

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

1988.4～1989.3

Annual Progress Reports of

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

思い出すまま（理学部長）	2
U 標準試料（NBL, IAEA, Harwell）の放射平衡	3
長寿命核種 ¹³⁸ La の半減期の精密測定	4
桜島火山周辺の大気と火山灰中の ²¹⁰ Pb と ²¹⁰ Po の測定	5
チェルノブイリ原子炉事故によるフォールアウト ¹³⁴ Cs の湖底への堆積挙動	6
三方五湖の湖底堆積物試料中の超ウラン元素（Np, Pu, Am） —第2報—	7
セラフィールド再処理工場周辺海域の環境試料中の超ウラン元素	8
人体組織中の ²¹⁰ Pb と ²¹⁰ Po 濃度	9
α 線スペクトロメトリーによる人骨中の微量 ²²⁶ Ra の定量	10
樹木年輪試料による環境中トリチウムレベルの時間的変動の研究	11
⁶ Li(n, α)T 反応によるリチウムの定量とその応用 —第4報—	12
金沢市小立野地区の地下水のトリチウム濃度 —第2報—	13
琉球列島黒島産現生ハマサシゴ骨格中の放射性炭素濃度の経時変化	14
昭和63年度・施設備品・運営人事関係諸資料・研究報告	15
昭和63年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

想　い　出　す　ま　ま

理学部長・施設運営委員会委員長　寺　田　喜久雄

ビキニ環礁の東方海域で操業中のマグロはえなわ漁船第五福竜丸が、米国の水爆実験によって吹きとばされた大量の死の灰を浴びたのは、1954年3月1日のことであった。その年の5月末に、京都で開催された分析化学討論会第2日目の講演会場は、大勢の報道陣がつめかけて異様な雰囲気につつまれていた。いわゆる“原爆マグロ”や、第五福竜丸に降った灰の分析結果について、金沢大、東大、静岡大、大阪市大、大阪市医大の研究者達から発表が行われようとしていたのである。当時大学院2年目の私の研究発表が、奇しくもそれらの講演の直前にくまれていたため、大勢の報道陣が待機している中で大変な緊張を強いられたのを、あたかも昨日の出来事のように思い出す。その2年あとに、まさか私自身が調査船「俊鶴丸」に乗りこんで、ビキニ海域へ放射能の調査に行くことになるうとは、そのときには夢想だにしなかった。あれから35年、星霜の移りゆく早さには、ただただ驚くばかりである。

わが国における放射能研究は、あの忌わしい事件がきっかけとなって花を咲かせることになったと言えよう。1955年に日本原子力研究所が設立され、1957年には放射線医学総合研究所が発足した。しかし、これらの研究所はそれぞれ、特殊法人又は科学技術庁の所管であり、大学のように、自由な発想で教育、研究を行えるような性格のものではなかった。そこで、研究者からの強い要望で、1961年頃から金沢大学を始めいくつかの大学に放射化学講座が設置されて、本格的に、放射化学の教育・研究が大学において行われるようになった。時を経て、それらの多くは必然的に基礎的な放射能研究を志向するようになり、環境放射能の研究を続けたのはその一部にすぎなかったように思われる。

このような状況のもとで、1968年に日本学術会議は、「放射能影響研究の推進について」環境放射能研究所及び放射線障害基礎研究所の設置を政府に勧告した。たまたま、辰口の丘陵地約8万坪が名鉄から大学に寄附されていたので、金沢大学がホスト大学として名乗りをあげたのであった。研究所の設置を目ざして、学術会議まで説明に向いたのもその頃のことである。いくつかの曲折を経て、1975年に理学部附属低レベル放射能実験施設が設置されることになった。爾来14年、初代の阪上正信施設長の並々なぬ卓見と御努力によって、全国的にもまれにみるユニークな研究活動を展開し、実質的な国内共同利用施設として、LLRLの名は今や国内のみならず、国際的にも知れ渡っている。2年前、阪上教授が退官されたあとに、新しい施設長として上野馨教授を原研からお迎えし、ほどなく世は昭和から平成にあらたまった。

上野教授は着任にあたって「実験が未知を開き、理論が既知を固めるという教えに沿って、本施設を益々発展させたい」と抱負を述べておられる。われわれは、上野教授を始めとするLLRLのスタッフの今後の御活躍に期待し、かつ、全国の関連研究者の夢である環境放射能研究所に、一歩でも近づくための努力を今後とも続けたいと考えている。

U 標準試料 (NBL, IAEA, Harwell) の放射平衡

Radioactive Equilibrium States of the Uranium Standards Issued from the NBL, IAEA and Harwell

U 標準試料の放射平衡に関する知見は、これらの試料を標準線源として U 系列核種を測定するさいに極めて重要である。そこで当研究室所有の NBL および IAEA 発行の U 標準試料と Harwell 研究所 (UK) で ^{230}Th 年代測定法のための標準試料として使用されているウラニナイトの放射平衡についての非破壊 γ 線測定を行った。各試料は U 濃度が 0.1% となるように NaCl 粉末を加えて希釈し (U 濃度が低い NBL No. 102, 103, 104 を除く)、その 30 g をとり油圧器により直径 50mm の線源を作成した。U 濃度が高く粒度も大きい Harwell 試料 (U = 74%) は、40mg を少量の NaCl とともに乳鉢で粉碎し、NaCl 粉末で U 濃度 0.1% に希釈した後測定線源を作成した。 ^{222}Rn の散逸を防ぐため、線源は 2 重にポリエチレン袋に封入し、 ^{226}Ra と ^{222}Rn 間の放射平衡を待ってから Ge-LEPS および Ge 検出器により γ 線測定を行い、 ^{238}U (^{234}Th , 63.2 keV), ^{230}Th (67.8 keV), ^{226}Ra (186 keV), ^{214}Pb (352 keV), ^{214}Bi (609 keV) 及び ^{210}Pb (46.5 keV) を測定した。

U 濃度の高い NBL No. 42-1 (U = 4.04%) を理想的な放射平衡にある標準試料とみなして他の試料の平衡状態を評価することとし、放射平衡の度合は、標準試料で測定した ^{238}U (^{234}Th) からの 63 keV γ 線に対する他核種からの γ 線のピーク計数の比を各試料で測定したピーク計数率の比と比較することにより評価した。化学組成の違いによる γ 線の自己吸収の補正は、各測定線源の化学組成より求めた質量吸収係数を用いて、モンテカルロ法により γ 線の自己吸収を計算して補正した。標準試料 NBL No. 42-1 と Harwell 試料については、U, Th, Ra の化学分離を行い、 α 線スペクトロメトリにより $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ および $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 放射能比の測定も行った。

Table 1 に各標準試料について測定した ^{238}U に対する娘核種の放射平衡の度合を示す。測定誤差は、計数の統計誤差 (1σ) のみを含み、標準物質 NBL No. 42-1 の放射能比は正しく 1.000 で誤差はないものと仮定した。表から分かるように、U 濃度の高い NBL No. 42-1 と、これを Dunite で希釈して作成した No. 42-2, 42-3, 42-4 および No. 6 と、これを Silica で希釈して作成した No. 102, 103, 104 と、IAEA の S2 と S4 および Harwell 試料では ^{230}Th , ^{226}Ra (186 keV γ 線による直接測定) および ^{210}Pb はいずれも誤差の範囲内ではほぼ放射平衡にあり、これらの試料は、線源内での低エネルギー γ 線の自己吸収の補正を正しく行えば、U 系列核種を定量するための良い標準線源として使用できる。しかし IAEA の S3 試料では ^{230}Th が 4%, ^{226}Ra が 5%, ^{210}Pb が 15% も平衡量より少なく、この試料は γ 線測定の標準線源としては不適当である。

これに対し、 ^{226}Ra の娘核種である ^{214}Pb と ^{214}Bi からの高エネルギー γ 線より間接的に測定した ^{226}Ra 含有量は、NBL No. 6 と Harwell 試料で 3 ~ 4% 過剰になっているほかは、すべて未平衡の状態にあり、中でも IAEA S3 と S4 の非平衡の度合は著しい。186 keV γ 線による直接測定と娘核種 ^{214}Pb , ^{214}Bi による間接測定の結果の不一致は、封入した測定線源より ^{222}Rn が散逸しているためと考えられるが、ポリエチレン袋が一重のときと、2 重のときでピーク比の測定結果が変わらないことから、これだけが理由とは考えられない。試料の粒度が大きくて U 濃度の高い粒子による、低エネルギー γ 線の局所的な吸収が起こっている可能性もある。なお α 線測定による Harwell 試料の $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比は 1.040 ± 0.025 で、娘核種による γ 線測定の結果と一致している。

Table 1. Radioactive equilibrium states of the NBL and IAEA U standards and Harwell uraninite.

Sample	Uranium content (%)	$^{210}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ (46 keV)	$^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ (67 keV)	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ (186 keV)	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ (^{214}Pb , ^{214}Bi)
NBL No. 42-1*	4.04	1.000 (Standard)	1.000 (Standard)	1.000 (Standard)	1.000 (Standard)
NBL No. 42-2	1.99	$1.003 \pm 0.009^{**}$	$0.990 \pm 0.025^{**}$	$0.989 \pm 0.015^{**}$	$0.949 \pm 0.008^{**}$
NBL No. 42-3	1.07	1.001 ± 0.010	0.989 ± 0.033	0.973 ± 0.015	0.941 ± 0.008
NBL No. 42-4	0.52	1.003 ± 0.008	1.001 ± 0.028	0.994 ± 0.013	0.952 ± 0.008
NBL No. 6-A	53.5	0.995 ± 0.006	1.003 ± 0.020	1.020 ± 0.008	1.036 ± 0.006
NBL No. 102-A	0.1025	1.000 ± 0.008	0.976 ± 0.025	1.011 ± 0.012	0.926 ± 0.008
NBL No. 103-A	0.0499	1.020 ± 0.009	1.014 ± 0.031	1.004 ± 0.012	0.937 ± 0.009
NBL No. 104-A	0.0099	0.990 ± 0.015	0.985 ± 0.040	0.996 ± 0.020	0.919 ± 0.013
IAEA S2	0.265	1.019 ± 0.008	1.000 ± 0.029	1.004 ± 0.012	0.949 ± 0.008
IAEA S3	0.354	0.854 ± 0.010	0.958 ± 0.032	0.946 ± 0.015	0.766 ± 0.010
IAEA S4	0.318	1.021 ± 0.010	1.015 ± 0.028	1.012 ± 0.015	0.879 ± 0.010
Harwell Uraninite 74		1.003 ± 0.004	0.981 ± 0.014	0.981 ± 0.007	1.035 ± 0.004

* Used as a primary standard in radioactive secular equilibrium state.

