

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

1987.4～1988.3

Annual Progress Reports of

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

## 目 次

着任にあたり新たな発展を期して（施設長）	2
岩石標準試料中のウラン，トリウム，カリウムの測定	3
南極ドライバレー地域の環境放射能	4～5
桜島周辺の大気中の <sup>210</sup> Pb, <sup>210</sup> Po濃度	6
モンテカルロ法によるγ線自己吸収の補正	7
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－第2報－	8
α線スペクトロメトリーによる環境中 <sup>237</sup> Npの定量－第3報－	9
三方五湖の湖底堆積物試料中の超ウラン元素(Np, Pu, Am)	10
液体シンチレーションカウンターによる環境試料中の <sup>241</sup> Puの定量	11
樹木中のトリチウムの定量	12
リチウムの <sup>6</sup> Li(n, α)T反応による定量－第3報－	13
表層海水中の放射性炭素濃度の経年変動とCO <sub>2</sub> ガス交換	14
昭和62年度・施設設備品・運営人事関係諸資料；研究報告	15
昭和62年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

## 着任にあたり新たな発展を期して

低レベル放射能実験施設長 上野 馨

“低レベル放射能実験施設”は、昭和51年開設以来環境放射能研究や核地球化学研究の分野で多数の研究成果を発表してきました。当施設の建設及び拡張に献身的に努力され、常に学生の指導と研究推進の先頭に立っておられた阪上正信教授は昭和62年3月末をもって停年退官されました。先生の教育者、科学者としての存在が偉大であったために、その後の学生の育成と研究の進展に大きな支障が生じるのではないかと心配いたしましたが、幸い寺田喜久雄理学部長の施設長としての適切なご指導により、又低レベル放射能実験施設運営委員会の各委員、理学部の諸先生方のご援助と、当施設職員の努力により大きな停滞もなく教育と研究を進めることができたことに安堵しています。

昭和62年7月に着任いたしまして以来、施設を最も良い状態で、よく機能し、特徴のある開かれた研究施設として教育と研究を滞りなく円滑に進めるためには何を為すべきかについて職員一体となって考え、当面は従来の研究を継続して進展を図り、随時新規テーマを加えていくことにいたしました。一方設備の整備につきましては、理学部事務長を始めとする事務系の方々のご協力により、Ge検出器、ドラフトチェンバーの更新など懸案事項が次々に解決し、施設内の諸装置はもとより、御母衣ダム地下に設置してある極低レベル放射能測定装置も活用できる状態になりました。これらの諸装置は学生の実習並びに研究に大いに役立てたいと思っています。

当年度の主な研究成果として環境試料中の極微量<sup>237</sup>Npの定量を挙げることができます。<sup>237</sup>Npは大気中での核爆発実験に伴う放射性降下物及び使用済み燃料の再処理に伴う放出廃棄物として環境中に広く分布しています。

<sup>237</sup>Npは半減期( $2.14 \times 10^6$ 年)が長く存在量が少ないので環境試料中の濃度測定はほとんど行われていなかったのですが、化学分離法と $\alpha$ 線測定法を併用する、新たに開発した定量法により存在量を求めるができるようになりました。この研究により酸化物の形で地表に落下した<sup>237</sup>Npと、セラフィルド再処理工場より廃液として放出されたイオン状の<sup>237</sup>Npの環境における分布に係わるデータを取得することができました。これら基礎データは長期に亘る人体の被曝線量評価や、原子力平和利用に伴って発生する再処理廃棄物の処理・処分のために必要なものであります。今後は核地球化学的立場よりさらに研究を進めることにしています。一方天然放射性核種の研究として大気中<sup>210</sup>Pb濃度の季節変動の測定を行っていますが、これと並行して桜島噴出物中の<sup>210</sup>Po含有量の測定を行いました。これらの結果は噴火活動と<sup>210</sup>Po噴出量の相関についての知見を得るだけではなく、比較的多量に放出される $\alpha$ 線放射体による被曝線量の評価に必要なデータを提供することになります。この他セルロースの簡易単離法(下の写真を参照)を併用した年輪と固定<sup>3</sup>H濃度の相関についての研究、神岡陽子崩壊実験所周辺の天然放射性核種に係わるバックグラウンド研究などを挙げることができます。これらは当研究室の特技である低レベル $\alpha$ 線、 $\beta$ 線及び $\gamma$ 線測定技術を駆使した研究の成果であり、今後発展させたい研究であります。

「実験が未知を開き、理論が既知を固める」と言う教えに沿い、両足を大地におろし、大学に課せられた学生の教育と、生活環境に存在する放射性核種に係わる世間の要請の解決に必要な基礎研究を勢力的に進め、ユニークな研究施設として発展させるよう努力したいと思っていますので、関係ある方々の有意義なご要望、ご指示、ご鞭撻をお願いいたします。



## 岩石標準試料中のウラン、トリウム、カリウムの測定

### Measurements of Uranium, Thorium and Potassium Contents in GSJ Geochemical Reference Samples

従来、分析化学、地球化学、岩石・鉱物学などの分野で広く利用されてきた岩石標準試料 JG-1 と JB-1 は、在庫がなくなったため、1981年から87年にかけて新たに15種の“火成岩シリーズ”と3種の“堆積岩シリーズ”的標準試料が地質調査所より発行された。現在、通常の化学分析や、各種の機器分析、中性子放射化分析法など様々な方法で分析が行われており、結果が揃いつつある。このうちウラン、トリウム、カリウムは $\gamma$ 線測定による定量が可能であり、非破壊 $\gamma$ 線スペクトロメトリーによる定量を試みた。

粉末試料そのままで成形し難い場合には、一定量の塩化ナトリウム粉末をバインダーとして添加し、油圧器により直径5cmの測定用線源を作成した。ウランおよびトリウムの標準には、系列核種が放射平衡にある New Brunswick Laboratory (NBL) 発行のウラン (No. 42-1) およびトリウム (No. 106) を塩化ナトリウム粉末で0.1%にまで希釈したものを、カリウムの標準には、塩化カリウム粉末を用い、測定試料と同形同大の線源を作成し、 $\gamma$ 線の検出効率を求めた。各試料の測定は、 $^{226}\text{Ra}$  と  $^{222}\text{Rn}$  の平衡を待って、少なくとも3週間保存の後、それぞれ Ge(Li) 検出器（相対効率18%）および低エネルギー $\gamma$ 線の測定に有効な Ge-LEPS (有効面積8cm<sup>2</sup>) により3~6日間測定した。

Ge(Li) 検出器による測定では、ウラン系列、トリウム系列核種が放射平衡にあると仮定し、ウランの定量には  $^{214}\text{Bi}$  と  $^{214}\text{Pb}$  からの $\gamma$ 線を、トリウムの定量には  $^{228}\text{Ac}$ ,  $^{212}\text{Pb}$  および  $^{208}\text{Tl}$  からの $\gamma$ 線を、またカリウムの定量には  $^{40}\text{K}$  からの $\gamma$ 線を用いた。一方、Ge-LEPS による測定では、ウランの定量には  $^{234}\text{Th}$  を、トリウムの定量には  $^{212}\text{Pb}$  からの低エネルギー $\gamma$ 線をそれぞれ用いた。Table 1 に測定結果を示す。これから分かるように、Ge(Li) 検出器による結果と Ge-LEPS による結果はトリウムについては測定の統計誤差の範囲内で非常によく一致しており、ウランについても JG-1, JG-1a, JG-3, JLk-1 以外は良く一致している。ウランにおけるこの不一致は、Ge-LEPS による測定が、 $^{238}\text{U}$  のすぐ娘核種である  $^{234}\text{Th}$  で行っているのに対し、Ge(Li) 測定では、比較的長寿命の  $^{230}\text{Th}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  をはさんだ遠い娘核種によっており、これらの間に非平衡があるためと考えられる。JG-1, JG-1a, JG-3 では  $^{226}\text{Ra}$  が過剰に存在していると推定される。一方、湖底堆積物 JLk-1 では  $^{226}\text{Ra}$  が溶出したため Ge(Li) による値が低いのであろう。今回得られたウラン、トリウム、カリウムの値は、地質調査所の安藤らがまとめた値と比較的よく合っている。なお JLk-1 ではフォールアウトの寄与として説明される  $^{210}\text{Pb}$  の加剰 ( $^{210}\text{Pb}/^{238}\text{U} = 3.14 \pm 0.20$ )、と核実験由来の  $^{137}\text{Cs}$  ( $45 \pm 2$  mBq/g) が検出された。

Table I. Uranium, thorium and potassium contents in GSJ samples.

Reference material	U (ppm)	Th (ppm)	K <sub>2</sub> O (%)	Detector used
JA-1	0.30 ± 0.15 0.32 ± 0.02	0.79 ± 0.15 0.88 ± 0.05	0.76 ± 0.02	Ge-LEPS Ge(Li)
JA-2	2.54 ± 0.23 2.33 ± 0.04	5.05 ± 0.22 5.18 ± 0.12	1.83 ± 0.04	Ge-LEPS Ge(Li)
JA-3	1.12 ± 0.13 1.22 ± 0.03	3.67 ± 0.15 3.44 ± 0.09	1.37 ± 0.03	Ge-LEPS Ge(Li)
JB-1	1.78 ± 0.19 1.68 ± 0.04	9.21 ± 0.25 9.45 ± 0.17	1.42 ± 0.03	Ge-LEPS Ge(Li)
JB-1a	1.56 ± 0.24 1.56 ± 0.06	8.44 ± 0.29 8.75 ± 0.26	1.38 ± 0.06	Ge-LEPS Ge(Li)
JB-2	LTD* 0.28 ± 0.02	LTD* 0.25 ± 0.05	0.44 ± 0.02	Ge-LEPS Ge(Li)
JB-3	0.61 ± 0.11 0.63 ± 0.05	1.36 ± 0.13 1.26 ± 0.10	0.81 ± 0.03	Ge-LEPS Ge(Li)
JF-1	0.27 ± 0.17 0.38 ± 0.03	1.29 ± 0.14 1.35 ± 0.09	10.18 ± 0.10	Ge-LEPS Ge(Li)
JF-2	LTD* 0.13 ± 0.02	0.33 ± 0.05 0.45 ± 0.06	13.15 ± 0.15	Ge-LEPS Ge(Li)
JG-1	3.95 ± 0.27 4.96 ± 0.09	14.40 ± 0.36 14.48 ± 0.24	3.98 ± 0.04	Ge-LEPS Ge(Li)
JG-1a	4.76 ± 0.31 5.89 ± 0.09	12.91 ± 0.36 13.14 ± 0.23	4.06 ± 0.06	Ge-LEPS Ge(Li)
JG-2	11.23 ± 0.56 10.96 ± 0.14	33.57 ± 0.48 33.33 ± 0.44	4.76 ± 0.10	Ge-LEPS Ge(Li)
JG-3	2.36 ± 0.14 2.63 ± 0.04	8.15 ± 0.22 8.31 ± 0.13	2.70 ± 0.04	Ge-LEPS Ge(Li)
JGb-1	0.11 ± 0.06 0.15 ± 0.02	0.41 ± 0.08 0.42 ± 0.07	0.24 ± 0.01	Ge-LEPS Ge(Li)
JP-1	LTD* LTD*	LTD* LTD*	LTD*	Ge-LEPS Ge(Li)
JR-1	9.68 ± 0.35 9.90 ± 0.11	26.76 ± 0.40 27.06 ± 0.25	4.52 ± 0.04	Ge-LEPS Ge(Li)
JR-2	11.25 ± 0.31 12.36 ± 0.17	31.28 ± 0.63 32.45 ± 0.44	4.54 ± 0.05	Ge-LEPS Ge(Li)
JDo-1	1.04 ± 0.13 0.97 ± 0.03	LTD*	LTD*	Ge-LEPS Ge(Li)
JLk-1	3.90 ± 0.19 3.45 ± 0.08	19.10 ± 0.42 19.77 ± 0.29	2.86 ± 0.05	Ge-LEPS Ge(Li)
JLs-1	1.85 ± 0.17 1.88 ± 0.06	LTD*	LTD*	Ge-LEPS Ge(Li)

\* LTD : less than detectable.

