

低レベル放射能実験施設 研究概要・年次報告

1989.4～1990.3

Annual Progress Reports of
Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

辰口の想い出と、これからのお研究所の発展を希求して	2
長寿命核種 ¹⁷⁶ Lu の半減期測定	3
Si 半導体検出器を用いた低バックグラウンド β 線測定器の特性	4
環境試料中の極微量 ⁹⁹ Tc の分析法の研究	5
桜島周辺の大気浮遊塵中の ²¹⁰ Pb および ²¹⁰ Po の粒径分布	6
桜島の火山灰中の ²³⁸ U および ²³² Th 系列核種の平衡状態	7
毛髪中の ²¹⁰ Pb と ²¹⁰ Po 濃度の測定	8
人骨中の ²²⁶ Ra 濃度の測定	9
Irish 海沿岸堆積物中の超ウラン元素	10
Irish 海沿岸堆積物中の Np, Pu, Am の存在状態	12
樹木年輪によるトリチウムレベルの経年変動の研究	13
日本酒醸造の醸酵過程で発生する CO ₂ ガスの ¹⁴ C 濃度	14
平成元年度・施設設備品・運営人事関係諸資料・研究報告	15
平成元年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

辰口の想い出と、これからの中の研究所の発展を希求して

施設客員教授・九州大学理学部教授 高 島 良 正

低レベル放射能実験施設ができたお蔭で私も数回辰口を訪れる機会を得た。最初は1977年秋放射化学討論会が開催された折で、緑したたる瀟洒な研究所から遠く白山の山々を望める場所で、当時アメニティなどという言葉は使われていなかったが、低レベル放射能研究にふさわしい場所であると感じた。一方、1986年12月半ば訪れたときは、前夜から雪が降り始め、積雪30~40cmにも達し、帰る当日は飛行機も飛ばず、列車も倒木の影響かなにかで動かず足留され、北陸の冬の厳しさを痛感させられた。現在当施設の運営委員を拝命しているので時たま行くことがあるが、上記の2回はとくに印象深く想い出に残っている。同実験施設は、日本学術会議の勧告に基づいて1976年に開設されたということであるが、本来はかなり大きい研究所計画であったが、予算が削られて現状のような形になったと聞いている。思うに、もし学術会議の勧告通り、全国共同利用の環境放射能研究所ができておれば、日本の原子力平和利用ももっと円滑に進展したと思われ、残念でならない。

近年、異常気象、森林の衰退などと関連して地球的規模の環境問題が注目され、エネルギーを化石燃料に頼ることへの危険性が懸念され、21世紀は核エネルギーが一層重要な位置を占めるものと考えられる。そのような場合に環境モニターとしての低レベル放射能測定技術は益々重要になってくるであろう。更にモニターとしてだけでなく、低レベル放射能測定技術は自然界に存在する超微量の同位体を追跡でき、従ってその同位体と同種の元素の挙動を追跡できるので、地球規模の環境汚染問題にも対処することができよう。

地方の時代とは言われながら、掛声ばかりで、地方には仲々大きな研究所はできないのが現状である。低レベル環境放射能研究所は辰口にあってふさわしいものであるから、今からでも遅くはない、東南アジアの大学等も含めた共同利用研究所として発展し、研究、教育、原子力広報活動などもできるようなものになることを切望するものである。



噴煙をあげる十勝岳62-1火口（8月25日）



300°Cの噴気孔より火山ガスの採取（十勝岳 8月25日）

北海道火山調査（1989年8月21~27日、有珠山、樽前山、十勝岳）

長寿命核種¹⁷⁶Lu の半減期測定

Measurement of the Half-Life of Long-Lived ¹⁷⁶Lu

¹⁷⁶Lu（同位体存在度2.584%）は β 壊変により¹⁷⁶Hfに壊変する天然長寿命核種である。その半減期は、放射能の直接測定によるほか、年代が求められている鉱物中の娘核種の生成量を質量分析器により定量するいわゆる地質年代学的方法でも測定されている。

放射能測定法と地質年代学的方法で求められた¹⁷⁶Luの半減期は 2×10^{10} 年から 5×10^{10} 年の広い範囲の値が報告されているが、 3.6×10^{10} 年と 3.8×10^{10} 年前後の2つのグループに大きく分けられる。放射能測定による半減期測定でこのような違いが起こる原因として、¹⁷⁶Luから放出される低エネルギー γ 線の検出効率の求め方および絶対放出率の計算方法に問題があるものと考えられる。

これを解決する方法として、前年度に報告した¹³⁸Laの半減期の測定(LLRL-AR-13, p. 3)に極めて有効であった内部標準線源添加法を用い、良好な結果を得たので報告する。

[線源作成]

目的核種からの γ 線に近いエネルギーの γ 線を放出する内部標準として放射平衡状態にあるNBLのウラン標準試料(NBL42-1)と絶対検出効率を求めるための一次標準線源としてのKCl試薬を用いた。酸化ルテチウム(99.99%)は、電気炉で1200度°Cに加熱して化学形を整えた後、一定量を秤取し、これに目的 γ 線のピーク強度とほぼ等しくなるようにNBLウランおよびKCl粉末を加えて、油圧器により10トンで加圧成型して20g 35mm ϕ の線源[Lu_2O_3 (2.015 g) + KCl (17.730 g) + NBL-U (0.4076 g)]を作成した。

こうして作製した線源は、加圧時の²²²Rnの損失の補填と保存中の²²²Rn損失を抑える目的で、クレラップとポリエチレンシートで2重に封入し、2週間以上経た後 γ 線測定を開始した。

[放射能測定および結果]

¹⁷⁶Luからは β 壊変に伴う88, 202, 307および401 keVの γ 線がカスケードに放出される。作製した γ 線源は十分な遮蔽を施した相対効率46%，FWHM 1.8 keV (at 1332 keV)の同軸型Ge検出器および有効面積8 cm²、エネルギー分解能0.35 keV (at 5.9 keV)の平板形Ge-LEPSにより3日から10日間の測定を行なった。内部標準にはウラン系列の²¹⁴Pbからの242, 295, 352 keV γ 線と²¹⁴Biからの609, 768, 934, 1120, 1238, 1728, 1764, 2204 keV γ 線、²³⁵Uと²²⁶Raからの186 keV γ 線(doublet)および⁴⁰Kからの1461 keV γ 線を用いた。混合線源の γ 線スペクトルの例をFig. 1に示す。

¹⁷⁶Luおよび²¹⁴Biからカスケードに放出される γ 線は、線源と検出器の距離が近いとサムコインシデンス効果が大きいので、これを抑えるため、検出器のエンドキャップより5 cm (Ge-LEPSの場合)ないし10 cm (同軸型Geの場合)の距離に線源を置いた。 γ 線スペクトルを解析し、サムコインシデンス効果の補正を行なった後、上記の²³⁵U, ²²⁶Ra, ²¹⁴Pbおよび²¹⁴Biからの γ 線ピークより最小二乗法により相対検出効率曲線を描いた。これを⁴⁰Kからの1461 keV γ 線で絶対検出効率曲線に規格化し、内挿により¹⁷⁶Luから放出される4本の γ 線に対する検出効率を求めた。

内部転換電子放出率はRoselの表より計算によって求めた。内部転換の補正を行ない¹⁷⁶Luの半減期は $(3.63 \pm 0.03) \times 10^{10}$ 年を得た。なお、標準を添加しない線源を検出器の表面に直接密着して測定し、Brinkman考案のサムコインシデンス法で解析すると以前に報告した[Nucl. Phys., A 198, 73 (1972)] 3.8×10^{10} 年に極めて近い値となった。¹⁷⁶Luのように内部転換電子の放出割合の大きな核種ではサムコインシデンスピークより絶対壊変率をもとめる式としてBrinkmanの提案した式をそのまま適用するには問題があるものと思われる。当時発見されていなかった401 keV γ 線をどのように扱うかが解決の鍵かも知れない。

内部標準線源を利用する絶対壊変率の測定法は、従来の方法に比較して誤差の入りうる余地が少ないので相対的に高い精度が期待されるが、絶対精度は標準に用いた⁴⁰Kの半減期(1.277×10^9 y)と1461 keV γ 線の放出率(10.67%)、⁴⁰Kの同位体存在度(0.01178%)に全面的に依存している。現在用いられている⁴⁰Kの半減期や1461 keV γ 線の放出率はかなり古い測定データをコンパイルしたものであり、⁴⁰Kの半減期の精度よい測定が必要である。

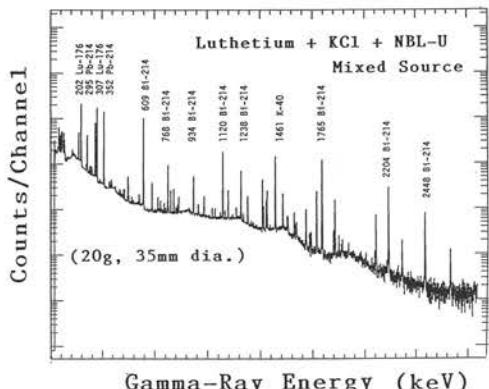


Fig. 1 Gamma-ray spectrum of Lu-oxide mixed with NBL-U and KCl measured by coaxial Ge detector.

Table I Half-life of long-lived Luthetium-176.