** Error consists of standard deviation (1σ) of gamma-ray counting and the propagated error in the calculation of activity ratios.

長寿命核種¹³⁸Laの半減期の精密測定Precise Measurement of the Half-Life of Long-Lived ¹³⁸La

ランタン同位体¹³⁸La (存在度0.09016%)は、電子捕獲 (EC) 壊変およびβ壊変により¹³⁸Baおよび¹³⁸Ceに壊変する。これらの壊変を利用した地質年代測定法が最近開発され、希土類元素を含む岩石試料に応用されており、年代測定の精度を高めるためには、¹³⁸Laの半減期として正確な値が知られている必要がある。

¹³⁸Laの半減期は、ほとんどがNaI (Tl) 検出器またはGe検出器による789 keV (β壊変)および1436 keV (EC壊変)のγ線の測定によって行われているが、Nd-Sm法により年代が決定された試料中の放射性起源の¹³⁸Baおよび¹³⁸Ceを測定することによっても求められる。しかし、地質年代学的方法で測定されたβ壊変の半減期は、放射能測定値に比べ約20%短く、不一致の原因が、放射能測定に使用した酸化ランタンの化学的不安定さや、789 keV γ線に対する検出効率の求め方に問題点があるとされている。そこでこれらの点に留意して半減期の測定を試みた。

¹³⁸Laから放出される789 keV γ線を精度よく測定するには、エネルギーの近いγ線を放出する核種を測定試料に加え、これを内部標準にして測定するのがもっとも有効である。このためγ線放出率が精度よく知られている⁴⁰K(天然存在度0.01178%, 半減期 1.277×10^{10} y, 1461 keV γ線の放出率10.67%)および放射平衡にある天然ウラン(²²⁶Raとその娘核種から786 keV γ線を含め186 keV から2204 keV までの多数のγ線が放出される)を内部標準として用いることとした。

放射能測定用のランタン試料として酸化ランタン (La₂O₃, 99.99%)を使用した。しかし、この化合物は空気中では不安定で、炭酸ガスや水分を容易に吸収して化合物を作るため、不純物の分解を目的に電気炉であらかじめ1200℃に加熱して化学形を整えた酸化ランタン (79.1677 g)を容器に取り、試薬のKCl (19.4768 g)とNew Brunswick Laboratory (NBL, USA)のU標準試料 (No. 42-1, 0.8547 g)を加えて混合し、油圧器で50mm φ×20mmのディスク状の線源を作成した。²²²Rnの散逸と空気の遮断のため、これをクレラップとポリエチレンシートで2重に封入し、²²²Rnの成長を待った後、相対効率49%のGe検出器によりγ線測定を行った。

²¹⁴Biからのγ線の多くはカスケードに放出され、密着して測定する場合、同時計数によるサムコインシデンス効果が大きくなる。そこで線源と検出器との距離を10cmにとりγ線測定を行い、サムコインシデンスの補正は²²⁶Ra線源を距離を変えて測定して得たγ線のピーク強度比と距離との関係から推定した。ランタン線源に加えたNBL試料からの²²⁶Raとその娘核種のγ線の検出効率より、相対効率曲線を描き、⁴⁰Kの1461 keV γ線に対する検出効率で規格化することにより789 keVおよび1436 keV γ線に対する検出効率を求めた。

半減期の測定結果を文献値とともにTable 1に示す。EC壊変、β壊変、EC+β壊変の半減期として、それぞれ $(1.577 \pm 0.024) \times 10^{11}$ y, $(2.834 \pm 0.043) \times 10^{11}$ y, $(1.013 \pm 0.015) \times 10^{11}$ yを得た。半減期は内部転換電子の放出 (789 keV [E 2 転移], 0.34%; 1436 keV [E 2 転移], 0.089%)の寄与も考慮している。また、誤差には、¹³⁸La自身と内部標準γ線のピーク計数の統計誤差と、検出効率の規格化に用いた⁴⁰Kの1461 keV γ線の核データの不確かさが含まれている。EC壊変の半減期は、SatoとHiroseおよびNormanとNelsonらのγ線測定による値およびSm-Nd法から推定された値とも矛盾しない。一方、γ線の内部標準の採用により精度良く検出効率を決めて得たγ壊変の半減期は、従来のγ線測定による値よりも8~40%短く、地質年代学的に得た値にかなり近づいてきた。しかし、Sm-Nd法が要求する値とはなお10%の隔たりがあり、その解決は今後の課題である。

Table 1. Beta and electron capture decay and total half-lives of natural ¹³⁸La.

Investigators (year)	Method used	Half-life (x 10 ¹¹ y)		
		Beta decay	EC decay	Total
Present work	Gamma-Ge	2.834 ± 0.043#	1.577 ± 0.024#	1.013 ± 0.015#
Turchinets and Pringle ('56)	Gamma-NaI(Tl)	2.4 ± 0.2	2.1 ± 0.1	1.0 ± 0.1
Glover and Watt ('57)	Gamma-NaI(Tl)	3.5 ± 0.3	1.64 ± 0.06	1.12 ± 0.10
De Ruyter et al. ('72)	Gamma-NaI(Tl)	2.83 ± 0.04	1.66 ± 0.02	1.04 ± 0.014
Ellis and Hall ('72)	Gamma-NaI(Tl)	4.7 ± 1.5	2.34 ± 0.37	1.56 ± 0.3
Marsol et al. ('72)	Gamma-Ge(Li)	3.95 ± 0.63	1.87 ± 0.21	1.27 ± 0.18
Cesana and Terrani ('77)	Gamma-Ge(Li)	3.68 ± 0.14	1.99 ± 0.03	1.29 ± 0.05
Taylor and Bauer ('79)	Gamma-Ge(Li)			1.28 ± 0.12
Sato and Hirose ('81)	Gamma-Ge(Li)	3.02 ± 0.14	1.56 ± 0.05	1.03 ± 0.02
Norman and Nelson ('83)	Gamma-Ge(Li)	3.19 ± 0.22	1.58 ± 0.02	1.06 ± 0.03
Tanaka and Masuda ('82)	Sm-Nd Suggest	2.69 ± 0.24	1.51 ± 0.10	0.94 ± 0.06
Nakai et al. ('86)	Sm-Nd		1.67	
Dickin ('87)	Sm-Nd Recommend	3.01		
Tanaka et al. ('88)	Sm-Nd	2.58		
Masuda et al. ('88)	Sm-Nd	#2.50		

Isotopic abundance of 0.09016 % is used for ¹³⁸La. All other values are calculated by using previous value of 0.089 %.

桜島火山周辺の大気と火山灰中の ^{210}Pb と ^{210}Po の測定

Measurements of ^{210}Pb and ^{210}Po in Surface Air and Volcanic Ash from Mt. Sakurajima

火山からは、 H_2O 、 H_2S 、 SO_2 などとともに、かなり大量の ^{210}Pb と ^{210}Po が放出されることが知られている。桜島は世界で最も活発な火山の一つであり、ここから放出される ^{210}Pb と ^{210}Po に関する知見は、地球化学的にも保健物理学的にも重要と考えられるため、桜島とその周辺地域の大气および火山灰試料中の ^{210}Pb と ^{210}Po の測定を行った。

1986年から1987年にかけての予備的な測定に続いて、1988年3月より鹿児島大屋上に設置したハイボリュウムエアサンプラーを用いて大気浮遊塵を採取するとともに、桜島各地に降下した噴出直後の火山灰も採取した。捕集した浮遊塵はその重量を測定後、 ^{210}Pb は低エネルギー光子スペクトロメーター（Ge-LEPS）による非破壊 γ 線測定により、 ^{210}Po は ^{209}Po を収率トレーサーとして加え HNO_3 - HF - HClO_4 で分解、化学的に分離・精製後、銀板上に析出させSi検出器による α 線測定により定量した。また、一部の試料についてはUおよびTh同位体の測定も行った。比較のため、辰口における大気中の ^{210}Pb と ^{210}Po の濃度の測定も上記と同様の方法で行った。また、火山灰試料については ^{210}Pb と ^{210}Po のほか、UおよびTh同位体と ^{40}K の測定を行った。

大気浮遊塵の測定で得た桜島周辺と辰口における大気中の ^{210}Pb と ^{210}Po の測定結果をFig. 1に示す。桜島地域の ^{210}Pb ($1.9\sim 572 \text{ fCi/m}^3$)と ^{210}Po ($0.5\sim 128 \text{ fCi/m}^3$)の濃度では、2桁以上の大きな変動を観測した。 ^{210}Pb の濃度は辰口($10.4\sim 71.2 \text{ fCi/m}^3$)での値と比べると変動幅は大きかったが、平均値をとるとほぼ同じレベルになる。これに対し、桜島の ^{210}Po の濃度と $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比($0.02\sim 12.0$)は、辰口での ^{210}Po の濃度($0.03\sim 4.75 \text{ fCi/m}^3$)と $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比($0.01\sim 0.14$)に比較して両方ともかなり高い。主に風が北、北東、南東(桜島方向)から吹いている時に $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比が1より大きい値を観測している。低い $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比(約0.1)は、辰口での平均値とほぼ等しく、桜島火山の影響のないバックグラウンドレベルと考えられる。

火山灰中の ^{210}Pb と ^{210}Po の濃度は親核種の ^{238}U や ^{226}Ra と比べてかなり高く(Fig. 2)、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は $3.0\sim 14.6$ の範囲にある。これは、火山ガスと共に大気中に放出された揮発性の ^{210}Pb や ^{210}Po (特に後者)が火山灰の表面に付着するためと考えられる。降灰の寄与により、大気浮遊塵試料の $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比が高くなるケースもしばしば観測した。

火山ガス中の SO_2 の濃度は火山活動と密接な関係にあることが知られており、 SO_2 放出量と ^{210}Po および ^{210}Pb の放出量との関係を明らかにするため、桜島のモニタリング地点で SO_2 の測定が行われた際の空気を濾過したフィルター試料の分析を試みている。

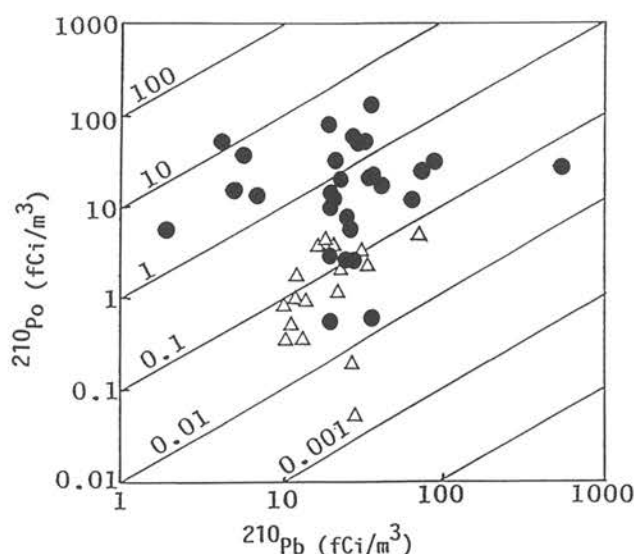


Fig. 1. Correlation of ^{210}Pb and ^{210}Po concentration in surface air at Sakurajima area (●) and Tatsunokuchi (Δ).