[本測定の一部は、大学院生 陣 国龍が行った。小村、陳、上野の連名で Geostandards Newsletter に提載される。]

## 南極ドライバレー地域の環境放射能

### Environmental Radioactivity of the Dry Valleys Region in Antarctica

1984年の10月から12月にかけて、南極ビクトリアランドのドライバレー地域で採取した種々環境試料および水試料について天然および人工放射性核種の測定を行った。岩石、砂、エバポライトおよび藻類のウラン、トリウム、カリウム、<sup>137</sup>Cs含有量、大気浮遊塵試料の<sup>210</sup>Pbと<sup>7</sup>BeはGe(Li)検出器またはGe-LEPSを用いる非破壊γ線測定により、また湖水・氷河融水等のウラン同位体および<sup>226</sup>Ra濃度は、放射化学的分離精製の後、ステンレス鋼板上および銀板上に電着し、Si(Au)検出器を用いたα線測定により定量した。

Fig 1にドライバレー地域の概要を、Table 1~4に測定結果を示す。なお非破壊γ線測定によるウランとトリウムの値は各系列核種が放射平衡にあると仮定し、それらの娘核種<sup>214</sup>Pbおよび<sup>212</sup>Pbからのγ線より求めたものである。Table 1から分かるように岩石、砂試料のウラン、トリウム、カリウム含有量は、かなり広範囲にわたっているが、全般的な傾向としてロス島の黒色砂試料(1~4, 7~12)ではこれらの値がいずれも高く、他の地域の試料では比較的低いといえる。中でもドンキホーテ池周辺(61~66, 68~78)、およびラビリンス地域の砂やエバポライト試料(79~88)ではこれらの濃度が低く、とくにトリウム含有量が低いのが特長である。放射能汚染を評価する目安となる核実験由来の<sup>137</sup>Cs含有量は、砂、岩石試料では、試料3, 4除いてほとんどが検出限界以下か0.1 pCi/g以下であり、わが国の未耕地の表層土壌のそれより1~2桁低い。しかし苔類を含む試料(3, 4)や藻類(Table 2)では<sup>137</sup>Cs濃度が比較的高く、これらはフォールアウト核種をよく保持していて汚染評価の指標として有効な試料と考えられる。

なお、藻類についてはGe-LEPSを用いて<sup>234</sup>Thによるウランの測定も行ったが、いずれもGe(Li)検出器を用いた<sup>214</sup>Pbによる値よりも高く、これらの試料が比較的多くのウランを濃縮しており、<sup>226</sup>Ra以下の娘核種が放射平衡に達していないことが分かった。

**Table I.** Uranium, thorium, potassium and <sup>137</sup>Cs contents in rocks, sands and evaporites collected from the Dry Valleys region in Antarctica.

No. sample	Measured Sampling location	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)	Cs-137 (pCi/g)
<b>[Ross Island]</b>					
1	Grey rock Mt. Erebus	5.75 ± .18	16.60 ± .50	3.39 ± .09	n.d
2	Grey rock "	7.03 ± .14	19.68 ± .59	3.86 ± .06	n.d
3	Black sand Side of TESL	4.43 ± .18	14.66 ± .59	2.22 ± .07	0.671 ± .028
4	Black sand "	3.76 ± .11	13.56 ± .54	2.43 ± .07	1.187 ± .036
5	Black sand Arrival Ht.	1.81 ± .09	5.16 ± .26	1.56 ± .04	0.024 ± .005
6	Black sand "	1.85 ± .06	6.32 ± .20	1.34 ± .03	0.045 ± .005
7	Black sand Cape Bird-1	3.08 ± .09	11.88 ± .37	2.07 ± .05	0.004 ± .001
8	Black sand "	3.12 ± .09	11.23 ± .35	2.02 ± .06	n.d
9	Black sand Cape Bird-2	3.14 ± .10	10.71 ± .32	2.12 ± .06	0.132 ± .008
10	Black sand "	6.44 ± .19	18.58 ± .57	3.49 ± .07	n.d
11	Black sand Cape Royds-1	2.91 ± .09	8.69 ± .26	1.84 ± .05	n.d
12	Black sand Cape Royds-2	6.27 ± .19	17.96 ± .55	3.38 ± .08	n.d
13	Black sand Turtle rock	0.77 ± .04	2.40 ± .10	0.78 ± .03	n.d
<b>[Taylor Valley]</b>					
14	Sand L. Fryxell	0.85 ± .05	5.62 ± .22	1.67 ± .05	0.232 ± .006
15	Sand "	1.12 ± .06	6.65 ± .27	2.01 ± .05	n.d
16	Sand "	0.86 ± .08	4.41 ± .26	2.00 ± .05	0.071 ± .010
17	Sand + Lichen "	1.48 ± .07	7.56 ± .30	1.81 ± .06	0.435 ± .021
18	Sand + Lichen "	1.28 ± .19	4.66 ± .23	0.89 ± .03	0.011 ± .005
19	Sand + Lichen "	0.72 ± .11	4.23 ± .64	0.94 ± .04	0.396 ± .021
<b>[Wright Valley] (Lake Vanda)</b>					
20	Sand Delta area	0.94 ± .07	5.40 ± .22	0.98 ± .03	0.051 ± .003
21	Sand Delta area	0.66 ± .08	4.28 ± .17	0.39 ± .01	0.031 ± .003
22	Sand Delta area	1.60 ± .08	13.56 ± .70	2.03 ± .07	0.018 ± .005
23	Fine sand Delta area	1.37 ± .07	12.84 ± .39	2.01 ± .05	0.026 ± .007
24	Sand Shore	0.87 ± .07	4.66 ± .23	0.89 ± .03	0.011 ± .005
25	Sand Shore	0.79 ± .05	3.79 ± .19	1.04 ± .04	0.047 ± .007
26	Sand Shore	0.84 ± .06	4.94 ± .25	1.11 ± .03	0.071 ± .009
27	Pine granite Lake Bull	1.04 ± .06	16.90 ± .51	4.52 ± .10	n.d
<b>(South Fork and Don Juan Pond)</b>					
28	Sand Dais-1	1.61 ± .08	9.12 ± .36	1.90 ± .06	n.d
29	Sand Dais-2	0.84 ± .05	4.00 ± .16	0.99 ± .04	n.d
30	Sand Dais-3	0.79 ± .04	4.58 ± .18	1.06 ± .03	n.d
31	Grey sand + 130m point	0.87 ± .07	4.86 ± .19	1.17 ± .95	n.d
32	Sand VXE-6 pond	0.79 ± .05	2.91 ± .15	1.02 ± .04	0.043 ± .007
33	Sand "	0.79 ± .07	5.39 ± .32	1.03 ± .04	n.d
34	Evap. (0-2cm) Unknown pond	0.94 ± .05	4.47 ± .13	1.14 ± .03	0.028 ± .006
35	" (2-5cm) "	1.31 ± .07	5.94 ± .17	0.95 ± .04	n.d
36	" (5-10cm) "	1.17 ± .06	5.25 ± .21	1.17 ± .03	n.d
37	" (10-15cm) "	0.98 ± .15	5.00 ± .51	1.29 ± .06	n.d
38	Granite Don Juan P.	0.67 ± .05	6.90 ± .26	2.25 ± .06	n.d
39	Evap. (0-2cm) Don Juan P.-1	1.01 ± .07	3.19 ± .16	0.98 ± .03	n.d
40	" (2-5cm) "	1.18 ± .08	4.11 ± .33	0.88 ± .04	n.d
41	" (5-10cm) "	1.14 ± .08	3.54 ± .18	0.89 ± .04	n.d
42	" (10-15cm) "	1.22 ± .07	3.33 ± .17	0.87 ± .04	n.d
43	Evap. (0-2cm) Don Juan P.-2	6.11 ± .18	7.86 ± .32	1.54 ± .06	n.d
44	" (2-5cm) "	8.20 ± .25	9.05 ± .24	1.71 ± .05	n.d
45	" (5-10cm) "	4.68 ± .14	5.57 ± .28	1.24 ± .05	n.d
46	" (10-15cm) "	3.81 ± .19	5.22 ± .26	1.27 ± .04	n.d
47	Sand Don Juan Pond	1.39 ± .07	2.95 ± .18	1.20 ± .03	n.d
48	Sand + evap. East end	1.13 ± .07	6.19 ± .25	1.28 ± .04	0.022 ± .006*
49	Sand East (mummy)	0.93 ± .05	6.08 ± .24	1.06 ± .04	n.d
50	Sand North-west	1.52 ± .09	8.98 ± .27	1.74 ± .05	n.d
51	Sand Campsite	1.20 ± .07	7.56 ± .30	1.59 ± .04	n.d
52	Sand N of campsite	1.17 ± .06	6.64 ± .27	1.22 ± .04	n.d
53	Sand E of "	0.97 ± .08	3.86 ± .19	0.92 ± .04	n.d
54	Sand E-100m "	5.71 ± .17	12.26 ± .37	1.46 ± .07	n.d
55	Sand E-150m "	0.93 ± .05	6.08 ± .24	1.06 ± .04	0.031 ± .004
56	Sand W of "	3.24 ± .10	10.24 ± .31	1.78 ± .06	n.d
57	Sand W (h=300m)	0.83 ± .03	3.34 ± .17	0.86 ± .03	0.041 ± .003
58	Sand W (h=515m)	1.57 ± .06	7.04 ± .21	1.15 ± .04	0.015 ± .006
59	Sand SF-2 Pond	0.79 ± .04	3.54 ± .14	0.79 ± .03	n.d
<b>(North Fork and Don Quixote Pond)</b>					
60	Sand Campsite	1.24 ± .07	4.98 ± .25	1.22 ± .04	n.d
61	Sand E of "	0.71 ± .04	2.51 ± .15	0.53 ± .02	0.033 ± .005
62	Sand N of "	0.78 ± .05	3.01 ± .18	0.70 ± .03	n.d
63	Sand W (h=368m)	0.51 ± .04	1.98 ± .12	0.43 ± .02	0.058 ± .007
64	Sand + evap. NF-1+2 pond	0.47 ± .05	2.38 ± .23	0.65 ± .03	0.072 ± .012
65	Sand + evap.	0.82 ± .04	3.62 ± .14	1.14 ± .03	n.d
66	Sand + evap. NF-4 pond	0.56 ± .06	2.15 ± .22	0.62 ± .02	0.063 ± .009
67	Sand (0-7cm) D.Q. pond-E	1.31 ± .08	9.78 ± .49	1.99 ± .05	n.d
68	Evap. (0-2cm) D.Q. pond-1	0.61 ± .06	2.13 ± .30	0.51 ± .03	0.050 ± .005
69	" (2-5cm) "	0.59 ± .05	1.99 ± .10	0.54 ± .02	n.d
70	" (5-10cm) "	0.72 ± .03	2.58 ± .13	0.59 ± .02	n.d
71	" (10-15cm) "	0.71 ± .07	2.86 ± .15	0.65 ± .04	n.d
72	Evap. (0-2cm) D.Q. pond-2	0.70 ± .06	2.43 ± .12	0.64 ± .04	0.037 ± .006
73	" (2-5cm) "	0.65 ± .05	2.43 ± .12	0.67 ± .03	0.027 ± .005
74	" (5-10cm) "	0.26 ± .04	0.73 ± .15	0.26 ± .02	n.d
75	" (10-15cm) "	0.42 ± .08	1.56 ± .31	0.36 ± .02	n.d
76	Evap. (0-2cm) D.Q. Pond-3	0.67 ± .03	2.40 ± .12	0.70 ± .02	0.024 ± .008
77	" (2-5cm) "	0.76 ± .15	2.52 ± .13	0.63 ± .05	n.d
78	" (5-10cm) "	0.79 ± .08	2.69 ± .27	0.63 ± .03	n.d
79	" (10-15cm) "	0.72 ± .06	2.71 ± .21	0.64 ± .03	n.d
<b>(Labyrinth)</b>					
79	Sand Campsite	0.86 ± .05	3.18 ± .16	0.61 ± .02	0.210 ± .011
80	Evaporite L-1 pond	0.78 ± .05	2.63 ± .16	0.45 ± .02	0.129 ± .008
81	Evaporite L-3 pond	0.77 ± .05	3.12 ± .19	0.58 ± .03	0.441 ± .029
82	Evap. (0-3cm) L-4 pond	0.74 ± .06	2.23 ± .11	0.51 ± .03	0.032 ± .006
83	" (3-6cm) "	0.66 ± .04	2.28 ± .11	0.50 ± .03	n.d
84	Evaporite L-17 pond	0.77 ± .03	2.51 ± .10	0.55 ± .02	n.d
85	Evaporite L-19 pond	0.68 ± .04	2.42 ± .14	0.50 ± .02	0.029 ± .006
86	Evaporite E-2 pond	0.55 ± .04	2.12 ± .13	0.46 ± .02	n.d
87	Evaporite E-47 pond	0.81 ± .03	2.85 ± .11	0.80 ± .02	0.067 ± .005
88	Evaporite E-5 dry pond	0.49 ± .04	1.75 ± .12	0.37 ± .02	0.071 ± .008

n.d : not detected.

