

低レベル放射能実験施設 研究概要・年次報告

1990.4～1991.3

Annual Progress Reports of
Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

環境放射能研究への重要性	2
極低レベル放射能用地下測定室候補の尾小屋鉱山トンネル	3
航空機利用による宇宙線被曝国民線量の評価	4
Pu 同位体からの LX 線の放出率の測定	5
桜島から放出される ^{210}Po の年間放出量の推定	6
火山ガスおよび昇華硫黄中の ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度	8
中国の表層土壤中の $^{239,240}\text{Pu}$ と ^{241}Am	9
日本人の ^{210}Pb , ^{210}Po 経口摂取量の評価	10
海産生物中の ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度	11
Irish 海における ^{237}Np の沿岸堆積物への沈積挙動	12
Irish 海沿岸堆積物中の ^{99}Tc	14
平成 2 年度・施設設備品・運営人事関係諸資料・研究報告	15
平成 2 年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

環 境 放 射 能 研 究 へ の 重 要 性

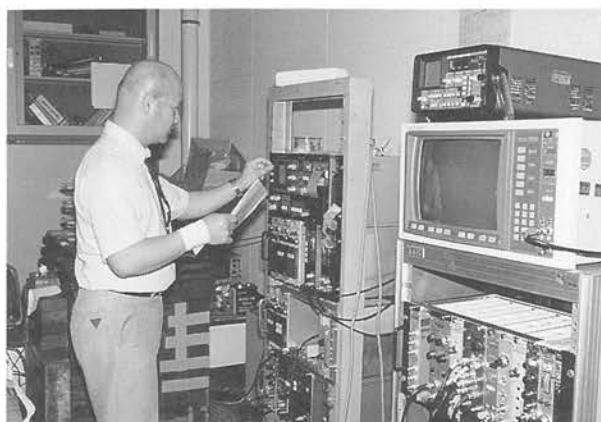
元施設客員教授・秋田大学医学部教授 滝澤行雄

原子力利用の本格化に伴い、国民の健康の確保、環境の保全、環境中における放射能の挙動と放射能レベルの把握およびそれによる被曝線量の評価法の開発など安全研究はますます重要となってきている。低レベル放射能実験施設が1976年、理学部に設置された当時は、環境放射能研究に携わる研究者、技術者は現在とは違って数多く、放射性降下物の影響調査や原子力施設等の環境安全対策に多々貢献してきた。

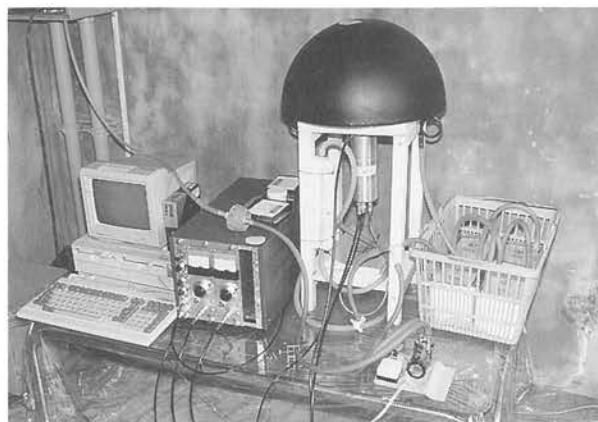
当施設では創設以来、研究概要・年次報告が刊行され、今回で15周年を迎えている。これまでの研究成果を通して、黎明から飛躍の沿革を直視するとき、著しい技術的進歩とともに新たな環境放射能の安全研究がひとしく要請されてきている。とりわけ、低線量・低線量率被曝による人体影響のリスク評価に直接寄与し得る環境放射能調査や実験的研究の推進は、米国スリーマイルアイランド、ソ連チェルノブイリ両原発事故を契機に、緊要な課題であり、当施設において築かれた実績を礎にその展開が大いに期待される。

最近、燃料サイクル確立のための計画が進むにつれ、燃料再処理、放射性廃棄物処理処分などに関連した安全問題がとみに注目されている。原子力に対する社会的な関心が今までになく高まっている現状を乗り切るうえにも、環境放射能、とりわけ低レベル放射線研究は、従事する研究陣の不足にもかかわらず、原子力エネルギーの効用性からして、今後も一層の重要な課題と思われる。この1991年6月5～7日にモスクワで開催された全ソ科学アカデミー「放射線生物学的問題」科学評議会による国際会議「原子力事故に伴う放射線生物学的影響」（会長：ゴルダンスカイ教授）に招へいされ、最近までのチェルノブイリ事故の影響に関する研究成果を聴く機会があった。本会議開催の2週間前、IAEA 諮問委員会はチェルノブイリ事故に関して、住民被害はないと放射線の影響を否定したが、全国の試験研究機関から参加した科学者達はこの結論を大筋で認めながらも、低レベル放射線による影響の問題はむしろこれから的重要課題として深く受けとめていた。

いずれにせよ、これは国際的に共通な問題として認識されている。1986年には当施設に2つの客員部門が付置され、その一席を3年間努めてきたが、今後、環境放射能研究の全国共同利用施設として、大いなる発展を祈念してやまない。



人体および食品中の²¹⁰Poの共同研究で
来所した 秋田大学 阿部 享氏



総合研究「地球規模汚染の予測的手法の確立」
(代表 名大・工学部 池辺幸正教授) の研究分担で
ペントハウス内に設置したラドン連続測定装置

極低レベル放射能用地下測定室候補の尾小屋鉱山トンネル

Ogoya Mine Tunnel as Candidate for a Underground Facility of Low Level Radioactivity Measurement

極低レベルの放射能測定に地下測定室が極めて有効な事が知られている。わが国では千葉県鋸山に東大核研が設置したもの(180mwe)が稼働し多くの実績を上げており、放射能測定を主目的としないが超新星SN 1987Aからのニュートリノの検出で活躍したKAMIOKANDE-II(神岡鉱山:2700mwe)が世界に知られている。前者は深さが十分ではなく、後者は遠隔地にあるため試料交換や液体窒素の補給などに不便なため放射能測定用の地下測定室としては条件が悪い。また当施設が1982年からすすめている御母衣地下発電所内の測定室は交通の不便さからGe検出器を置ける条件はない。

これに代るものとして旧尾小屋銅鉱山(小松市)のトンネル(延長580m、最大深度360mwe)を有力候補地として現在設置のための基礎データの収拾を行っている。Fig. 1に示すように尾小屋は、当施設より約20kmの近距離にあり、大倉岳スキー場に隣接しているため冬期の交通に支障はなくGe検出器等の保守も容易に行うことができる。予定のトンネルは、かつて鉱石の運搬や通学路として使用されていたもので、トラックが通れる広さがあるが現在は使われていない。最深部は地質的には堅固で、少し整備すれば第一段階としてプレハブ程度の測定室を置くのは容易である。岩盤はUとTh濃度が比較的低い角礫凝灰岩からなっており、ラドンの放出が少ない。トンネル用の大型換気扇で換気すれば生成するラドンの濃度を外気レベルに保つことは困難ではなくバックグラウンドの観点からも地下測定室設置場所としての好条件を備えている。

現時点では予定のトンネル内で電源を確保するのが困難なので、隣接の鉱山資料館の展示トンネル(延長180m:深さ160mwe)で $7.6\text{cm}\phi \times 7.6\text{cm}$ のNaI(Tl)検出器を用いて宇宙線に対する遮蔽効果の測定を行った。Fig. 2に γ 線エネルギーで5 MeV相当以上の宇宙線成分(主としてミューオン)を土被りの異なるさまざまな地点で測定した結果を示す。図から分かるように、土被り深さとともに計数率は指數関数的に減衰し、土被り約60m(160mwe)の最深部で宇宙線の寄与は地上の約1/50になることが分かった。測定室設置を予定の360mwe地点では1/200程度まで減らすことが可能と思われる。比較のため世界の地下測定室の例をTable 1に示す。大深度の測定室のほとんどは陽子壊変の測定やニュートリノあるいはミューオンの観測用であり、極低レベル放射能測定を目的とする大深度の測定室はないに等しい。地下深度、交通の便、保守の容易さ等を総合的に判断して尾小屋は放射能測定用として第一級の地下測定室となる条件を備えているので早期の実現を計るべく努力をしている。この施設はいずれ全国の共同利用施設として利用する予定である。

Table 1 Underground facilities in the world.

