4 + \text{HNO}_3$ について水で数回蒸発乾固させ、酸性度を完全になくして水に溶解させ、20分以上放置後、1M HClを加え0.5M HCl溶液に調製し陽イオン交換樹脂カラムに通した結果、60~80%のNpが溶出した。しかし水での蒸発乾固が不十分で酸が残っていると、収率の低下が見られまた、水中での放置が短時間だと収率にかなりのばらつきが見られた。さらに水で蒸発乾固後、直接0.5M HClに溶解させると10%程度のNpしか溶出しなかった。

〔Npの定量結果〕

上記の分析法を用いて、100~300gの環境土壌(堆積物)試料中の ^{237}Np を $^{239,240}\text{Pu}$ とともに定量した結果を昨年度の結果も含めてTable 1に示す。Table 2には、深度別試料(0~5, 5~20cm)についての結果を示す。海底土のNp/Pu比が0.07~0.1%と表層土壌の0.11~0.23%に比べてやや小さい傾向が見られる(Table 1)。一方、深度別試料については、Np/Pu比が三方の様に差のないものもあるが、奥越や吉野の様に明らかに0~5cmよりも5~20cmの方が大きい傾向が見られ、PuよりNpが移動しやすいことが示唆される。

また、 ^{237}Np の核実験による全降下量を、 $^{239,240}\text{Pu}$ の全降下量15PBq(4.6t)を用いて、得られたNp/Pu比より試算すると44TBq(1.9t)となる。

Table 1. Concentrations of ^{237}Np and $^{239,240}\text{Pu}$ in surface soils and sediments, and their activity ratios.

Sampling location	Sampling date	^{237}Np (mBq/kg.dry)	$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/kg.dry)	$^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ (%)
Kanmuri No.1 (Soil:0-5cm)	May 1983	11.8 ± 3.7	8.88 ± 0.74	0.13 ± 0.04
Kanmuri No.2 (Soil:0-5cm)	May 1984	13.7 ± 3.7	12.3 ± 0.4	0.11 ± 0.03
Okutsu No.1 (Soil:0-5cm)	May 1983	14.8 ± 1.9	6.40 ± 0.33	0.23 ± 0.03
Okutsu No.2 (Soil: 0-5cm)	May 1985	14.8 ± 1.5	6.70 ± 0.37	0.22 ± 0.03
Yoshino (Soil:0-5cm)	May 1985	6.3 ± 0.7	4.37 ± 0.33	0.14 ± 0.02
Hiroshima* (Soil:0-10cm)	1976	1.1 ± 0.4	0.57 ± 0.03	0.21 ± 0.06
Hiroshima** (Soil:0-10cm)	1976	1.5 ± 0.4	0.68 ± 0.03	0.22 ± 0.06
Niu Bay No.1 (Sediment)	Aug.1981	3.3 ± 0.4	4.51 ± 0.22	0.08 ± 0.02
Niu Bay No.2 (Sediment)	Nov.1986	2.8 ± 0.4	3.78 ± 0.25	0.07 ± 0.01
Urazoko (Sediment)	May 1985	2.2 ± 0.4	2.29 ± 0.11	0.10 ± 0.02

* and ** samples were collected respectively at 10km in the NNW direction and at 4km in the ESE direction from the epicenter of the atomic bomb(1945).

Table 2. Concentrations and depositions of ^{237}Np and $^{239,240}\text{Pu}$ in different layers of soils, and their activity ratios.

Sampling location	Sampling date	$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/kg.dry)	^{237}Np (mBq/kg.dry)	$^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ (%)
Okuetsu	May 1985			
0-5 cm		6.70 ± 0.37 (144 $\pm$ 7)*	14.8 ± 1.5 (0.32 $\pm$ 0.03)*	0.22 ± 0.03
5-20 cm		0.52 ± 0.04 (22 $\pm$ 2)*	7.0 ± 0.7 (0.31 $\pm$ 0.03)*	1.35 ± 0.17
	Total*	166 ± 7	0.62 ± 0.04	0.38 ± 0.03
Yoshino	May 1985			
0-5 cm		4.37 ± 0.33 (111 $\pm$ 7)*	6.3 ± 0.7 (0.16 $\pm$ 0.02)*	0.14 ± 0.02
5-20 cm		0.59 ± 0.05 (59 $\pm$ 7)*	2.3 ± 0.4 (0.25 $\pm$ 0.04)*	0.40 ± 0.07
	Total*	170 ± 11	0.41 ± 0.04	0.24 ± 0.03
Mikata	May 1986			
0-5 cm		2.32 ± 0.14 (111 $\pm$ 7)*	6.4 ± 1.0 (0.31 $\pm$ 0.05)*	0.28 ± 0.05
5-20 cm		0.61 ± 0.04 (74 $\pm$ 4)*	1.4 ± 0.3 (0.17 $\pm$ 0.04)*	0.23 ± 0.05
	Total*	185 ± 7	0.48 ± 0.06	0.26 ± 0.05

* : MBq/km²

〔本研究は主として大学院生茶谷和秀の協力により行われた。〕

石川県産珪藻土へのアクチニド元素の吸着特性

Adsorption Characteristics of Actinides by Diatomaceous Earth of Ishikawa Prefecture.