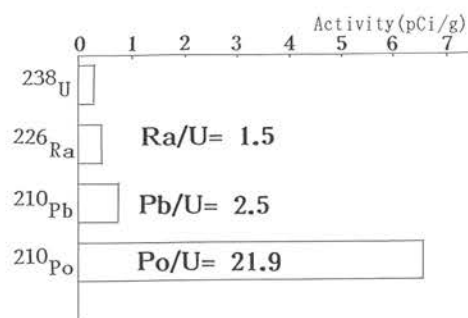


Fig. 2 Activity ratio of ^{238}U series nuclides in Sakurajima Volcanic ash.

〔本研究は、主として卒研生・内田賢吾が行い、大気浮遊塵や火山灰試料の採取には鹿児島大学理学部助教授坂元隼雄氏と鹿児島市役所の古藤幹氏の協力をいただいた。成果の一部は鹿児島国際火山会議(1988. 7. 19~23)で発表し、鹿児島国際火山会議論文集(1988)と“Kagoshima International Conference on Volcanoes 1988”に記載されている。〕

チェルノブイリ原子炉事故によるフォールアウト¹³⁴Csの湖底への堆積挙動

Sedimentation Behavior of Fallout ¹³⁴Cs derived from Chernobyl Accident

1986年4月のチェルノブイリ原子力発電所事故によって、¹³⁴Cs（半減期2.062年）をはじめ多くの核分裂生成物が環境中に放出された。¹³⁴Csは事故以前の一般環境には全く検出されないで、環境中での放射性Csの挙動を研究するためのトレーサーとして有用である。本研究は水質の異なる湖（海水、汽水、淡水）が比較的狭い範囲に存在する福井県の三方五湖で、湖底堆積物を採取し、環境条件（主に水質）の違いが¹³⁴Csの湖底への堆積挙動にどのような影響を与えるかを検討した。

試料は Fig. 1 に示す11地点で1986年11月と1988年に採取（Table 1）し、乾燥粉碎後30～50 gをディスク状に加圧成型してγ線スペクトロメトリーを行い、604 keVのγ線から¹³⁴Csを定量した。

測定結果を Fig. 2 に示す。測定値は、1986年6月1日現在の値に減衰補正した。¹³⁴Csが検出されたのは水深の浅い淡水の三方湖のみで、他の湖では検出限界以下であり、海水や汽水の環境ではアルカリ金属である¹³⁴Csが1～2年程度の時間スケールではほとんど堆積物に移行しないことがわかった。

¹³⁴Csを検出した三方湖について、2本のコア試料を用いて深度分布を測定した結果を Fig. 2 に示す。図には同時に検出した¹³⁷Csおよび堆積速度を知る目的で測定した過剰²¹⁰Pb（²²⁶Raとの放射平衡量以上存在する²¹⁰Pb）の深度分布もあわせて示した。Fig. 2 からわかるように、¹³⁴Csは深さ25cmまで検出され、その濃度は15cmまではほぼ一定でそれ以降で減少している。¹³⁴Csが事故後わずか2年余りで湖底の20cm以上の深さまで検出されるのは、²¹⁰Pbや¹³⁷Csの深度分布が深さ20cmまではほぼ一定であることから示唆されるように、堆積物の生物的・人為的攪乱の影響が大きいと思われる。

Table 1. Description of sediment cores collected from the Mikata Five Lakes.

Sampling point	Sample No.	Sampling Date	Depth of water (m)	Length of sediment core (cm)	¹³⁴ Cs detection
Lake Hiruga (sea water)	1	Nov. 18 '86	40	0 - 13	No
	2	Nov. 18 '86	40	0 - 23*	No
Lake Kugushi (sea water)	3	Nov. 18 '86	2.5	0 - 10.5*	No
	4	Aug. 9 '88	2.5	0 - 22.5*	No
Lake Suigetsu (brackish water)	5	Nov. 18 '86	30	0 - 10.5*	No
	6	Nov. 18 '86	30	0 - 22.5*	No
Lake Suga (brackish water)	7	Nov. 18 '86	11	0 - 16	No
	8	Nov. 18 '86	11	0 - 23.5*	No
Lake Mikata (fresh water)	9	Nov. 18 '86	3	0 - 13	Yes
	10	Aug. 9 '88	2	0 - 23*	Yes
	11	Aug. 9 '88	2	0 - 29**	Yes

* : Ekman-Birge type box sampler (14cm x 14cm x 25cm)

** : Acrylic resin pipe (9.5cmφ)

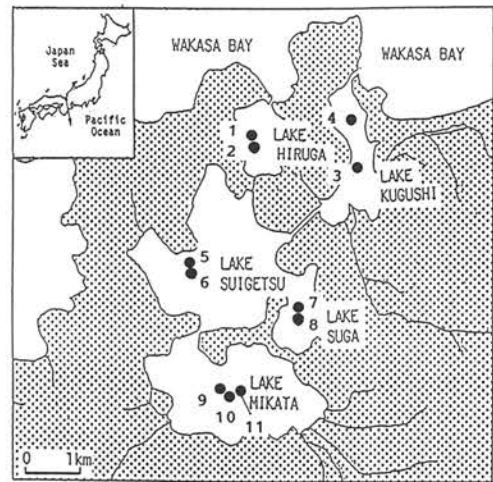


Fig. 1 Sampling points of sediment cores from Mikata Five Lakes.

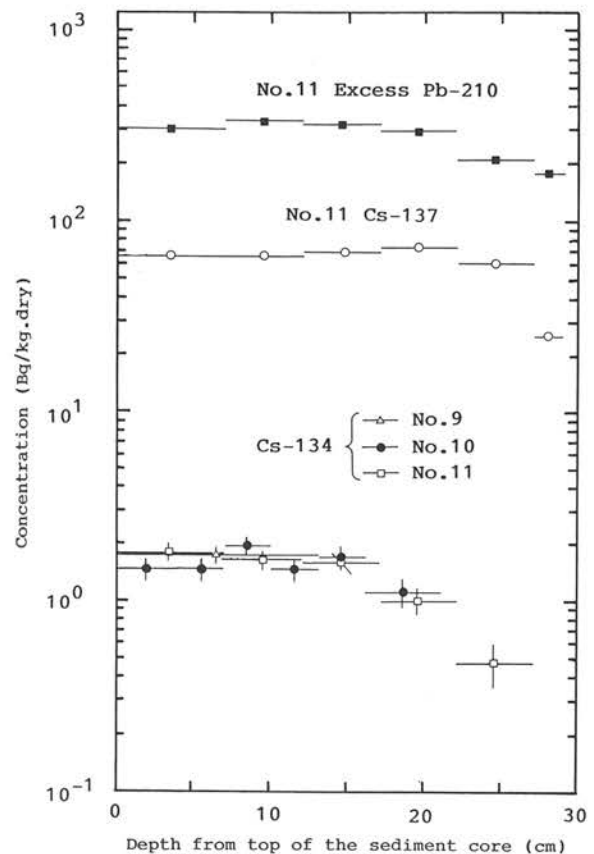


Fig. 2 Depth profiles of ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs and excess ²¹⁰Pb in sediment cores from Lake Mikata.

[本研究は主として大学院生・山内喜通の協力により行った。]

三方五湖の湖底堆積物試料中の超ウラン元素 (Np, Pu, Am) — 第2報 —

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

昨年度に引き続き福井県の三方五湖で採取した湖底堆積物について超ウラン元素の堆積挙動を検討した。今回は、前回採取しなかった三方湖（淡水湖）および久々子湖（汽水湖）について、1988年8月に福井県衛生研究所が製作した採泥器（アクリル製、9.5cmφ）と通常のエクマンバージ型採泥器（14cm×14cm×25cm）を用いて堆積物コア試料の採取を行った（前ページ Fig. 1 の No. 4, No. 11 地点）。採取した試料は船上で3～5cm毎に分け実験室に持ち帰り、風乾の後粉碎した。

測定は前回（LLRL-AR-12, p. 9, p. 10）と同様にまず非破壊γ線スペクトロメトリーで¹³⁷Csおよび²¹⁰Pbを定量し、その後試料50～150gよりNp, PuおよびAmを化学的に分離・精製した。²³⁷Np, ²³⁸Pu, ^{239,240}Puおよび²⁴¹Amはα線スペクトロメトリーで、²⁴¹Puは液体シンチレーションカウンターで測定した（AR-12, p. 11）。

久々子湖、三方湖の測定結果をFig. 1および2に示す。久々子湖については、Fig. 2の上部に²¹⁰Pbから推定した堆積年代も併せて示す（三方湖では過剰²¹⁰Pb濃度の変化が深さ15cmまで認められない）。久々子湖、三方湖での²³⁷Np濃度の深度分布の傾向は、^{239,240}Pu, ²⁴¹Amの結果と比較的によく似ている。前回の日向湖、水月湖および菅湖でも類似の結果を得た。Table 1には、各核種の単位面積当りの蓄積量と放射能比を三方五湖の他の湖からの値（AR-12, p. 10）の結果と併せて示す。いずれの核種の蓄積量も三方湖、久々子湖の方が日向湖、水月湖、菅湖に比べて多い。これは、三方湖や久々子湖に流入する河川水の影響によるものと考えられる。一方、放射能比でみると、各湖の堆積物間での²⁴¹Am/^{239,240}Pu比の差は認められない。しかし、²³⁷Np/^{239,240}Pu比は、海水と汽水湖で0.10～0.15%であるが、淡水の三方湖では0.3%（これまでに測定した土壌の値に近い）と2～3倍高い。一般に、このような湖に降下したPuは、そのほとんどがその場で沈降すると言われており、この比の違いは、淡水の方が海水や汽水に比べてNpが堆積物に移行し易いためと考えられる。

Table 1. Inventories of ²³⁷Np, Pu isotopes, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs estimated from sediment cores from Mikata Five Lakes, and their activity ratios.