Year	Investigator	Half-life(xE10y)
1967	Sakamoto et al.	5.0 ± 0.3
1969	Prodi et al.	3.27 ± 0.05
1970	Boudin et al.	3.3 ± 0.5
1972	Komura et al.	3.79 ± 0.03
1980	Norman	4.08 ± 0.24
1980	Pachett et al.	3.53 ± 0.14
1981	Sguigna et al.	3.59 ± 0.05
1983	Sato et al.	3.78 ± 0.02
1989	Present work	3.63 ± 0.03

[本研究の一部は第33回放射化学討論会(於広島大学1989.10.4-6, 2A 10)で発表した。]

Si 半導体検出器を用いた低バックグラウンド β 線測定器の特性

Characteristics of Low-Background β -Ray Spectrometer using Si Detector

環境試料中の ^{99}Tc の測定には種々の検出器が用いられている。これらは一般に高価であり、バックグラウンド、計数効率、エネルギー分解能等で満足出来ないものが多い。今回、Si 半導体検出器を主検出器とする低バックグラウンド β 線測定器を組み立て、各種遮蔽条件下でのバックグラウンド (BKG) 特性を測定すると共に、種々の核種に対する検出効率を求めたので報告する。

使用した検出器の仕様、遮蔽の条件等は以下の通りである。

主 検 出 器 : Si 半導体検出器, $300\text{mm}^2 \times 1\text{ mm}$, ^{137}Cs の 624 keV の内部転換電子に対する分解能 12 keV
測 定 地 点 : (1)低レベル放射能実験施設 (地上レベル)

(2)岐阜県白川村御母衣ダム発電所地下測定室 (土被り約 250 m [水深~ 620 m 相当])

遮 蔽 条 件 : (1) Pb (15cm) (2) Pb (15cm) + Cu (1.4cm)
(3) Pb (15cm) + Cu (1.4cm) + Hg (2 cm) (4) Fe (20cm) + Hg (5 cm)

逆同時検出器 : (1) $50\text{cm} \times 50\text{cm} \times 5\text{ cm}$ Plastic Scintillation Counter

(2) $6.4\text{cm} \phi \times 6.3\text{cm}$ Ge - Detector (相対効率 46%, FWHM = 1.8 keV)

(3) $7.6\text{cm} \phi \times 7.6\text{cm}$ Well - Type NaI (Tl) - Detector, Well Size $5.1\text{cm} \phi \times 5.1\text{cm}$

最終的に採用した測定系のブロックダイアグラムを Fig. 1 に示す。

上記の種々の条件下で測定したバックグラウンド (BKG) スペクトルの例を Fig. 2 (次ページ下部) に示す。 ^{99}Tc (292 keV), ^{60}Co (318 keV) 等の低エネルギー β 線放射体の測定を念頭に置き、横軸は対数で表した。銅および水銀等の高純度物質による内部遮蔽は、 $0.05\text{-}0.3\text{ MeV}$ 領域の BKG の低減に対しかなり有効であった。BKG に大きく寄与する宇宙線 muon の入射角度に方向依存性 [$\cos^n(\theta)$] があるため、地表面に対して検出器を垂直に置くと muon の通過距離が水平に置く場合に比べ長くなり、ピーク領域が高エネルギー側にシフトする。Plastic. Scint., Ge 検出器、井戸型 NaI 検出器による逆同時計数は BKG の減少に極めて有効であるが、muon 強度が地上の約 $1/250$ の御母衣の地下測定室では、逆同時計数無しでも BKG を 0.09 cpm まで下げる事ができた。通常の β 線測定の $0.05\text{-}2.0\text{ MeV}$ 領域の BKG は、井戸型 NaI 検出器による逆同時計数により $1/100$ 以下まで下げる事が出来た。

今回試験した Si 検出器と、他の機関でよく使用されているピコベータ検出器 (コインシデンスマード) の検出効率、BKG、FOM 等を Table 1 に比較した。逆同時計数のさい、 β 線と γ 線を同時に放出し逆同時計数では検出効率が低くなる ^{198}Au を除いて、Si 検出器の FOM はかなり高く、低エネルギー領域では特に著しい。

Si 検出器を主検出器とする低バックグラウンド β 線測定器の特徴を要約すると次のようになる。

- (1) 市販の Si 検出器、NaI 検出器 (逆同時用) が利用でき、また一般的なモジュールの組み合わせで構成できるので安価 (遮蔽を別にして 200 万円以内) であり、TENNELEC TC 306 のようなルータ・ミキサーの使用により、特別なゲート回路なしでほぼ完璧な逆同時計数が可能である。
- (2) BKG は液体シンチレーションカウンターやガスカウンターより低く、ピコベータ検出器とほぼ同じレベルである。
- (3) 低エネルギー β 線 (約 300 keV の領域) に対する検出効率が高く、ピコベータの 5 倍近くもある。
- (4) エネルギー分解能 (2%) はピコベータ (16%) 等と比較して格段に良く、核種の識別能が高い。
- (5) ノイズレベル (約 50 keV) はピコベータ (約 30 keV) よりやや高いが、冷却によりノイズレベルを下げる事が可能である。

冷却によるノイズレベルの低減とエネルギー分解能の改善については現在基礎的な検討を行っている。

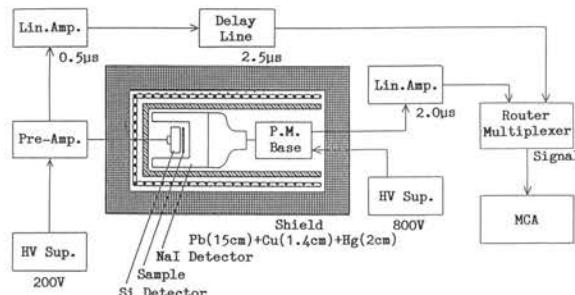


Fig. 1 Block-diagram of low background β -ray spectrometer using Si detector

Table 1 Background, detection efficiency and FOM of Si detector and "Pico-Beta"

Nuclide	Half-life	β -ray (keV)	BKG (cpm)	Si detector		"Pico-Beta"		FOM Ratio
				Efficiency (%)	FOM*	BKG (cpm)	Efficiency (%)	
Rb-87	$4.72 \times 10^{10}\text{ y}$	272	0.16	14.1	1248	0.08	2.6	84 14.9
Tc-99	$2.4 \times 10^5\text{ y}$	292	0.16	14.2	1249	0.07	3.9	219 5.7
Co-60	5.27 γ	318	0.16	7.8	383	0.09	4.0	181 2.1
			0.62	14.3**	331	—	—	—
Cs-137	30.17 γ	512	0.23	42.0#	7528	0.19	13.1#	931 8.1
Au-198	2.69 d	961	0.25	29.1	3433##	0.17	28.3	4831## 0.7
K-40	$1.28 \times 10^9\text{ y}$	1325	0.24	43.6	7921	0.23	26.4	3038 2.6

* : FOM defined here is calculated by $\{(Efficiency)^2/BKG\}$

**:Calculated for singles spectrum

:Includes conversion electron peaks

##:See text

[本研究は、大学院生・宮下文和の協力により行い、成果の一部は第33回放射化学討論会(於 広島)で発表(2 C 12)した。]

環境試料中の極微量⁹⁹Tcの分析法の研究

Studies on the Analytical Method for Extremely Low-Level ⁹⁹Tc in Environmental Samples

半減期2.14×10⁵年の⁹⁹Tcは、最大エネルギー292 keVの純β放出体である。この核種はすでに大気圏内核爆発実験によって地球上に広く分布しており、最近では原子力施設等からの放出や、核医学診断で使用される^{99m}Tc由来の⁹⁹Tcによる局所的汚染が懸念されている。しかし環境試料中の濃度レベルは低く、また化学的挙動が複雑なため、測定が困難な核種の1つである。本研究では、環境試料からの⁹⁹Tcの溶出、水酸化鉄共沈によるマトリックス成分の除去、イオン交換による妨害核種の除去、溶媒抽出法による⁹⁹Tcの精製、電着による測定線源の作成、を主な柱にしており、それについて検討した。

[^{99m}Tcの調製] γ線測定の行える^{99m}Tc(半減期6.01時間、γ線141 keV)をTcのトレーサーとして使用した。トレーサー中に蓄積する⁹⁹Tc量を最小限にするため、⁹⁹Tcの除去を目的として1回目のミルキングを行い、その後短時間内に2回目のミルキングを行い、これをトレーサーとして使用した。トレーサー液中に⁹⁹Moや¹⁰³Ruが存在することが確認されたので^{99m}Tcをトレーサーとして環境試料を分析するさいにはブランク試料も同時に分析しこれらの妨害核種を除くと共にトレーサーより生成した⁹⁹Tc量を補正する必要がある。

[分離と精製] 酸溶液からのTcの揮発による損失をみるため、ミルキング液(生理食塩水)、1M-HNO₃および3M-H₂SO₄の3種類の溶液から加熱実験を行った。その結果、乾固しない限り損失は10%以内に抑えられることが分かった。

水酸化鉄共沈によりマトリックス成分を除去するため、Tcを共沈されにくいⅦ価に酸化するが、この状態でも一部が吸着によって失われる所以、沈殿を溶解し再沈殿する必要がある。これにより90%以上のTcが回収できる。

Tcの吸着($K_d > 10^3$)は1.6cm $\phi \times 10$ cmのDowex 1-X 8陰イオン交換樹脂カラムにpH 2~4に調製した硝酸酸性試料溶液を流して行い、1M-HNO₃100mlによるカラム洗浄の後、濃硝酸100mlでTcを溶難する。

イオン交換法で除去しきれなかったRu同位体を除去するため、Bateの開発した塩基性炭酸塩溶液からのシクロヘキサンによる溶媒抽出法を用いた。炭酸カリウム溶液で有機相を洗浄した後、逆抽出を容易にするため1/2量のベンゼンを加え蒸留水で逆抽出する。抽出回数と収率の関係をTable 1に示す。環境試料の分析ではシクロヘキサン20mlで2回抽出し、蒸留水10mlで3回逆抽出するのが実用的である。

[測定試料の調製] β線エネルギーの低い⁹⁹Tcの測定には、均一で薄い線源が必要なため、ステンレス鋼板への電着を検討した。電解溶液の組成を検討した結果(Table 2)、2M-NaOH溶液より0.4 Aで2時間電着するところ定量的に電着出来ることが分かった。この際有機物の存在は電着効率を低下させるので、これを除去することが不可欠である。