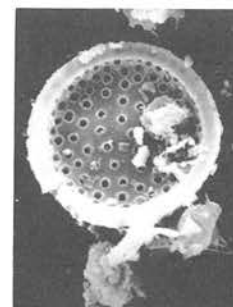
核燃料サイクルの本格化とともに、今日、これら施設から放射性廃棄物を如何に安全に処理処分するかの技術開発が大きな研究課題になっている。本研究は、石川県能登半島で産出する適度に粘土鉱物を含む珪藻土について、その吸着・口過作用を利用して放射性廃液を簡単な処理工程で処理し、さらに、ガラス固化し廃棄物量の減少と安全性の向上をめざして技術開発を進めてきたものである。ここでは、得られた成果のうち、特に研究例の少ないアクチニド元素(U, Np, Am)の珪藻土への吸着特性についての結果を簡単に紹介する。試料および実験方法：能登各地に産出するいずれの珪藻土(Fig. 1)

も、 SiO_2 70~80%, $\text{Al}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_2\text{O}_3$ 10%前後を含んでいる。Table 1に今回用いた飯田(I), 杉山(S), 上戸(U)の原土および焼成したものについての物理特性を示す。吸着試験は、すべてバッチ法で、UおよびTRU核種の一定濃度(50mM)に調製した珪藻土(0.5g)を入れ、pH調製・24時間振とう後、遠心分離・口過を行い口液、残渣について、 α あるいはGe-LEPS測定を実施して分配係数(Rd)を求めた。

結果：Fig. 2に種々の焼成温度で加工した珪藻土へのUの分配比を示すが、水洗後400~600℃で焼成しても原土とよく似たRd(約 10^4)を示す。UはpH 6~8で最も高いRdを示す。NpはpHの影響を受けやすくpHが高くなるとRdも向上する。一方AmはpH 2以上で、 $\sim 10^5$ と高いRdを示す(Fig. 3)。炭酸イオンや共存イオン(海水使用)の影響について検討した結果をFig. 4, 5に示す。図中に示すように特にUは炭酸イオンや共存イオンによって影響されやすい。NpについてはIV, V価ともに同じような結果が得られ、実験の振とう中にIV価からV価への酸化が起きていることが示唆される。Amは、UやNpにくらべて炭酸や共存イオンの影響を受けにくく、いずれの実験においても最も高いRdを示した。なおガラス固化についても非常に良好な結果が得られている。



倍率：500倍で撮影



倍率：3000倍で撮影

Fig. 1 Photograph of diatomaceous earth of Ishikawa Pref. by electron microscope.

Table 1. Physical properties of diatomaceous earth.

記号	真密度 (g/cm^3)	表面積 (m^2/g)	イオン交換容量 ($\text{meq}/100\text{g}$)
S000	2.33	20.45	20.2
S135	2.24	35.78	16.6
S175	2.31	33.02	10.4
S275	2.26	15.70	9.9
U000	2.33	25.03	22.9
U135	2.35	24.04	
U175	2.28	37.0	11.7
U275	2.33	19.38	10.6
I000	2.27	18.46	
I175	2.25		5.6
I275	2.18	4.00	4.0
I475	2.26	12.02	4.7
R100	2.32		1.3
R200	2.32		1.5
Z300	2.38		197.2
I135		22.35	11.3

(注) イオン交換容量 ($\text{meq}/100\text{g}$) は試料100g当たりの NH_4^+ のミリグラム当量である。

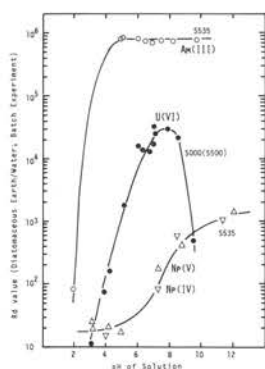


Fig. 3 Variation of Rd of U, Np and Am with pH.

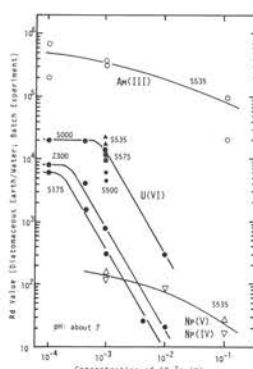


Fig. 4 Effect of CO_3^{2-} on Rd of U, Np and Am. and Am into diatomaceous earth from sea water.

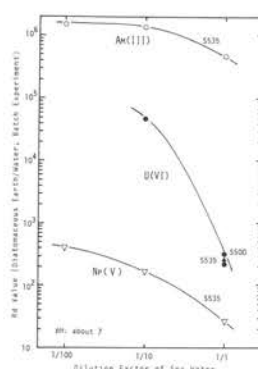


Fig. 5 Distribution of U, Np

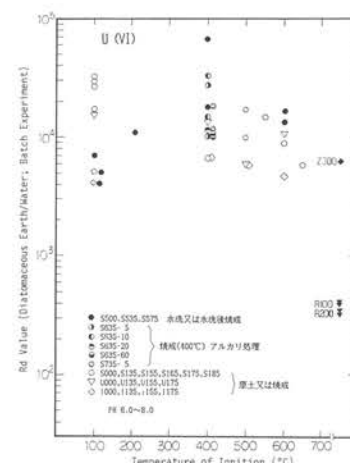


Fig. 2 Rd values of U for diatomaceous earth ignited with various temperature.

[本研究は、北国設備工業株式会社(石川県金沢市)が科学技術庁の「放射性廃棄物処理技術開発促進費補助金」の交付を受けた「珪藻土による放射性廃棄物の減容処理技術の開発について」の研究に協力依頼をうけ行ったものであり、同社が科学技術庁に提出した成果報告書(昭和59, 60, 61年)に詳細がある。]

タバコ葉などにおける ^{210}Pb と ^{210}Po の定量 ^{210}Pb and ^{210}Po in Tobacco and Others.

今年度は既報(LLRL-AR-7 p. 5, AR-8 p.10, AR-9 p.10, AR-10 p.13) 研究に続いて、中国産のタバコをはじめ、中国、日本の茶などについて ^{210}Pb のLEPSによる γ 線測定を行うとともに、既報の方法で ^{210}Po を定量した。一方喫煙による室内の ^{210}Pb , ^{210}Po の汚染状況をも検討しつつある。

今回 ^{210}Pb 定量についてさらに正確を期すため、新たに標準試料として ^{210}Pb 濃度の既知タバコ葉(約20g)の中にNBL標準試料(1.50g)粉末を添加してよく混合したものを調製し、通常の測定と同じ形にして ^{210}Pb の測定を行い、検出効率を求めた(Fig. 1)。さらに ^{210}Pb と ^{210}Po が平衡になっている5年前のタバコ葉について ^{210}Pb (Ge-LEPS)と ^{210}Po (α -スペクトロメトリ)を定量して、これで求めた ^{210}Pb の検出効率の妥当性を確かめた(表1)。