湖水および水河融水のウラン含有量はオニックス川の $0.0057\mu\text{g}/\ell$ からバンダ湖深部、ラビリンス地域のL-0池L-16池のように $50\mu\text{g}/\ell$ 以上のものまで極めて広い範囲にわたっている。また $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比も放射平衡に近いものから4を越えるものまで存在している(AR-7, p.6, AR-9, p.6参照)。バンダ湖では1979年よりも細かく深度別の水試料を採取し、ウラン濃度と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比の詳細な深度分布を得ることができた。一方、南極の湖沼水中の $^{226}\text{Ra}$ に関してはこれ迄測定例がなく、今回が初めての報告である。バンダ湖の $^{226}\text{Ra}$ の値は表層の $0.006\text{pCi}/\ell$ から最深部(68m)の $2.5\text{pCi}/\ell$ まで400倍の広範囲に及ぶ。 $^{226}\text{Ra}$ の深度分布もウランや他の化学成分と同様の階段状の濃度分布をしており、湖水の上下方向の混合がほとんど起っていないことを裏付けている。また $^{226}\text{Ra}$ は、ウランと違って、最深部の還元的な雰囲気でも濃度の低下がみられず、すべて溶在状態にあるものと考えられる。

ドリルサイト(Fig. 1中★印)と、スコット基地では、ハイポリウムエアサンプラーを用いて大気中の $^{210}\text{Pb}$ と $^7\text{Be}$ の測定を行った。10月下旬から11月下旬にかけての $^{210}\text{Pb}$ 濃度は $1.8\sim 5.1\text{fCi}/\text{m}^3$ で、辰口の平均値 $18\text{fCi}/\text{m}^3$ の $1/10\sim 1/3$ である。これは、ドライバレー地域のような露岩地帯を除けば、陸地のほとんどが厚い氷床に覆われていて、大地からの $^{222}\text{Rn}$ の放出がほとんどないことから予測されたものである。11月中旬から下旬にかけての $^{210}\text{Pb}$ 濃度の増加は夏期の融雪により地表が露出したためであろう。一方、 $^7\text{Be}$ 濃度は $100\sim 180\text{fCi}/\text{m}^3$ と辰口での平均値 $100\text{fCi}/\text{m}^3$ よりもやや高いが、これは地磁気緯度の高い南極では宇宙線による成層圏での $^7\text{Be}$ の生成量が多いいためと考えられる。

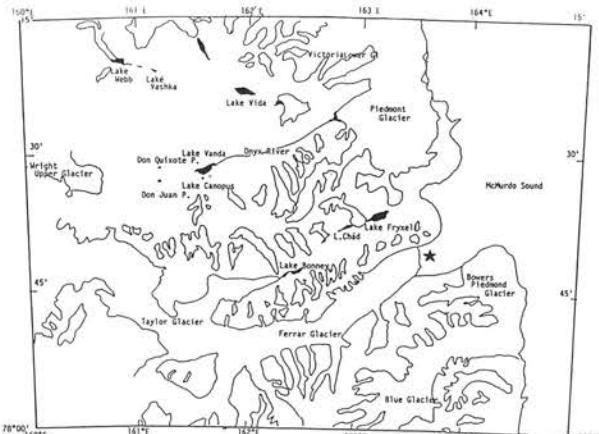


Fig. 1 Dry Valleys region of southern Victoria Land, Antarctica.

Table 2 Uranium, thorium, potassium and  $^{137}\text{Cs}$  contents in algae samples collected from the Dry Valleys region in Antarctica.

Sampling location	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)	Cs-137 (pCi/g)
[Wright Valley]				
SF-2 pond	$0.94 \pm .13$	$5.48 \pm .55$	$0.34 \pm .01$	$0.106 \pm .017$
NF-1+2 pond	$0.72 \pm .07$	$5.07 \pm .51$	$1.18 \pm .07$	$0.291 \pm .023$
Lake Vanda	$0.81 \pm .16$	$2.94 \pm .59$	$0.51 \pm .06$	n.d.
Lake Canopus	$1.71 \pm .06$	$12.64 \pm .63$	$0.54 \pm .02$	$0.696 \pm .027$
[Labyrinth]				
E-5 pond	$0.50 \pm .07$	$2.78 \pm .28$	$0.68 \pm .02$	$0.156 \pm .007$
L-7 pond	$0.50 \pm .10$	$2.52 \pm .50$	$0.54 \pm .04$	$0.128 \pm .019$
L-17 pond	$1.33 \pm .13$	$5.04 \pm .50$	$1.32 \pm .09$	$2.32 \pm .07$

n.d : not detected.

Table 3. Uranium and  $^{226}\text{Ra}$  contents and  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  activity ratios of Antarctic water samples.

Sample	Sampling date	Depth (m)	U ( $\mu\text{g}/\ell$ )	$\text{U-234}/\text{U-238}$ (A.R.)	Ra-226 ( $\text{pCi}/\ell$ )
[Taylor Valley]					
Canada Glacier meltwater	26-11-84	0	$0.0103 \pm .0017$	$1.33 \pm .46$	
[Wright Valley]					
Lake Canopus	26-12-84	0	$0.031 \pm .004$	$1.39 \pm .16$	
Onyx River	27-12-84	0	$0.0057 \pm .0015$	$1.20 \pm .42$	
Lake Vanda	22-12-84	5	$0.28 \pm .03$	$2.31 \pm .24$	$0.0059 \pm .0008$
		10	$0.54 \pm .05$	$2.16 \pm .20$	$0.0058 \pm .0006$
		15	$0.56 \pm .03$	$2.49 \pm .18$	$0.0091 \pm .0009$
		20	$0.50 \pm .04$	$2.67 \pm .23$	$0.0090 \pm .0009$
		30	$0.60 \pm .04$	$2.56 \pm .17$	$0.0135 \pm .0025$
		40	$0.46 \pm .03$	$2.89 \pm .20$	$0.0155 \pm .0025$
		45	$0.8 \pm .05$	$2.28 \pm .16$	$0.0240 \pm .0026$
		50	$1.05 \pm .05$	$3.52 \pm .18$	$0.040 \pm .007$
		52.5	$2.75 \pm .13$	$3.70 \pm .16$	$0.29 \pm .02$
		55	$9.11 \pm .46$	$4.12 \pm .15$	$0.80 \pm .06$
		57.5	$15.64 \pm .48$	$4.18 \pm .17$	$1.84 \pm .23$
		62.5	$5.08 \pm .36$	$4.00 \pm .28$	$2.02 \pm .20$
		68	$0.26 \pm .02$	$4.04 \pm .30$	$2.31 \pm .25$
		bottom	$9.78 \pm .27$	$4.29 \pm .11$	$2.50 \pm .27$
South Fork #2	9-12-84	0	$0.59 \pm .03$	$1.12 \pm .07$	
[Labyrinth]					
L-0 Pond	13-12-84	0	$52.6 \pm 1.7$	$1.58 \pm .03$	$0.433 \pm .046$
L-16 Pond	14-12-84	0	$63.8 \pm 4.1$	$1.39 \pm .05$	$0.439 \pm .052$
[Showa Station]					
Funazoko Pond	27-10-72	1	$87.0 \pm 3.0^*$	$1.16 \pm .02$	$1.44 \pm .16$

\* : from LLRL-AR-7.

Table 4. Concentrations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^7\text{Be}$  in the surface air of the Dry Valleys region in Antarctica.

Airborne dust was collected by high volume air-sampler at the flow rate of c.a. 1500 l/min.

Sample number	Sampling point	Sampling period	Air volume ( $\text{m}^3$ )	Concentration ( $\text{fCi}/\text{m}^3$ )
1	Drill site	27-10-84	840	$2.54 \pm 0.52$
2	"	28-29-10-84	860	( 1 + 2 )
3	"	30-10-84	510	n.d.
4	Scott Base	5-6-11-84	1650	$1.78 \pm 0.47$
5	"	13-15-11-84	3950	$2.85 \pm 0.29$
6	"	17-18-11-84	1760	$4.00 \pm 0.40$
7	"	18-20-11-84	4580	$5.18 \pm 0.41$

n.d : not detected.

[1984/85シーズンのドライバレー地域の試料の採取は、千葉工業大学の鳥居鉄也教授、弘前大学理学部中谷周助教授、日本分析センターの森本隆夫氏との協力により行われた。]

## 桜島周辺の大気中の $^{210}\text{Pb}$ , $^{210}\text{Po}$ 濃度

### Concentrations of $^{210}\text{Pb}$ and $^{210}\text{Po}$ in the Surface Air around Mt. Sakurajima

火山活動にともない、大量の $^{210}\text{Po}$ （半減期138日）が大気中に放出されることが知られている。桜島はわが国で最も活発に活動している火山であり、大量の火山灰とともに揮発性の $^{210}\text{Po}$ が放出されているものと考えられる。そこで地表大気中の放射性核種の研究の一環として、桜島周辺の大気中の $^{210}\text{Pb}$ と $^{210}\text{Po}$ の測定を試みた。

大気中の $^{210}\text{Pb}$ と $^{210}\text{Po}$ の捕集には、ハイポリウムエアサンプラー (HV-2000) を用い、Fig. 1に示す4地点（鹿児島市有村町、東桜島町、山下町〔市役所〕、桜島町横山）で濾過大気の流速 $1.5\text{m}^3/\text{min}$ で約24時間運転しグラスファイバーフィルター (2500QAST) 上に大気浮遊塵を採取した。浮遊塵の重量を測定の後、 $^{210}\text{Pb}$ はGe-LEPSによる非破壊 $\gamma$ 線スペクトロメトリーにより、また $^{210}\text{Po}$  ( $5.30\text{MeV}$ ,  $\alpha$ )は収率補正用のトレーサー $^{209}\text{Po}$  ( $4.88\text{MeV}$ ,  $\alpha$ )を加えた後、放射化学的にPoを分離し、銀板上に析出させて測定線源を作成し、Si(Au)検出器による $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより定量した。1987年5月から10月まで採取した6試料の測定結果をTable 1に示す。

$^{210}\text{Pb}$ 濃度は $4.7 \sim 11.4\text{fCi/m}^3$  ( $0.17 \sim 0.42\text{mBq/m}^3$ ) とそれ程大きな変動は見られなかつたが $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は $0.2 \sim 14.9$ と変動幅も大きく、これまで測定を行った他の地点での値( $0.04 \sim 0.23$ )と比べかなり高い。とくに1987年9月10日に鹿児島市役所屋上（山下町）で採取した試料では14.9にも達している。この時期は桜島が活発であり大気浮遊塵の量も $4.0\text{ g}$ と降灰の影響もみられ、火山活動にともない大量の $^{210}\text{Po}$ が放出されていることが確かめられた。 $^{210}\text{Pb}$ の濃度は当施設のある石川

県辰口町での値 $3 \sim 50\text{fCi/m}^3$ と比べてやや低いが、これは $^{222}\text{Rn}$ 濃度の低い海からの大気の影響によるものと考えられる。

桜島は地理的にも離れていて研究のフィールドとしては不便ではあるが、幸い鹿児島大学理学部の協力が得られ、鹿児島大学屋上で定常的に大気浮遊塵を採取していただけたこととなつた。

なお、大気浮遊塵の他、火山灰や表層土壌松葉等の採取も行い、これらについても放射性核種の測定を行つた。

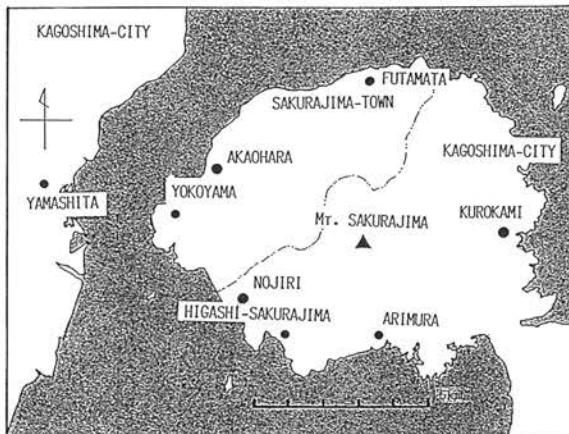


Fig. 1 Sampling locations in the vicinity of Mt. Sakurajima, Kagoshima.