Depth(m.w.e.)	Location	Nation	Purpose of Project	Name of Project/References
8,400	Kolar Gold Mine (Deccan Pl)	India	Proton decay,Monopole, μ	Phys. Lett. 115B,319 ('82); 21st ICRC*(1990), HE4.3-8, p.310
5,000	Mont Blanc(Alps)	Italy	Proton decay, μ	Phys. Lett. 133B,454 ('83); Nuovo Cimento 7C/6, 573(1984)
4,700	Pacific Ocean near Hawaii	USA	μ , ν	"DUMAND" Proc. 21st ICRC(1990), OG 10.4-1, p.357
4,400	FrejusTunnel(Alps)	France	Proton decay, μ	"FREJUS", 19th ICRC(1985), HE 6.2-2, p.257
4,400	Homestake Mine(S. Dakotas)	USA	Solar ν , (Cl-37), 2 β	Phys.Rev.20,1205('68)
4,000	Gran Sasso(Abruzzo)	Italy	Solar ν , (Ge-71,Tl-205)	Science, 191,264('76); Phys.Rev.Lett.,37,259('76)
3,500	Baksen(Caucasus)	USSR	Solar ν (Cl-37)	Nucl. Instrum. Meth., A27,254('88)
1,500	do		Radioactivity Meas.	Proc. Intern. Conf., High Tatras, 6-10 Oct. 1975, Bratislava (1977)
850	do		μ	21st ICRC(1990), HE4.5-3, p.360
3,000	Gotthard-StraßenTunnel	Swiss	Radioactivity Meas.	Proc. Symp., Berlin (West), 6-10 Apr. 198, IAEA, Vienna (1981)
2,700	Kamioka Mine (Gifu Pref.)	Japan	Proton decay, μ , 2 β	"KAMIOKANDE"
1,800	Soudan Mine(Minnesota)	USA	Proton decay, 2 β , $\bar{\nu}$	21st ICRC(1990), HE4.4-2, p.327
1,570	Cleveland Mine(Ohio)	USA	Proton decay, μ	Phys.Rev.Lett.,51,22('85)
600	Miboro (Gifu Pref.)	Japan	Radioactivity Meas.	LLRL-AR-8, p.6
360	Ogoya (Ishikawa Pref.)	Japan	Radioactivity Meas.	Future Project of LLRL, Kanazawa Univ
160	do		Survey	This work
300	Ooya (Tochigi Pref.)	Japan	μ	"COSMUD", Nucl.Instrum.Meth., A290,565(1990)
180	Nokogiriyama (Chiba Pref.)	Japan	Radioactivity, Fusion	Nucl.Instrum.Meth., 56,319('67); ibid, 150,195(1978)
70	Bern	Swiss	Radioactivity Meas.	Proc. Symp., Berlin (West), 6-10 Apr. 198, IAEA, Vienna (1981)
40	Houston	USA	Radioactivity Meas.	Geochim.Cosmochim. Acta, Suppl. 1, vol.2, 1407 (1970)

* : International Cosmic Ray Conference

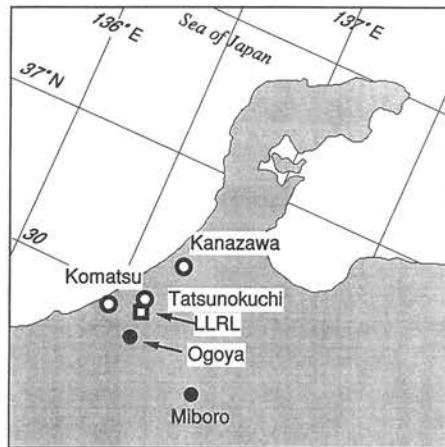


Fig. 1 Location of Ogoya, Miboro and LLRL.

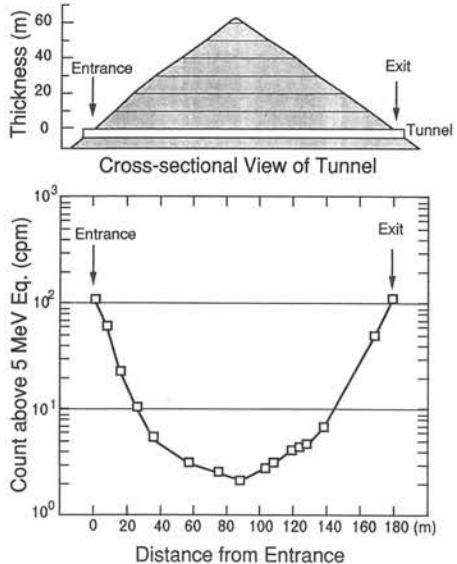


Fig. 2 Attenuation of cosmic-ray components in the 60m depth tunnnel of Ogoya. Count rate of >5MeV components measured by $7.6\text{cm}\phi \times 7.6\text{cm}$ NaI (Tl) detector.

航空機利用による宇宙線被曝国民線量の評価

Estimation of Population Dose due to Cosmic-Rays by Air Flight

運輸省、法務省統計の統計データによれば、国内線の年間利用客は1990年には6,000万人を超え、国際線による出国者は1,000万人を突破したという。利用客が年々増加しつつあるなかで航空機利用による宇宙線被曝の評価が、国民線量の観点から望まれている。そこで最近のデータを基に線量評価を試みた。

各路線の運航距離（運輸省へ申請されたもの）と年間乗客数、国別出入国者数は運輸省と法務省の統計データから、飛行高度、時間および運航乗務員数等は各航空会社から、宇宙線強度の高度依存性は原子力研究所の森内茂氏から入手した。データの整合性をはかるため、線量の計算は1988年の統計データをもとに行った。

計算を効率良く行うため、上昇下降時間、巡航高度、飛行時間、宇宙線被曝線量を飛行距離の関数として近似し、各路線のフライト当たりの被曝線量を求め、これに年間乗客数を乗じて積算線量（manSv）を算出した。国際線については、飛行距離が不明なので日本交通公社の時刻表を参考し直行便または最短飛行時間を採用し、国内線と同様な手法でフライト当たりの被曝線量を求め、渡航目的国別に人数をかけて線量を算出した。国際線については第ゼロ近似ながら地磁気緯度の補正を行った。

計算結果をFig. 1-2とTable 1に示す。国内線では、搭乗者5,239万人（1988年）に対して年間線量として167manSv、一飛行当たり $3.2 \mu\text{Sv}$ を得た。Fig. 1からわかるように路線別では東京一千歳、東京一福岡、大阪～千歳の主要3路線で全被曝線量の36%を占めている。乗務員／乗客比率を1/20とすれば、乗務員の職業被曝は8 manSvとなる。国際線では、年間の入出旅客数を出国数550万人の2倍の1,100万人として、年間線量385manSv、一飛行あたりの平均線量 $35 \mu\text{Sv}$ がえられる。また国際線運航乗務員数を旅客の1/15と仮定すれば、乗務員の職業被曝は25manSv/yをえる。国際線に関しては、第一目的国以外での飛行機利用や在外日本人の飛行機利用も含めこの値の1.5倍程度と推定される。以上1988年についてはTable 1に示すように、一般乗客の被曝は740manSv/y($=170+380 \times 1.5$)、乗務員の職業被曝は33manSv=(8+25)となり、国民線量は770manSvと推定した。この値は国民一人当たり換算で $6.2 \mu\text{Sv}$ に相当し、自然放射線による年間被曝線量 $1,600 \mu\text{Sv}$ の約0.4%に相当する。

なお全線量に占める中性子の割合は35-40%である。これらの計算には飛行機の機体による遮蔽効果は考慮していない。

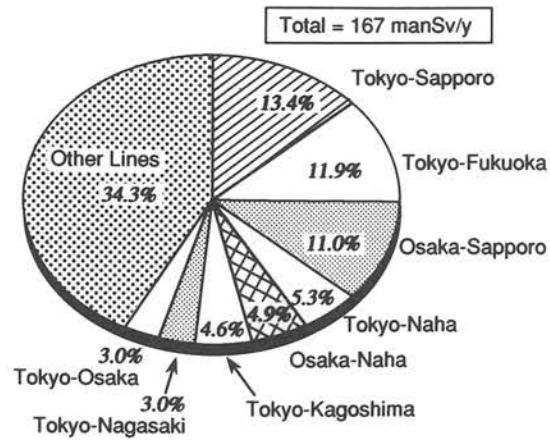


Fig. 1 Dose equivalent due to cosmic-ray by air flight. Domestic flight.