表2に現在までに測定した各国の市販タバコ中の ^{210}Pb と ^{210}Po 含有量をこれまでの日本産市販銘柄についてのデータとともに示す。日本のタバコでは ^{210}Pb と ^{210}Po 変動範囲はそれぞれ $0.52 \pm 0.08 \sim 0.91 \pm 0.09$, $0.53 \pm 0.03 \sim 0.88 \pm 0.04 \text{ pCi/g}$ 、平均値はそれぞれ0.68, 0.65 pCi/gである。アメリカでは ^{210}Pb と ^{210}Po はそれぞれ0.46, 0.40 pCi/gで、ソ連では0.64, 0.48 pCi/gである。これに対して、中国市販タバコ中の ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度変動範囲はそれぞれ $0.78 \pm 0.08 \sim 1.53 \pm 0.08$, $0.42 \pm 0.04 \sim 1.28 \pm 0.07 \text{ pCi/g}$ で、平均値は1.14, 0.90 pCi/gである。日本、アメリカ、ソ連に比べて中国の方がやや高い傾向にある。

つぎにタバコと同じように葉を使う植物である茶について ^{210}Po の定量(表3)と溶出実験(表4)を試みた。3種の中国茶中の ^{210}Po の平均値は0.61 pCi/gであり、日本茶は0.28 pCi/gであった。タバコ葉と同じように中国産の茶も日本茶より高い傾向にある(Fig. 2)。また溶出実験から通常お茶を飲む場合には茶からの ^{210}Po がお湯によって12%程度溶出されることがわかった。

さらに事務室内外の浮遊じん(東京都杉並区西保健所で採取)について ^{210}Pb , ^{210}Po を分析した。表5に示すように ^{210}Pb と ^{210}Po の濃度は室内の方がやや高いが、はっきりした差はない。これは恐らくタバコの喫煙量、室内換気状態などに原因があると考えられる。

Table 5. ^{210}Pb and ^{210}Po contents in dust collected from outdoor and indoor.

Sampling Time	Volume m ³	Volume ^{210}Pb (10^{-14} Ci/m^3)		Volume ^{210}Po (10^{-15} Ci/m^3)	
		Indoor	Outdoor	Indoor	Outdoor
1 (SA) 9:00-(MO) 9:00	48h	57.6	3.7±0.4	2.0±0.4	2.6±0.3
2 (MO) 9:12-(WE) 9:12	48h	57.6	0.4±0.3	0.7±0.3	1.5±0.3
3 (WE) 9:20-(FR) 9:20	48h	57.6	4.7±0.4	0.2±0.3	6.0±0.6
4 (MO) 8:45-(MO) 16:45	8h	9.6	4.6±0.4		2.8±0.9
5 (WE) 8:45-(WE) 16:45	16h	19.2			2.7±0.5
6 (FR) 8:45-(FR) 16:45	8h	9.6			3.0±1.1
Mean±1 σ		3.4±2.0	1.0±0.9	3.1±1.5	2.7±1.4
Mass dust					
		mg	mg/m ³	mg	mg/m ³
1 (2.698)	0.0468	(2.738)	0.0475		
2 (2.550)	0.0442	(2.160)	0.0375		
3 (3.414)	0.0593	(3.105)	0.0539		
4 (0.90)	0.083				
5 (1.40)	0.073				
6 (0.90)	0.094				

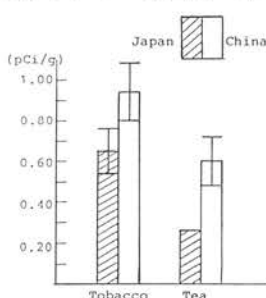


Fig. 2. Comparison of ^{210}Po contents in tobacco and tea of Japan with those of China.

Table 4. Leaching results of ^{210}Po in tea with hot water.

Leaching Time (Min)	Extractable ^{210}Po Contents (pCi/g Tea)	%
1	0.06±0.01	7.0
5	0.10±0.01	12
10	0.10±0.01	12
15	0.10±0.01	12
20	0.19±0.02	22

* Tea: 2g, Water: 200ml (=100°C)

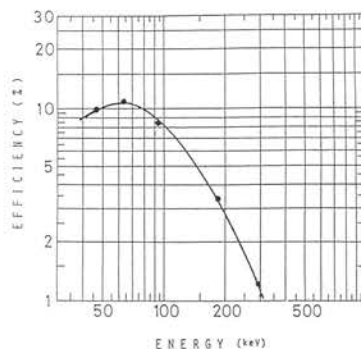


Fig. 1 Detection efficiency for uranium series low energy gamma-rays.

Table 1. Accuracy of ^{210}Pb measurement in tobacco sample by Ge-LEPS.

Number	^{210}Pb concentration	
	γ -Spec.	α -Spec.*
1	0.54 ± 0.04	0.50 ± 0.02
2	0.50 ± 0.04	0.52 ± 0.02
3		0.52 ± 0.04
4		0.51 ± 0.03
Mean±1 σ	0.52 ± 0.03	0.51 ± 0.01

* ^{210}Pb was evaluated by measuring the amount of ^{210}Po ingrowth from ^{210}Pb in sample stored for 5 years.