Table 1. Concentrations of  $^{210}\text{Pb}$  and  $^{210}\text{Po}$  and  $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$  activity ratios in the surface air around Mt. Sakurajima.

Sampling date	Sampling point	Air volume ( $\text{m}^3$ )	Pb-210 (fCi/ $\text{m}^3$ )	Po-210 (fCi/ $\text{m}^3$ )	Po-210/Pb-210 (Ci/Ci)
May 11-12, '87	Arimura	1757	$11.4 \pm 1.0$	$2.28 \pm .21$	$0.20 \pm .03$
May 12-13, '87	Yokoyama	1925	$6.8 \pm .6$	$2.15 \pm .18$	$0.32 \pm .04$
May 13-14, '87	Higashi-Sakurajima	2514	$6.9 \pm .6$	$1.43 \pm .53$	$0.23 \pm .09$
Aug. 12-13, '87	Yamashita	2160	$5.6 \pm .4$	$11.3 \pm 1.0$	$2.03 \pm .24$
Sep. 10-11, '87	Yamashita	2160	$4.7 \pm .6$	$69.2 \pm 6.1$	$14.9 \pm 2.3$
Oct. 16-17, '87	Higashi-Sakurajima	2215	$7.2 \pm .5$	$2.80 \pm .19$	$0.39 \pm .04$

〔本研究は大学院修士課程の多田哲郎が主として行った。大気浮遊塵の採取には、鹿児島市役所環境局の古藤幹氏の協力をいただいた。〕

## モンテカルロ法による $\gamma$ 線自己吸収の補正

### Correction for $\gamma$ -Ray Self-Absorption by Monte Carlo Method

Ge検出器による $\gamma$ 線の精密測定では線源自身による $\gamma$ 線の自己吸収が問題となる。簡単のため、測定試料と同型同大の標準線源を作成して、ピーク面積の比から目的核種の濃度を直接求める場合でも、試料の化学組成と同一の標準線源を作成することは一般に困難であり、何らかの補正が必要となる。この補正是数10gの試料を用いて100keV以下の $\gamma$ 線放射体、例えば $^{210}\text{Pb}$ (46keV),  $^{234}\text{Th}$ (63keV),  $^{241}\text{Am}$ (59keV)等を測定するさいには特に重要である。

このため、従来使用していたGe検出器やNaI(Tl)検出器などの円柱状検出器に対する立体角を求めるモンテカルロプログラム〔NIM 143(1976)p.577参照〕を改良し、線源内での $\gamma$ 線の自己吸収や線源と検出器の間の様々な物質による吸収を組み込んだパソコン用プログラムを開発し、平板型Ge-LEPSおよび同軸型Ge検出器に対する検出効率の計算を試みた。このプログラムでは乱数を発生させて(1)円盤状の線源内での $\gamma$ 線の発生位置を決め、次いで(2)検出器に対する $\gamma$ 線の入射方向と入射位置を決めた後、(3)この入射 $\gamma$ 線に対する立体角を重みつきで計算するとともに、(4)線源内での自己吸収および(5)線源と検出器本体との間に存在する空気、プラスチック、検出器のエンドキャップ(AlまたはBe)やGe不感層による $\gamma$ 線の吸収を計算し、(6) $\gamma$ 線が検出器内で検出される確率(Intrinsic efficiency)を逐次計算する。このステップを5,000~10,000回繰り返すことにより統計精度約0.3~0.4%で立体角と各段階での $\gamma$ 線の吸収が求められる。 $\gamma$ 線の吸収の計算には、元素別の吸収係数(barn/atom)が計算されているNBSIR 73-241(NBS)の値を用い、任意の化学組成の線源に対する質量吸収係数(cm<sup>2</sup>/g)を求めて入力した。Ge-LEPSに対しては10keVから400keV迄12の $\gamma$ 線エネルギーについて、Gamma-X型Ge検出器に対しては40keVから2000keVまでの15の $\gamma$ 線エネルギーについて計算を行った。簡単のため、本プログラムでは検出器内の光電吸収、コンプトン散乱、対生成などを個別には考慮せず、全吸収のみを扱った。従って $\gamma$ 線ピークに対する検出効率を求めるには、各 $\gamma$ 線エネルギーに対するPeak to Total比の情報が必要である。Peak to Total比は、線源内での自己吸収や立体角の違いによって変化するが、簡単のためここでは通常測定する線源厚み0.5~3g/cm<sup>2</sup>の範囲では一定であると仮定し、種々の厚みの線源に対するピーク検出効率は、計算結果の1組を実測された検出効率曲線で規格化することにより求めた。3.6MHzのクロックで作動するApple IIコンピューターで5000回のモンテカルロ計算を行うに要する時間は約70分である。

Table 1にGamma-X型検出器(54mm $\phi$ ×67mm)を用いて放射平衡にあるNaClベースの50mm $\phi$ のウランの標準線源(0.1%U)を測定する場合の計算値(30g試料で規格化)と実測値を比較して示す。計算値と実測値の比較から、NaClの質量吸収係数を用いると低エネルギー $\gamma$ 線(46keV)の自己吸収がやや過小評価となることがわかった。実測値を再現するには、より大きな質量吸収係数を持った物質、例えはClの質量吸収係数を用いるとよい(カッコ内の値)ようである。これはPeak to Total比が線源の厚みが増大するにつれて小さくなるためと考えられる。この表からわかるように10gから60gの試料に対し、46keVから1764keVの広いエネルギー範囲で比較的良好実測値が再現され、この方法は十分実用になるものと思われる。

**Table 1.** Comparison of peak detection efficiencies of Ge detector calculated by Monte Carlo Method and measured values for 50mm $\phi$  disc shaped sources. All values are normalized to 30g source. Values in parenthesis are calculated by using mass attenuation coefficient of chlorine.

Detector : Gamma-X with Be window of 0.5mm thick and Ge crystal of 54mm $\phi$  × 67mm.  
Source : NaCl based 0.1% uranium and reagent grade KCl.

Energy (keV)	Peak detection efficiency (%)											
	10g		20g		30g		40g		50g		60g	
	measd	calcd	measd	calcd	measd	calcd	measd	calcd	measd	calcd	measd	calcd
46	17.8 (18.0)	17.1 (14.4)	15.3 (14.4)	14.3 (12.2)*	12.2 (12.2)*	12.2*	10.4 (10.1)	10.7 (10.1)	9.05 (8.68)	9.43 (7.62)	7.55	8.30
63	19.2 (20.3)	19.7 (17.3)	17.5 (17.3)	17.3 (15.2)*	15.2 (15.2)*	15.2*	13.5 (13.4)	13.6 (13.4)	11.5 (11.9)	12.3 (10.6)	10.9	11.2
186	13.8	14.6	13.4	13.1	11.8	11.8*	10.8	10.9	9.87	10.0	9.19	9.24
295	9.09	9.66	8.83	8.70	7.93	7.93*	7.18	7.29	6.61	6.75	6.07	6.22
352	7.80	8.24	7.69	7.44	6.83	6.83*	6.27	6.25	5.71	5.80	5.33	5.34
1461	2.24	2.19	2.08	2.00	1.90	1.90*	1.70	1.71	1.62	1.60	1.45	1.48
1764	1.70	1.83	1.64	1.67	1.56	1.56*	1.44	1.43	1.33	1.34	1.29	1.24

\* Normalized values.

## 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 第2報

### Background Levels of Natural Radioactivities of the Kamioka Proton Decay Experimental Facility

昨年度に引き続いて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について研究を行った。岩石、空気、地下水並びに実験に使用している純水について、既報(AR-11, p.5)の方法でU, Th同位体、 $^{226}\text{Ra}$ ,  $^{222}\text{Rn}$ などを測定した。

岩石の測定結果をTable 1, 2に示す。表からわかるようにU, Th, K含有量はそれぞれ0.13~2.23ppm, 0.42~7.73ppm, 0.04~3.40%で岩石の種類の違いや、同種の伊西岩でもかなり濃度が異なっている。しかしウラン系列トリウム系列核種は測定した $^{226}\text{Ra}$ および $^{228}\text{Th}$ まではほぼ放射平衡にある。UやTh含有量は花崗岩類と比べて1/2~1/3と低く観測場所としては好適な条件下にあるように思われる。次にドーム[○]や坑内(●)の空気中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度を地下水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度[■]と共にFig.1に示す。当初タンク上部はビニールテントでシールしてあったが、 $^{222}\text{Rn}$ に起因するバックグラウンドを減少させる目的で1987年3月(図中のA点)に鉄製の蓋をし、5月頃(B点)からラドン除去装置(坑内の空気を加圧して活性炭約25kg入りカラム3本に通す)からの空気を流し続けている。このタンク内空気の $^{222}\text{Rn}$ 測定結果(□)もFig.1に併せて示した。Fig.1からわかるようにドーム内の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は夏季で約1500Bq/m<sup>3</sup>、冬季で夏季の1/7~1/8の約200Bq/m<sup>3</sup>と大きな季節変動をしている。地下水の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は空気中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度ほど大きな変動はしないが12月の値(7~8Bq/l)と比べると4, 5, 6月の値(12~14Bq/l)は2倍程高くなっている。一方、タンク内空気の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は7月頃まで指數関数的に減少し、その後約7Bq/m<sup>3</sup>に落ち込んでいる。この値は予測値ともほぼ一致し、平衡に達していると言える。地下水および純水中の $^{238}\text{U}$ と $^{226}\text{Ra}$ 濃度をFig.2に示す。地下水の $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ 濃度はそれぞれ6.36~8.95mBq/l, 0.57~0.67mBq/lで年間を通じてほぼ一定である。タンク内の純水中の $^{238}\text{U}$ や $^{226}\text{Ra}$ は、時間の経過と共に漸減しており、一応目標としたレベルに達している。これ以上低いレベルの $^{238}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$ の測定は試水40l程度を使用した $\alpha$ 線スペクトロメーターでは困難である。いずれにしても今回のこのような測定結果が隨時検討され、タンク上面の密閉、ラドン除去装置からの低ラドン濃度空気のタンク内への流し込みなどの対策が施され、着実にバックグラウンド低減化に向っている。今後、放射能測定を継続しながら、さらなるバックグラウンド低減化が強く望まれる。

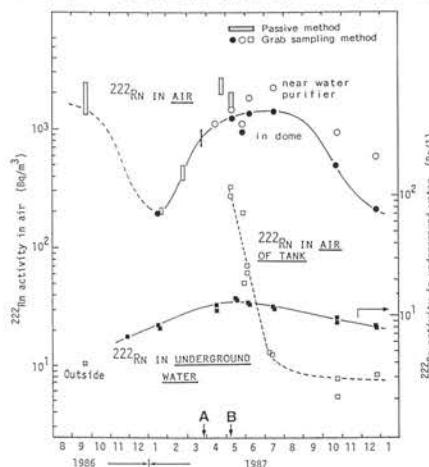


Fig. 1 Concentrations of  $^{222}\text{Rn}$  in air of gallery and tank, and in underground water (A: new tight cover over the water tank, B: start of the air flow passed through charcoal column into the water tank).