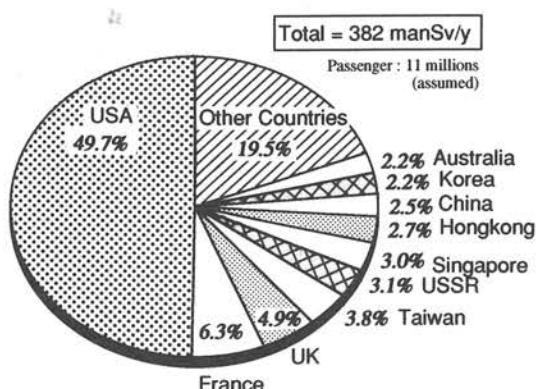


Fig. 2 Dose equivalent due to cosmic-ray by air flight. Intercontinental flight.

Table 1 Annual dose equivalent due to air flight.
Estimated by 1988 statistics.

	Domestic (manSv)	International (manSv)	Total (manSv)
Passenger	167.3	572.7*	740.0
Air crew	8.4	25.5	33.9
Total	175.7	598.2	773.9

* multiplied by 1.5.

Pu 同位体からの LX 線の放出率の測定

Measurment of Emission Probability of LX-Rays from Pu Isotopes

Pu 同位体から放出される γ 線および X 線放出率の精度は核データとしては十分とはいえない。本研究では γ 線の標準線源として比較的精度よく測定されている ^{241}Am を標準として、Pu 同位体からの LX 線放出率の測定を行った。

[線 源]

日本原子力研究所化学部で白金板上に電着して作成した ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu の濃縮同位体及び ^{241}Am 線源を $16\text{mm}\phi \times 10\text{mm}$ の Ge-LEPS で測定した。用いた ^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu 線源の同位体組成を Table 1. に示す。 ^{238}Pu と ^{240}Pu は放射能的には比較的純度が高いが、 ^{239}Pu では ^{240}Pu が 11% 程度交じっている。これらの線源の絶対強度は α 線および γ 線測定によって精密に測定しており、 ^{241}Pu の壊変によって生成した ^{241}Am を少量含んでいる。

[スペクトル処理]

測定によって得た Pu 同位体の γ 線および LX 線スペクトルには不純物としての Pu 同位体の寄与があるので、各同位体の正味のスペクトルを得るために次の操作を行なった。

- (1) 得た 4 つのスペクトル (^{238}Pu , ^{239}Pu , ^{240}Pu , 及び ^{241}Am) は、極くわずかではあるがゲイン変動およびチャネルシフトが見られるため、どのスペクトルにも存在する ^{241}Am の 59.54 keV の γ 線ピークを基準にとり、ピーク位置が正確に一致するように補正した。
- (2) 与えられた Pu 同位体のスペクトルから他の 2 つの Pu 同位体（例えば ^{238}Pu の場合 ^{239}Pu , ^{240}Pu ）および ^{241}Am のスペクトルをそれぞれの同位体組成に応じて差し引く操作を行なった。

以上の操作により不純物を含まないと見なしうる純 Pu 同位体のスペクトルを得た。Fig. 1 に操作前後の ^{239}Pu のスペクトルの例を示す。

[Pu 同位体からの LX 線の放出率の決定]

検出器の較正是 ^{241}Am の LX 線の放出率データを用いて行なった。得た計数効率、各 Pu 同位体線源の α 放射能の絶対量、および純 Pu 同位体スペクトルの各 LX 線ピークの計数率より Pu からの LX 線の放出率を求めた。結果を Table 2 に示す。

[結果と考察]

今回得た 3 種の Pu 同位体の LX 線の放出率は、 ^{238}Pu , ^{239}Pu については LX 線の全放出率でそれぞれ 11.1 ± 0.4 (%), 4.7 ± 0.2 (%) とこれまでの文献値と比較的よく一致した値を得た。 ^{240}Pu については 10.1 ± 0.3 (%) と若干低い値となった。

今回測定に用いた線源は白金上に電着したものであり、Fig. 2 に示すように白金からの励起 X 線のピークが Pu の LX 線領域 (10–25 keV) に一部重なっているため、これによる妨害を受けている可能性がある。このようなバッキング材からの励起 X 線の影響を調べるために、 ^{241}Am 線源を用いて Al, Ti, ステンレス鋼, Ni, Cu, Ag, Ta, Pt のバッキング材を用いた場合の励起 X 線について調べたが、バッキング材からの励起 X 線による妨害はバッキング材に比較的原子番号の小さい金属を用いることによって解決できることが分かった。バッキング材にステンレス鋼などの金属を用い長時間測定をすれば、今回行った方法で十分に高い精度で γ 線および LX 線放出率を決定することが可能である。

Table 1 Isotope composition of Pu sources.

Nuclides	Pu-238		Pu-239		Pu-240	
	Atom(%)	Activity(%)	Atom(%)	Activity(%)	Atom(%)	Activity(%)
Pu-238	77.17	99.85	0.006	1.37	0.007	0.51
Pu-239	18.78	0.088	96.78	88.05	0.75	0.21
Pu-240	3.60	0.062	3.16	10.57	98.71	99.28
Pu-241	0.28	0.0005	0.05	0.002	0.29	0.003
Pu-242	0.17	0.0005	0.002	0.0002	0.24	0.004
Am-241	0.12	0.032	0.02	0.95	0.03	0.47

Table 2 Emission probability of LX-rays from Pu isotopes.

Nuclide	U-L1	U-L α	U-L η	U-L β	U-L γ	U-LX Total	
	11.62keV (%)	13.60keV (%)	15.40keV (%)	17.08keV (%)	20.46keV (%)	This Work (%)	Literature Values(%)
Pu-238	0.25(1)	3.8(1)	0.16(1)	5.5(2)	1.4(1)	11.1(4)	10.6-13.9
Pu-239	0.11(1)	1.7(1)	0.065(2)	2.3(1)	0.57(2)	4.7(2)	2.6-4.8
Pu-240	0.22(1)	3.4(1)	0.15(1)	5.0(2)	1.2(1)	10.1(3)	10.8-11.5

[本研究は東京大学原子力センターの共同利用研究として行ないデータ整理や施設内での測定には卒研生桑原潤が協力した。]

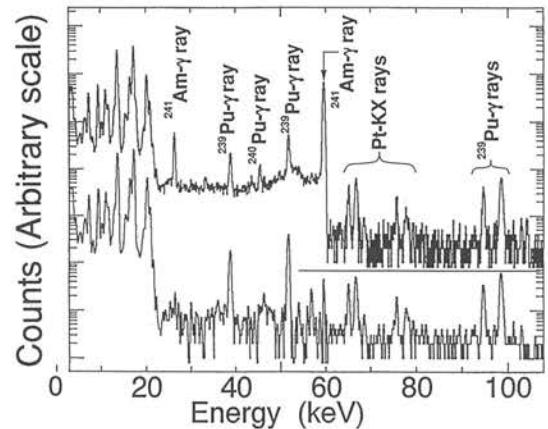


Fig. 1 X and γ -ray spectra of Pu-239 source before (above) and after (below) treating.

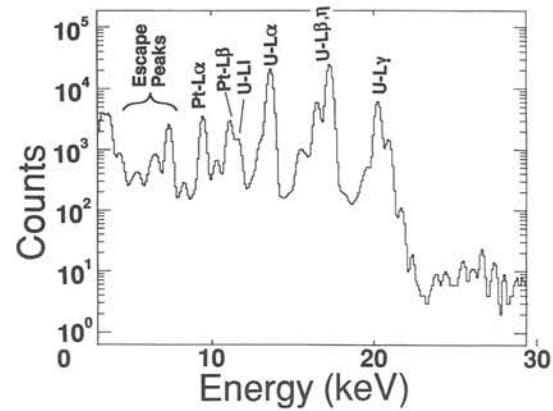


Fig. 2 X-ray spectrum of Pu-239 source after treating.