Table 2. ^{210}Pb and ^{210}Po concentrations in commercially available cigarettes (pCi/g)

Sample	Pb-210	Po-210
JAPAN		
CABIN85	0.52 ± 0.08	0.62 ± 0.05
MILD SEVEN	0.91 ± 0.09	0.88 ± 0.04
SEVEN STARS	0.78 ± 0.08	0.70 ± 0.03
HI-LITE	0.68 ± 0.07	0.65 ± 0.04
ECHO	0.62 ± 0.09	0.53 ± 0.03
HOPE	0.59 ± 0.06	0.70 ± 0.03
PEACE	0.67 ± 0.07	0.60 ± 0.03
TENDER	0.68 ± 0.07	0.54 ± 0.09
USA		
MARLBORO	0.46 ± 0.07	0.40 ± 0.02
JOHN PLAYER SPECIAL		0.41 ± 0.02
USSR		
POCCNNCKNB	0.50 ± 0.04	0.54 ± 0.02
ZPYF	0.77 ± 0.05	0.43 ± 0.02
SWEDEN		
JOHN SILVER	0.68 ± 0.07	0.42 ± 0.03
CHINA		
LI HUA	1.07 ± 0.12	0.85 ± 0.05
CHIANG LE	1.53 ± 0.08	1.20 ± 0.05
PHENIX	1.22 ± 0.12	0.95 ± 0.05
HUANG GUAN	1.05 ± 0.11	0.92 ± 0.04
DA JI	1.14 ± 0.11	0.96 ± 0.04
DA QIAN MEN	1.25 ± 0.12	0.85 ± 0.05
QING ZHOU	1.14 ± 0.10	0.89 ± 0.04
GOLD LION	1.46 ± 0.08	1.28 ± 0.07
HUDIE QUAN	1.18 ± 0.06	0.83 ± 0.04
SAN QI	1.20 ± 0.09	0.92 ± 0.05
BI JI	1.09 ± 0.06	0.84 ± 0.04
JIN YE	0.82 ± 0.05	0.78 ± 0.05
JIN YE	0.99 ± 0.07	0.92 ± 0.04
CHIAN SHOU	0.78 ± 0.08	0.42 ± 0.04

Table 3. ^{210}Po contents in Chinese and Japanese tea.

Sample	Location	^{210}Po (pCi/g)
烏竜茶	中国福建省	0.74 ± 0.04
烏竜茶	中国福建省	0.61 ± 0.03
紅茶	中国杭州	0.49 ± 0.03
日本茶	日本	0.28 ± 0.02
烏竜茶	広東省産日本で加工	$0.10 \pm 0.01^*$

* 缶詰め烏竜茶 190ml当りの値

[本研究は主として大学院生多田哲郎と中国からの留学生趙蘭才の協力により行われ、財団法人喫煙科学研究財団からの研究費交付も受け、東京都杉並保健所村松学氏の協力によって行われたもので同財団研究報告集に詳細がある。]

環境水中のリチウムの ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 反応による定量 一第2報一

Determination of Lithium in Environmental Waters by ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ Reaction.

原子炉での熱中性子照射によってリチウム(${}^6\text{Li}$)から(n, α)反応($\sigma=945\text{barn}$)によりトリチウムが生じる。もし、この時生じたトリチウムを、液体シンチレーションカウンターにより測定することができるならば、環境試料水中のリチウムを定量することが可能である。前回の実験では数ppmのオーダーまで定量できることがわかった。今回は、より低い濃度領域での定量の可能性について検討するとともに他の分析法との比較による本法の精度を調べた。

〈実験〉

環境試料水および天然同位体存在比を持つ既知濃度の炭酸リチウム水溶液、各々5mlをポリエチレン試験管に封入し、近畿大学原子炉中央ストリンガーおよび速中性子寄与の異なるサブストリンガーで6時間照射した。これらの試料の周囲には、S粉末およびAu箔を数ヶ所張り付け中性子線束密度の分布を測定した。照射試料は、一ヶ月間放置して短寿命核種の放射能の減衰を待った。その後、標準試料についてはそのまま2mlを、環境試料については減圧蒸留を行い得られた蒸留水のうち2mlをテフロンバイアル(20ml)に取り分け、トリチウムフリー水6ml、乳化シンチレーター (Instagel) 12mlを加えよく混合した後低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター (LSC-LB 1(20ml) Aloka Co.)を用いトリチウムを定量した。クエンチング補正は、外部標準線源チャンネル比法により行った。

〈結果〉

照射した標準溶液中のリチウム濃度とトリチウムの生成放射能との関係をFig. 1に示す。中央ストリンガー (Main) およびサブストリンガー (Sub) とともにリチウム濃度とトリチウム濃度との間には、直線関係が0.数ppmの範囲にまで認められ、リチウム定量時の検量線として十分利用できる。ただしリチウム濃度が0の時の外挿値が0になっていない点については、試薬の不純物による影響等が考えられ、現在さらに検討を行っている。

一方、リチウムに対する原子炉速中性子の寄与を調べるためmono isotopicな ${}^7\text{Li}$ の照射を行ったが ${}^7\text{Li}$ からのトリチウムの生成は認められず、原子炉中性子では天然存在度のLiから生ずるトリチウムはすべて ${}^6\text{Li}$ からであることがわかった。

Table 1には実際の環境試料水に適応した結果を示す。表中にはクロスチェックとして蛍光光度分析法で得られた結果も示す。有馬温泉を除いて両者は良く一致し、この方法が環境水中のリチウム分析に十分可能であることが見い出された。有馬温泉については、塩分濃度が高いため蛍光光度分析が他の元素の妨害を受けたものと考えられる。

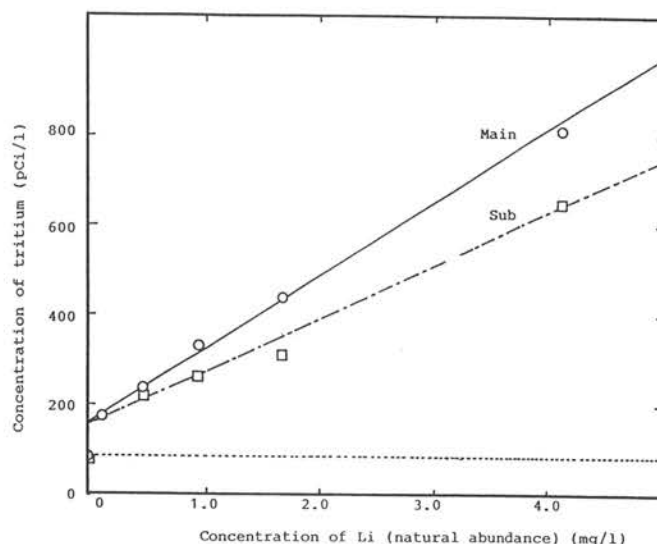


Fig. 1 Correlation between lithium contents of standard solution and tritium produced by neutron irradiation.