[本研究は、東京大学宇宙線研究所 須田英博助教授との協同研究で行ない、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。得た成果は、第31回放射化学討論会(於九州大学)の席上口頭発表した。]

Table 1. Concentrations of U, Th and K in rocks from the KAMIOKANDE.

Sample	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)	$\frac{\text{Th}}{\text{U}}$ (ppm)
No.1:Chloritized Gneiss	1.89 ± 0.09	4.18 ± 0.10	0.09 ± 0.02	2.21
No.2:Felsic Gneiss	0.13 ± 0.01	0.80 ± 0.08	3.40 ± 0.05	6.15
No.3:Inishi Rock	0.95 ± 0.07	4.41 ± 0.18	2.52 ± 0.03	4.64
No.4:Skarn	0.68 ± 0.05	0.42 ± 0.04	0.04 ± 0.01	0.62
No.5:Inishi Rock	2.23 ± 0.09	7.73 ± 0.22	2.21 ± 0.06	3.47
No.6:Inishi Rock	0.32 ± 0.02	1.31 ± 0.05	1.15 ± 0.03	4.09
No.7:Inishi Rock	0.63 ± 0.04	3.24 ± 0.15	1.63 ± 0.08	5.14
Average	0.98 (0.13-2.23)	3.16 (0.42-7.73)	1.56 (0.04-3.40)	3.22

Table 2. Activity ratios among  $^{238}\text{U}$ - and  $^{232}\text{Th}$ -series nuclides in rocks from the KAMIOKANDE.

Sample	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$	$^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$
No.1:Chloritized Gneiss	0.92 ± 0.04	0.94 ± 0.05	0.99 ± 0.07	1.00 ± 0.03	1.29 ± 0.06
No.2:Felsic Gneiss	1.01 ± 0.06	1.15 ± 0.05	1.13 ± 0.23	1.20 ± 0.07	0.58 ± 0.07
No.3:Inishi Rock	0.97 ± 0.05	1.11 ± 0.12	1.45 ± 0.13	0.94 ± 0.05	0.74 ± 0.06
No.4:Skarn	0.98 ± 0.05	0.97 ± 0.04	1.00 ± 0.14	1.46 ± 0.06	4.85 ± 0.52
No.5:Inishi Rock	0.98 ± 0.04	0.98 ± 0.04	1.28 ± 0.10	1.02 ± 0.04	0.85 ± 0.05
No.6:Inishi Rock	1.00 ± 0.05	0.95 ± 0.08	0.98 ± 0.07	0.94 ± 0.05	0.75 ± 0.08
No.7:Inishi Rock	0.97 ± 0.05	0.99 ± 0.04	0.97 ± 0.26	1.05 ± 0.06	0.59 ± 0.06

\*:  $^{226}\text{Ra}$  ( $\gamma$ -ray spectrometry)

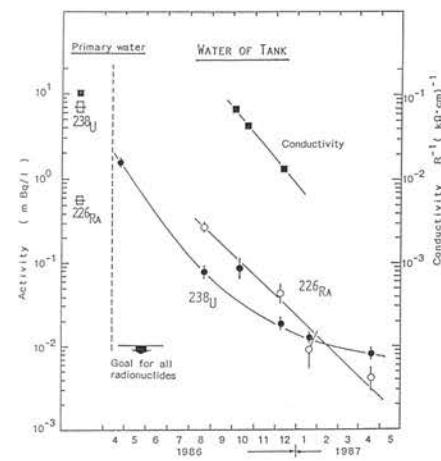


Fig. 2 Concentrations of  $^{238}\text{U}$  and  $^{226}\text{Ra}$  of the water in tank.

## α線スペクトロメトリーによる環境中<sup>237</sup>Npの定量 - 第3報 -

### Determination of Environmental <sup>237</sup>Np by α-Ray Spectrometry

環境試料中の微量<sup>237</sup>Npのα線スペクトロメトリーによる分析定量法を既報(AR-10, p.8, AR-11, p.8)で述べてきた。今年度はこれに統一して分析法に改良を加え、正確さ・精度を中心に検討した。

Npの分析フローシートをFig. 1に示す。Fig. 1に示すように、分析の最終段階でNpフラクションに混入していく極微量のUを除去するために、以前用いた0.5M塩酸・陽イオン交換樹脂法を4M酢酸・陰イオン交換樹脂法[Fig. 2]に改良した。これによりUを検出限界以下にすることが可能になった。またNpの電着方法についても従来の硫酸アンモニウム溶液から塩化アンモニウム溶液(2M, 初期pH≈2)に変更し、電着時間が2時間から1時間に短縮でき、その化学収率もほぼ100%になった。まず始めに、比較的高濃度の<sup>237</sup>Npを含むビキニの土壌およびワインズケールの堆積物(ヨーロッパでの<sup>237</sup>Np分析の準標準試料)を用いて、種々の鉱酸によるNpの溶出を検討した。Table 1にその結果を示すが、いずれの鉱酸でもNpが定量的に抽出され、ワインズケール堆積物についての値は報告値ともよく一致した。Table 2にこの分析法の正確さを更に検討した結果を示す。得た値は添加量と誤差内で一致した。次に実際の環境土壌(2試料)および堆積物(1試料)100~200gを用いてそれぞれ3回ずつ<sup>237</sup>Npの分析を実施した。その結果、化学収率は50~80%(大部分70%)で、再現性も良好であることを確認した。この方法での<sup>237</sup>Npの検出限界は10000分計測で約0.1mBq/試料である。現在この方法を用いて、土壌、堆積物の<sup>237</sup>Np分析を実施している。

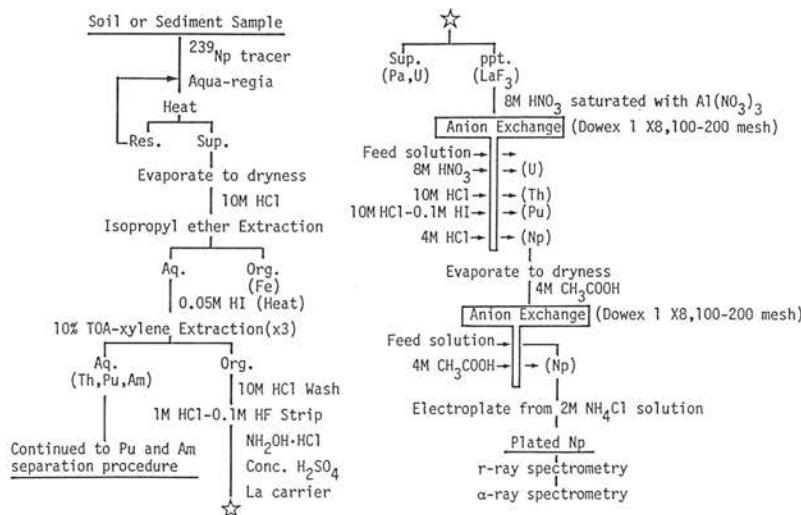


Fig. 1 Separation scheme of neptunium for environmental soils and sediments.

Table 1. Comparison of <sup>237</sup>Np analyses by various leaching conditions.

Leaching Method	Total Yield (%)	<sup>237</sup> Np (mBq/g.dry)
Bikini Soil (105°C dried)		
10M HCl	70 ± 2	1.2 ± 0.1
Aqua-regia	68 ± 2 (82 ± 3)*	1.1 ± 0.1 (1.0 ± 0.1)*
10M HNO <sub>3</sub> - 1M HF	72 ± 3	1.0 ± 0.1
10M HNO <sub>3</sub> + H <sub>2</sub> O <sub>2</sub>	69 ± 2 (84 ± 3)*	1.0 ± 0.1 (1.1 ± 0.1)*
Sediment** (105°C dried)		
10M HCl	76 ± 3	6.4 ± 0.3
Aqua-regia	71 ± 2	6.2 ± 0.3
10M HNO <sub>3</sub> - 1M HF	55 ± 2	6.6 ± 0.4

Sample Size : ~3g (Bikini soil), ~1g (sediment\*\*)

Extractant Volume : 50-100 ml

\* : 450°C ashed sample

\*\* : This sediment was collected and prepared for an intercomparison exercise by D.S. Popplewell (NRB). The data from 7 laboratories by α-ray spectrometry ranged from 5.9 to 6.9 mBq/g, and a mean value was 6.2 mBq/g.

Table 2. Results of <sup>237</sup>Np determinations in <sup>237</sup>Np spiked water and soil samples.

Np Activity Added (dpm)	Yield (%)				Np Activity Detected by α-ray-Spectrometry (dpm)
	A*	B*	C*	Total Yield	
<b>Water Sample</b>					
0.164 ± 0.006	89	100	88	82 ± 2	0.172 ± 0.014
1.64 ± 0.06	82	100	91	80 ± 2	1.67 ± 0.10
16.4 ± 0.6	75	100	90	70 ± 2	16.5 ± 0.7
<b>Soil Sample (450°C ashed)</b>					
[10g]	83	99	94	78 ± 3	1.70 ± 0.11
[50g]	84	93	80	62 ± 2	0.175 ± 0.016
0.164 ± 0.006	83	96	99	79 ± 2	1.67 ± 0.10
1.64 ± 0.06	87	90	81	64 ± 2	15.8 ± 0.7
[200g]	55	98	90	51 ± 2	1.64 ± 0.12

A\* : Yield from beginning to the first anion exchange procedure

B\* : Yield of the second anion exchange procedure (4M CH<sub>3</sub>COOH)

C\* : Yield of the electrodeposition procedure

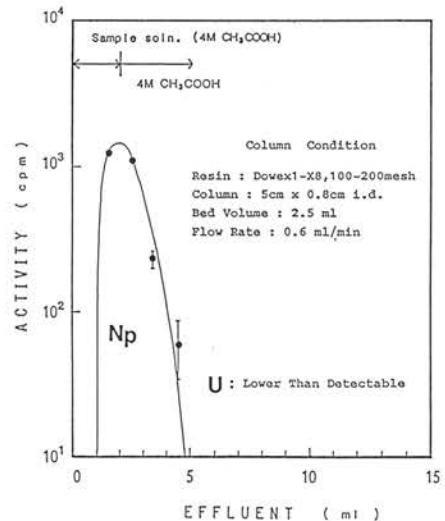


Fig. 2 Elution of neptunium and uranium from a column of anion exchange resin by 4M acetic acid.