桜島から放出される ^{210}Po の年間放出量の推定

Estimation of Annual Discharge of ^{210}Po from Mt. Sakurajima

1986年より継続して研究している桜島からの ^{210}Pb と ^{210}Po の放出について、これまで蓄積してきたデータと文献に見られる報告値をもとに ^{210}Po の年間放出量を推定した。 ^{210}Po 放出量の推定には、火山ガスを直接採取して測定するのが最も有効と考えられるが、桜島では火山ガスの採取は事実上不可能なため、(1)桜島周辺の大気中の ^{210}Po と SO_2 濃度から、(2)火山灰中の ^{210}Po と SO_4^{2-} 濃度と桜島からの火山灰放出量から、(3)火山灰中の ^{210}Po 濃度と桜島からの火山灰放出量から の三方法で間接的に推定する方法を採用した。

これらの内、(1)と(2)は S と Po が共に周期律表のVI族に属していて化学的挙動に類似性があり化学形によって Po/S 比が大きくは変化しないとの大前提にもとづいている。

[大気浮遊塵中の $^{210}\text{Po}/\text{SO}_2$ 比から]

亜硫酸ガスの定点観測地点の黒神、有村（以上桜島内）及び鹿児島市役所、谷山の4地点（Fig. 1）で SO_2 自動測定器に使用されている粉塵除去用フィルターを試料として ^{210}Po 含有量を測定し、運転時の SO_2 濃度の報告値との比を使って ^{210}Po 放出量を推定する。Fig. 2 に示すように、定点観測地点の SO_2 と ^{210}Po 濃度は2桁にわたって変化している。 SO_2 の平均濃度は0.02–0.04 ppm であるが、噴火口（南岳）の約3 km 南に位置する有村では高い値が多く観測されている。 ^{210}Po 濃度は LLRL-AR-13 (p. 5) で報告したとおり変動幅が大きいので平均濃度を用いることとし、ラドン由来の ^{210}Po は非火山地域（辰口）で観測した $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比を用いて差し引いて推定した。

フィルターから得た桜島周辺の ^{210}Pb 濃度 0.58 mBq/m³

フィルターから得た桜島周辺の ^{210}Po 濃度 0.20 mBq/m³

辰口での $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比 0.05 Bq/Bq

以上より火山由来の ^{210}Po は 0.18 mBq/m³

SO_2 平均濃度 0.039 ppm

SO_2 放出量 110–350 t/d

^{210}Po 年間放出量 64–1,900 × 10¹² Bq/y

(1,700–51,000 Ci/y)

気体状の SO_2 は大気浮遊塵や火山灰等に付着して運ばれる ^{210}Po よりも遠方まで広がると考えられ、この推定法では過大評価となる。

[火山灰中の ^{210}Po 濃度と SO_4^{2-} 比から]

桜島内及び鹿児島市街地で採取した20以上の新鮮な火山灰試料の ^{210}Po 濃度を測定したところ昨年の報告で述べたように ^{210}Po が親核種 ^{238}U との放射平衡量の約40倍も濃縮していることが分かった。火山灰中の SO_4^{2-} 濃度の測定がなされており、火山灰中の ^{210}Po と SO_4^{2-} が放出時の Po/S 比を保っていると仮定すれば次のようにして ^{210}Po の年間放出量を導くことができる。

桜島火山灰中の ^{210}Po 濃度 400 mBq/g

火山灰表面の SO_4^{2-} 濃度 0.4–4.7 mg/g

SO_2 放出量 110–3500 t/d

以上の値より年間放出量 37–430 × 10¹² Bq/y

(1,000–11,000 Ci/y)

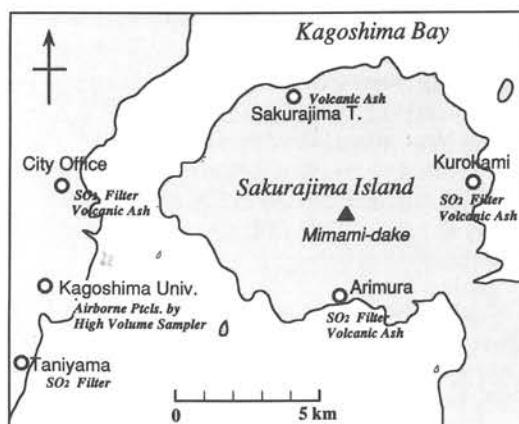


Fig. 1 Sampling Locations in and around Mt. Sakurajima

この方法では火山灰に付着した SO_2 が SO_4^{2-} に酸化された後もそのまま残存しているものと仮定しているが、火山灰には SO_2 よりも ^{210}Po の方が付着し易いと考えられるのでこれも過大評価となるおそれがあり、今後の検討が必要である。

[桜島火山灰中の ^{210}Po 濃度と火山灰放出量から]

最初ガス状で放出された ^{210}Po の全てが冷却の途中で火山灰表面に付着し、火山灰と共に地表に降下するを考える最も単純な場合、

桜島火山灰中の ^{210}Po 濃度	400 mBq/g
火山灰の年間放出量	$5 - 10 \times 10^6 \text{ t/y}$
^{210}Po 年間放出量	$2 - 4 \times 10^{12} \text{ Bq/y}$ (70–140 Ci/y)

この方法では桜島から放出された ^{210}Po がすべて火山灰に付着して降灰量の分布と一致すると考えるので火山灰よりも遠方まで分布する可能性のある ^{210}Po の見積もりは過小評価となる。

以上3つの方法で推定した桜島からの ^{210}Po の年間放出量を Lambert ら或は Kuroda らによって行われた他の火山に対する推定値と共に Fig. 3 に示す。3つの推定結果から、桜島からの ^{210}Po の年間放出量は $10 - 100 \times 10^{12} \text{ Bq/y}$ ($300 - 3,000 \text{ Ci/y}$) と考えられる。この値は、Lambert らが推定している世界の火山から放出される ^{210}Po の $1/20 - 1/100$ に相当し、イタリアの Etna 山と同じオーダーである。

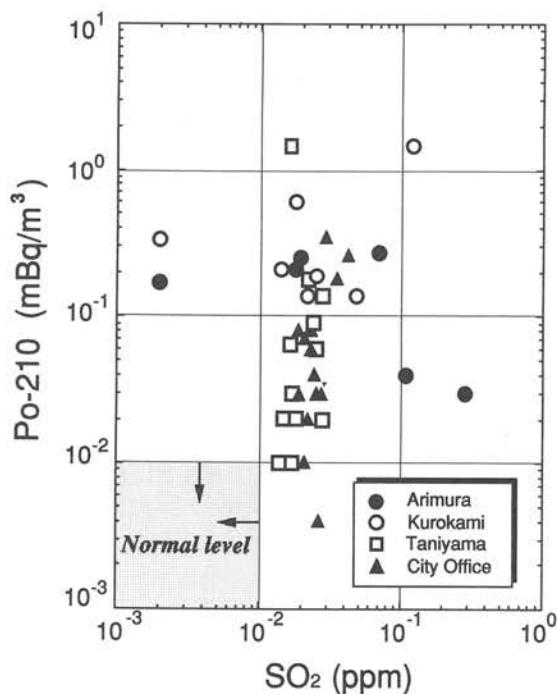


Fig. 2 Correlation of SO_2 and Po-210 in the surface air of Kagoshima

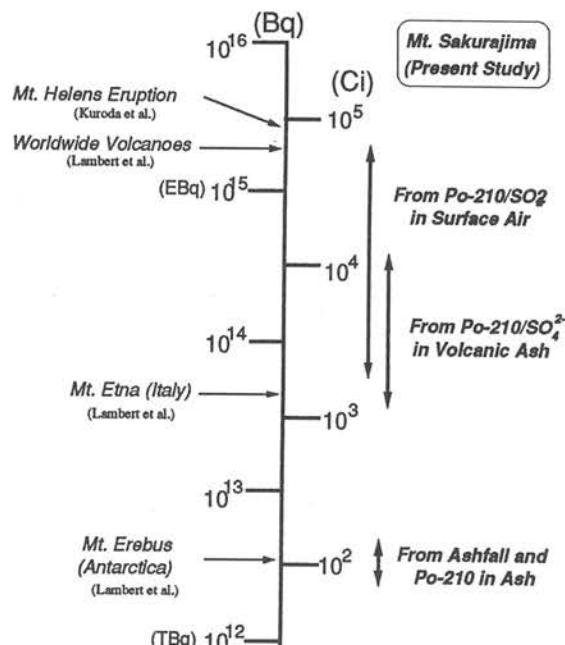


Fig. 3 Estimation of volcanic release of Po-210 from Mt. Sakurajima

[本研究は主として大学院生内田賢吾が行った。試料の採取には鹿児島大学理学部の坂本隼雄助教授及び鹿児島市役所に協力をいただいた。]