Nuclides	Lake Mikata	Lake Kukusi	Lake Hiruga	Lake Suigetsu	Lake Suga
Accumulation (MBq/km ²)					
²³⁷ Np	0.53 ± 0.05	0.29 ± 0.02	0.17 ± 0.02	0.11 ± 0.02	0.19 ± 0.03
²³⁸ Pu	7.83 ± 0.38	7.27 ± 0.38	5.94 ± 0.30	4.57 ± 0.47	6.97 ± 0.53
^{239,240} Pu	181 ± 3	200 ± 5	157 ± 4	109 ± 4	163 ± 4
²⁴¹ Pu	648 ± 27	711 ± 24	555 ± 15	410 ± 16	605 ± 18
²⁴¹ Am	54.8 ± 2.5	68.3 ± 3.0	53.3 ± 2.0	31.4 ± 1.2	51.3 ± 1.5
¹³⁷ Cs	6678 ± 46	1604 ± 20	409 ± 16	580 ± 10	957 ± 17
Activity ratio					
²³⁷ Np/ ^{239,240} Pu (%)	0.29 ± 0.03	0.15 ± 0.01	0.11 ± 0.02	0.10 ± 0.02	0.11 ± 0.02
²³⁸ Pu/ ^{239,240} Pu	0.043 ± 0.002	0.036 ± 0.002	0.038 ± 0.002	0.041 ± 0.004	0.042 ± 0.003
²⁴¹ Pu/ ^{239,240} Pu	3.59 ± 0.16	3.56 ± 0.15	3.53 ± 0.13	3.76 ± 0.20	3.71 ± 0.14
²⁴¹ Am/ ^{239,240} Pu	0.30 ± 0.02	0.34 ± 0.02	0.34 ± 0.01	0.29 ± 0.02	0.31 ± 0.01
^{239,240} Pu/ ¹³⁷ Cs	0.027 ± 0.001	0.12 ± 0.01	0.38 ± 0.02	0.19 ± 0.01	0.17 ± 0.01

〔本研究は主として大学院生・山内喜通が行い、福井県衛生研究所・五十嵐修一氏が²⁴⁰Puの測定に協力した。成果の一部は第32回放射化学討論会（於 東海村）で報告した。〕

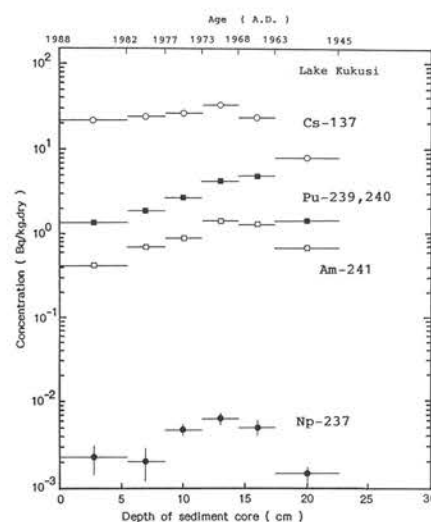


Fig. 1 Depth profiles of fallout ²³⁷Np, ^{239,240}Pu, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in sediment cores from Lake Kukusi.

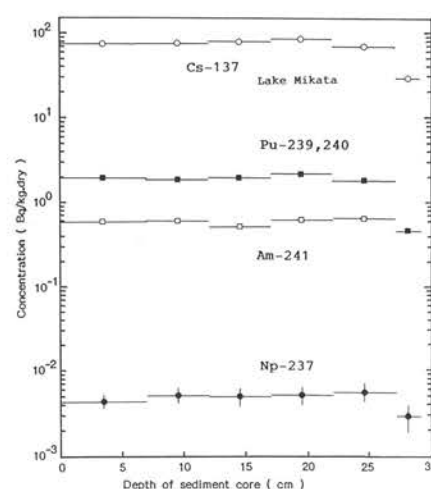


Fig. 2 Depth profiles of fallout ²³⁷Np, ^{239,240}Pu, ²⁴¹Am and ¹³⁷Cs in sediment cores from Lake Mikata.

セラフィールド再処理工場周辺海域の環境試料中の超ウラン元素

Transuranium Elements in Environmental Samples from Coastal Area near the Sellafield Nuclear Fuel Reprocessing Plant

環境には、大気圏核実験、原子炉事故、人工衛星、核燃料再処理などさまざまな汚染源からの超ウラン元素が広く分布存在している。環境中の超ウラン元素の濃度とその組成の把握は、環境モニタリングのみならず、これら元素の環境中での挙動を研究する上からも不可欠である。これまで核実験に由来するフォールアウトの超ウラン元素については既報(LLRL-AR-6, p. 9, AR-7, p. 9, AR-8, p. 8, AR-12, p. 10等)で詳細に検討してきた。今回はイギリスのセラフィールド再処理工場周辺海域で採取したいくつかの海底土及び海藻試料を入手〔Dr. Aarkrog (Denmark, Risø), Dr. Poppelwell (UK, NRPB), Dr. Assinder (UK, Walse), 阪上正信博士(金沢大学名誉教授)より譲受〕できたので、これらの試料について ^{237}Np , Pu 同位体, ^{241}Am 濃度とそれらの放射能比を検討した。

試料の採取地点を Fig. 1 に示す。まず少量の試料0.5~1 g を用いて Pu と Am の逐次分離・精製を行い、 α 線スペクトロメトリにより ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am を、液体シンチレーションカウンターで ^{241}Pu を測定した。次に試料2~10 gを用いて、 Np と Pu (収率補正用の ^{242}Pu トレーサを添加しない)を同様に分離・精製し α 線スペクトロメトリにより ^{237}Np を、 Ge-LEPS と Si(Au) 検出器を組み合わせた方法により $^{239}\text{Pu}/^{240}\text{Pu}$ 同位体比を測定した。これらの試料中の ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am 濃度の測定結果を Table 1 に、また各核種間の放射能比を Table 2 に示す。セラフィールド周辺の堆積物中の ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am 濃度は既報(AR-12, p. 10)の三方五湖コア堆積物試料の表層部分で検出されたそれぞれの値、7~10 mBq/kg , 3~5 Bq/kg , 1~2 Bq/kg と比べて約1000倍高い。一方放射能比についてみると、 $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ 比は0.1~0.8%で、これまでにわが国の表層土壌で測定された0.07~0.4%と比べて大差はない。しかし $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ 比(0.22~0.27)および $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ 比(0.4~1.6)は一般環境での値(約0.03および約0.3)に比べ非常に大きい。また $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比(0.19~0.39)は大気圏核実験からのフォールアウト値0.18と比べて高い傾向にある。

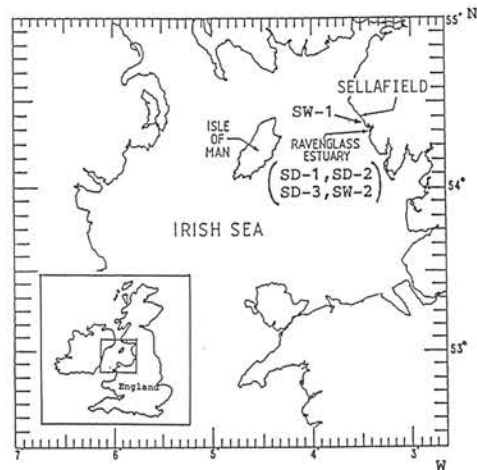


Fig. 1 Sampling locations of sediments and seaweeds in the Irish Sea.

Table 1. Concentrations of ^{237}Np , ^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am in sediment and seaweed samples from the Irish Sea.

Sample No.	^{237}Np (mBq/g)	$^{239,240}\text{Pu}$ (Bq/g)	^{238}Pu (Bq/g)	^{241}Am (Bq/g)
Sediment				
SD-1	4.2 ± 0.2	2.23 ± 0.09	0.57 ± 0.03	2.53 ± 0.17
SD-2	2.5 ± 0.1	0.65 ± 0.02	0.14 ± 0.01	0.63 ± 0.03
SD-3	6.4 ± 0.3	11.4 ± 0.6	2.54 ± 0.12	17.4 ± 0.7
Sea-weed				
SW-1	0.4 ± 0.1	0.31 ± 0.01	0.08 ± 0.01	0.12 ± 0.01
SW-2	4.7 ± 0.4	0.55 ± 0.02	0.13 ± 0.01	0.86 ± 0.05

Sampling date: SD-1(0-1cm depth, Mar.1982), SD-2(0-1cm depth, Oct.1987), SD-3(surface, ?), SW-1(*Ascophyllum nodosum*, Mar.1982), SD-2(*Algae*, Oct.1987).

Table 2. Activity ratios among ^{237}Np , Pu isotopes and ^{241}Am , and atom ratios of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in sediment and seaweed samples from the Irish Sea.

Sample No.	Activity Ratio				Atom Ratio
	$^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
Sediment					
SD-1	$(1.9 \pm 0.1) \times 10^{-3}$	1.14 ± 0.09	0.25 ± 0.01	23.3 ± 1.2	0.27 ± 0.02
SD-2	$(3.8 \pm 0.2) \times 10^{-3}$	0.98 ± 0.06	0.24 ± 0.01	21.6 ± 1.4	0.19 ± 0.01
SD-3	$(5.6 \pm 0.4) \times 10^{-3}$	1.53 ± 0.09	0.22 ± 0.01	15.7 ± 1.0	0.22 ± 0.02
Sea-weed					
SW-1	$(1.2 \pm 0.2) \times 10^{-3}$	0.39 ± 0.03	0.27 ± 0.01	24.8 ± 1.5	0.39 ± 0.08
SW-2	$(8.0 \pm 0.7) \times 10^{-3}$	1.58 ± 0.11	0.24 ± 0.01	22.7 ± 1.2	0.22 ± 0.03
					$0.24 \pm 0.02^*$

The $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ values are as of dates of analysis(Jan.1988).

*: Pu from JAERI: certified value of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio = 0.24112 $\pm$ 0.00048.