[β線スペクトルの測定] ⁹⁹Tcの定量には、前ページで記述したSi検出器を使用した。検出限界は、収率50%、BKG計数率0.15 cpmおよび統計誤差25%とすると、測定時間2500分で約10 mBqである。

(前ページに続く)

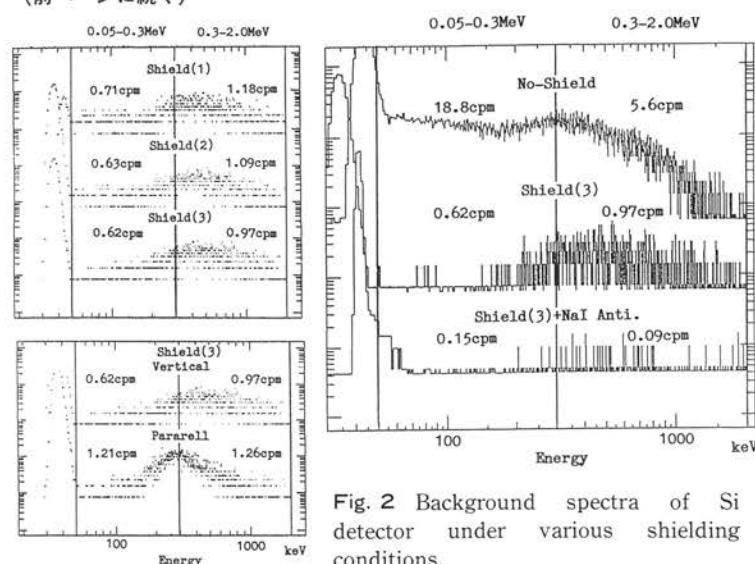


Fig. 2 Background spectra of Si detector under various shielding conditions.

[本研究は、大学院生・宮下文和の協力により行った。]

Table 1 Extraction and backextraction of Tc.

Condition of	Cycle	Extracted(%)
Extraction and/or Back-extraction	Volume 10ml	Volume 20ml
Tc-Extraction	1	56
Cyclohexanone(X ml)	2	28
K ₂ CO ₃	3	12
pH=9	4	4
(Aq. Phase = 50ml)	Total	100
Tc-Back-extraction by Distilled Water	1	13
2	32	
(Org. Phase = 60ml)	Total	45
		69

Table 2 Electrodeposition of Tc.

Composition of Electrolyte	Electrodeposition Yield (%)
2M-NaOH	96.2
2M-NaOH+1M-K ₂ CO ₃	96.5
2M-NaOH+2M-K ₂ CO ₃	97.0
2.5M-NH ₄ OH	11.5

桜島周辺の大気浮遊塵中の ^{210}Pb および ^{210}Po の粒径分布

Size Distributions of ^{210}Pb and ^{210}Po in Aerozols of Mt. Sakurajima Area

1986年より継続中の鹿児島県桜島周辺の大気浮遊塵と火山灰の地球化学的研究の一環として、本年度は大気浮遊塵中の ^{210}Pb および ^{210}Po の粒径分布を測定し、非火山地帯である辰口での観測結果と比較した。

試料として、1989年3月より鹿児島大学屋上に設置したアンダーセンハイボリューム・エアー・サンプラー(AH-600)を用いて $1.1\mu\text{m}$ 以下、 $1.1\sim2.0\mu\text{m}$ 、 $2.0\sim3.3\mu\text{m}$ 、 $3.3\sim7.0\mu\text{m}$ 、 $7.0\mu\text{m}$ 以上の5段階に分けて大気浮遊塵(火山灰も若干含まれている)を採取した。サンプリングは、桜島の活動状態により3日から約2週間行った($1500\text{m}^3\sim10000\text{m}^3$)。 ^{210}Pb および宇宙線生成核種 ^7Be はフィルターを加圧成形後 γ 線スペクトロメトリーにより、 ^{210}Po は化学分離・精製後 α 線スペクトロメトリーにより定量した。

鹿児島における ^{210}Pb 、 ^{210}Po および ^7Be の粒径分布を辰口での観測値と共にFig. 1に示す。 ^7Be と ^{210}Pb の粒径分布は、鹿児島(a, b)と辰口(d, e)でほとんど違いはなく、 $1.1\mu\text{m}$ 以下の最も細かいフラクションに80~90%が存在する。しかし、 ^{210}Po の粒径分布は、辰口(f)では ^7Be や ^{210}Pb と同様に $1.1\mu\text{m}$ 以下のフラクションの割合が大きいが、鹿児島(c)では $3.3\sim7.0\mu\text{m}$ のフラクションにピークを持つ特徴的な分布を示した。これまでに観測された ^{210}Po の粒径分布を桜島の影響の大きさの順に整理するとFig. 2のようになる。(g)は、降灰量の多かった時期の長時間サンプリング試料で、火山の影響を最も強く受けたもので、(h)および(i)は、比較的火山の影響が小さい時の試料である。これらの粒径分布は、火山活動に由来する大きいフラクション($3.3\sim7.0\mu\text{m}$)と大気中の ^{222}Rn 由来の小さいフラクション($1.1\mu\text{m}$ 以下)の2成分から成るものと考えれば、これら2成分の混合比の違いによって粒径分布を説明でき、半定量的に火山の寄与の評価が可能と思われる。桜島の火山灰は粒径 $5\mu\text{m}$ 前後のものが多いことが知られており、このフラクションが ^{210}Po の粒径分布に強い影響を与えているものと思われる。しかし、保健物理学的に重要な $1.1\mu\text{m}$ 以下のフラクションへの火山の影響との関連についても検討が必要である。

観測された粒径分布より ^{210}Pb と ^7Be の空気力学的放射能中央径(AMAD)は、鹿児島と辰口ともに $0.10\sim0.40\mu\text{m}$ の範囲にある。これに対し、 ^{210}Po は鹿児島では $0.60\mu\text{m}$ の成分(大気中 ^{222}Rn 由来のもの)と $3.7\mu\text{m}$ (火山活動由来のもの)の2成分からなっており、見かけ上のAMADはこれらの中間の値となる。

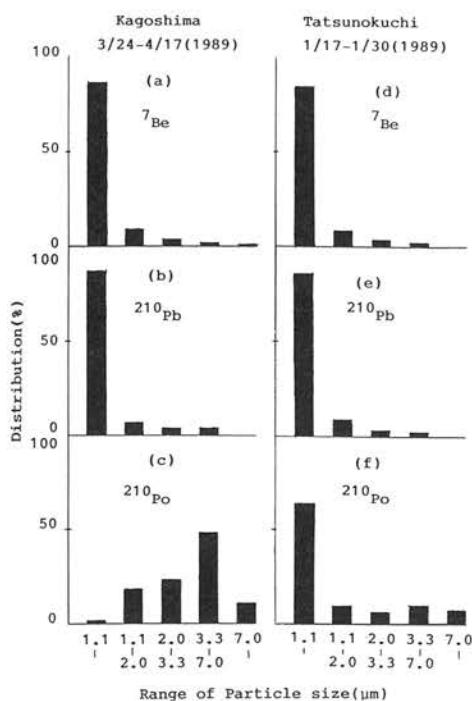


Fig. 1 Size distribution of ^{210}Pb , ^{210}Po and ^7Be in Kagoshima and Tatsunokuchi.

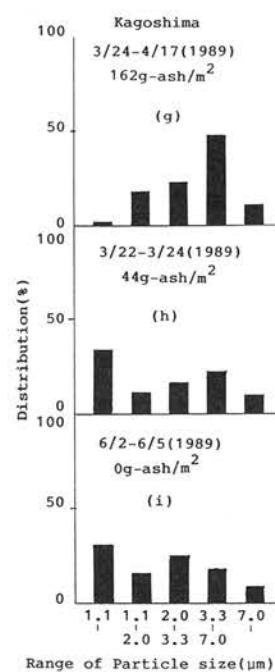


Fig. 2 Size distribution of ^{210}Po in Kagoshima.

[本研究は、大学院生・内田賢吾が行い、試料採取には、鹿児島大学理学部・坂元隼雄助教授の協力を頂いた。成果の一部は、第33回放射化学討論会(於 広島)で報告した。]

桜島の火山灰中の ^{238}U および ^{232}Th 系列核種の平衡状態

Radioactive Equilibrium States of ^{238}U and ^{232}Th Series Nuclides in Volcanic Ash from Mt. Sakurajima

桜島（南岳）の火山活動に伴って放出される ^{210}Pb と ^{210}Po に関する関連して本年度は粒径分布（前ページ）の他に桜島からの火山灰中の ^{238}U と ^{232}Th 系列核種の平衡状態についても測定した。

本研究には、1988年5月から1989年6月にかけて鹿児島市役所および桜島島内で採取した15個の火山灰を試料として用いた。

まず、非破壊 γ 線スペクトロメトリーにより ^{238}U (^{234}Th による間接測定)、 ^{226}Ra (^{214}Pb , ^{214}Bi)、 ^{210}Pb , ^{228}Ra (^{228}Ac)、 ^{228}Th (^{212}Pb) および ^{40}K を、試料2 g 前後を化学分離精製後、 α 線スペクトロメトリーにより ^{234}U (^{238}U)、 ^{230}Th , ^{232}Th および ^{210}Po を定量した。