Table 1. Comparison between analytical methods.

Sample name	Neutron activation analysis (ppm)	Flame spectrochemical analysis (ppm)
Ishibiki hot spring water (Ishikawa pref.)	0.93	1.02
Ataka sea water (Ishikawa pref.)	2.79	1.73
Lake Don Quixote (Antarctica)	4.77	4.36
Arima (Tenjin) hot spring water (Hyogo pref.)	52.6	109

〔本研究は、近畿大学原子炉共同利用研究として主として大学院生 舘 幹夫の協力により行われ、第30回放射化学討論会(於 東北大学)において発表(2B06)された。〕

「名水百選」にみる日本全国の陸水のトリチウム濃度分析

Distribution of Tritium Concentration in the "Meisui-100 sen" collected all over Japan.

〔はじめに〕

「名水百選」は、全国に存在する清澄で保存状態の良い水として、'85年7月に環境庁より選定された。この「名水百選」を各地域を代表する陸水として、ほぼ同時期（'85年8月～10月）に採取した試料水を用いて陸水のトリチウムの全国的分析状況について検討を行った。なお試料水の内訳は、湧水：78個、河川水：17個、浅層地下水：5個である。

試料水は1ℓポリビンで採取した後、以前に報告した方法で測定した（AR-9 p.12参照）。

〔結果と考察〕

陸水をそのトリチウム濃度により、〔A〕現在の降水の濃度（30～35pCi/ℓ）に近いもの、〔B〕過去の大気圏核実験により大気中に放散されたトリチウムの影響がまだ残存しているもの、〔C〕トリチウムの半減期（12.3年）に比べてはるかに長期間地中に滞留し、トリチウム濃度がB.G. レベル近くまで減衰したもの、という特徴的な3つの型の水とそれらが混合したと考えられるものに分類できる。

「名水百選」の番号と採取地点をFig. 1に、またそれらのトリチウム濃度の測定結果の頻度分布をFig. 2に示す。

全体の頻度分布で特徴的なのは、トリチウム濃度が30～40pCi/ℓの陸水の出現頻度が最も大きく、〔C〕型の水の影響が大きいと推定される20pCi/ℓ以下の濃度の水の出現頻度が非常に小さいことである。このことは、名水と呼ばれる水には地中での滞留時間が約30年以内の比較的新しい降水に由来するものが多いことを示唆している。

一方、地域別の頻度分布をみると、陸水のトリチウム濃度は地域によりかなり異なり、特に北海道地方で濃度が高く中国・四国地方で低い傾向があることがわかる。この傾向は陸水の供給源となる降水のトリチウム濃度分布と類似しているが、今回採取した試料水にはナイベツ川湧水（No.3）のように濃度が150pCi/ℓ以上と最近の降水の濃度の数倍といった値も見られることから、陸水のトリチウム濃度の地域差は、降水のトリチウム濃度の地域差のみでは説明できない。むしろ、〔B〕の水の滞留時間が数10年とかなり長く、滞留時間の地域差の方が関係深いと考えられる。このような観点に立つと、中国・四国地方の陸水のトリチウム濃度が最も低い傾向にあるのは、この地方には比較的高い山脈が存在しないという地理的条件により〔B〕型の水の滞留時間が他の地域よりも短く、現在では〔B〕型の水の影響が小さくなっているためと考えられる。

しかし、このほか降水量の地域差、河川の流域面積や水系の違いなどの因子の影響も考慮の余地がある。



Fig. 1 The sample numbers of "Meisui-100 sen".

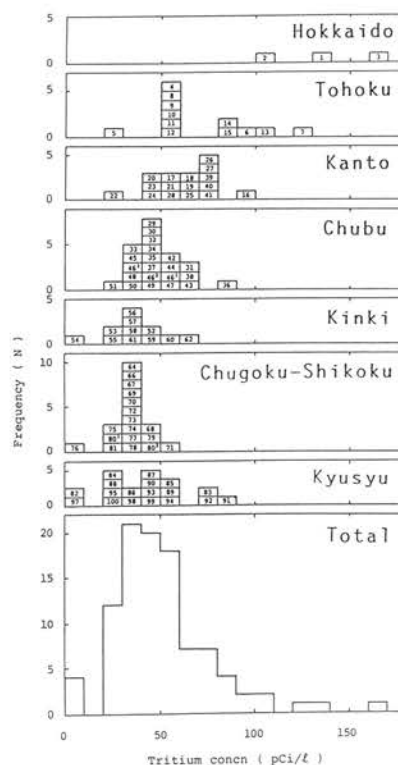


Fig. 2 Frequency distribution of tritium concentration for "Meisui-100 sen".

〔本研究は、昭和60年8月岐阜県郡上八幡で開催の第1回全国水環境保全市町村シンポジウムにさいし、参加各市町村関係者に試料採取用容器を配布し、主として同年8月に採水送付されてきたものを専攻生山田芳宗、大学院生甕 幹夫が技官加藤岩夫の協力を得て行われた。〕

種々の試料中の ^{14}C 比放射能測定とその年代評価への応用

Specific Radioactivity of ^{14}C in Various Samples and its Application to Dating.