火山ガスおよび昇華硫黄中の ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度

^{210}Pb and ^{210}Po Concentrations in Volcanic Gas and Sulfur Sublimate from Active Volcanoes

桜島から放出される ^{210}Pb と ^{210}Po については大気浮遊塵や火山灰等の試料の分析による間接的な推定を行ってきたが、今回は噴気孔からの火山ガス（噴気凝縮水）および噴気孔の側面に析出している昇華硫黄を採取して、より直接的な方法でこれらの放出を確認し噴気孔の温度と ^{210}Po 濃度の関係を明らかにする試みを行った。対象とした火山は、Fig. 1に示す北海道の有珠山、樽前山、十勝岳および雌阿寒岳、大分県の久住山、鹿児島県の霧島山（えびの）の6火山である。Table 1に対象とした火山の噴火年代と採取試料を示す。

[測定方法]

噴気蒸気凝縮水は50–100mL、硫黄昇華物は約10 gを測定試料として用い、化学収率測定のトレーサー ^{210}Po を加えた後、酸で溶解し、塩酸酸性下で銀板上にPoを析出させ α 線測定により ^{210}Po を定量した。親核種の ^{210}Pb の測定は、保存した電着残液中に親の ^{210}Pb から成長してきた ^{210}Po を測定することにより間接定量した。また噴気凝縮水中の化学成分として SO_4^{2-} と Cl^- は通常の化学分析によって定量した。

[測定結果]

噴気孔の温度と噴気凝縮水の $^{210}\text{Po}/\text{SO}_4^{2-}$ 比と昇華硫黄中の $^{210}\text{Po}/\text{S}$ 比の相関をFig. 2に示す。

噴気凝縮水では各火山の個性を考慮する必要があるものの、噴気温度が最も高い有珠山（550°C）の $^{210}\text{Po}/\text{SO}_4^{2-}$ 比が他の火山より2桁高く $9.6 \times 10^6 \text{Bq/kg}$ 、最も低い久住山（90°C）では 10^4Bq/kg であり、噴気温度と $^{210}\text{Po}/\text{SO}_4^{2-}$ 比には正の相関があることが分かる。この図に桜島火山灰中の $^{210}\text{Po}/\text{SO}_4^{2-}$ を当てはめると、噴気孔の温度換算で450°C前後と推定される。

一方、硫黄昇華物では噴気温度の高い有珠山では $^{210}\text{Po}/\text{S}$ 比が最高0.7Bq/g平均値で0.18Bq/gあるが、噴気温度が100°C前後のえびの高原と久住山の硫黄鉱山試料では約2桁低濃度しかなかった。硫黄昇華物は噴気孔の壁を採取したが、析出速度や分析した試料の平均年齢（月のオーダーか？）が不明なので半減期の短い ^{210}Po の値は析出時の値をそのまま表してはいないが、少なくとも温度とは正の相関があるということができる。昇華硫黄の $^{210}\text{Po}/\text{S}$ 比は噴気凝縮水のそれと比べて約4桁低いことからPoとSでは火山ガスとして放出されたさいの化学形の違い（硫黄では H_2S と SO_2 の混合物として）が析出時に分別を起こす原因になっている可能性がある。



Fig. 1 Sampling locations.

Table 1 Volcanoes studied in this work.

Location	Volcanoes	Eruption	Sample	Measured Nuclides
Hokkaido	Mt. Usu	1977–78	Volcanic gas*, Sublimate	Pb-210,Po-210
Hokkaido	Mt. Tarumae	1978–81	Volcanic gas*, Sublimate	Pb-210,Po-210
Hokkaido	Mt. Tokachi	1962,85,88–89	Volcanic gas*, Sublimate	Pb-210,Po-210
Hokkaido	Mt. Me’akan	1988	Volcanic gas*	Pb-210,Po-210
Oita	Mt. Kujyu		Volcanic gas*, Sublimate	Pb-210,Po-210
Kagoshima	Mt. Kirishima	1959	Sublimate	Po-210
Kagoshima	Mt. Sakurajima	1914, 1946, since 1955	Volcanic ash, Lava, Airborne particles	U & Th-series,K Equilibrium state

*Condensate

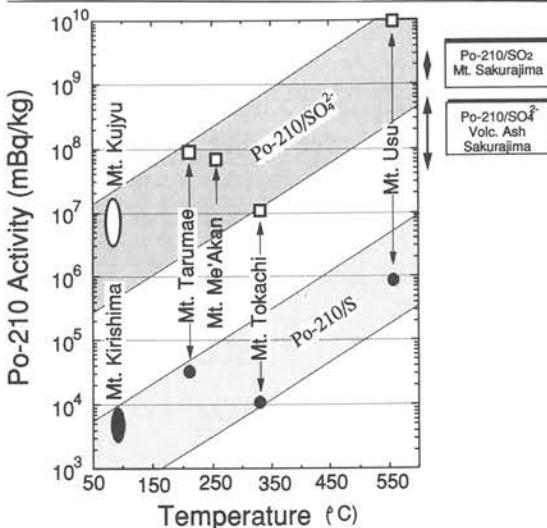


Fig. 2 Correlation between temperature and Po-210/S in volcanic gas and sulfur sublimates of Hokkaido volcano.

[本研究は前ページの研究と共に主として大学院生内田賢吾が行った。北海道の調査では東京工大草津白根火山観測所の平林順一助教授と室蘭工大の我孫子勤助手、久住の調査では京大地球物理学研究施設の由佐悠紀教授、えびの試料は鹿児島大坂本隼雄助教授の協力を戴いた。前述のp.6~7とともに西太平洋地球物理学国際シンポジウム（90年8月金沢）、放射化学討論会（10月東京）、先端科学国際シンポジウム（91年3月水戸等）で発表した。]

中国の表層土壤中の^{239,240}Puと²⁴¹Am

^{239,240}Pu and ²⁴¹Am in Surface Soils of China

陸上生態系においては、土壤が種々の放射性核種のリザーバーとして重視されている。これまでに、全国各地の水田土壤 [LLRL-AR-7, p. 9], 特定地域のフォールアウト高蓄積土壤 [LLRL-AR-8, p. 5], および年代別の土壤 [LLRL-AR-7, p. 9] などについてPu同位体や²⁴¹Amを測定し、地表に降下沈積したこれら核種の空間的、時間的変動を検討してきた。

今回は、中国のいくつかの地域からの表層土壤入手する機会を得たので、本邦のデータとの比較さらに春先に飛来する黄砂との関連で興味深いと考え、これら試料中の^{239,240}Puと²⁴¹Amを¹³⁷Csおよび天然放射性核種と共に測定した。なお、中国では、尿、空気、食品などの^{239,240}Puが測定されつつあるが、土壤については²⁴¹Amも含めてデータがない。中国での表層土壤の採取地域をFig. 1に示す。4地域の6地点で0~5cmと5~20cm深さの土壤を採取[1990年]し、風乾後、200メッシュふるい分け・混合したものを分析試料とした。

非破壊γ線スペクトロメトリーにより¹³⁷Csと天然放射性核種を、その後試料50g前後を用い化学分離・精製、α線スペクトロメトリーにより^{239,240}Puと²⁴¹Amをそれぞれ定量した。天然放射性核種の測定結果をTable 1に、^{239,240}Puと²⁴¹Amおよび¹³⁷Csの結果をTable 2に示す。