〔本研究は主として大学院生・茶谷和秀(昭和62年度)が修士課程の研究課題の一部として分析し、福井県衛生研究所・五十嵐修一氏が ^{241}Pu の測定に協力した。〕

人体組織中の ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度

Concentrations of ^{210}Pb and ^{210}Po in Human Tissues

人体組織中の天然および人工放射性核種の濃度と分布の測定は、日本人におけるこれら核種の吸入や経口摂取にともなう内部被ばく線量の評価のみならず、国民線量の推定や放射線によるリスク評価の面からも重要である。日本人については、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs 、 ^{40}K の測定が行われ、 ^{238}U 、 ^{232}Th 、 ^{226}Ra 、 ^3H などのデータも最近蓄積されつつある。しかし、屋内、外の大気中の ^{222}Rn - ^{214}Po 、 ^{220}Rn - ^{208}Tl 、 ^{40}K に次いで内部被ばくへの寄与が大きい ^{210}Po (^{210}Pb)については、極めてデータが少ない。このような国内の現状に対処するため、人体組織中の ^{210}Pb と ^{210}Po を分析し、各組織中の濃度と分布および $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比を測定した。

人体組織試料は1987～1988年に新潟県立がんセンターから入手した22人分の肝臓、腎臓、肺、筋肉、脾臓、生殖線および胆のうなどを用いた。死亡年令は 70 ± 10 才でいずれもガン患者の組織である。 ^{210}Pb と ^{210}Po の分析・測定は、Fig. 1の方法で行った。Table 1にこれまでに測定した人体組織中の ^{210}Pb と ^{210}Po およびこれらの放射能比を示す。 ^{210}Po と ^{210}Pb の濃度は、肝臓、腎臓、骨が他の臓器と比べて特に高いことがわかった。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比は骨では約1であるが、肝臓と腎臓では約3と高い。Table 2に、今回測定したデータより試算した ^{210}Po 、 ^{210}Pb の臓器別含有量とその相対比(%), および身体負荷量を示す。この結果を見るかぎり日本人に対する ^{210}Po の身体負荷量はアメリカ人やヨーロッパ人と比べて大差ない。現在さらに分析を継続しており、食品からの ^{210}Po (^{210}Pb)摂取量などとの関係も検討しつつある。

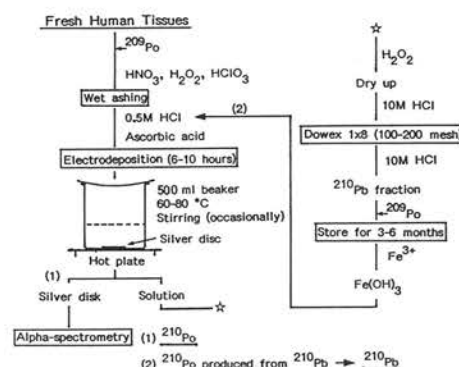


Fig. 1 Analytical scheme for the determination of ^{210}Po and ^{210}Pb in human tissues.

Table 1. Concentrations of ^{210}Po and ^{210}Pb in human tissues (pCi/kg wet).

Organs	^{210}Po Concentration			^{210}Pb Concentration			$^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ Ratio		
	N	Mean $\pm$ S.D.	(Range)	N	Mean $\pm$ S.D.	(Range)	N	Mean $\pm$ S.D.	(Range)
Skeleton*	6	34.8 ± 9.7	(20.3-46.7)	15	34.3 ± 14.6	(16.5-61.3)	6	0.9 ± 0.1	(0.8-1.1)
Liver	8	45.6 ± 20.0	(15.1-67.5)	15	15.1 ± 5.7	(7.8-23.2)	8	3.0 ± 0.9	(1.4-4.2)
Kidneys	8	32.9 ± 14.3	(21.1-54.4)	19	11.6 ± 4.9	(4.9-20.3)	8	2.9 ± 1.0	(1.6-4.6)
Lungs	6	10.0 ± 4.3	(4.9-15.1)	18	6.5 ± 2.7	(2.7-11.9)	6	1.2 ± 0.3	(0.8-1.5)
Spleen	8	8.4 ± 3.5	(4.3-15.1)	18	6.2 ± 1.9	(3.5-10.5)	8	1.2 ± 0.2	(0.8-1.4)
Gallbladder	1	5.1		3	5.4 ± 0.8	(4.6-5.9)	1	1.1	
Pancreas	2	4.9 ± 0.3	(4.6-5.1)	7	4.1 ± 1.6	(2.1-7.0)	2	1.0 ± 0.2	(0.8-1.1)
Gonads	1	3.0		4	1.9 ± 0.8	(1.1-2.7)	1	1.1	
Muscle	4	1.1 ± 0.5	(0.8-1.4)	13	0.8 ± 0.5	(0.3-1.6)	4	0.8 ± 0.2	(0.6-1.0)

*: Sternum.

The smoking habits of the subjects were not known.

Table 2. Total ^{210}Po and ^{210}Pb contents in the individual organs and the human body as a whole.

Organs	ICRP Ref. Man weight(kg)	^{210}Po (^{210}Pb) Conc. (pCi/kg wet)	Total content of organ	
			(pCi)	(% of total content of body)
Skeleton	10.0	34.8 (34.4)	348 (343)	67.7 (80.4)
Liver	1.8	45.6 (15.1)	82 (27)	16.0 (6.3)
Kidneys	0.31	32.9 (11.6)	10 (3.6)	2.0 (0.9)
Lungs	1.0	10.0 (6.5)	10 (6.5)	1.9 (1.5)
Spleen	0.18	8.4 (5.4)	1.5(1.0)	0.3 (0.2)
Pancreas	0.10	4.9 (4.1)	0.5(0.4)	0.1 (0.1)
Muscle	28.0	1.1 (0.8)	31 (22)	6.0 (5.2)
Others	28.61	1.1*(0.8)*	31 (23)	6.0 (5.4)
Total	70.0		514 (427)	100 (100)

*: An assumed value.

[本研究は、秋田大学・滝澤行雄教授、阿部 享氏、中国三東省医学科学院放射医学研究所・趙 蘭才氏との共同研究として行い、第31回日本放射線影響学会（於 広島）で報告した。]

α 線スペクトロメトリーによる人骨中の微量 ^{226}Ra の定量

Determination of Low-level ^{226}Ra in Human Bone by α -ray Spectrometry

人体組織中の ^{226}Ra ($T_{1/2}=1600$ y, α 壊変) は、大部分が骨に存在しており、その測定はPuをはじめとする他の骨親和性核種の代表として重要視されている。これまで人骨中の ^{226}Ra 測定のはほとんどは、比較的多量の灰化試料 (5~数10 g) を用いて簡便なラドンエマネーション法によってなされてきた。しかし、試料が2~3 gと少なく、かつ濃度の低い微量の ^{226}Ra を測定する場合には、より正確な分析・測定法の開発が必要である。本研究では、日本人における骨中の ^{226}Ra 濃度を求めることを目的に、収率補正用のトレーサーとして ^{225}Ra を用い、放射化学的分離・ α 線スペクトロメトリーによる微量 ^{226}Ra の定量法を検討した。今回新たに開発した分析法をFig. 1に示す。人骨中のRa分析の重要な点は、骨中に含まれる極微量のRaを大量のアルカリ土類金属およびリン酸から分離することである。通常この分離には、硫酸バリウムや発煙硝酸を用いた硝酸バリウム (あるいは鉛) 共沈法が多用されている。しかし、Baは担体として優れてはいるが試薬に混入している ^{226}Ra の存在が無視できず、微量 ^{226}Ra の定量に使用するには問題がある。そこで、Table 1, 2に示す0.5M HNO_3 -90%メタノール混合溶液からの陰イオン交換法を開発した。また最終段階のRaの精製には、BaとRaとの分離に最適なCyDTA-陽イオン交換樹脂カラム法 (LLRL-AR-11, p. 7) を採用した。精製したRaは1M HCl 1 mlに溶解し、これに15 mlのメタノールを加え、約20 V, 0.2~0.3 Aで2時間通電することによりAg板上に電着した。Table 3に、IAEAのAnimal Bone (A-12) 及びNIRSのBovine Bone標準試料を用いて分析および測定法の精度 (正確さ+精密さ) を検討した結果を示す。IAEA試料の測定値は報告値ともよく一致し、本法は実試料に十分適用できることがわかった。検出限界は5000分測定で約0.2 mBq/試料である。

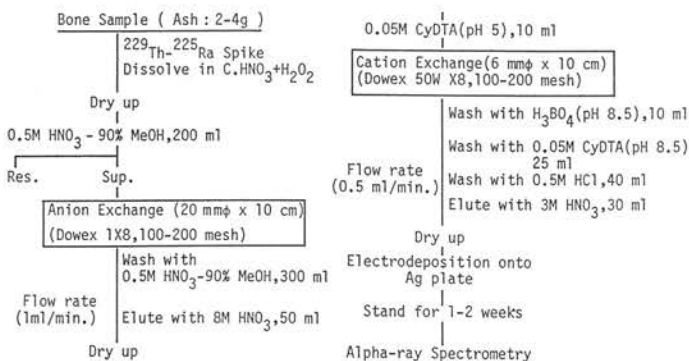


Fig. 1 Flowsheet for determination of low-level ^{226}Ra in human bone by α -ray spectrometry.

Table 1. Relationship between the column size and ^{226}Ra recovery in (0.5M- HNO_3 -90%MeOH) - anion exchange resin column.

Size of Column			Size of Sample*1	
Diameter	Height	Volume	1 g	3 g
20 mm	10 cm	31 cm ³	100%*2	100%
12 mm	10 cm	12 cm ³	100%	100%
8 mm	10 cm	5 cm ³	82%	
8 mm	7 cm	3.5 cm ³	70%	

Experimental condition

Sample soln.: 0.5M HNO_3 -90% MeOH, 200 ml.

Washing : 0.5M HNO_3 -90% MeOH, 10 C.V.

Elution of Ra: 8M HNO_3 , 50 ml.

*1: $(\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2)_3\cdot\text{Ca}(\text{OH})_2$.

*2: Yield of ^{226}Ra .

Table 2. Decrease of residue by washing column with 0.5M HNO_3 -90%MeOH.

Volume		Size of Sample*1	
		1 g	3 g
Sample Soln.	200 ml	1.04 g*2	3.24 g
Washing	1st 100 ml	0.53 g	1.11 g
	2nd 100 ml	0.13 g	0.17 g
	3rd 100 ml	0.04 g	0.02 g
	4th 100 ml	<0.01 g	<0.01 g
	5th 100 ml	<0.01 g	<0.01 g

Experimental condition

Column : 20 mm ϕ x 10 cm.