従来から当施設で実施しているベンゼン合成・液体シンチレーション測定法により、試料中の放射性炭素(^{14}C)の比放射能(全炭素量に対する比)を求め、遺跡出土の木材・炭質物の年代学的評価を行うとともに、日本酒醸造で放出される CO_2 、さらに比放射能の少ない火山噴気の影響がどの程度周辺の植物に影響するかをみるため、立山で採取した植物についても測定した。なお木材・木炭・植物試料の燃焼、 CO_2 捕集は本施設で開発しLLRL-AR-6 p. 13に記した方法によった。

1. 遺跡出土試料

(1) 和田山下遺跡出土の矢板および杭： 当施設から約3 km西北の国指定遺跡和田山古墳群に隣接する水田の中から発見され、昭和59～60年にわたり詳細な発掘調査が行われた和田山下遺跡(Fig. 1参照)において、溝状遺構や溜樹状土坑の数ヶ所で発見された矢板列や杭列からの試料を寺井町教育委員会から提供をうけ、前処理後測定を行った。結果は下図に示すが、その詳細は寺井町教育委員会の1987年発行の調査報告書にある。

(2) 門前町、大生製鉄遺跡(道下城跡南)の木炭： 昭和61年5月の城跡調査を機縁に発見された製鉄遺跡中の古い形態の炭焼窯からの木炭片が木立雅朗氏により提供されたので、その協力も得て前処理を行い測定した。結果は下図に示すが、詳細は石川県考古学会々誌第30号 p. 79～88 (1987) に考察とともにある。

(3) その他： 下図に参考のためその結果を示すように、京都市山科区大岩タタラ跡、長岡京市長岡京跡および米子市刀鍛冶跡からの試料の提供をうけたのでそれらの年代評価も試みた。

2. 日本酒醸造過程で放出される CO_2

すでにLLRL-AR-9 p. 14にも述べたような発酵過程、捕集過程中的同位体効果の有無を検討するため、本年度も4回にわたり採取を行い、その比放射能を測定したが、下図に示す程度の変動であった。

3. 立山で採取の植物試料

火山噴気の影響の有無を検討するため、環境庁の許可を得て採取した立山地獄谷噴気口から0.7 kmのところの枯木灌木と、2.6 km離れている場所で採取した枯木について測定を行い、下図に示す結果のように火山噴気に近い試料では比放射能の低下が認められ、このような影響は年代測定については注意すべきことを確認した。



Fig. 1 Locations of various ruins near our laboratory (LLRL).

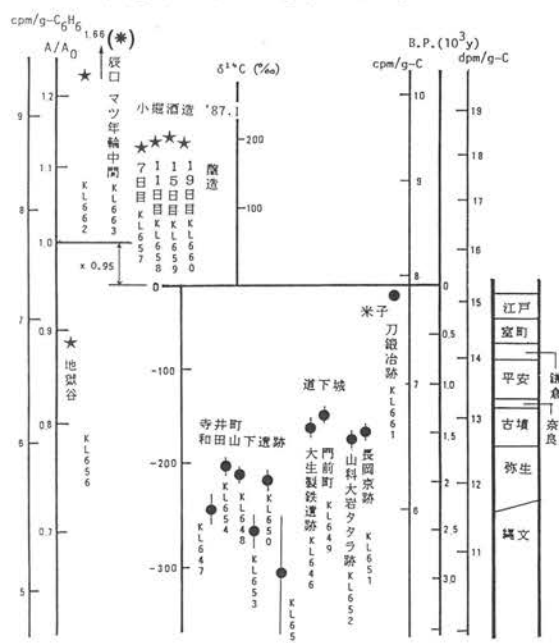


Fig. 2 Specific activities and chronological estimations.

[本研究は主として卒研生永井雄三の実験測定により行われ、遺跡関係試料についてはそれぞれについて出版された報告書に掲載されている。]

気候最良期における海洋環境の精密解析

Precision Analyses of Oceanic Paleoenvironment during the Climatic Optimum: Sclerochronological Approach.

氷床コア、海底堆積物、海流系などの研究から第四紀においては気候変動と炭素循環が密接に結び付いていることが明らかになりつつあり、その詳細なメカニズムの解明が最近の二酸化炭素問題とも絡んで早急に解決すべき重要課題となっている。海底堆積物のうちで、イシサンゴ骨格は、時間的解像力が高く、 CaCO_3 の骨格をつくるために同一サンプルで生育当時の①表層海水中的“放射性炭素濃度”②vital effectを考慮すれば“酸素安定同位体比”による古水温（あるいは海水中的 $\delta^{18}\text{O}$ 値）③“炭素安定同位体比”による共生藻類（褐虫藻）の光合成量（あるいは海水中的 $\delta^{13}\text{C}$ 値）④定性的だが“成長速度”による冬季日照量、水温等を推定できる。このように多くの情報が得られるため、気候変動と炭素循環の因果関係を明らかにする上で格好の研究材料であるといえる。そこで本研究では、まだ報告例のない、気候最良期の海洋環境の経時変動解析をイシサンゴ骨格年代学を用いて試みた。

放射性炭素濃度測定には、ベンゼン合成後に液体シンチレーションカウンターを、酸素炭素安定同位体比測定にはマッキニー型気体同位体比測定用質量分析計を用い、成長速度測定にはノギスを用いた。分析試料は、喜界島の隆起サンゴ礁（太田他（1978）の完新世海成段丘第1面；採取高度約7 m a.m.s.l.）産化石ハマサンゴ（*Porites lutea*）群体である。群体は直径約2 m、群体年齢75年、群体中央部の放射性炭素年代は小西他（1985）によるリザーバー効果（琉球中部海域の海生生物化石は陸上生物化石より約240年、放射性炭素年代値が古く算出される）の補正を施すと5930±30yr B.P.(H.L. 5730yr); 5760±30yr B.P.(H.L. 5568yr)と算出された。

分析の結果以下のことが明らかになった。

（1）サンゴの生育した約70年間を通じて放射性炭素濃度は増加傾向にあり、3点スムージングにより見積った正味変動幅は、32‰であった。本島周辺海域には大規模湧昇流は知られておらず当時も同様であったと仮定すれば、この変動は大気中の放射性炭素濃度を主に反映しており、太陽活動は静穏期に向かっていたと推定できる。

（2）酸素同位体比による古水温推定の結果、ca. 6000yr B.P. 当時は年平均水温は現在に匹敵するほど高く、水温の季節変動幅は小さかったと推定できる。

（3）炭素同位体比の変動は放射性炭素濃度変動と弱いながら正の相関（相関係数0.32）があり、これは水温の上昇による、褐虫藻の光合成量増加と大気-海洋間の CO_2 交換速度増加による放射性炭素濃度増加で説明でき、この影響と放射性炭素濃度生成率変化との和として表層海水中で約70年間に32‰もの放射性炭素濃度変動が見られたと推定される。