まず、天然放射性核種については、²³⁸U、²²⁶Ra、²²⁸Ra、⁴⁰K濃度ともに採取地点間での大きな差ではなく、これまでに報告されている中国全土の平均値(²³⁸U: 40Bq/kg, ²²⁶Ra: 39Bq/kg, ⁴⁰K: 570Bq/kg)に近い値が見い出された。一方、フォールアウト^{239,240}Pu、²⁴¹Amおよび¹³⁷Csについては、蓄積量でそれぞれ平均24±13(10~36), 10±5(5~16), 1200±700(400~2000)MBq/km²であった。^{239,240}Puレベルは、30°~40°の北半球の中緯度地帯での平均蓄積量66±22MBq/km²、東京での降下量44MBq/km²、さらに本邦の日本海側での値100~110MBq/km²と比べて数分の1である。これは、濟南、北京、太原での比較的少ない降水量(それぞれ、688, 645, 466mm/y)にも起因しているもの

と考えられるが、それ以外に、今回測定した大部分の試料で深部(5~20cm)試料で高い濃度が見い出されたことから、これら核種が、より深い所まで移行しているためではないかと考えている。いずれにしても、これら核種の深度分布を知る必要がある。

²⁴¹Am/^{239,240}Puおよび^{239,240}Pu/¹³⁷Cs比は、1987年に採取した本邦の水田土壤と畑土(0~約15cm深さ)に対しての平均値0.37±0.07および0.021±0.007と大差ない。

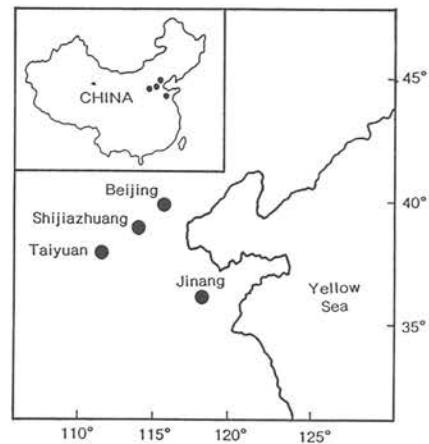


Fig. 1 Sampling locations of surface soils in China.

Table 1 Contents of U-and Th-Series nuclides and K-40 in surface soils collected from four areas in China in 1990.

Location	Depth (cm)	U-238*		Rn-226**	Ra-228***	K-40
		(Bq/kg)	(ppm)	(Bq/kg)	(Bq/kg)	(Bq/kg)
Beijing-1	0-5	39 ± 3	3.2 ± 0.3	30 ± 4	48 ± 5	634 ± 46
	5-20	43 ± 3	3.5 ± 0.3	29 ± 4	45 ± 5	645 ± 47
Beijing-2	0-5	32 ± 3	2.6 ± 0.2	27 ± 4	35 ± 4	666 ± 48
	5-20	28 ± 2	2.3 ± 0.2	28 ± 4	34 ± 4	684 ± 50
Taiyuan	0-5	38 ± 3	3.1 ± 0.2	35 ± 5	47 ± 5	596 ± 44
	5-20	36 ± 2	3.1 ± 0.2	32 ± 5	47 ± 5	577 ± 43
Shijiazhuang	0-5	38 ± 2	3.0 ± 0.2	35 ± 5	51 ± 5	611 ± 45
	5-20	37 ± 3	3.0 ± 0.2	34 ± 4	47 ± 5	616 ± 45
Jinan-1	0-5	35 ± 2	2.8 ± 0.2	38 ± 5	49 ± 5	685 ± 50
	5-20	35 ± 2	2.9 ± 0.2	34 ± 5	48 ± 5	600 ± 44
Jinan-2	0-5	38 ± 3	3.1 ± 0.2	30 ± 4	41 ± 5	552 ± 41
	5-20	33 ± 3	2.7 ± 0.2	27 ± 4	43 ± 5	555 ± 41
Average ± S.D.		36 ± 4	2.9 ± 0.3	32 ± 4	45 ± 5	618 ± 46

* Measured by Th-234. ** Measured by Pb-214. *** Measured by Ac-228.
Errors cited are the propagated counting error of one sigma.

Table 2 Contents of Pu-239, 240, Am-241 and Cs-137 in surface soils collected from four areas in China and their activity ratios.

Location	Depth (cm)	Concentration (Bq/kg)			Activity ratio	
		Pu-239,240	Am-241	Cs-137	Am-241	Pu-239,240
Beijing-1	0-5	0.149 ± 0.015 [7.4]*	0.052 ± 0.005 [2.6]*	9.48 ± 0.53 [470]*	0.35 ± 0.05	0.016 ± 0.002
	5-20	0.203 ± 0.023 [28.3]	0.073 ± 0.009 [10.0]	11.1 ± 0.61 [1540]	0.36 ± 0.06	0.018 ± 0.002
	Total	[35.7]		[12.6]	[2010]	0.35
Beijing-2	0-5	0.066 ± 0.008 [3.3]	0.032 ± 0.005 [1.6]	3.13 ± 0.37 [160]	0.48 ± 0.10	0.021 ± 0.004
	5-20	0.049 ± 0.006 [6.8]	0.023 ± 0.004 [3.2]	3.29 ± 0.42 [460]	0.47 ± 0.10	0.015 ± 0.003
	Total	[10.1]		[4.8]	[620]	0.48
Taiyuan	0-5	0.040 ± 0.007 [2.0]	0.022 ± 0.003 [1.1]	1.88 ± 0.32 [90]	0.55 ± 0.12	0.021 ± 0.005
	5-20	0.061 ± 0.006 [8.5]	0.025 ± 0.003 [3.4]	2.21 ± 0.36 [310]	0.41 ± 0.06	0.028 ± 0.005
	Total	[10.5]		[4.5]	[400]	0.43
Shijiazhuang	0-5	0.075 ± 0.008 [3.7]	0.034 ± 0.003 [1.6]	3.01 ± 0.41 [150]	0.45 ± 0.06	0.025 ± 0.004
	5-20	0.074 ± 0.018 [11.1]	0.038 ± 0.005 [5.7]	3.51 ± 0.39 [520]	0.51 ± 0.14	0.021 ± 0.006
	Total	[14.8]		[7.3]	[670]	0.49
Jinan-1	0-5	0.174 ± 0.015 [7.7]	0.075 ± 0.006 [3.3]	9.07 ± 0.67 [400]	0.43 ± 0.05	0.019 ± 0.002
	5-20	0.196 ± 0.011 [26.2]	0.073 ± 0.007 [9.7]	9.88 ± 0.64 [1320]	0.37 ± 0.04	0.020 ± 0.002
	Total	[33.9]		[13.0]	[1720]	0.38
Jinan-2	0-5	0.119 ± 0.021 [5.3]	0.083 ± 0.007 [3.6]	9.01 ± 0.61 [400]	0.70 ± 0.14	0.013 ± 0.002
	5-20	0.234 ± 0.015 [31.1]	0.094 ± 0.009 [12.6]	11.8 ± 0.62 [1570]	0.40 ± 0.05	0.020 ± 0.002
	Total	[36.4]		[16.1]	[1570]	0.44

* Inventory (MBq/km²).
Errors cited are the propagated counting error of one sigma.

[本研究は、中国核工業部輻射防護研究所からのIAEA研修員・沙連茂氏が行った。]

日本人の²¹⁰Pb, ²¹⁰Po 経口摂取量の評価

Daily Dietary Intake of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in Japanese

地球上で生活している我々人間は、宇宙線や大地からの自然放射線で外部被ばくを、また体内に取り込んだ放射性核種からの放射線で内部被ばくを受けている。一方、最近は、医療に、産業に、さらに研究に放射性物質や放射線の利用が進み、放射線による被ばくが増加しつつある。このような状況の中で、数年前から日本人がどのような放射線をどの程度浴びていて、それが日本人にどのようなリスクを与える可能性があるかを評価することが重要な研究課題となっている。そこで、今回は、自然放射線による内部被ばく線量を推定するための基礎データとして、本邦においてデータが極めて少ない日常食からの²¹⁰Pbと²¹⁰Poの摂取量評価を試みた。

日常食は、少數例の陰膳方式あるいは短期間で収集したマーケットバスケット方式による試料などから、摂取量を推定することは困難であると考え、長期間にわたって比較的容易に入手可能な大学病院の普通給食を用いた。1989年1月から1990年1月まで月2回の割合で朝、昼、夕食を合わせた1日分を延べ25日分収集し、凍結乾燥後、粉碎・混合した。分析には、この乾燥混合試料約25 gを秤取し、前報[LLRL-AR-13, p. 9] の方法に準じて²¹⁰Pb, ²¹⁰Poを定量した。