Flow rate : Sample soln. (1 ml/min.).

Washing (2 ml/min.).

*1: $(\text{Ca}_3(\text{PO}_4)_2)_3\cdot\text{Ca}(\text{OH})_2$.

*2: Weight of residue obtained after evaporating to dryness.

Table 3. Results of ^{226}Ra determination in IAEA animal bone and NIRS bovine bone standard samples.

Run	Anal. weight	^{226}Ra found (pCi/g)	Overall yield
IAEA Animal Bone (A-12)*1			
1	2.0158	0.14 ± 0.01 *2	86
2	2.0313	0.15 ± 0.01	90
3	1.9875	0.13 ± 0.01	91
4	2.0000	0.13 ± 0.01	83
5	2.0777	0.14 ± 0.01	76
Ave.		0.14 ± 0.01 *3	85
NIRS Bovine Bone			
1	2.0458	0.10 ± 0.01	75
2	1.8982	0.11 ± 0.02	57
3	2.0415	0.09 ± 0.01	91
4	1.9614	0.11 ± 0.01	86
Ave.		0.10 ± 0.01	77

*1: Certified value = 0.14 pCi/g.

*2: 1 σ value of counting error.

*3: 1 σ value of standard deviation.

[本研究は、放射線医学総合研究所・河村日佐男氏、白石久仁男氏、五十嵐康人氏との共同研究として行った。]

樹木年輪試料による環境中トリチウムレベルの時間的変動の研究

Study on Secular Variation of Environmental Tritium Level by using Annual Tree Rings

過去数十年にわたるトリチウム濃度の変動を知る目的で、樹木中の年輪形成後に同位体交換反応による影響がないと推定されるセルロース成分を分離精製し、その中のトリチウム（組織結合トリチウム）濃度が、年輪形成時の環境トリチウムレベルを反映しているかどうかを検討した。

樹木試料としては1987年に辰口町内で伐採した樹齢約80年の松の木（直径約50cm）を用いた。年輪毎に分離した木材チップ（1年分約300 g）を35気圧の水蒸気と2分間反応させた後急激に減圧することにより爆砕し、亜塩素酸塩法により α セルロース成分を分離・精製した。乾燥した α セルロースは酸素気流中で燃焼させ、燃焼水は -110°C のコールドトラップで捕集した。不純物をさらに酸化分解させるため、得た燃焼水（1年分約50 g）をさらに 600°C に加熱した酸化銅（ $\text{Cu}_2\text{O} + \text{CuO}$ ）中を通し、 KMnO_4 を加えて還流した後、蒸留して測定試料とした（LLRL-AR-12, p. 12参照）。試料水40mlと乳化シンチレーター（Instagel）60mlを100mlのテフロンバイアルに入れて加温しながらよく混合し、2日間冷暗所に放置した後、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-LB1を用いて1000分間（50分 $\times$ 20回）の放射能測定を行い、トリチウム濃度を求めた。トリチウムの検出効率は14%でバックグラウンドは2.7 cpm、各試料の正味の計数率は0.2~3.5 cpmであった。なおクエンチングの補正はESCR法により行った。

年輪形成時に半減期補正した組織結合トリチウムの濃度（水試料に換算）の変動をFig. 1に示す。比較のため、東京、大阪、福井および辰口で1955~87年にかけて測定された降水中のトリチウム濃度も示す。図から明らかなように、年輪の α セルロースに固定されているトリチウム濃度は、1960~63年にかけて急激に上昇した後次第に減少し、1980年頃からはほぼ一定の値となっている。年輪試料中のトリチウム濃度とその変動パターンは、同時期の雨水中のトリチウムとよい相関がある。このことから、 α セルロースによる組織結合トリチウムの測定は過去の環境（陸水および降水）中のトリチウムレベルの変動を知る有効な手段であることが明らかになった。

空白部分（Fig. 1）の試料の調製と測定は現在進行中であり、1940年までの測定を計画している。しかしトリチウム放射能の減衰のため、古い試料の測定には長時間を要し、精度よい値を得るのはかなり困難と予想される。セルロースの燃焼時に得た CO_2 中の ^{14}C についても、測定する予定である。

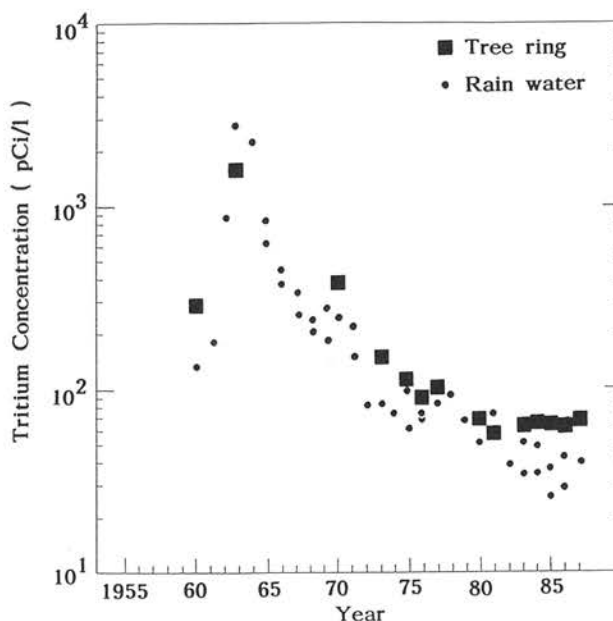


Fig. 1 Decay corrected tritium concentrations in cellulose isolated from annual tree rings. For comparison tritium concentrations in rain water collected at various locations are shown.

〔本研究は文部省科学研究費のエネルギー特別研究（核融合）の一部として、大学院生・甕 幹夫、卒研究生・宮下文和と北陸大学助教授・山田芳宗の協力によって行い、第32回放射化学討論会（於 東海村）で発表（1B 07）した。成果の一部は J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, **130**, 169-175（1989）に掲載された。〕

$^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 反応によるリチウムの定量とその応用 — 第4報 —Determination of Lithium by $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ Reaction and its Application

今回は、Liの定量におよぼす種々の共存イオンの影響について検討した。

試料は濃度0.1~100mg Li/lの標準溶液のほか、5~50mg/lの種々の共存イオンを含む5mg Li/l溶液を調製した。標準溶液などの調製にはトリチウム濃度測定の際に使用するバックグラウンド水(<2.4 pCi/l 金沢市小立野地区井戸：深度-150m)を用いた。各溶液を18mmφのポリエチレンバイアルに封入し、その中の4本には熱中性子束密度を測定するためバイアル壁面中央部(底から2.5cmの位置)にAu箔(約5mm×5mm)を張り付け14本を円形に束ねて照射試料とした。近畿大学原子炉中央ストリンガー内(中性子 flux 1.38×10^7 n/cm²·sec)で6時間中性子照射した。試料は、クエンチングの原因となる塩類等を除去するため、Ag₂CO₃を添加後減圧蒸留した。得た蒸留水8mlを20mlテフロンバイアルに分取し乳化シンチレーター(Instagel)12mlを加え湯浴中で加温混合して2日間冷暗所(約12℃)に保存後、アロカ製低 B.G. 液体シンチレーションカウンター LSC-LB1を用い、50分間測定を10回ないし20回行った。クエンチングの補正は外部標準線源チャンネル比法(ESCR法)により行った。

照射した標準溶液中のLi濃度と生成したトリチウム濃度との関係をFig. 1に示す。図から明らかなように両者の間には0.1~100mg Li/lの濃度範囲で直線関係が成り立ち、Li定量の検量線として用いることができる。しかし、1mg/l以下のLi濃度では生成トリチウム量が少なくその測定時に約±20%の統計誤差を含むため精度はかなり低くなる。この濃度範囲のLiを精度よく定量するためにこの点を検討する必要がある。

本分析法では水溶液試料の直接照射と水の減圧蒸留を併用し、生成した他の放射性核種からトリチウムを分離し、その放射能強度を測定して間接的にLi量を求める。したがって操作は簡便で、他の放射性核種の影響を受けにくく、また定量できるLiの濃度範囲が広いのが特徴である。しかし、BやCdのような熱中性子吸収断面積の大きい元素が共存している場合には、熱中性子束密度が局部的に変動し、Liの定量に影響を及ぼす恐れがある。この点を明らかにするためBO₃³⁻、Cd²⁺と、種々の陽イオンや揮発性の陰イオンが共存している場合の影響を検討した。

Table 1にその結果を示すように、質量比でBでは約10倍、Cdでは2倍、その他のイオンではほぼ等量共存していてもすべて妨害とはならないことが明らかになった。昨年の実験(LLRL-AR 12, p. 13)では、10 ppmのBO₃³⁻添加時に、トリチウムの生成量がかなり低くなる現象がみられたが、今回の結果ではBO₃³⁻の添加量を50 ppmまで増やしても影響はなく、昨年度のトリチウム生成量の低下は、他の原因、例えば中性子束密度の不均一分布などに起因するのではないかと考えている。

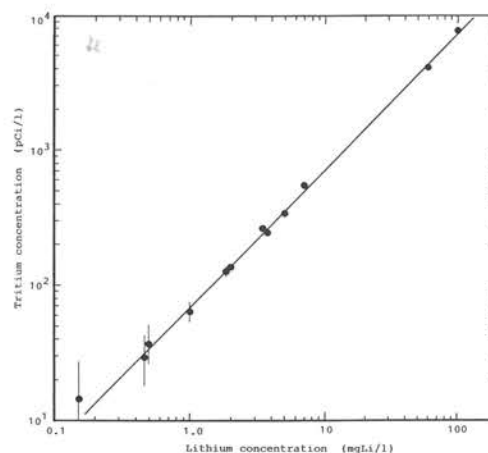


Fig. 1 Calibration curve for lithium.

Table 1. Effect of various ions on the determination of lithium.