〔本研究は主として大学院生茶谷和秀の協力により行ない、第30回日本放射線影響学会(於 東京)及び「生体および環境試料中におけるアクチニド・長半減期核種の低線量測定」に関する第2回国際会議(於 秋田1988年5月)の席上口頭発表した。〕

## 三方五湖の湖底堆積物試料中の超ウラン元素 (Np, Pu, Am)

Transuranium Elements (Np, Pu and Am) in Sediment Cores of Mikata Five Lakes

五湖すべてが異なる形態と水質を有する福井県三方五湖 [Fig. 1] については、これまでに湖水の環境汚染の実態の解明とその防止のための基礎資料を提供するために、湖水と湖底堆積物試料について天然および人工放射性核種ならびに無機諸元素の分析を行ってきた [AR-6, p.12, 13]。本研究では、環境データが世界的にも極めて少ない<sup>237</sup>Npについて、水圏環境における沈積挙動の知見を得ることを目的に、三方五湖の湖底堆積物コア試料中の<sup>237</sup>NpをPu同位体、<sup>241</sup>Am、<sup>137</sup>Csと共に定量し検討した。試料は1986年11月にFig. 1に示す地点でコア試料採取用のエックマン・バージ採泥器 (14cm×14cm×25cm) で採取した。船上で3cm毎に分けた後、実験室に持ち帰り乾燥、粉碎した。

$\gamma$ 線スペクトロメトリーで<sup>137</sup>Cs、<sup>210</sup>Pbを定量した後、試料50~100gを用い<sup>239</sup>Np、<sup>236</sup>Pu、<sup>243</sup>Amトレーサを加え、逐次Np、Pu、Amを化学分離・精製し、 $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより<sup>237</sup>Np、<sup>238</sup>Pu、<sup>239,240</sup>Pu、<sup>241</sup>Amを定量した [AR-12, p.9]。また<sup>241</sup>Puは液体シンチレーションカウンター [AR-12, p.11] を用いて測定した。

Fig. 2に、日向湖(海水)、水月湖(汽水)、菅湖(汽水)の測定結果を示す。<sup>210</sup>Pbから推定した各コア試料の堆積年代もFig. 2の上部に併せて示した。いずれの湖底土についても、<sup>237</sup>Npが<sup>241</sup>Am、<sup>239,240</sup>Puと比べて非常に低いレベルではあるが検出でき、その深度分布は<sup>241</sup>Amや<sup>239,240</sup>Puの分布と比較的よく類似していることがわかった。Table 1に、深度分布から求めた各核種の蓄積量とそれらの放射能比をまとめて示した。<sup>237</sup>Npの蓄積量は、0.11~0.19MBq/km<sup>2</sup>で水月湖と菅湖では約2倍異なるが、<sup>237</sup>Np/<sup>239,240</sup>Pu放射能比は0.10~0.11%とほぼ一致している。この放射能比は深さ20cmまでの土壤試料についてこれまでに得られている値0.3~0.4%とくらべて1/3から1/4で、NpがPuよりも堆積物に

移行しにく  
いことを示  
唆している  
ものと考え  
られる。他  
の核種間の  
放射比は、  
<sup>239,240</sup>Pu/<sup>137</sup>Cs  
比を除いて、  
土壤試料で  
測定されて  
いる値とよ  
く一致して  
いる。

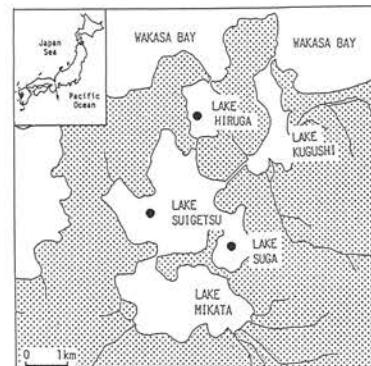


Fig. 1 Sampling locations of sediment cores in the Mikata Five Lakes in Fukui Pref.

Table 1. Inventories of <sup>237</sup>Np, Pu isotopes, <sup>241</sup>Am and <sup>137</sup>Cs estimated from the sediment cores in Lakes Hiruga, Suigetsu and Suga, and their activity ratios.

Nuclides	Lake Hiruga	Lake Suigetsu	Lake Suga
Deposition (MBq/km <sup>2</sup> )			
<sup>237</sup> Np	0.17 ± 0.02	0.11 ± 0.02	0.19 ± 0.03
<sup>238</sup> Pu	5.94 ± 0.30	4.57 ± 0.47	6.97 ± 0.53
<sup>239,240</sup> Pu	157 ± 4	109 ± 4	163 ± 4
<sup>241</sup> Pu	555 ± 15	410 ± 16	605 ± 18
<sup>241</sup> Am	53.3 ± 2.0	31.4 ± 1.2	51.3 ± 1.5
<sup>137</sup> Cs	409 ± 16	580 ± 10	957 ± 17
Activity ratio			
<sup>237</sup> Np/ <sup>239,240</sup> Pu	0.0011 ± 0.0002	0.0010 ± 0.0002	0.0011 ± 0.0002
<sup>238</sup> Pu/ <sup>239,240</sup> Pu	0.038 ± 0.002	0.041 ± 0.004	0.042 ± 0.003
<sup>241</sup> Pu/ <sup>239,240</sup> Pu	3.53 ± 0.13	3.76 ± 0.20	3.71 ± 0.14
<sup>241</sup> Am/ <sup>239,240</sup> Pu	0.34 ± 0.01	0.29 ± 0.02	0.31 ± 0.01
<sup>239,240</sup> Pu/ <sup>137</sup> Cs	0.38 ± 0.02	0.19 ± 0.01	0.17 ± 0.01

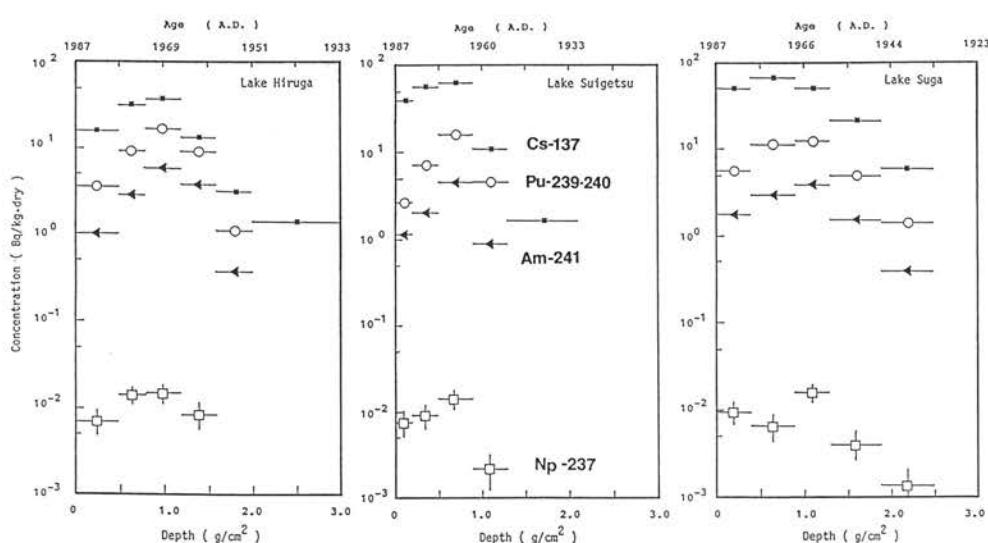


Fig. 2 Depth profiles of <sup>237</sup>Np, <sup>239,240</sup>Pu, <sup>241</sup>Am and <sup>137</sup>Cs in sediment cores from Lakes Hiruga, Suigetsu and Suga.

〔本研究は主として大学院生茶谷和秀の協力により行ない、「生体および環境試料中におけるアクチニド・長半減期核種の低線量測定」に関する第2回国際会議（於 秋田1988年5月）の席上口頭発表した。〕

## 液体シンチレーションカウンターによる環境試料中の<sup>241</sup>Puの定量

### Determination of <sup>241</sup>Pu in Environmental Samples by Liquid Scintillation Counter

<sup>241</sup>Puは、 $\alpha$ 線を放出する<sup>238</sup>Pu、<sup>239</sup>Pu、<sup>240</sup>Puと共に核爆発実験により生成し、現在の環境中にPu同位体の中で最も高い放射能レベルで広く分布存在している。この核種は、半減期が14.4yと短かく、しかも軟 $\beta$ 線(20.8keV, Emax)を放出するので、それ自身放射線影響の面からは問題視されないが、Fig.1に示すように他の超ウラン元素諸核種の親核種として重要な位置にあり、とりわけその娘核種<sup>241</sup>Amとの関係で注目されている。測定に関しては、Pu精製試料について一定期間に<sup>241</sup>Puから成長した<sup>241</sup>Am量から間接的に評価する方法(<sup>241</sup>Am-ingrowth法)と液体シンチレーションカウンター(LSC)による方法が採用されているが、<sup>239,240</sup>Puと比べて非常にデータが少ない。本研究では、LSC(Aloka LB-1)による環境試料中<sup>241</sup>Puの定量法を検討した。

【測定法】まず試料に収率補正用の<sup>242</sup>Puトレーサーを添加した後Puを放射化学的分離精製し、得られたPuフラクションを2等分し、一方はLSC(5ml, 1M HCl Pu溶液+95ml Instagel: 100ml テフロンバイアル)による<sup>241</sup>Puの $\beta$ 線と全 $\alpha$ 線の測定に、他は電着後Pu同位体の $\alpha$ 線スペクトロメトリーに供した。Table 1にLSCでの測定条件を示す。<sup>241</sup>PuはH-channelで、全 $\alpha$ はP-channelで測定を行ない、それぞれの検出効率は<sup>241</sup>Puを含むPu標準溶液(ORNL)を用いて求めた。なお、 $\alpha$ 線のH-channelへの寄与はこの条件下では無視できる。試料中の<sup>241</sup>Pu濃度は、Table 2に示す<sup>241</sup>Pu/<sup>239,240</sup>Pu放射能比で算出した。

【結果】Table 3に、福井県丹生湾から採取した年代別の堆積物についてのLSC法と<sup>241</sup>Am-ingrowth法による比較結果を、またTable 4に同一試料20gを用いての5回の分析結果を示す。Tables 3, 4からわかるように、LSC法による測定の正確さ、再現性(精度)は共に良好である。現在この方法を用いて土壤、堆積物、松葉、降下物などの<sup>241</sup>Pu/<sup>239,240</sup>Pu放射能比を測定している。土壤や堆積物におけるこの比は現在3~5である。また昨年度採取した松葉(1987年2月採取)では14±4、降下物(1986年4月~1987年3月までの1年間の試料)では18±2の値の高い値を得ており、チエルノブリ原発事故由來のPuの影響が示唆される。

Table 3. Comparison of <sup>241</sup>Pu measurements by (A) LSC and (B) <sup>241</sup>Am-ingrowth method.

Sampling location	Sampling date	<sup>239,240</sup> Pu (Bq/kg-dry)	<sup>241</sup> Pu (A) <sup>239,240</sup> Pu	<sup>241</sup> Pu (B) <sup>239,240</sup> Pu
Sediment (Nyu Bay)	10/11/64	1.44 ± 0.11	12.0 ± 2.0	12.4 ± 2.0
	17/3/71	7.25 ± 0.52	8.9 ± 0.2	8.4 ± 1.4
	1/11/73	4.74 ± 0.30	6.5 ± 0.3	8.9 ± 1.4
	6/11/74	3.59 ± 0.26	7.3 ± 0.3	7.4 ± 1.3
	17/11/76	5.88 ± 0.37	6.6 ± 0.3	7.9 ± 1.2
	20/7/77	5.66 ± 0.30	6.1 ± 0.4	6.5 ± 1.2
	19/4/78	3.81 ± 0.22	5.7 ± 0.3	5.2 ± 1.0
Soil (Mt. Kanmuri)	26/11/78	12.6 ± 0.6	5.3 ± 0.3	5.4 ± 0.6

The values of <sup>241</sup>Pu/<sup>239,240</sup>Pu activity ratio were decay corrected to the sampling date.

〔本研究は、福井県衛生研究所五十嵐修一氏との協同研究で行ない、第30回日本放射線影響学会(於 東京)及び「生体および環境試料中におけるアクチニド・長半減期核種の低線量測定」に関する第2回国際会議(於 秋田1988年5月)の席上口頭発表した。〕

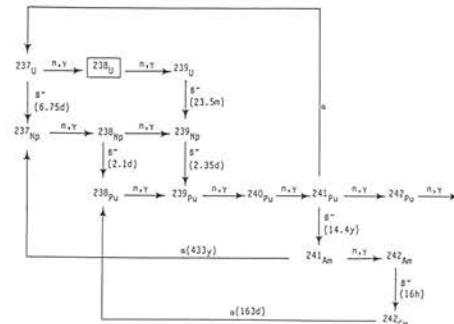


Fig. 1 Production modes of transuranic radionuclides.