今回の食事試料についての食品ごとの摂取状況を知るために、国民栄養調査と同様な分類で整理した結果(25試料の平均)をFig. 1に示すが、全国平均と比べて大差ないことがわかる。²¹⁰Pbと²¹⁰Poの分析結果から求めた1人1日あたりの摂取量をFig. 2に示す。この図からわかるように、²¹⁰Po摂取量は、食事ごとに大きく変動し、最高の約7 Bqから最低の約0.1 Bqの範囲を示し、約50倍の開きがあった。これは、ある種の海産物(ホタテ貝)が献立にもり込まれているときに高値を示していることから、高²¹⁰Po蓄積の海産物の影響によるものと考えられる。一方²¹⁰Pbは食事試料中の含有量が²¹⁰Poほど大きな変動を示さず、1人1日あたり0.1~0.2 Bqであった。Table 1に今回の結果を、すでに報告されている本邦および諸外国のデータと比較して示すが、代表的な値を推定するためには、今後更に分析、検討を進める必要があると考えている。

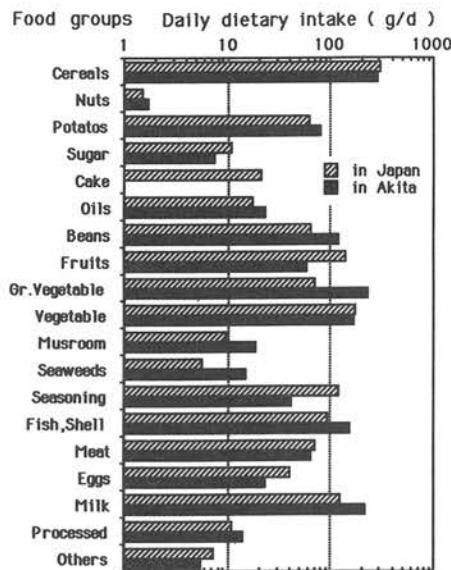


Fig. 1 Comparison of daily dietary intake from various classes of foodstuff.

Table 1 Comparison of daily dietary intake of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po from various Countries.

Country (City or region) Normal Cases	Daily dietary intake (mBq/d)		Reference
	Pb-210	Po-210	
Bulgaria		60-78	Keslev(1975)
France	50	110	Servant(1981)
Italy	110	110	Clement(1980)
West Germany	170	170	Gloebel(1966)
UK	82	78	Smith-Briggs(1986)
USSR(Rostov-on-Don)	230	150 140	Ladinskaya(1973) Yemolayeva(1969)
USA(Various cities)	52	67	NCRP No.4.5(1975)
Argentina(Buenos Aires)		48	UNSEAR(1972)
India(Bombay)		57	Khandekar(1977)
Japan(Entire country) (Districts, 2 cities)	630 520-820 220	Takata(1968) Takata(1968) Kameami(1981)	
(Akita) (U mine, nonexposed)	120*(30-370)	430*(140-7420)	This Work(1990)
		480	Okabayashi(1975)
Special cases (Arctic dwellers)			
Canada		3700	Hill(1967)
Finland	320	2550	Kaunonen(1969)
Sweden	133-333	2660-6660	Persson(1972)
USSR(Murmanak) (Yamalo-Nenets)	1630	2920 12730	Parfenov(1974) Parfenov(1974)
Araska	370	3700	Holzman(1966, 1968)

* Geometric mean

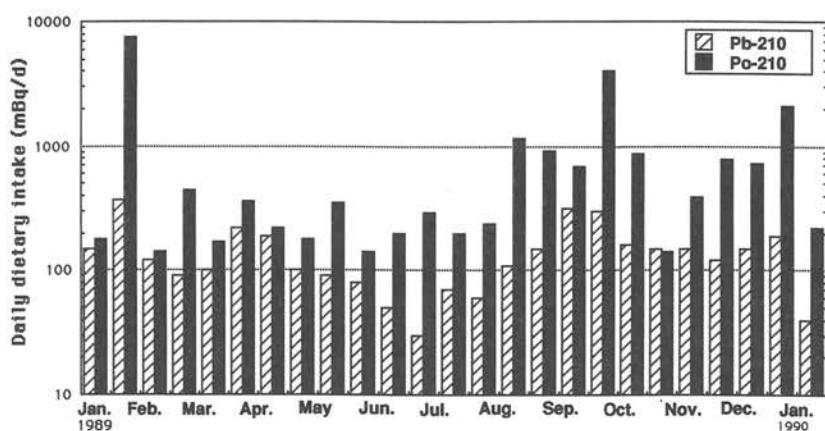


Fig. 2 Variation of daily ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po intake from diets collected at the Hospital of Akita Univ. during the period Jan. 1989 to Jan. 1990.

[本研究は、秋田大学・阿部 享氏、滝澤行雄教授との共同研究として行い、第33回日本放射線影響学会(於 仙台)で発表した。]

海産生物中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po濃度

²¹⁰Pb and ²¹⁰Po Concentrations in Marine Organisms

日本人の²¹⁰Pbと²¹⁰Poの摂取量を推定する目的で、日常食の分析を行ってきた〔前ページ〕。その結果、²¹⁰Pb摂取量は通常の摂取をしている諸外国の値と大差ないが、²¹⁰Po摂取量は食事ごとに大きく変動し、全体として諸外国の値よりも高い傾向にあり、特にある種の海産物が献立にもり込まれている時には、トナカイやカリブーを多量に摂取する地域の摂取レベルまでに上昇することがわかった。日本人の食品からの²¹⁰Pb(²¹⁰Po)摂取量については、海産物を多量に摂取しているため他の諸外国と比べて高いことがUNSCEARの報告(1977年)で指摘されており、今回海産物中の²¹⁰Pb、²¹⁰Po濃度の測定を企画した。

海産物試料は、大部分東北沿岸で水揚げされたものを用い、それらの可食部および一部組織別にしたもの凍結乾燥し分析試料とした。分析には、この乾燥物1~15gを用いた。

Fig. 1に、今回分析した魚海藻類の²¹⁰Pb、²¹⁰Po濃度(pCi/kg·wet)を²¹⁰Po/²¹⁰Pb比とともに示す。図からわかるように、²¹⁰Pb濃度は数~数10pCi/kg·wetで、一方²¹⁰Po濃度は²¹⁰Pbよりも一桁程度高い数10~数100pCi/kg·wetの範囲で変動し、生物種によってかなり濃度差がある。全体として、貝類や魚類(カレイ、アジ、サバ、マグロ)の²¹⁰Po濃度が高い。²¹⁰Po/²¹⁰Pb比は生物種により2桁程度の差が認められる。組織別の分析例としてホタテ貝の結果をFig. 2に示すが、中腸線で10⁴pCi/kg·wetのきわめて高い値を得た(²¹⁰Poを特異的に高濃縮する臓器として、無脊椎動物の肝臓や魚類の幽門垂がすでに知られている)。

現段階では、データ的に十分ではないが、今回測定した結果を用いて、日本人の海産物を通しての²¹⁰Pbと²¹⁰Po摂取量を試算した。Table 1に2通りの推定法で求めた結果を示す。両方法で²¹⁰Pbでは2倍、²¹⁰Poでは3倍程度の差異があるが、²¹⁰Pbについては前報[LLRL-AR-6, p. 12]での推定値約1pCi/dayに近い値を得た。一方²¹⁰Poについては、10~40pCi/dayの値が見積られたが、特に、魚類摂取による寄与が90%と大きいことを考慮して、今後、データの集積をまって、さらに検討していきたい。

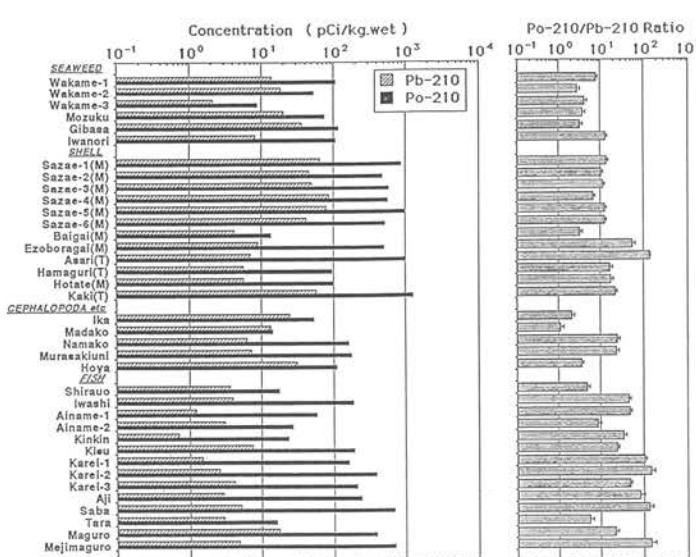


Fig. 1 Pb-210 and Po-210 concentrations in the marine organisms and their activity ratios.