測定の結果、 ^{238}U は6.5~13.2mBq/g(平均10.5mBq/g, 0.84 ppm), ^{232}Th は10.1~25.0mBq/g(平均17.4mBq/g, 4.3 ppm) の範囲にあることが分かった。Fig. 1に放射能比で測定結果を示す。これから分かるように、 ^{238}U 系列核種では ^{238}U と ^{234}U は放射平衡であり、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ は1.4、 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ は1.7となった。さらに娘核種の $^{210}\text{Pb}/^{238}\text{U}$ は3、 $^{210}\text{Po}/^{238}\text{U}$ は40と極めて大きくなる。また、 ^{210}Pb および ^{210}Po の濃度の変動幅は平均3.5および7と大きい上、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ も3.0~40(平均15)と著しく高く、親核種に比べ揮発性の高い娘核種が火山灰に濃縮されていることが分かる。長寿命娘核種のない ^{232}Th 系列核種では、 $^{228}\text{Ra}/^{232}\text{Th}$ が1.3、 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ が1.2とやや娘核種の濃度が高いが、放射平衡からのずれは小さい。U, Th および Ra についてはマグマ中でも分別が起こると言われており現在これについて検討中である。 ^{40}K は、328~462mBq/g(平均372mBq/g, 1.2%)となり、火山灰の違いによる濃度の差は小さかった。

火山灰中のU, Th, Ra同位体およびKのほとんどは、火山灰の中に元から含まれているのに対し、揮発性の ^{210}Pb と ^{210}Po (特に後者)は、気体状態で放出されるものが多く、冷却の早い火山灰表面に付着したものと考えられる。

^{210}Pb および ^{210}Po の存在状態について知見を得るために、火山灰試料30 g を用いて、90mLの0.1 M HCl, 6 M HCl および8 M HNO₃の順に、常温で3時間攪拌し、逐次分別溶出実験を行い、各溶出操作の後に重量減と、溶出されたフラクション中の ^{238}U , ^{210}Pb および ^{210}Po を測定した。結果を Fig. 2 に示す。 ^{238}U は5%以下とほとんど溶出されないが、 ^{210}Pb は0.1 M HClで20%溶出され、全溶出量は約40%であった。また、 ^{210}Po は6 M HClで35%溶出され、全溶出量も50%を越えている。これらの結果は、火山灰表面に付着している ^{210}Pb および ^{210}Po がかなり多いことを示唆している。

火山灰には、黒灰(火山弾、溶岩を粉碎して放出されたもの)、白灰(成因が突発的な爆発によりマグマから直接放出された粒子が細かいもの)と赤灰(ほとんど放出されないが、Si成分が少なくFe成分が多いもの)の3種類がある。1989年4月と6月に採取された白灰(Sample 13と15)では、平均値よりもかなり高い濃度の ^{210}Pb (49.0および58.5mBq/g)と ^{210}Po (552および535mBq/g)を含んでおり、今後火山灰の色を考慮した測定を計画している。

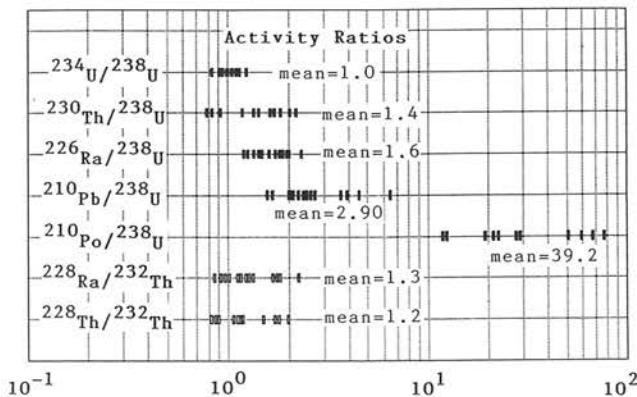


Fig. 1 Radioactive equilibrium states of ^{238}U and ^{232}Th series nuclides in volcanic ash from Mt. Sakurajima.

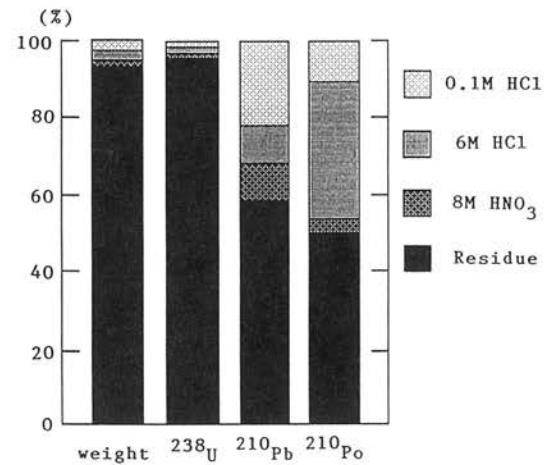


Fig. 2 Leaching of ^{238}U , ^{210}Pb and ^{210}Po from volcanic ash by various acids.

[本研究は、主として大学院生・内田賢吾が行い、試料採取は鹿児島市役所の古藤幹氏と永重博昭氏の協力を頂いた。成果の一部は、第33回放射化学討論会(於 広島)で報告した。]

毛髪中の ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度の測定

Measurement of ^{210}Pb and ^{210}Po Concentrations in Human Hair

日本人の ^{210}Pb と ^{210}Po の摂取量、人体負荷量および内部被曝線量を評価することを主目的として、秋田大学医学部と共同で人体組織および食品中の ^{210}Pb と ^{210}Po の分析を実施継続している。今回は、この研究の一環として毛髪中の ^{210}Pb と ^{210}Po を分析し、上記のことを考える上での一助とした。

毛髪試料は、石川県（1988年6月）、静岡県（1988年8月）、および茨城県（1989年1～2月）で、最寄りの理髪店に依頼して、個人試料として散髪した際の大部分の毛髪と提供者の性別、年齢、喫煙の有無に関する情報を得たものを用いた。採取した試料は、細かく切断し、アセトナー純水—純水—アセトンの順に各10分間ずつ振とうして洗浄し、風乾後、2～10 gを分析試料として用いた。茨城県で採取した試料については、1個人当たりの試料が少なかったので5歳間隔で年齢層別にしたもの用いた。 ^{210}Pb と ^{210}Po の分析・測定は、前報 [LLRL-AR-13, p. 9] の人体試料と同様な方法で行い、前もって毛髪試料中の ^{210}Pb と ^{210}Po を分析測定するさいの精度を充分検討し、良好であることを確認した。

Fig. 1に今回分析した ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度と試料採取時の提供者の年齢との関係を示す。Table 1に、地区別に喫煙の有無（石川県、静岡県）、および男女別（茨城県）にまとめた結果を示した。これらの図、表から見るかぎり、 ^{210}Pb および ^{210}Po とも地域、年齢、喫煙の有無、男女の間で著しい濃度差は見られない。全試料の ^{210}Pb および ^{210}Po 濃度の頻度分布をFig. 2およびFig. 3に、また $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比をFig. 4に示す。 ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度の中央値はそれぞれ2 mBq/g、15 mBq/gであり、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ のそれは、7.1であった。これらの値は、Landiskayaによるソ連人（N=33）の値と比べて ^{210}Pb 濃度はほぼ等しいが、 ^{210}Po 濃度および $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は4倍程度高い。これまでに測定した日本人の人体組織と比較すると毛髪中の $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比は、どちらかと言えば、肝臓3.2(1.4～7.1, N=17)、および腎臓5.3(1.6～14.2, N=18)の値に近く、今後、食餌からの ^{210}Pb 、 ^{210}Po 摂取量とも考え合わせて詳細に検討する予定である。

Table 1 Concentrations of ^{210}Pb and ^{210}Po in human hair from Ishikawa, Shizuoka and Ibaragi Prefectures.

(mBq/g)

Sampling location	Smoker		Non-smoker		Total	
	Pb-210	Po-210	Pb-210	Po-210	Pb-210	Po-210
Ishikawa n=(23) ^{*1} 2.8 ^{*2} 19.1 n=(15) 1.7 12.1 n=(38) 2.4 15.8						
Pref. 2.8±1.4 ^{*3} 19.5±10.9 2.4±1.2 15.5±10.6 2.6±1.3 17.9±10.9						
Shizuoka n=(10) 2.7 28.7 n=(13) 2.1 16.0 n=(23) 2.1 18.1						
Pref. 2.4±1.0 24.8±15.0 2.1±1.0 23.2±15.5 2.3±0.8 23.4±14.9						
Sampling location	Male		Female		Total	
	Pb-210	Po-210	Pb-210	Po-210	Pb-210	Po-210
Ibaragi n=(10) 1.8 12.7 n=(12) 1.6 10.4 n=(22) 1.6 10.4						
Pref. 1.7±0.7 14.1±10.8 1.6±0.7 11.5±6.8 1.7±0.7 12.7±8.7						

*1: Number of samples analysed, *2: Median, *3: Arithmetic mean.

[静岡県および茨城県での毛髪の採取には大学院生・山内喜通および放射線医学総合研究所・河村日佐男氏の協力をいただいた。]

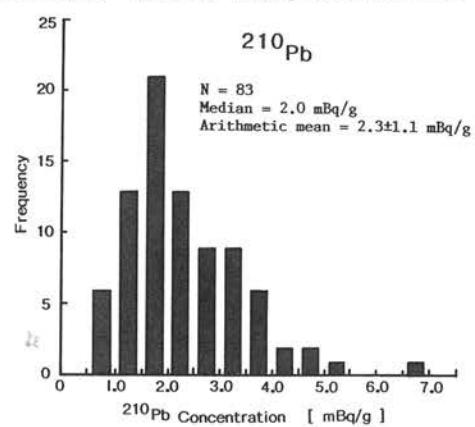


Fig. 2 Distribution of ^{210}Pb concentration in human hair.

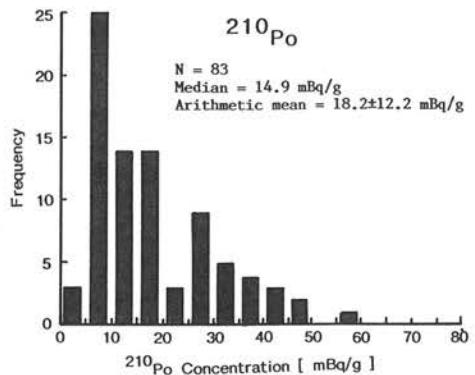


Fig. 3 Distribution of ^{210}Po concentration in human hair.