（4）年間成長速度は7.2~13.2mmの間を変動し、平均は10.0mmであった。これは喜界島産現生サンゴとの比較から高水温を示し、上記古水温推定の結果を支持する。

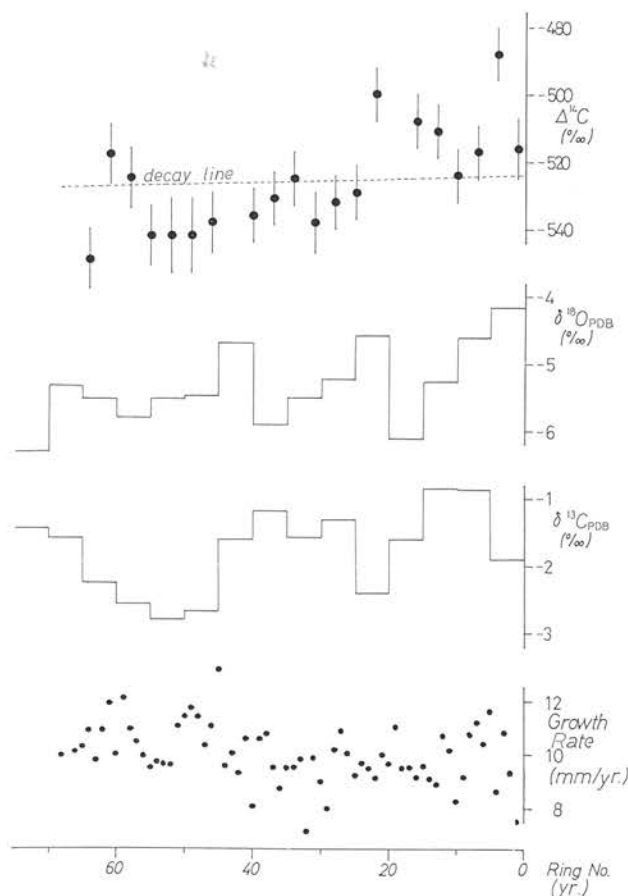


Fig. 1 Secular variations of $\Delta^{14}\text{C}$ (error bars represent one-sigma counting errors), $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$, $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ and growth rate for a fossil *Porites lutea* (lived in the Climatic Optimum) from Kikai-jima. The horizontal axis represents the ring numbers (beginning at the band coincident with time of death ($x=0$)).

〔本研究は、大学院生小嶋一彰・卒研究生寺門浩之が卒業研究課題として行ったものである。〕

人
事

《施設職員》

施設長(併)
(教授) 阪上正信
教 授 阪上正信
客員教授 滝澤行雄
客員教授 池辺幸正
助 教授 小村和久
助 手 山本政儀
技 官 加藤岩夫
事務補佐員 中本美智代

《運営委員》 (任期 60年6月～62年5月)

理 学 部 小西健二 梅鉢幸重
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 矢倉公隆
教 養 部 定塚謙二
医療技術
短 大 安東醇

《文部省留学生》

馬 吉 増 (中華人民共和国)
61.1～62.3

《聴講生》

趙 蘭 才 (中華人民共和国)
61.5～62.3

新規
納入
設備

シンクロスコープ
岩通 SS-5712型
ハイボリュームエアースAMPLER
柴田科学 HVC-1000
温度制御ユニット
CHINO SU02-11D
振とう器
ヤマト科学 SA-31型
恒温槽
大洋科学工業 DX-80
ラボスターラー
ヤマト科学 L-35型
ドライグシエルフ
柴田科学 DSC-C型
タイプライター
ブラザー EM-701
除雪機
YAMAHA YT-875

(委託
研究
費等
による)使
用
量

液体窒素 6,600 ℓ
A 重 油 2,726 ℓ
電 気 159,250KWH
水 道 1,961m³

研
究
報
告

- 阪上正信, 地層処分になぜネプツニウムか?, 昭和58, 59, 60年度文部省科学研究費総合研究(A)「放射性廃棄物の地層処
分に関する総合的基礎研究」報告書, p.51-67 (1986)。
阪上正信, 放射能分析と歩みつつ, 日本分析センター広報11号, p. 27-35 (1986)。
小村和久, 坂本 浩, 本田雅健, 放射性核種の計数法, 実験物理学講座25, 宇宙放射線, 共立出版株式会社, p. 515-537 (1986)。
K. Terada, M. Hamano, K. Komura and K. Matsumoto, The Distribution and Characterization of ¹³⁷Cs in
Shallow water Sediments, Bull. Chem. Soc. Jpn. 59, p. 1863-1868 (1986)。
阪上正信, 小村和久, 石川県内における放射性核種分布に関する調査研究, 昭和60年度石川県委託研究「環境放射能調査報
告書」, p. 23-46 (1986)。
岩田悦夫, 阪上正信, 活性炭吸着法による室内ラドンの測定, ラドン族調査研究委員会編「大気中のラドン族と環境放射能」,
日本原子力学会発行, p. 55-64 (1985)。
阪上正信, 長寿命核種Pb-210からみたラドン娘核種——とくにその蓄積について——, ラドン族調査研究委員会編「大気
中のラドン族と環境放射能」, 日本原子力学会発行, p. 159-167 (1985)。
阪上正信, 多田哲郎, タバコ葉とその喫煙に伴う放射性核種——種々の試料中の²¹⁰Poと加熱によるその娘²¹⁰Pbとの挙動
比較——, 財団法人喫煙科学研究財団昭和60年度「喫煙と健康に関する研究報告」, p. 87-91 (1986)。
山田芳宗, 翫 幹夫, 加藤岩夫, 阪上正信, 金沢市および六甲山周辺等の地下水のトリチウム濃度, 地球化学20(1) p. 1
-12 (1986)。
山田芳宗, 翫 幹夫, 加藤岩夫, 阪上正信, トリチウムによる陸水の地球化学的研究, 地球化学 20(2) p. 93-97 (1986)。
多田哲郎, 趙 蘭才, 小村和久, 阪上正信, 大気中の放射性核種濃度の変動に関する研究, 地球化学 20(2) p. 98-102
(1986)。
阪上正信, 林 巧, 小村和久, 山本政儀, U-234/U-238放射能比にみられる地球化学的過程でのホット粒子の挙動, 昭
和61年度文部省科学研究費総合研究(A)「ホットな粒子系を中心とする原子核の特性とその反応の化学的応用に関する
研究」報告書, p. 40-42 (1987)。
T. Aoyama, H. Yonehara, M. Sakanoue, S. Kobayashi, T. Iwasaki, M. Mifune, E. P. Radford and H. Kato,
Long-Term Measurements of Radon Concentrations in the Living Environments in Japan, Radon and Its
Decay Products, ACS Symposium Series 331, American Chemical Society, Washington, p. 124-136 (1987)。
H. Yonehara, H. Kimura, M. Sakanoue, E. Iwata, S. Kobayashi, K. Fujimoto, T. Aoyama and T. Sugahara,
Improving Bare-Track-Detector Measurements of Radon Concentrations, Radon and Its Decay Products,
ACS Symposium Series 331, American Chemical Society, Washington, p. 172-185 (1987)。
山本政儀, 環境中のネプツニウム-237分析について, Radioisotopes 35(4) p. 26(1986)。
阪上正信, 天智と人智, Isotope News 19 1987年3月号 p. 1 (1987)。