Table 1. Gain and window settings, backgrounds and counting efficiencies for the measurements of <sup>241</sup>Pu and total alpha-ray by LSC (Aloka LB-1)

	H-channel	C-channel	P-channel
Gain	0.5 × 100	0.5 × 10	0.5 × 1
Window	50 ~ 600	60 ~ 750	150 ~ 640
Background (cpm)	5	18	8
Counting Eff.			
<sup>241</sup> Pu	23.9		
<sup>3</sup> H	24.0	0.17	0
$\alpha$ ( <sup>242</sup> Pu)	0	0.38	97.0

Counting vial: 100 ml Teflon (1M HCl 5 ml + Instagel 95 ml)

Table 2. Calculation of <sup>241</sup>Pu activity in the sample.

$$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}} = R = \frac{C_{\text{LSC}}(\beta)}{C_{\text{LSC}}(\alpha)} \times \frac{E_{\text{LSC}}(\alpha)}{E_{\text{LSC}}(\beta)} \times \frac{C_{\alpha}(\text{total})}{C_{\alpha}(^{239,240}\text{Pu})}$$

$C_{\text{LSC}}(\beta)$  = count rate of <sup>241</sup>Pu by LSC  
 $C_{\text{LSC}}(\alpha)$  = count rate of total alpha by LSC  
 $E_{\text{LSC}}(\beta)$  = counting Eff. of beta-ray particle by LSC  
 $E_{\text{LSC}}(\alpha)$  = counting Eff. of alpha-ray particle by LSC  
 $C_{\alpha}(\text{total})$  = count rate of total alpha by alpha-ray spectrometry  
 $C_{\alpha}(^{239,240}\text{Pu})$  = count rate of <sup>239,240</sup>Pu by alpha-ray spectrometry

Table 4. Results of replicate analyses of <sup>241</sup>Pu using a 20 g aliquot of the Nyu Bay sediment (17/4/86)

Run	<sup>239,240</sup> Pu activity (Bq/kg-dry)	$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}}$ activity ratio
1	2.92 ± 0.12 <sup>*1</sup>	4.71 ± 0.56
2	2.81 ± 0.14	4.08 ± 0.67
3	2.85 ± 0.13	4.34 ± 0.56
4	2.96 ± 0.14	4.50 ± 0.58
5	2.91 ± 0.15	4.21 ± 0.57
Mean	2.89 ± 0.06 <sup>*2</sup>	4.37 ± 0.24

<sup>\*1</sup>: 1σ value of counting error.

<sup>\*2</sup>: Standard deviation.

## 樹木中のトリチウムの定量

### Determination of Tritium Contents in Tree Ring

【はじめに】 環境中に存在しているトリチウムはその大部分が水の形で分布している。したがって水を摂取して生活している動植物の体内にも水や有機物の形で存在し、その濃度は環境の濃度と深い関係にある。これに着目すると、生体中に存在するトリチウム濃度を測定することにより、環境中トリチウムの時間的・空間的変動に関する知見を得ることができる。

樹木の場合、年輪毎の組織中に固定されているトリチウム（組織結合トリチウム）は樹木の生育地域における年輪形成時の環境トリチウムレベルを反映していると考えられる。この組織結合トリチウムを正確に測定するためには、樹木の代謝活動によって変化を受けない成分であるセルロースを他の成分からどのように純度良く分離するかが重要な課題となる。そこで純粋なセルロースを迅速、かつ高収率で精製する方法について検討を加えた。

【実験】 直径50cm長さ1m程の松の木の幹を年輪毎に分離したチップ150gを3.5MPaの水蒸気で2分間反応させ爆碎した。次いでEtOHで1時間抽出した後、酢酸酸性下で0.6M-NaClO<sub>2</sub>を用いて処理し、さらに17.5%-NaOHで処理して約60gの $\alpha$ セルロースを得た。この $\alpha$ セルロースを110度で乾燥後、35mm $\phi$  $\times$ 10mmのdiskに成型後Fig. 1に示す装置を用いて燃焼した。燃焼水はKMnO<sub>4</sub>とNa<sub>2</sub>O<sub>2</sub>を加えて2回蒸留し不純物を除去した後、液体シンチレーション測定に供した。

【結果と考察】 木材から $\alpha$ セルロースを精製する方法はいくつか知られているが、いずれも非常に長時間の処理を必要とする。そこで従来の方法に爆碎操作を併用することによって、非セルロース成分の分離が容易になり、処理時間を今までの1/5以下の3~5時間にすることことができた。爆碎条件として、反応圧力3.5MPa、反応時間2minを設定した。反応圧力が高いとセルロース繊維が微細化されて収率が低下し、反応時間が短いとセルロース繊維の分離が不十分なので、続いて行う化学処理に時間がかかるためである。

Table 1に木の年輪中の $\alpha$ セルロース中に含まれる組織結合トリチウム及び松葉の組織自由水や環境水の値を示す。樹木の幹の組織自由水は主として根から供給されるが、葉の組織自由水は大気中の水蒸気との交換があるため、両者のトリチウム濃度には一般に差があることが知られている。ところが、測定した松の幹と葉の組織自由水のトリチウム濃度はほとんど同じ値を示し、しかも木の生育地点から20m離れた地点で採取した湧水のトリチウム濃度とほぼ同じレベルであった。この値は最近の降水や水蒸気中の年平均よりもかなり高く、核実験由来のトリチウムが含まれていることを示唆している。一方松の木の周辺土壤に含まれていた水分のトリチウム濃度は、降水のそれに近かったことからも、幹と松葉の水の供給源は近くの湧水と起源を同じくする地下数mの位置に存在する地下水であると考えることができる。

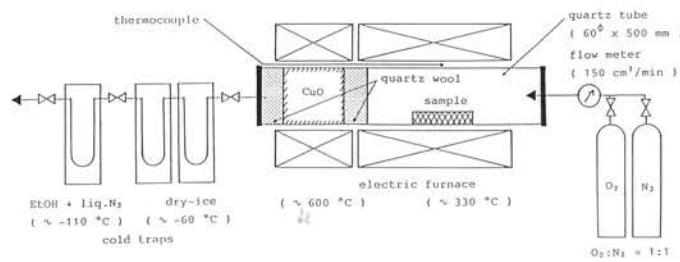


Fig. 1 Combustion apparatus for cellulose.

Table I. Tritium concentrations of environmental samples collected at Tatsunokuchi-town in Ishikawa Prefecture, Japan.

Sample	Sampling date	Tritium concn. (pCi/l)
Cellulose of pine tree (1987) (Tissue-bound tritium)	4 Apr. '87	68.2 ± 4.9
Cellulose of pine tree (1986)	4 Apr. '87	40.0 ± 4.2
Tissue-free water in pine tree (1987)	4 Apr. '87	63.3 ± 5.0
Tissue-free water in pine needles (1987)	26 Jun. '87	61.9 ± 5.1
Spring water near pine tree	26 Jun. '87	59.3 ± 6.5
Soil water around pine tree	26 Jun. '87	47.1 ± 7.0
Tedori river water	15 Dec. '87	29.6 ± 3.8
Atmospheric moisture	-----	41.9 A)
Atmospheric moisture	-----	29.2 B)
Atmospheric moisture	-----	46.6 C)
Precipitation	-----	34.2 A)
Precipitation	-----	21.7 B)
Precipitation	-----	27.5 C)

A): annual mean value of 1984.

B): annual mean value of 1985.

C): annual mean value of 1986.

〔本研究は大学院生 翫 幹夫と北陸大学助教授・山田芳宗の協力により行ない第31回放射化学討論会（於九州大学）において発表(2B09)した。〕

リチウムの ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 反応による定量 - 第3報 -Determination of Lithium by  ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$  Reaction

【はじめに】 今回は、実際の水中に含まれているLiと同族のアルカリ金属Na, K および塩化物イオンがLi の定量におよぼす影響について検討した。

【実験方法】 標準溶液としてトリチウムフリー水（金沢市小立野地区地下水、深度-150m）で調製した炭酸リチウム ( $\text{Li}_2\text{CO}_3$ ) の0.1, 0.5, 1.0, 5.0mg/l 水溶液を用いた。溶液中の共存イオンが本定量法の分析精度に及ぼす影響を検討するため 5mg/l のLiを含んだ標準溶液に塩化ナトリウム、塩化カリウムを5~100mg 含むように調製した試料水を作成した。これらの試料水10mlをポリエチレン試験管に封入したものとブランクとして上述のトリチウムフリー水とともに近畿大学原子力研究所のUTRの中央ストリンガーで6時間照射(中性子flux  $1.3 \times 10^7 \text{ n/cm} \cdot \text{s}$ )した。また本法の検出限界を知るため、濃度 0.01mgLi/l の試料水50mlの照射も行った。フランクスモニターとしては金箔(約10mg)を用いた。照射試料は、クエンチングの原因となる塩類を除去するため、 $\text{Ag}_2\text{CO}_3$ を添加後減圧蒸留を行った。この蒸留水8mlを20ml テフロンバイアルにとり、乳化シンチレーター(Instagel)12mlを加え、湯浴中で加温混合し、二日間冷暗所(約12°C)で放置後測定(50min×10回)した。また100mlを照射した試料水は、蒸留後その40mlを100ml テフロンバイアルにとり、乳化シンチレーター60mlを加え上述と同じ手順で測定した。測定器はアロカ製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-LBIを用い、クエンチングの補正是外部標準線源チャンネル比法(ESCR法)により行った。

【結果と考察】 Fig. 1にリチウム濃度と生成トリチウム濃度との関係を示す。0.1~5.0mgLi/lの濃度範囲で生成トリチウム量とリチウム量との間には直線関係が認められ、濃度0.1mg/lでは±0.05mg/lの精度で定量できることがわかった。生成トリチウム濃度は、フランクスモニターから求めた中性子束密度を用いて算出した計算値と一致した。これは、水溶液中で核反応により生じたトリチウムのほとんどは水の形に変換されていることを示唆している。しかし、リチウムを含まないときにもトリチウム濃度の上昇がみられることについてはいっそうの検討が必要である。一方、本法の検出限界を知るために照射した濃度0.01mg/lの試料水100ml中に生じたトリチウム量は本法の定量限界以下となったが、より長期間照射することにより定量することが可能である。

リチウム定量の分析精度に及ぼすアルカリ金属イオンと塩化物イオンの影響の検討結果をTable 1に示す。5mg/lのリチウム水溶液に対するアルカリ金属イオンと塩化物イオンの影響はほとんど認められなかった。蒸留操作によって除去可能なアルカリ金属イオン(不揮発性)はこの定量法には妨害とはならない。また揮発性の塩化物イオンについても影響は認められなかった。この理由は、 $\text{Ag}^+$ イオンを加えることによって塩化物イオンがほとんど除去されているためである。

しかし、リチウムと2倍濃度のホウ酸( $\text{H}_3\text{BO}_3$ )を含んだリチウム水溶液ではトリチウムの生成量が他の試料水よりも少なかった。これはホウ素の熱中性子に対する反応断面積が大きい( ${}^{10}\text{B}: \sigma = 3838 \text{ barn}$ )ための遮蔽効果によるものと考えられる。

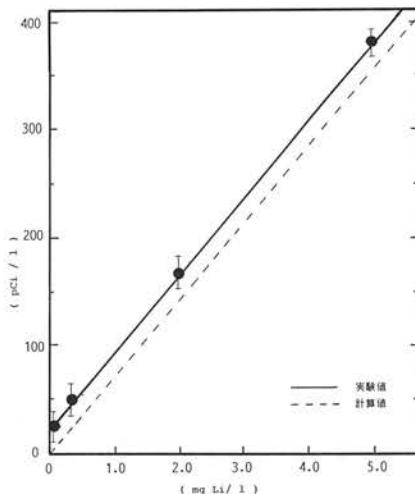


Fig. 1 Correlation between lithium contents and tritium produced by neutron irradiation.

Table 1. Effects of alkali elements and boron on the production of tritium.