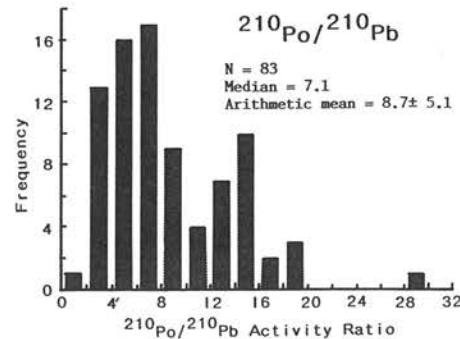


Fig. 4 Distribution of $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratio in human hair.

人骨中の ^{226}Ra 濃度の測定

Measurement of ^{226}Ra Content in Human Bone

前年度確立した硝酸-メタノール陰イオン交換分離- α 線スペクトロメトリー法[LLRL-AR-13, p. 10]により、人骨中の ^{226}Ra 濃度の測定を行った。試料は、東京および一部札幌で1981~1987年にかけて放医研が収集した前処理済みの骨試料[大部分脊髄骨、死亡年齢0~87才、92試料]の灰化物を用いた。 ^{226}Ra 分析には、この灰化物2~3.5 gを使用した。

^{226}Ra と死亡時年齢との関係をFig. 1に示す。濃度が低いため個々の測定値には10~20%の誤差を含んでいる。得られた結果を見るかぎり、15~87才の年齢範囲の中で骨中濃度はかなり変動しており、年齢との相関関係は見られない。また5才以下の幼児の骨中濃度も一部高い値が検出されているものの、成人との間に明確な差は見られない。西独の報告によれば、0~1才および10~16才の骨試料で、顕著な濃度のピークが観察されており、骨生成の2段階を反映しているものとしている。今後、この点をさらに検討する必要がある。データが少なくて、東京と札幌地区の比較は現段階で行えない。 ^{226}Ra の濃度の頻度分布をFig. 2に示す。中央値および算術平均は9.6 fCi/g·ashおよび11.0 fCi/g·ashであった。この中央値は、灰化骨試料中のCa濃度を37%と仮定すると26 fCi/g·Caになり、Fig. 3に示すようにすでに報告されている世界各国との値とも似通っている。今回主として脊髄骨を分析したために骨格内分布に関するデータはないが、骨中の ^{226}Ra から受ける骨表面および赤色骨髓に対する年線量当量をICRP Publication 30の骨線量評価モデルにならって ^{226}Ra が骨内に均一に分布すると仮定して、標準日本人の線源および標的器官の重量を用いて現在検討をすすめている。

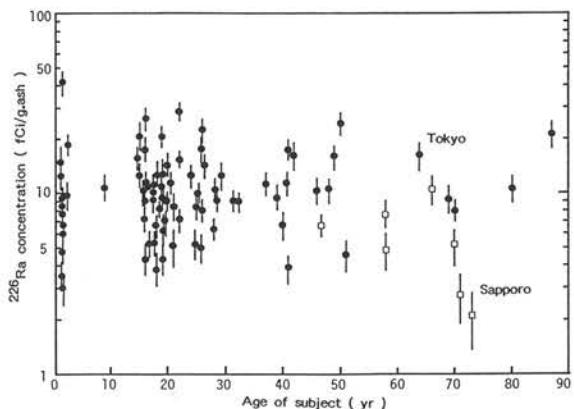


Fig. 1 ^{226}Ra concentration in human bone as a function of age.

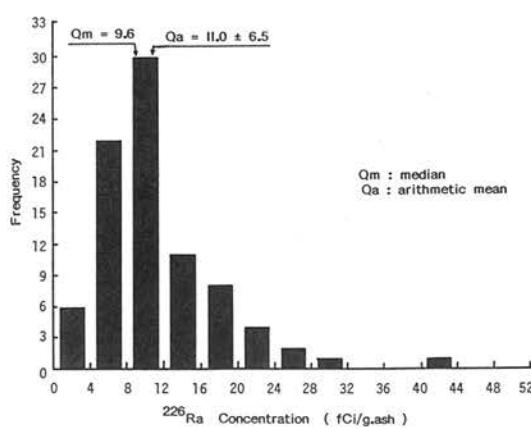
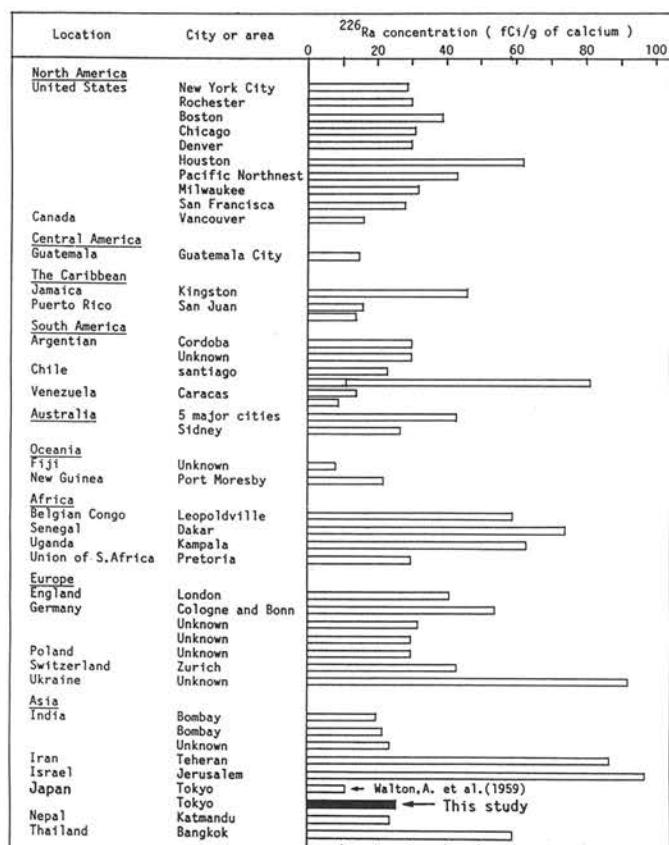


Fig. 2 Distribution of ^{226}Ra concentration in human bone.



All data, except Tokyo's data in this study, were cited from the report by Fisenne, I.M., Keller, H.W. and Harley, N.H. (Health Phys., 40, 163(1981)).

Fig. 3 The concentration of ^{226}Ra in human bone (fCi/g-Ca).

[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で行った成果の一部は、第32回日本放射線影響学会（於北九州）で発表（3-E-10）した。]

Irish 海沿岸堆積物中の超ウラン元素

Transuranium Elements in Sediments along the Irish Sea

イギリスとアイルランドの間に位置する Irish 海は、イギリスのセラフィールド核燃料再処理工場から放出された超ウラン元素の影響を強く受けている。そのため、この海域での超ウラン元素の分析・測定は、モニタリング面からだけでなく、環境中でのこれらの元素の挙動を知る上でも重要である。

当初、Irish 海沿岸の24地点 (Fig. 1) で英 North Wales 大の Assinder 氏が1988年7月に採取した表層堆積物試料の分析を行ったが、その結果 Ribble 川河口の²³⁷Np 濃度が著しく高いことがわかったため、この川の河口付近の7地点の試料を1989年8月と9月に採取してもらい、この測定もさらに行なった。各試料は風乾した後、その10 g を秤取し、非破壊 γ 線スペクトロメトリーにより¹³⁷Cs を始めとする γ 線放出核種を定量した。その後、試料0.5~10 g を用いネプツニウム（トレーサー：²³⁹Np）を、試料0.5~3 g を用いブルトニウムとアメリシウム（トレーサー：²⁴²Pu, ²⁴³Am）をそれぞれ化学分離・精製し α 線スペクトロメトリーにより²³⁷Np, ²³⁸Pu, ^{239,240}Pu および²⁴¹Am (^{243,244}Cm, ²⁴²Cm) を定量した。なお、²⁴¹Am の親核種である短寿命の²⁴¹Pu はブルトニウム精製フラクションの一部を用いて、液体シンチレーションカウンターによる β 線測定により定量した。

[1] Irish 海沿岸試料

Irish 海沿岸から得られた試料の^{239,240}Pu および²³⁷Np 濃度(100倍して表示)を Fig. 2 に示す。Pu は、セラフィールドに近い Esk 川河口の値が高く、セラフィールドから離れるにつれて濃度が減少する傾向がみられる。Np も Pu と同様の傾向にあるが、セラフィールドから約100km離れた Ribble 川河口が特異的に高い値となった。

Irish 海の沿岸堆積物の測定結果を横軸に^{239,240}Pu 濃度をとり、縦軸に他の超ウラン元素諸核種および¹³⁷Cs の濃度にとって Fig. 3 に示す。²³⁷Np は十分な試料が得られなかった S 3 および S 20 地点を除くと0.08~12Bq/kg の濃度範囲であった。この値は^{239,240}Pu (2.3~1800 Bq/kg) および²⁴¹Am (2.7~2300 Bq/kg) に比べて極めて低く、^{243,244}Cm と同程度である。セラフィールドの廃液放出口に近い Esk 川河口の濃度は福井県の三方五湖および丹生湾の堆積物試料で得た濃度 (²³⁷Np : 7~10 mBq/kg, ^{239,240}Pu : 3~5 Bq/kg, ²⁴¹Am : 1~2 Bq/kg) の約1000倍である。

Fig. 3 に示すように Ribble 川河口の²³⁷Np/^{239,240}Pu 放射能比は他の地点の値 (2~4) $\times 10^{-3}$ より 10~20倍高い