昭和61年度 見学来訪・調査出張の記録

- 昭和61.4.4 北京原子能研究院劉 書田氏, 中国核工業部輻射防護研究所李 伝琛氏, 動力炉核燃料開発事業団圓尾好宏氏見学
- 4.11 ◎運営委員会人事小委員会第2回会合(助手選考推薦)
- 4.17 ◎理学部教授会に選考委員会設置
- 5.19 ◎昭和61年度第1回運営委員会(於 理学部) ◎第1回理学部選考委員会(助手人事)
- 5.13 薬学部学生40名見学・実習
- 5.22 ◎理学部教授会で北陸大学山本政儀助手を採用決定
- 5.27 薬学部学生40名見学・実習
- 6.9 中華人民共和国原能会林 友明氏, 林 培大氏, 周 冬宝氏, 清華大学翁 宝山氏, 許 全忠氏見学
- 6.22 理学部選考委員会(客員教授)
- 6.12, 10.15, 62.3.26~27 [岐阜県御母衣ダム地下測定室にて環境放射能測定]
[富山県立山にて環境放射能測定のための試料採取]
- 7.28~30 [富山県立山にて環境放射能測定のための試料採取]
- 8.4 北陸大学小林 正氏研究打ち合せ
- 8.13 日本原子力研究所今井利夫氏研究打ち合せ, 見学
- 8.23~9.9 阪上教授「国際核化学放射化学会議」出席及び放射線防護研究所等訪問のため中華人民共和国へ研修
- 8.30 福井大学工学部永島幸雄氏, 福井高専工業化学科佐々木与志実氏, 小泉貞之氏見学
- 9.6 東京大学海洋研究所平 朝彦教授来所
- 9.12 理学部化学科3年生44名見学・実習
- 9.19 Dr. Eric Mountjoy (McGill University Dept. of Geology Montreal) セミ, 見学
富山医科薬科大学R I 実験施設守田美雪氏研究打ち合せ
- 9.26, 10.29~11.1, 12.12~13 東京大学宇宙線研究所須田英博助教授, 手嶋政広博士神岡地下水ウラン, トリウム, ラジウム分析
- 9.30 日本原子力研究所代田晋吾氏, 野村正之氏, 川崎 実氏来所
- 10.6 黒田和夫教授(University of Arkansas, U.S.A.) セミ, 見学, 秋田大学医学部滝沢行雄教授, 名古屋大学池辺幸正教授研究打ち合せ
◎昭和61年度第2回運営委員会(於 理学部)
- 10.9 農林水産省畜産試験場主任研究官三橋俊彦氏, 農水省農業環境技術研究所環境管理部結田康一氏, 放射線医学総合研究所河村日佐男氏見学
- 10.10 日本放射線影響学会参加者20名見学
- 11.4 E. Roth氏(CEA.Centre d'études nucléaires de Saclay, France) セミ, 見学
- 11.4 ◎理学部教授会に選考委員会設置(第1回)
- 11.5 ◎持ち回り運営委員会
- 11.12 ◎運営委員会小委員会(教授人事)
- 11.13 九州大学工学部古屋廣高氏, 佐藤正知氏見学
- 11.15 医療技術短期大学学生40名見学
- 11.17~20 [福井県三方五湖の堆積物採取]
- 11.20 ユーリッヒ原子核研究所B. Sansoni教授(西ドイツ) セミ, 見学, 福井工業大学山本勇麗教授来所
- 12.3 ◎第2回理学部選考委員会(教授人事)
- 12.14~15 [石川県内のおもな河川水トリチウム測定のためサンプリング]
- 12.25~26 秋田大学医学部久松俊一氏研究打ち合せ
- 12.27 日本原子力研究所柳瀬信之氏来所
- 62.1.27 ◎第3回理学部選考委員会(教授人事)
- 2.2 ◎運営委員会小委員会(教授人事)
- 2.3 ◎持ち回り運営委員会
- 2.5 ◎第4回理学部選考委員会(教授人事)
- 2.12 科学技術庁原子力安全局防災環境対策室山元孝二室長, 山本英明技官研究打ち合せ
- 2.12 ◎持ち回り運営委員会(施設長人事)
- 2.22~24 [近畿大学原子力研究所にて共同研究]
- 2.27 東京大学宇宙線研究所手嶋政広博士神岡地下水ウラン, トリウム, ラジウム分析
- 3.16 ◎第5回理学部選考委員会(教授人事)
- 3.16 理学部教授会で後任教授(日本原子力研究所化学部長上野 馨博士)決定
- 3.16 ◎昭和61年度第3回運営委員会(於 理学部)
秋田大学医学部滝沢行雄教授, 名古屋大学池辺幸正教授研究打ち合せ

低レベル放射能実験施設 昭和61年度研究概要・年次報告 1987年6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