Added	T concentration (pCi/l)
5 ppm Na	$397.9 \pm 11.5$
10 ppm Na	$393.1 \pm 11.6$
25 ppm Na	$422.0 \pm 12.9$
50 ppm Na	$406.4 \pm 13.3$
5 ppm K	$439.8 \pm 13.2$
10 ppm K	$428.0 \pm 13.6$
25 ppm K	$397.7 \pm 16.3$
50 ppm K	$426.0 \pm 16.7$
10 ppm B	$292.3 \pm 13.3$

\* calculated value 418.5 pCi/l

〔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・斎 駿夫と北陸大学助教授・山田芳宗の協力により行なった。〕

## 表層海水中の放射性炭素濃度の経年変動とCO<sub>2</sub>ガス交換

### Secular Variation of Radiocarbon Concentration in Surface Seawater and CO<sub>2</sub> · Gas Exchange

海洋表層水中の放射性炭素濃度の経年変動は、年輪バンドをつくるイシサンゴを使って過去に遡り求めることができる。北西太平洋地域の、沖縄本島の那覇と瀬底、東カロリン諸島ボナペ産のハマサンゴ群体については、年次報告 LLRL-AR-5 (1981, p.14) に、鹿児島県喜界島、マリアナ諸島グアム島、パラオ群島（トアゲル水道）の3 地点から採取されたハマサンゴ群体についての解析結果は、年次報告 LLRL-AR-9 (1985, p13) にそれぞれ記した通りである。

今回、和歌山県串本町高浜海岸と、沖縄県の八重山諸島黒島仲本海岸より採取したハマサンゴ群体 (*Porites lutea*) から得た放射性炭素の経年変動の結果と、その経年変動から算出した、大気－海洋間の二酸化炭素の交換速度について報告する。

(1) 串本産ハマサンゴ群体からは、1951年から1985年までの35年間、黒島産ハマサンゴ群体からは、1935年から1985年までの51年間の放射性炭素濃度の記録を得た (Fig. 1)。両地域とも、1950年代前半から1970年代前半にかけての放射性炭素濃度の急激な増加を示しており、その増加量は、串本では246%，黒島では243%である。

串本と黒島とを比較すると、放射性炭素濃度が増加する時期は黒島の方が早く、かつ、最大値に達するのも黒島の方が早い。その後、1970年代半ば以降は串本、黒島ともほぼ一致しているが、1980年代になってから、串本では濃度の減少傾向が見られる。

(2) 串本、黒島とも、その放射性炭素濃度の経年変動は、グアム、沖縄、喜界での結果とほぼ一致する。また、沖縄、喜界で見られた1950年代半ばの小さな極値は黒島においても見られ、その値は黒島のものが最も大きい。一方、串本では、極値と呼べるほどではないが、小さな高まりが同時期に見られる。この小さな極値は北西大西洋および東赤道太平洋地域では見られず、北西太平洋地域特有のものである。

(3) 串本と黒島産ハマサンゴ群体から得た放射性炭素濃度の経年変動から、図表的方法 (Druffel, 1980) によって、大気－海洋間の二酸化炭素の交換速度を算出した。Fig. 2 および Fig. 3 のグラフの傾きが交換速度を示している。このグラフが直線状を示すということは、交換速度が変動しないことを意味し、算出した交換速度は、串本で  $0.12 \text{ y}^{-1}$ 、黒島で  $0.11 \text{ y}^{-1}$  であった。

(4) 串本、黒島で算出した交換速度は、交換速度の変動がないこと、そしてその値が極めて近いという点で、喜界 ( $0.12 \text{ y}^{-1}$ )、グアム ( $0.10 \text{ y}^{-1}$ ) のものと良く似ている。同じ黒潮流域の黒島、喜界、串本での交換速度が一致することから、黒潮流域での交換速度の値を確定できる ( $0.11 \sim 0.12 \text{ y}^{-1}$ )。

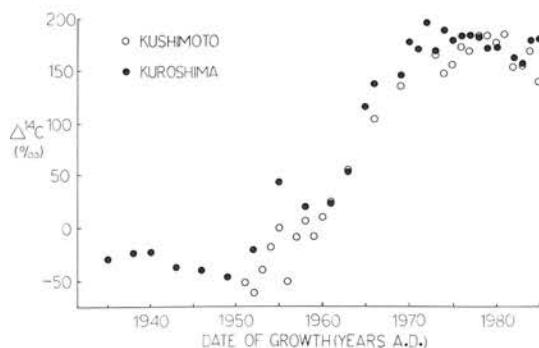


Fig. 1 The  $\Delta^{14}\text{C}$  for *Porites lutea* from Kushimoto and Kuroshima.

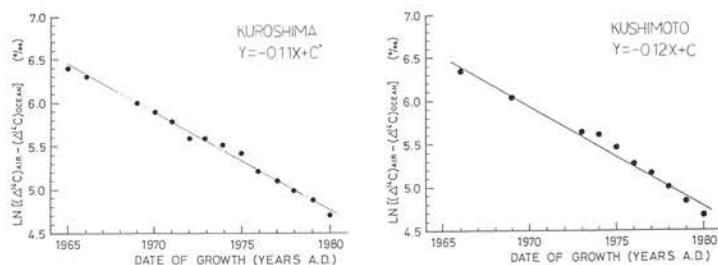


Fig. 2 Plot of  $\ln(^{14}\text{C}_{\text{air}} - ^{14}\text{C}_{\text{coral}})$  versus time, 1965–1980.  $\Delta^{14}\text{C}_{\text{coral}}$  values are based on data from Kushimoto coral.  $\Delta^{14}\text{C}_{\text{air}}$  values are based on data from Nydal and Lovses (1983).

Fig. 3 Plot of  $\ln(^{14}\text{C}_{\text{air}} - ^{14}\text{C}_{\text{coral}})$  versus time, 1965–1980.  $\Delta^{14}\text{C}_{\text{coral}}$  values are based on data from Kuroshima coral.  $\Delta^{14}\text{C}_{\text{air}}$  values are based on data from Nydal and Lovses (1983).

〔この研究で、串本産サンゴは、大学院生・小嶋一彰が修士課程の研究課題の一部として、黒島産サンゴは、卒研生・種田実津男が卒業論文の一部としてそれぞれ分析したものである。〕

## 《施設職員》

施設長(併)	寺 田 喜久雄(昭和62年9月30日まで)
施設長(併) (教 授)	上 野 馨(昭和62年10月1日より)
教 授	上 野 馨
客員教授	滝 泽 行 雄
客員教授	池 迂 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

人  
事

## 《運営委員》 (任期 62年6月~64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	池 田 修	
医 療 技 術 短 大	安 東 醇	

研究  
論  
文

- M. Sakanoue, M. Yamamoto, K. Komura, Determination of Environmental Actinide Nuclides and  $^{210}\text{Pb}$  ( $^{210}\text{Po}$ ) by Low-Energy Photon Spectrometry with Alpha-Spectrometry, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, 115(1), p.71–82 (1987).
- M. Sakanoue, Transuranium Nuclides in the Environment, Radiochimica Acta, 42, p.103–112 (1987).
- 小村和久, 中谷 周, 森本隆夫, 鳥居鉄也, ドライバレー地域調査報告 1984–1985, 南極資料, 第31巻3号, p.230–237 (1987).
- H. Obayashi, H. Amano, K. Komura, Y. Sakuma, J. Kodaira, H. Sakamoto, Y. Mizuguchi T. Hayashi and K.L.Tan, Preliminary Surveillance of Prospective Site—Environmental Considerations—, Nuclear Engineering and Design/Fusion, 4, p.425–446 (1987).
- T. Muromura, T. Adachi, H. Takeishi, Z. Yoshida, T. Yamamoto and K. Ueno, Metallic Phases Precipitated in  $\text{UO}_2$  Fuel, Journal of Nuclear Materials, 151, p.318–326 (1988).
- M. Sakanoue, K. L. Tan and K. Komura, In Situ Measurement and Depth Profile of Residual  $^{152}\text{Eu}$  Activity Induced by Neutrons from the Atomic Bomb in Hiroshima, US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, Radiation Effects Research Foundation, Volume 2, p.261–265 (1987).

研究  
報  
告

- 阪上正信, 山本政儀, 有機形超ウラン元素の生成, 京大原子炉実験所「環境における放射性核種の生物学的変換と線量評価 短期研究会報告」, KURRI-TR-290, p.23–31 (1987).
- 阪上正信, 山本政儀, 石川県における個人被ばく線量に関する調査研究, 昭和61年度石川県委託研究「環境放射能調査報告書」, p.33–48 (1987).
- 阪上正信, 趙 蘭才, 多田哲郎, 山本政儀, たばこ葉とその喫煙に関する放射性核種, 昭和61年度財団法人喫煙科学研究所財團「研究年報」, p.121–126 (1987).
- 阪上正信, 山田芳宗, 飯 幹夫, 加藤岩夫, 水理学・気象学から見た環境トリチウム変動と解析, 昭和61年度文部省科学研究費エネルギー特別研究(核融合)第2班「トリチウムに関する総合研究成果報告集」, p.12–13 (1987).
- 飯 幹夫, 山本政儀, 上野 馨, 山田芳宗, 桐山典城, 樹木中のトリチウムの定量, 昭和62年度文部省科学研究費核融合特別研究第2班「トリチウムに関する総合研究成果報告集」, p.61–62 (1988).

総  
説

- 山本政儀, 環境試料中長寿命放射性核種分析・測定法の現状と課題, 第18回「原子力施設と沿岸海洋シンポジウム」, p.19–27 (1987).

新  
規  
納  
入  
設  
備

ゲルマニウム半導体検出器  
ORTEC GEM-35190-P  
ドラフトチャンバー  
ダルトン DS-75T (2台)  
クリーニングユニット  
アロカ LSC-LB1用  
マイクロコンピューター  
NEC PC-9801VX21  
プリンター エプソン  
VP1000PC  
小型無停電電源装置

使  
用  
量

液 体 窒 素	6,600 ℥
A 重 油	3,236 ℥
電 气	171,530 KWH
水 道	1,919 m <sup>3</sup>

## 昭和62年度 見学来訪・調査出張記録

- 昭和62. 4.30 石川県環境部黒木慎一氏, 吉田 弘氏, 樹田武史氏研究打ち合せ  
 5.10, 5.27, 5.28, 9.20~21  
 東京大学宇宙線研究所須田英博助教授神岡地下水ウラン, トリウム, ラジウム分析  
 4.16, 5.12, 6.5, 7.13, 10.27, 12.25~26  
 〔東京大学宇宙線研究所神岡地下観測所周辺にて天然放射能バックグラウンド測定のための試料採取〕  
 5.7~9, 7.9, 8.9~10, 11.24, 12.15, 63.1.22, 3.20  
 金沢大学名誉教授阪上正信氏研究打ち合せ  
 5.14 薬学部学生36名見学・実習  
 5.28 薬学部学生37名見学・実習  
 6. 4 石川県環境部樹田武史氏研究打ち合せ  
 7.24 ◎昭和62年度運営委員会(於 理学部)  
 8. 8, 63.1.29 [志賀町, 富来町にてラドン及びトリチウム測定のための地下水採取]  
 8.10 秋田大学趙 蘭才氏, 袁 鏞冷氏研究打ち合せ, 見学  
 8.10, 10.7, 63.1.7, 3.3  
 〔岐阜県御母衣ダム地下測定室にて環境放射能測定〕  
 8.17 日本原子力研究所保健物理部線量計測課長南 賢太郎氏見学  
 8.18 日本国際生命科学協会福富文武氏見学  
 9.18 理学部化学科3年生43名見学・実習  
 9.25 福井県衛生研究所研究員早川博信氏講演  
 10.15~18 〔桜島周辺環境放射能測定のための試料採取〕  
 11.17 医療技術短期大学学生45名見学  
 63. 1. 6 ◎持ち回り運営委員会  
 1.11 北陸大学山田芳宗助教授研究打ち合せ  
 3.21 追手門大学教授藤原一郎氏見学  
 3.21~24 〔桜島周辺環境放射能測定のための試料採取〕  
 3.24 高エネルギー物理学研究所鈴木厚人助教授, 谷森 達氏見学

低レベル放射能実験施設 昭和62年度研究概要・年次報告 1988年6月1日発行

〒923-12 石川県能美郡辰口町和氣 T E L (0761) 51-4440

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