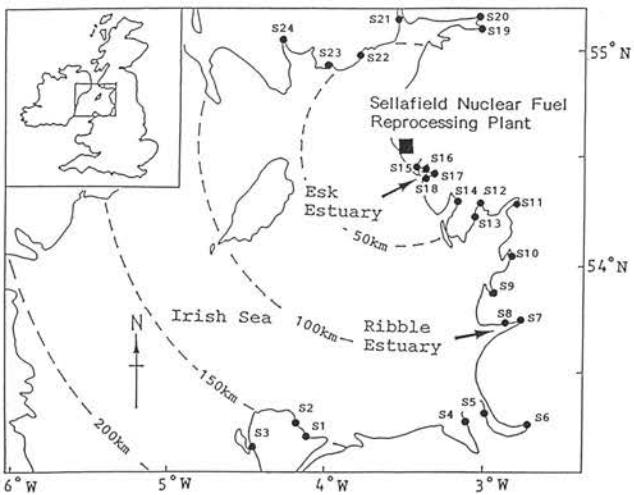


Fig. 1 Sampling locations of sediments from Irish Sea

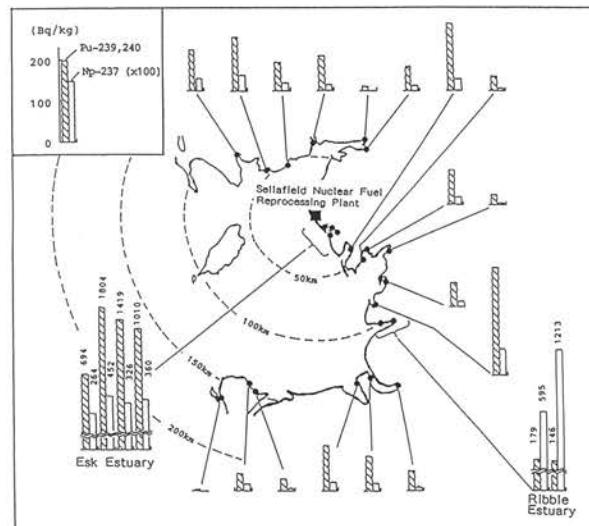


Fig. 2 Distribution of ^{239,240}Pu and ²³⁷Np concentration in the sediments from Irish Sea

$(33\sim87)\times10^{-3}$ となっている。セラフィールドから Irish へ放出された ^{237}Np の年間放出量の詳細は1978年以前については不明であるが、1978~1984年にかけての ^{237}Np と $^{239,240}\text{Pu}$ の年間放出量の報告値より算出すると $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比は $(9\sim36)\times10^{-3}$ となる。今回得た堆積物中の $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比（Ribble 川河口試料を除く）はこの値の1/4~1/10であり、この放射能比の違いが Np と Pu の沈積挙動の違いを反映しているかどうかを、現在検討中である。他の超ウラン元素諸核種と $^{239,240}\text{Pu}$ の放射能比はそれぞれ従来報告されている値の変動幅内で一致している。また、 ^{137}Cs （半減期30.17年）は大部分が海水中に溶存状態で存在し、堆積物へ移行しにくいため、Fig. 3 にみられるように超ウラン元素諸核種の濃度相関とは明らかに異なり、沈積挙動に違いがあることがわかる。

[2] Ribble 川河口試料

$^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比が特異的に高い Ribble 川河口での堆積物の $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{237}Np 濃度の結果を Fig. 4 に示す。Fig. 4 より、 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度は上流へさかのばるにつれて低くなる傾向にあるが、 ^{237}Np 濃度は逆に高くなる。また、 $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比は $(7.7\sim2460)\times10^{-3}$ で他の地域の2~600倍で上流ほど高くなっている。しかし、他の超ウラン元素諸核種と $^{239,240}\text{Pu}$ との放射能比は、他の地域と比べ顕著な違いは認められない。

Ribble 川上流には Springfields ウラン加工工場があり、この施設から ^{237}Np が放出されたものであり、他の超ウラン元素諸核種は $^{239,240}\text{Pu}$ との放射能比からセラフィールド再処理工場由来のものと考えられる。

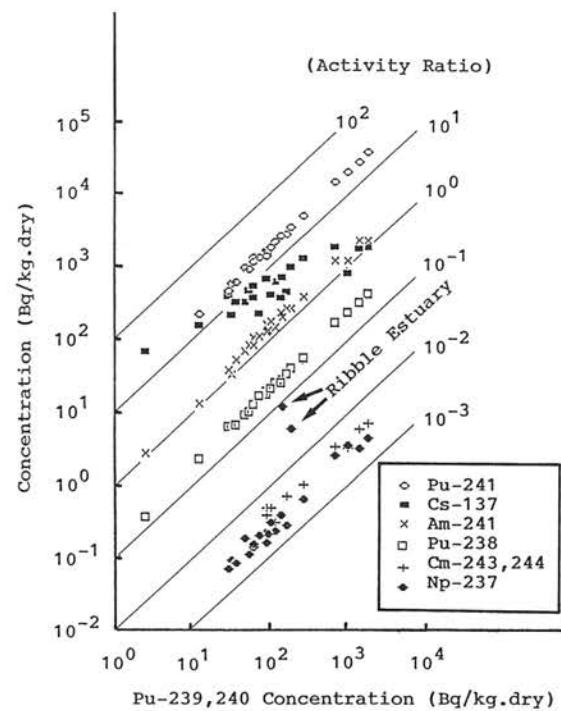


Fig. 3 Correlation of $^{239,240}\text{Pu}$ and other radionuclides.

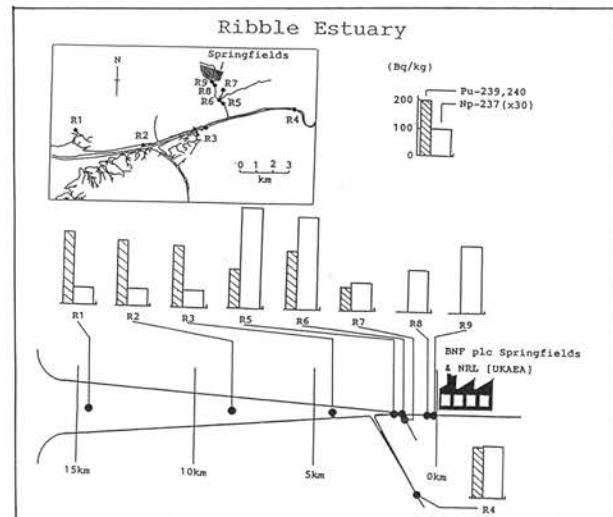


Fig. 4 Distribution of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{237}Np concentration in the sediments from Ribble Estuary

[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 ^{241}Pu の測定に協力した。成果の一部は、第33回放射化学討論会（於 広島大学）で報告した。]

Irish 海沿岸堆積物中の Np, Pu, Am の存在状態

Characteristics of Np, Pu and Am in Sediments from the Coastal Area of Irish Sea

沿岸堆積物は、海洋に放出された放射性核種のリバーザーとして重視されている。放射性核種の堆積物への吸着は、その元素の物理化学的特性、堆積物の種類および構成成分（無機鉱物、アラゴナイトやカルサイトなどの炭酸カルシウム鉱物、Fe や Mn 酸化物、生物の死骸やそれらの分解物など）によつても大きく左右される。堆積物中の放射性核種の測定は、これまでほとんど全濃度を求めるものであったが、堆積物中の存在状態についての知見を得ることも長期的な挙動や生物への移行などを評価・予測する上で必要である。

今回、イギリスの Irish 海沿岸で、プルトニウムなどの超ウラン元素によつて高濃度に汚染されている Esk 川河口からの堆積物と前ページ [p. 10] で記した異常に高い²³⁷Np 濃度が検出された Ribble 川河口の堆積物について、Tessier 等の逐次分別溶解法を用いて、Np, Pu, Am の存在状態を検討した。Table 1 にその方法を示す。各段階で得たフラクションについて、Np, Pu, Am を逐次分離・精製し、 α 線スペクトロメトリーにより²³⁷Np, ^{239,240}Pu, ²⁴¹Am を測定した。Esk 川河口の堆積物の hot particle (Fig. 1) の存在が CR-39 プラスチックフィルムによる α -トラック法により確認された。（なお、Ribble 川河口の堆積物については現在実験中である。）Fig. 2 に逐次分別溶解実験の結果を示す。図からわかるように、2種類の堆積物とともに Np, Pu, Am それぞれ同じような分布を示している。Pu と Am は交換可能なフラクションにはほとんど存在していないが、Np は 14~18% と多い。炭酸塩フラクション中の Np の割合も 39~47% と大きく、この結果はこれまでに報告してきた Np のトレーサ実験からのデータとも矛盾しない。Pu は交換可能なフラクションを除いて、他のフラクションでは著しい違いが見られないが、Am は特に炭酸塩フラクション中の割合が高い。残渣中の Np と Am の割合は少ない。

Table 1 Sequential leaching procedures and reagents based on the method by Tessier et al.

	Extracting Reagent	Temp. (°C)	Time (hr)
F1: Exchangeable	1M-MgCl ₂ (pH7)	Room	Temp. 1
F2: Carbonate	1M-CH ₃ COONa (pH5)	Room	Temp. 5
F3: Fe-Mn Oxides	0.04M-NH ₂ OH HCl (pH2)	90-95	6
F4: Organic Matter	0.02M-HNO ₃ +H ₂ O ₂ (pH2)	80-85	2
F5: Residual			

Sediment : 1 g, Extracting volume : 50 ml

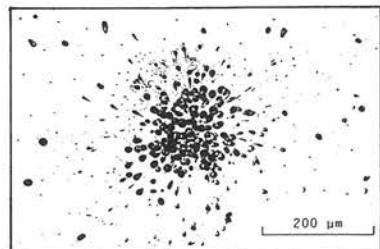


Fig. 1 Observation of hot particles in sediment from Esk estuary using CR-39.