Foreign ions chem. form	amount (μg)	Lithium amount taken (μg)	³ H concentration (pCi/l)	Lithium amount found (μg)	Error (%)
BO ₃ ³⁻	97.8	50.0	409.3 ± 29.4	48.9 ± 3.5	7.5
BO ₃ ³⁻	197	49.9	432.0 ± 29.1	51.6 ± 3.4	7.4
BO ₃ ³⁻	493	50.3	431.1 ± 26.0	51.5 ± 3.1	6.5
Cd ²⁺	100	50.0	403.2 ± 25.8	48.1 ± 3.1	7.5
Na ⁺	50.0	48.9	397.9 ± 11.5	47.5 ± 1.3	4.1
K ⁺	50.0	50.0	439.8 ± 13.2	52.5 ± 1.5	3.3
Cs ⁺	50.8	50.1	432.7 ± 20.1	51.6 ± 2.3	5.5
Mg ²⁺	50.0	50.0	403.2 ± 25.0	48.2 ± 2.9	7.2
Zn ²⁺	55.1	49.2	395.5 ± 19.9	47.3 ± 2.1	6.3
Pb ²⁺	49.4	48.1	428.2 ± 19.7	51.2 ± 2.3	7.6
Cl ⁻	54.3	50.2	412.7 ± 20.0	49.3 ± 2.3	5.0
SO ₄ ²⁻	70.8	50.2	425.0 ± 19.9	50.8 ± 2.3	4.8

Irradiation condition (calculated from Au foil monitor)
thermal neutron flux : 1.38×10^7
irradiation time : 6 hours

[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・靱 幹夫と北陸大学助教授・山田芳宗の協力により行い、第57回日本化学会秋期年会(仙台)で口頭発表(3F 316)した。]

金沢市小立野地区の地下水のトリチウム濃度 — 第2報 —

Tritium Concentration in the Underground Water of the Kodatsuno Area in Kanazawa City

1985年に行った金沢市小立野地区における地下水のトリチウムの測定 (LLRL-AR-10, p. 10) に引き続いて1986-87年にかけて地下水のトリチウムの測定を行った。

試料採取地点を, Fig. 1に示す。小立野台地の地下140mまでは Fig. 2に示すように第1層から第5-b層までの7つの滞水層がある。井戸1, 2, 3, 4は, それぞれ第5-b, 第5-a, 第4-b, 第4-a層にのみストレーナーを持ち, 井戸5, 6は第4-bと第5-b層の2ヶ所にストレーナーを持っている。

それぞれの層の地下水中のトリチウム濃度の季節変動 (Fig. 3)を見ると, 第5-b層のトリチウム濃度は1984, 85年の夏期には検出限界以下であったが, 冬期には一時的に濃度の上昇が見られた。これは, 融雪用に地下水を揚水したため冬期の間にこの層の地下水が一時的に不足し, 上層から高いトリチウム濃度を持つ地下水の供給があったことを示唆している。過去4年間の変動をみると, 1985, 86年にこの層における地下水中トリチウム濃度の一時的上昇が観測されているが, 1987, 88年には観測されていない。これは降雪が少なかった1987, 88年は, 融雪用地下水の揚水が少ないため第5-b層の渇水が起こらず, 上層からの地下水の供給が起こらなかったことを示唆している。

第5-a層にストレーナーを持つ井戸2のトリチウム濃度は, 多少変動しているが1985年12月まではほぼ一定であった。しかし1986年以降は検出限界以下となった。これは, 第4-b層, 第5-a層間の不透水層の存在のため鉛直方向の地下水の移動がほとんどなく, 低いトリチウム濃度を持つ地下水が横方向から移動してきたためと考えられる。井戸3および井戸4 (第4-a, 4-b層) のトリチウム濃度は, 1986年まではほぼ一定であり, 当時の降水のトリチウム濃度(1985年平均33 pCi/l)よりも高く, 1960年代に行われた核実験の影響を受けた降水の影響がいまだに残している。

井戸5, 6については, 1984年4月のトリチウム濃度は第5-b層の値に近かったが, 1987年8月, 1988年2月, 11月にはその濃度が, 第5-b層と第4-a層の地下水の中間の値 (例 井戸6 1988.11.7 33.2 ± 5.3 pCi/l)を示していることから, この井戸水は1984年では, 5-b層の地下水の寄与が大きかったが, 1987年以降は第4-aや4-b層の地下水の寄与が大きくなってきていることを示唆している。

今後もこの地域の地下水中のトリチウム濃度を継続的に測定することにより, 小立野台地の地下水の滞留時間について解析を予定している。

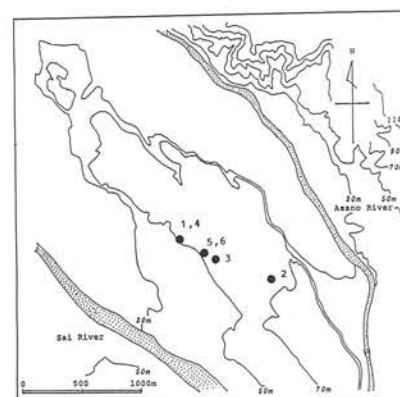


Fig. 1 Sampling points in Kodatsuno area of Kanazawa City.

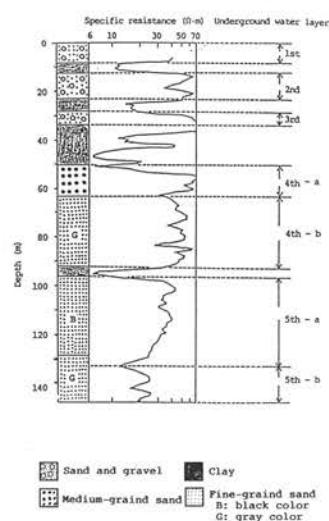


Fig. 2 Depth profile of underground water layer in Kodatsuno area of Kanazawa City.

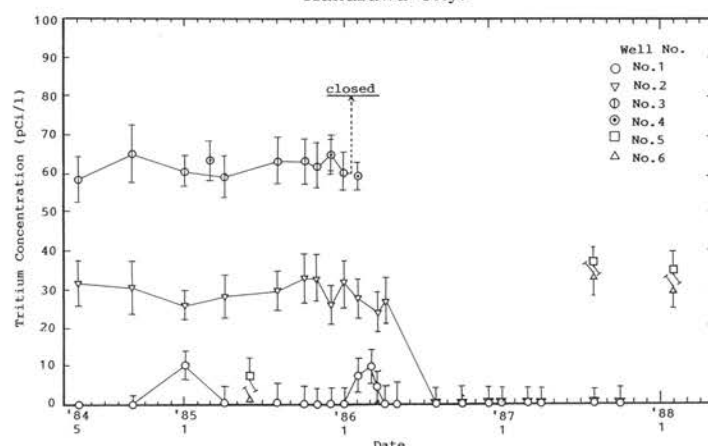


Fig. 3 Seasonal variation of tritium concentration in underground water of Kodatsuno area collected from the wells of different depth.

[本研究は文部省科学研究費のエネルギー特別研究(核融合)の一部として行い, 主として大学院生・靱 幹夫, 卒研生・宮下文和と北陸大学助教授・山田芳宗の協力により行った。]

琉球列島黒島産現生ハマサンゴ骨格中の放射性炭素濃度の経時変化

Secular Variation of Radiocarbon Concentration in Annual Coral Rings of Kuroshima Island

【研究目的】

20世紀にはいつてからの、北西太平洋地域における表層海水中の放射性炭素濃度の経時変化は、各地で明らかにされてきた。しかし、特に1950年代以前については、測定された試料が少なく、かつ、一試料あたりの測定数も1960年以降に比べて多くない（LLRL-AR-5, LLRL-AR-9, LLRL-AR-12）。

今回、1950年代以前の表層海水中の放射性炭素濃度の詳細な経時変化を明らかにすることを目的として、黒島産現生ハマサンゴ（*porites lutea*）の骨格を用いて放射性炭素濃度を測定した。その結果について考察する。測定試料は、年次報告 LLRL-AR-12（1988, p. 14）のものと同一である。

【放射性炭素濃度の経時変化（Fig. 1）】

1. 黒島での $\Delta^{14}\text{C}$ 値は、1) 1930年代から1940年代後半にかけての非常に緩やかな減少傾向、2) 1950年代前半から1970年代前半にかけて、初めは緩やかに、そして次第に急激になる増加傾向、そして3) 1970年代前半以降の緩やかな減少傾向を示す。

2. $\Delta^{14}\text{C}$ 値を他地域と比較した結果、以北の黒潮流域地域（那覇、瀬底、喜界島、串本）とは、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値の大きさ、傾向とも大きな差はみられないことがわかった。

3. 詳細にみると、黒島では、1) 1955年の値が、その前半の年の値よりもかなり高い（1955年の値は41.0‰であり、前後の年の値よりもおよそ50‰高い）；2) 1986年の値が、その前年（1985年）までの値よりもかなり低い（1986年の値は102.7‰であり、前年までの値よりもおよそ60‰低い）；3) 1970年代前半で、 $\Delta^{14}\text{C}$ 値がかなりばらつき、その変動幅は、およそ30‰である；4) 1940年代前半でも $\Delta^{14}\text{C}$ 値がばらついて、その変動幅はおよそ10～20‰である；5) 1980年代前半（1981, 1982, 1983年）に一度 $\Delta^{14}\text{C}$ 値が減少し、その後、再び増加している。これら3年の値は、その前後の年の値よりも、およそ20～30‰ほど低い、等のように、他地域に比べて $\Delta^{14}\text{C}$ 値のばらつきが多い。

4. また、他地域では、1955年あたりから $\Delta^{14}\text{C}$ 値が増加するのに対し、黒島では1950年から $\Delta^{14}\text{C}$ 値が増加するように見える。

【考察】

1. 黒島で、1940年代後半から $\Delta^{14}\text{C}$ 値が増加するように見えるのは、黒島において、1940年代前半、1970年代前半、1980年代前半で $\Delta^{14}\text{C}$ 値がばらついていることから、1940年代後半から1950年代前半にかけても、何らかの影響で濃度がばらついたためと考えられる。

2. 表層海水中の $\Delta^{14}\text{C}$ 値に影響を与える要因としては、大気-海洋間の二酸化炭素の交換による $\Delta^{14}\text{C}$ 値の高い大気の影響と、海水の鉛直混合による $\Delta^{14}\text{C}$ 値の低い深層水の影響がある。黒島の $\Delta^{14}\text{C}$ 値にばらつきが多い理由としては、大気-海洋間の二酸化炭素の交換によって大気の影響を受けたことよりも、石西礁湖において存在が確認された冷水塊との鉛直混合によって、深層水の影響を受けた可能性の方が強い。

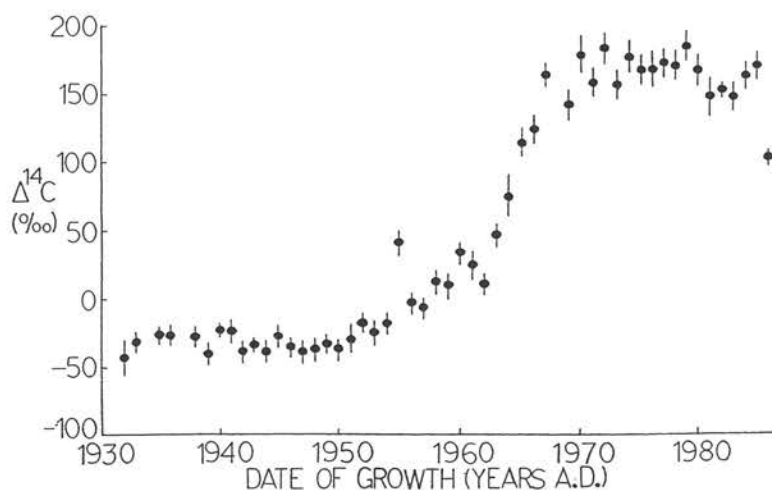


Fig. 1 $\Delta^{14}\text{C}$ values for *porites lutea* from Kuroshima Island. Error bars represent 1σ counting errors.