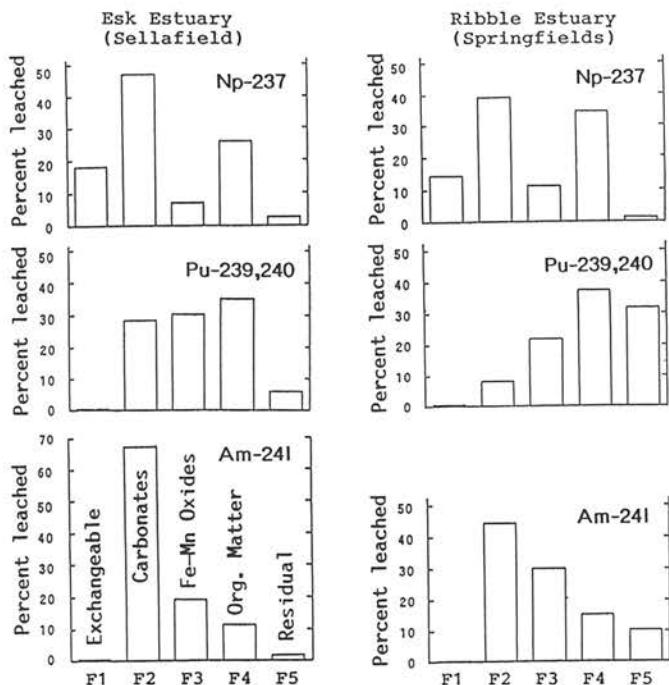


Fig. 2 Sequential leaching of Np, Pu and Am from sediments in Esk and Ribble estuaries.

[本研究は主として大学院生・山内喜通が修士課程の研究課題の一部として行った。]

樹木年輪によるトリチウムレベルの経年変動の研究

Study on Secular Variation of Tritium Level by the Analysis of Annual Tree Rings

【はじめに】 環境中に広く存在している核実験由来のトリチウムは水の循環を追跡するためのトレーサーとして有用である。降水や地表水については世界各地でかなりの測定がなされているが、長期間にわたる連続測定がほとんどなく、季節変動や地域による差があり報告値を単純に比較することはできない。過去のトリチウムレベルの経年変化を知るために生育環境中のトリチウムレベルを記録していると思われる樹木年輪中のトリチウムの詳細な測定を試みた。年輪中の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ものと仮定し、セルロースの迅速分離精製法により大量の試料の化学処理をし、セルロース中のトリチウム濃度の測定を行った。

【実験】 直径50cm長さ1m程の松の木の幹を年輪毎に分離した約150gの木材チップを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-NaClO₂を用いてリグニンを除去し、更に17.5% NaOHで処理して β 、 γ セルロースを除去し、約40gの α セルロースを得た。これを110°Cで乾燥後、35mm ϕ × 10mmのdiskに成形後、酸化銅存在下で燃焼し、コールドトラップにより生成した水を回収した。燃焼水にKMnO₄とNa₂O₂を加えて2回蒸留して不純物を除去した後、液体シンチレーション測定によってトリチウムを定量した(AR-12, p.12参照)。

【結果と考察】 今回の測定で得られた樹木年輪中の組織結合トリチウムの濃度(水試料に換算1 TU = 3.2pCi/l)をFig. 1に示す。斜線は年輪形成時のトリチウムレベルを表す。また横線は液体シンチレーションカウンター(LSC-LB 1)を用いて4000分間測定を行ったときのトリチウムの検出限界(約1.5 TU)であり、斜めの帯は、核実験の寄与がない時期の環境水中のトリチウムレベルの推定値である(天然起源のトリチウムのレベル約5-8 TU)。これから明らかなように、年輪中に核実験由来の高濃度のトリチウムが固定され存在していることがわかった。また核実験以前(1945年)に生育した年輪中のトリチウム濃度が検出限界以下であることから、年輪の形成時に取り込まれて α セルロースの形で固定されたトリチウムの移動は事実上ないものと考えられる。年輪の α セルロース中のトリチウムは1952年以前の試料では4000分測定時の検出限界以下であるが、1955年から1963年にかけて急激にその濃度が上昇し、その後次第に減少し、1980年以降はほぼ一定となっている。以上の結果、年輪の分析は、過去のトリチウムレベルの把握に非常に有用な手段であることを実証した。

トリチウム濃度の経年変動をFig. 2に示す簡単な大気-降水-樹木移行モデルにより解析を試みつつある。1960年以前、特に1950年代前半についてさらに精度良く測定する予定である。

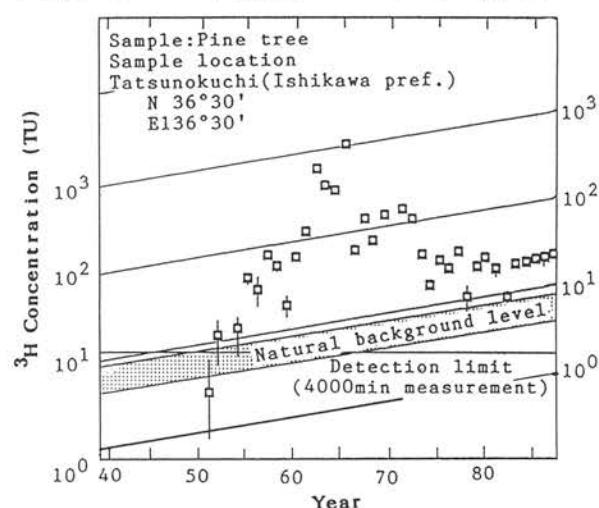


Fig. 1 Tritium concentration in cellulose isolated from annual tree rings.

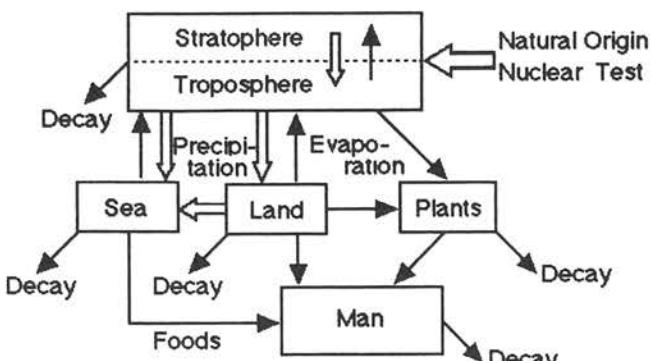


Fig. 2 Simple transfer model of water from tritium in the environment.

[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・斎 幹夫、宮下文和および北陸大学助教授・山田芳宗の協力により行い、成果の一部を第32回日本放射線影響学会(於北九州)で発表(1-E-05)した。]

日本酒醸造の発酵過程で発生するCO₂ガスの¹⁴C濃度

¹⁴C Concentration of Liberated CO₂ in the Free Fermentation Process of Japanese SAKE Brewing

【はじめに】

米の¹⁴C濃度は、大気中から摂取したCO₂ガスの¹⁴C濃度の平均値を反映していると考えられる。日本酒の醸造には、同一地域で収穫した酒造原料米を一度にしかも多量に使用する。この点に着目し、発酵過程で発生するCO₂ガスを測定試料として用い、目的地域における大気中の¹⁴C濃度レベルを見積もることを検討した。

【実験方法】

(1) 試料：日本酒醸造の発酵過程で発生したCO₂ガスは、(株)小堀酒造(石川県鶴来町)の醸造タンク(容量10kℓ)から、液体窒素トラップを用いて捕集した。試料採取は、留仕込から発酵終了日まで、1日1回行った(約3週間)。発酵過程で得たCO₂ガスと米の¹⁴C濃度の関係を検討するため、日本酒醸造に用いた麹米及び掛米を燃焼して得たCO₂ガスも採取した。

(2) ¹⁴Cの定量：CO₂ガスからアセチレンを経てベンゼン3～5mℓを合成した。合成したベンゼンにシンチレータ溶液(Butyl-PBD-Toluene)を加え全量を20mℓとし、これを測定試料として冷暗所(約12℃)に2日間放置後、B.G. 液体シンチレーションカウンタ(Aloka LSC-LB 1)を用いて1000分又は2000分測定した。

$\delta^{14}\text{C}$ の値は、次式から求めた。

$$\delta^{14}\text{C} = \frac{\text{Cs} - \text{Cr}}{\text{Cr}} \times 1000 (\text{‰})$$

Cs：試料の比放射能(dpm/g-C)

Cr：NBS シュウ酸(SRM4990C)の比放射能(dpm/g-C) × 0.735

【結果】

麹は、米でのんぶんを糖に変える麹菌(*Aspergillus oryzae*)を蒸した麹米に付着させたものである。酒母は、酵母に麹、蒸した麹米、水をよく混ぜて約2週間培養し、酵母を多量に増殖させたものである。日本酒醸造の発酵過程は、麹、蒸した掛米、水を混ぜたものに酒母を加える仕込から始まり、約3週間で完了する。その間、麹の酵素が米でのんぶんを糖に変え、酒母の酵母がこれをアルコール発酵させる。麹米と掛米とは同じ場合もあるが、種類や産地が違う米を使用することが多い。

Fig. 1に、発酵過程で発生したCO₂ガスの¹⁴C濃度の経日変動を示す。麹米は1987年石川県産、掛米は1987年の岡山県産である。発酵CO₂ガスの¹⁴C濃度は、発酵初期には約190‰と一定であったが、その後10～16日の間に低下し、最終段階では115‰あたりで再び一定となった。図中のAとBに、麹米及び掛米をそれぞれ燃焼させて得た米の¹⁴C濃度の平均値を示すが、発酵初期のCO₂ガスの¹⁴C濃度は麹米の濃度と、また、最終段階の濃度は掛米の濃度と一致している。これは、米の¹⁴C濃度に地域差があり、しかも、麹米の発酵が先に進行し、最終段階に掛米の発酵が支配的となるため発酵初期のCO₂ガスの¹⁴C濃度は麹米の濃度を、最終段階の濃度は掛米の濃度をそれぞれ反映したと考える。しかし、1988年に収穫した石川県産麹米と生産地の異なる掛米(石川県産、岡山県産及び岩手県産)を用いた測定では、1988年産米の¹⁴C濃度には、1987年産米のような、米の産地による顕著な違いはなかった。一方、米の¹⁴C濃度は、米の収穫地域の大気中¹⁴C濃度を反映していると考えられるが、大気中の¹⁴C濃度は、短期間に局地的に10‰前後変動することがあっても、その年平均値の地域差は10‰以下だとされている。この点を考慮すると、1987年産米ではその¹⁴C濃度に75‰におよぶ地域差があったのに対し、1988年産米では地域差がなかった。これは、米の¹⁴C濃度は、稲の生育期間である数ヵ月間にわたる大気中¹⁴C濃度の平均値ではなく、実が成長した8～9月頃のごく短い期間の濃度を反映しているためと説明できる。