〔本研究は、主として専攻生・種田実津男が行った。なお試料の採取は文部省科学研究費；総研（A）沖縄・八重山群島石西礁と周辺海域の自然環境の現況と形成過程（60300021）によった。〕

《施設職員》

施設長(併)	上野 馨
(教授)	
教授	上野 馨
客員教授	滝澤 行雄 (秋田大学医学部教授)
客員教授	池辺 幸正 (名古屋大学工学部教授)
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 昭和62年6月～平成元年5月)

理学部	小西 健二	梅 鉢 幸重
医学部	久田 欣一	久野 滋
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	
医療技術大	安東 醇	

アルファ・スペクトロメーター(2台)

TENNELEC TC-256

増幅器 ORTEC 571

増幅器 ND 590 LAM Log. Amp.

半導体検出器用デューワー

ORTEC CFG-PG-3.0

シリコン検出器 (5個)

TENNELEC PD-500-100-21 CM

シリコン検出器

TENNELEC PD-300-1000-18 CM

電子天秤 島津製作所 EB-3200 H

ロータリー・エバポレーター

柴田科学 RE-111 A-SW

無停電電源装置(2台)

サンケン電気 FBK-S102

電源装置 アサノ電子 N-2215

ファクシミリ

東芝 COPIX TF-450 M

新規納入設備

使用量

液体窒素	7,500 l
A 重油	3,610 l
電気	179,734 KWH
水道	2,535 m ³

研究論文

- K. Komura, K. L. Tan and K. Ueno: Uranium, Thorium and Potassium Contents in Eighteen Geochemical Reference Samples Issued from the Geological Survey of Japan, *Geostandards Newsletter*, **12**(2), 371-374(1988).
- K. Komura, M. Sakanoue, T. Tada, M. Yamamoto, K. Uchida, K. Ueno and H. Sakamoto: Lead-210 and Polonium-210 in the Surface Air in Mt. Sakurajima Area, Kagoshima International Conference on Volcanoes 1988 Proceedings, Kagoshima Prefectural Government, p. 693-696 (1988).
- 小村和久, 阪上正信, 多田哲郎, 山本政儀, 内田賢吾, 上野 馨, 坂元隼雄: 桜島地域の地表大気中の鉛-210およびポロニウム-210, 鹿児島国際火山会議 1988 論文集, 鹿児島県発行, p. 707-710 (1989).
- Y. Yamada, M. Itoh, N. Kiriya, C. Nishimoto, K. Komura and K. Ueno: Measurement of Tritium in Tree Rings: Isolation of α -Cellulose from Wood Chips Using Explosive Depressurization, *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles*, **130** (1), 169-175 (1989).
- T. Hashimoto, T. Morimoto, Y. Ikeuchi, K. Yoshimizu, T. Torii and K. Komura: Survey of Artificial Radionuclides in the Antarctic, *Proc. NIPR Symp. Antarct. Geosci.*, **2**, 162-168 (1988).
- Y. Yamada, A. Kaji, M. Itoh, N. Kiriya, K. Komura and K. Ueno: ^{14}C Concentration of Liberated CO_2 in the Free Fermentation Process of Japanese Sake Brewing, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters*, **135**(5), 381-388(1989).
- C. K. Kim, Y. Takaku, M. Yamamoto, H. Kawamura, K. Shiraishi, Y. Igarashi, S. Igarahi, H. Takayama and N. Ikeda: Determination of ^{237}Np in Soil Samples Using Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, *Radioisotopes*, **38** (3), 39-40 (1989).

研究報告

- 上野 馨, 小村和久, 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62年度石川県委託研究「環境放射能調査報告書」, p. 55-70 (1988).
- 山本政儀, 小村和久, 阪上正信, 上野 馨, 須田英博: 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, 東京大学宇宙線研究所ミュー・ニュー部「昭和62年度共同利用研究成果報告」, p. 30-43 (1988).
- 甌 幹夫, 小村和久, 上野 馨, 山田芳宗, 鍛冶 聡, 桐山典城: ^6Li (n, α) T 反応によるリチウムの定量とその応用, 昭和62年度近畿大学原子炉等利用共同研究経過報告書, p. 60-63 (1988).
- 滝澤行雄, 趙 蘭才, 阿部 享, 山本政儀, 上野 馨: たばこ葉とその喫煙に関する放射性核種-人体主要臓器および毛髪中の ^{210}Po 含量-, 昭和62年度「喫煙科学研究財団研究年報」, p. 196-203 (1988).
- 滝澤行雄, 趙 蘭才, 阿部 享, 山本政儀: 人体臓器中 ^{210}Po 量とその体内被曝線量の評価, 昭和63年度文部省科学研究費総合研究(A)「環境生態系に關する長半減期放射性核種のキャラクタリゼーションと生物学的影響」, p. 37-43 (1989).
- 甌 幹夫, 山本政儀, 小村和久, 上野 馨, 山田芳宗, 桐山典城: 樹木年輪中トリチウムの定量, 昭和63年度文部省科学研究費核融合特別研究第2班「トリチウムの総合研究研究成果報告集」, p. 43-44 (1989).
- 甌 幹夫, 山本政儀, 小村和久, 上野 馨, 山田芳宗, 桐山典城: 環境トリチウムの変動と解析-水理学・気象学の観点から-, 昭和63年度文部省科学研究費核融合特別研究トリチウムの環境動態に関する計画研究班「環境トリチウムの変動測定とその解析」報告書, p. 85-95 (1989).

総説

山本政儀: 環境試料中の長寿命放射性核種の分析・測定法の現状と課題: 日本分析センター広報 **15**, 15-39 (1988).

昭和63年度 見学来訪・調査出張記録

- 昭和63 4.10-13, 6.19-22, 11.29-12.4, 12.19, 平成元2.26-3.2
山本助手 放射線医学総合研究所にて共同研究
- 4.20, 5.11, 6.16, 6.29, 7.22, 8.3, 10.19, 64.1.6, 平成元1.19, 1.27, 2.14, 3.10, 3.23
岐阜県御母衣ダム地下測定室にて環境放射能測定
- 4.27 石川県環境部榊田武史氏研究打ち合せ
- 4.29 Hu Shze Jer 博士 (Malaysia 理科大学) 研究打ち合せ
- 5.6 日本原子力研究所林 巧氏研究打ち合せ
- 5.9 ◎昭和63年度第1回運営委員会 (於 理学部)
- 5.15-21 山本助手「The 2nd International Conference on Low-Level Measurements of Actinides and Long-Lived Radionuclides in Biological and Environmental Samples」
(於 秋田大学) 参加
- 5.23, 6.3, 7.11-12, 8.27, 平成元2.28, 3.15
金沢大学名誉教授阪上正信氏研究打ち合せ
- 5.23 J. A. Sanchez-Cabeza 博士 (アイルランド・Dublin 大学), D. J. Assinder 博士 (英国・North Wales 大学) 研究打ち合せ・見学
- 6.17 石川県児童会館中村 哲氏研究打ち合せ
- 6.21, 7.27, 8.15-17, 25-26, 29-31, 9.1-3, 平成元2.13
北陸大学放射薬品学助手鍛冶 聡氏実験
- 7.18-22 小村助教授「鹿児島国際火山会議」(於 鹿児島) 参加
- 7.19-20 近畿大学原子力研究所にて共同利用研究
- 8.8-9 〔福井県三方五湖の堆積物試料採取〕
- 9.1 Muhammet Ali Avundukluoglu 氏 (トルコ・Turkish Atomic Energy Authority),
工業技術院電子技術総合研究所主任研究官山下幹雄氏見学
- 9.16 理学部化学科3年生30名見学
- 10.31 動力炉核燃料開発事業団大洗工学センター飯沢克幸氏, 前田幸基氏見学
- 11.14 ◎昭和63年度第2回運営委員会 (於 理学部)
〔山中, 大聖寺周辺のラドン測定調査〕
- 11.24 名古屋大学プラズマ研究所助教授佐久間洋一氏研究打ち合せ
- 11.25 名古屋大学工学部教授 (LLRL 客員教授) 池辺幸正氏, 助手飯田孝夫氏他3名研究打ち合せ
- 12.2 医療技術短期大学学生45名見学
- 12.13-14 近畿大学原子力研究所にて共同利用研究
- 平成元 1.16-17 武蔵工業大学原子力研究所にて共同利用研究
- 2.21-22 近畿大学原子力研究所にて共同利用研究
- 2.28 動力炉核燃料開発事業団安全部副参事木下 睦氏, 日本分析センター分析部課長代理大峰 守氏, 日本原燃サービス会社六ヶ所建設準備事務所技術部課長鹿志村政氏見学
- 3.13-15 放射線医学総合研究所五十嵐康人氏研究打ち合せ
- 3.15 日本分析専門学校100名見学
- 3.17 琉球大学理学部助手棚原 朗氏研究打ち合せ
- 3.17-18 島根県衛生公害研究所主任研究員寺井邦雄氏研究打ち合せ
- 3.22-24 〔桜島周辺の試料採取および鹿児島大学との共同研究打ち合せ〕

低レベル放射能実験施設 昭和63年度研究概要・年次報告 1989年6月1日発行

〒923-12 石川県能美郡辰口町和気

TEL (0761) 51-4440

FAX (0761) 51-5528

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