以上の結果から、日本酒醸造の発酵過程で発生するCO₂ガスの¹⁴C濃度より、米が収穫された地域の大気中¹⁴C濃度の短期間の局地的変動についての知見が得られることがわかった。

[本研究は、大学院生・斎 幹夫、および北陸大・山田芳宗氏、鍛治 聰氏、岡崎雅子氏の協力により行い成果の一部を第32回日本放射線影響学会(於北九州)で発表(2-E-11)した。]

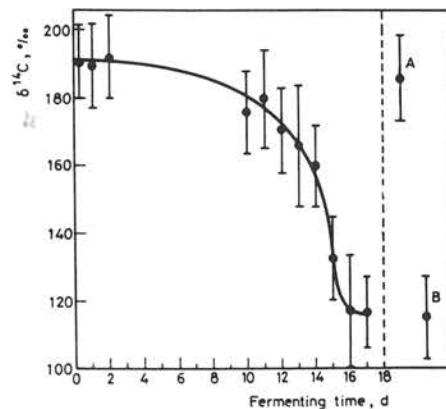


Fig. 1 Daily variation of ¹⁴C concentration of liberated CO₂ in the free fermentation process of Japanese SAKE production. A: average value for the koji rice grains, B: average value for the steamed rice grains

《施設職員》

施設長(併) (教 授)	上 野 馨
教 授	上 野 馨
客員教授	高 島 良 正(九州大学理学部教授)
客員教授	橋 本 哲 夫(新潟大学理学部教授)
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

人

事

研究論文

研究報告

著書

《運営委員》

(任期 平成元年6月～平成3年5月)

理 学 部	小 西 健 二	梅 鉢 幸 重
医 学 部	久 田 欣 一	福 田 龍 二
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	泉 長 秀	
教 養 部	池 田 修	
医 療 技 術 短 大	安 東 醇	

新規納入設備

使用量

コンピューター NEC PC-9801 RX 2 一式
 β線アナライジングモジュール
 富士電機 NHT 01201
 低バックグラウンドβ線計数装置
 富士電機
 井戸型 NaI(Tl)検出器
 TENNELEC 3"φ x 3"
 リニア ルータ/マルチプレクサー
 TENNELEC TC-306 (2台)
 メモリ付き ADC TENNELEC MCA 98B
 AD コンバータ NAIG E-551A
 8 Kch ADC
 セイコー・イージーアンドジー
 7800-1820
 8連ゲート付マルチプレクサー
 セイコー・イージーアンドジー
 電気炉 いすゞ製作所KRO-14K
 電源装置 メトロニクス株式会社B417A-63
 イメージスキャナ EPSON GT-6000
 エアコン 三菱 SRK 221 CW

液 体 窒 素	6,500 ℥
A 重 油	2,955 ℥
電 気	158,190 KWH
水 道	3,192m³

- M. Yamamoto, K. Chatani, K. Komura and K. Ueno : Development of Alpha-Ray Spectrometric Techniques for the Measurement of Low-Level ^{237}Np in Environmental Soil and Sediment, Radiochim.Acta, **47**, 63-68(1989).
 Y. Yamada, M. Itoh, N. Kiriyama, K. Komura and K. Ueno : Measurement of Tritium in Tree Rings : Relationship between Tritium Concentrations in Pine Tree Rings and Environmental Samples, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, **132** (1), 59-64 (1989).
 T. Hashimoto, T. Morimoto, Y. Ikeuchi, K. Yoshimizu, T. Torii and K. Komura : A Survey of Artificial Radionuclides in the Antarctic, Radioisotopes, **38** (4), 209-218 (1989).
 C.K. Kim, Y. Takaku, M. Yamamoto, H. Kawamura, K. Shiraishi, Y. Igarashi, S. Igarasi, H. Takayama and N. Ikeda : Determination of ^{237}Np in Environmental Samples Using Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, J. Radioanal. Nucl. Chem., **132**, 131-137 (1989).
 S. Hisamatsu, Y. Takizawa, T. Abe, M. Itoh, K. Ueno, T. Katsumata and M. Sakanoue : Further Study on Fallout ^3H Ingestion in Akita, Japan, Health Phys., **57** (4), 565-570 (1989).
 S. Hisamatsu, Y. Takizawa, T. Abe, M. Itoh, K. Ueno, T. Katsumata and M. Sakanoue : Fallout ^3H in Human Tissue at Akita, Japan, Health Phys., **57** (4), 559-563 (1989).
 趙 蘭才, 山本政儀 : 茶中の ^{210}Po 濃度と人体摂取量(茶叶中 ^{210}Po 含量測定及人体摂入量的估算), 放射衛生, **2**, 33 (1989).
 山本政儀, 阪上正信, 小村和久, 上野 馨 : 巨大水槽による水 Chernobyl 検出器とその周辺環境の天然放射能のバックグラウンドレベル KAMIOKANDE-II - 保健物理 **24**, 321-329 (1989).
 M. Yamamoto, K. Komura and K. Ueno : Determination of Low-Level ^{226}Ra in Environmental Water Samples by Alpha-Ray Spectrometry, Radiochim. Acta, **46**, 137-142 (1989).

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63年度石川県委託研究研「環境放射能調査報告書」, pp. 55-69 (1989).
 山本政儀 : アクチノイド核種の食品-人体系における移行と体内分布に関する放射化学的研究, 放射線医学総合研究所「昭和63年度外来研究員研究経過報告」, pp. 79-85 (1989).
 飯 幹夫, 小村和久, 上野 馨, 山田芳宗, 鎌治 聰, 桐山典城 : $^6\text{Li} (n, \alpha) \text{T}$ 反応によるリチウムの定量とその応用, 昭和63年度近畿大学原子炉等利用共同研究経過報告書, pp. 57-61 (1989).

中井敏夫, 石森富太郎, 上野 馨 : 放射化学概論, 日本原子力研究所発行 (1989).
 上野 馨, 渡辺賢寿 : アクチノイド, 日本原子力研究所発行 (1989).

山本政儀 : Choppin 博士の「アクチニド元素の環境中における挙動の実験的考察」についての講演, Isotope News, **371**, 12-13 (1985).
 山本政儀 : チェルノブイリ原子力発電所事故起因の環境中超ウラン元素, 保健物理 **24**, 249-257 (1989).

平成元年度 見学来訪・調査出張記録

- 平成元. 5.9 石川県工業試験所宮本正規氏研究打ち合せ
 5.9, 5.25, 6.23-24, 7.12, 10.31, 11.8
 岐阜県御母衣ダム地下測定室にて環境放射能測定
 5.13, 6.24, 8.11, 9.20, 11.10-11, 平成2.3.28
 金沢大学名誉教授 阪上正信氏研究打ち合せ
 5.15 応用地質研究所松原幹夫氏研究打ち合せ
 5.22 科学技術庁原子力安全局核燃料規制課課長大森勝良氏, 青木照美氏, 南山力生氏見学
 6.15, 12.16 北陸大学放射薬品学助手鍛冶 聰氏実験
 6.18-22, 2.3.14-17
 放射線医学総合研究所にて共同研究
 6.21 九州大学理学部教授 (LLRL 客員教授) 高島良正氏研究打ち合せ
 6.21 ◎平成元年度運営委員会 (於 理学部)
 6.22 Hans Wanner 氏 (OECD / NEA Data Bank)
 6.28-7.1 秋田大学医学部阿部 享氏研究打ち合せ
 6.29 石川県環境部庄田丈夫氏研究打ち合せ
 7.10 北陸大学放射薬品学助教授山田芳宗氏研究打ち合せ
 7.11 石川県環境部樹田武史氏研究打ち合せ
 7.24-27 [福井県敦賀市浦底海水中プルトニウム分析海水試料採取]
 8.18-20 琉球大学理学部助教授大森 保氏測定のため来所
 8.21-29 [北海道有珠山, 樽前山, 十勝岳, 静岡県浜名湖試料採取]
 9.19 放射線影響協会熊取敏之氏, 動力炉核燃料開発事業団大洗工学センター中田 啓氏研究打ち合せ
 9.22-10.3 山本助手「ACTINIDES -89, International Conference」出席のためソ連(タシケント)
 ～研修
 10.2 小松市教育委員会教育次長太田進一氏, 社会教育課文化進行係長北村 司氏研究打ち合せ
 11.10 医療技術短期大学学生42名見学
 11.20 理学部化学科3年生41名見学
 12.26 富山大学教養部竹内 章氏, 学生6名見学
 平成2. 1.25 新潟大学理学部教授 (LLRL 客員教授) 橋本哲夫氏研究打ち合せ
 2.19 山口大学工学部助教授三木俊克氏研究打ち合せ
 2.23 理学部生物学科教授梅鉢幸重氏, 学生9名見学
 2.22 福井県衛生公害研究所高山裕美氏研究打ち合せ
 3.5-8 福井県衛生公害研究所大久保権昭氏研究打ち合せ
 3.10 愛知県立岡崎東高校番匠 正氏見学
 3.21-24 [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]
 3.26 茨城県公害技術センター橋本和子氏見学
 3.26 琉球大学理学部教授平良初男氏研究打ち合せ, 見学

低レベル放射能実験施設 平成元年度研究概要・年次報告 1990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
 F A X (0761) 51-5528

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