[本研究は、秋田大学・阿部享氏、滝沢行雄教授との共同研究として行い、第33回日本放射線影響学会(於仙台)で発表した。]

Table 1 Estimation of daily intake of Pb-210 and Po-210 from marine foods.

Species	Production ^{*1}		Pb-210		Po-210	
	(1000 ton)	rate ^{*2} (pCi/kg.wet)	(10E8 pCi) (%)	(pCi/kg.wet) (10E8 pCi) (%)	(pCi/kg.wet) (10E8 pCi) (%)	
Fish	9949	0.6	4.4	262.7	49.4	236
Cephalopod	712	0.8	19.2	109.4	20.5	33.2
Shellfish	832	0.2	24.3	40.4	7.6	524
Crustacean	119	0.4	4.4 ^{*3}	2.1	0.4	236 ^{*3}
Seaweed	798	0.9	16.4	117.8	22.1	77.3
Total				532.4	100	15816
pCi/d/p ^{*4}					1.2	36

*1) Total of catch and culture in 1988 (from the statistical table of production of the fishing and raising industries).

*2) Rate of edible part. *3) Assumed.

*4) Total population: one hundred and twenty million

Category	Daily intake*		Pb-210		Po-210	
	(g/d/p)	(pCi/kg.wet)	(pCi/kg.wet)	(pCi/kg.wet)	(pCi/d/p)	(pCi/d/p)
Fish						
Tuna	6.3	11.3	550	0.07	3.47	
Porgy, Plaice	7.4	2.8	250	0.02	1.85	
Saurae, Sardine	11.1	3.5	210	0.04	2.33	
Salmon, Trout	3					
Others	11.7	3.2	74	0.04	0.87	
Squid, Octopus	13	19.2	33	0.25	0.43	
Shellfish	4.4	24.3	520	0.11	2.29	
Seaweed	5.6	16.4	77	0.09	0.43	
Total					0.6	11.7

*) Average daily intake in Japanese (from a nation wide food consumption survey by the Ministry of Welfare of Japan in 1985).

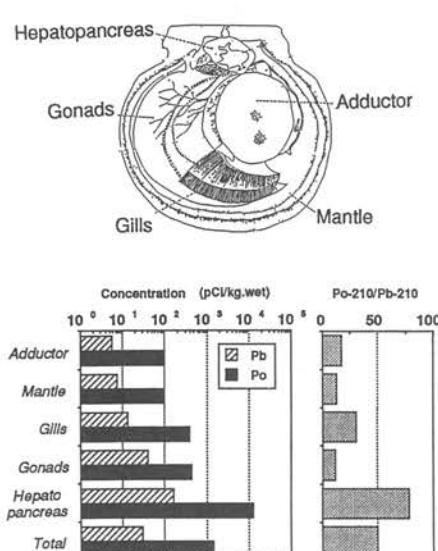


Fig. 2 Pb-210 and Po-210 concentrations in Scallop (Patinopecten (Mizuhopecten) yessoensis) and their activity ratios.

Irish 海における ^{237}Np の沿岸堆積物への沈積挙動

Sedimentary Behavior of ^{237}Np in the Irish Sea

環境中に存在する超ウラン元素 (Np, Pu, Am) の挙動の研究は、地球化学的トレーサーとしての利用面からのみならず、環境保全や人体に対する長期安全評価の面からも重視されている。一般の環境水中でIII価からVI価まで種々の酸化状態を取るPuや、III価が安定なAmについては数多くの研究が行われているが、V価が唯一安定なNpについては、環境中の濃度レベルが低いこともありその研究は極めて少なく、更に研究を進展させる必要がある。イギリスの Sellafield 核燃料再処理工場からの放射性廃液で汚染されている Irish 海は、その汚染レベルが高く、Np の挙動についての知見を得る格好のフィールドである。

本研究では、Irish 海沿岸堆積物コア試料中の ^{237}Np を Pu 同位体および ^{241}Am と共に測定し、 ^{237}Np の堆積物への沈積挙動を Pu 同位体、 ^{241}Am との比較により検討した。

[実験]

試料は、1988年7月22日に Irish 海沿岸の Esk 川河口（放出口より約10km 南の地点）より採取した深さ25cm の堆積物コア（Fig. 1）で、表層 1 cm までは 0.5 cm 毎に、それ以深は 1 cm 每に切断し風乾したものを用いた。風乾試料を粉碎・混合後、30g を用いて非破壊 γ 線スペクトロメトリーにより ^{137}Cs を定量した。その後、試料 2–20 g より Np を、試料 0.5–3 g より Pu と Am をそれぞれ化学分離・精製後、 α 線スペクトロメトリーにより ^{237}Np 、 ^{238}Pu 、 $^{239,240}\text{Pu}$ および ^{241}Am を定量した。

[結果と考察]

Irish 海の堆積物コア試料について $^{239,240}\text{Pu}$ や ^{241}Am の分布を測定した例は数多くあるが、 ^{237}Np を含めた包括的な測定は本研究が初めてである。

Fig. 2 に今回測定した ^{237}Np の深度分布を $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{241}Am および ^{137}Cs と共に、また Fig. 3 に $^{239,240}\text{Pu}$ に対する各核種の放射能比の深度分布を示す。 ^{237}Np は深さ 25 cm までの全ての試料で検出され、その濃度 (0.01–4.7 Bq/kg) は $^{239,240}\text{Pu}$ や ^{241}Am の 1/100–1/1000 であった。 ^{237}Np の深度分布は、深さ 4 cm まではほぼ一定であり、それ以深で深さとともに減少している。この分布パターンは、深さ 4–5 cm に濃度ピークを持つ $^{239,240}\text{Pu}$ や ^{241}Am の分布とは明らかに異なっていることが $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ 放射能比からも分かる。この様な ^{237}Np や $^{239,240}\text{Pu}$ の分布は、Sellafield 核燃料再処理工場からの過去の放出歴や、堆積後の統成過程に伴う両元素の挙動と密接に関係している。 $^{239,240}\text{Pu}$ の放出量は再処理工場の稼働以来 Pu- α (^{238}Pu と $^{239,240}\text{Pu}$ の総和) として測定されている。 ^{237}Np の放出量は、1977年以前は不明、1978–84年までは Pu- α の 1–3 % とほぼ一定、1985年（放出量の低減化装置の稼働開始）からは Pu- α の 6–20 % と報告されている。1977年以前の ^{237}Np の放出量が、放出毎に変動があるとしても、Pu- α との比で 1978–84年の範囲であるとの推定が許されるならば、今回得た ^{237}Np と $^{239,240}\text{Pu}$ の分布の違いは Np の優先的な下方への拡散移動で説明できる。しかし、その詳細については堆積環境の酸化還元状態も考慮して更に検討

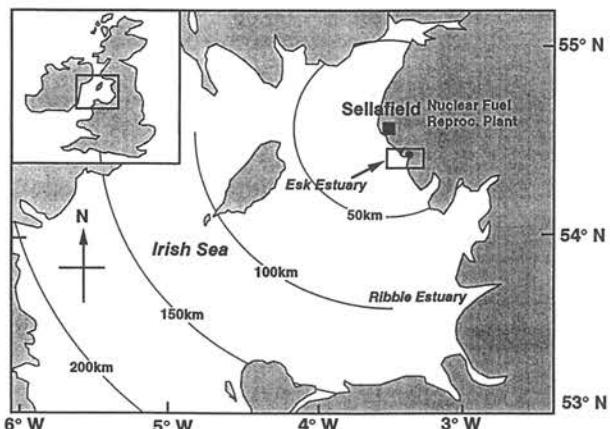


Fig. 1 Sampling location of sediment core from the Esk Estuary in the Irish Sea.

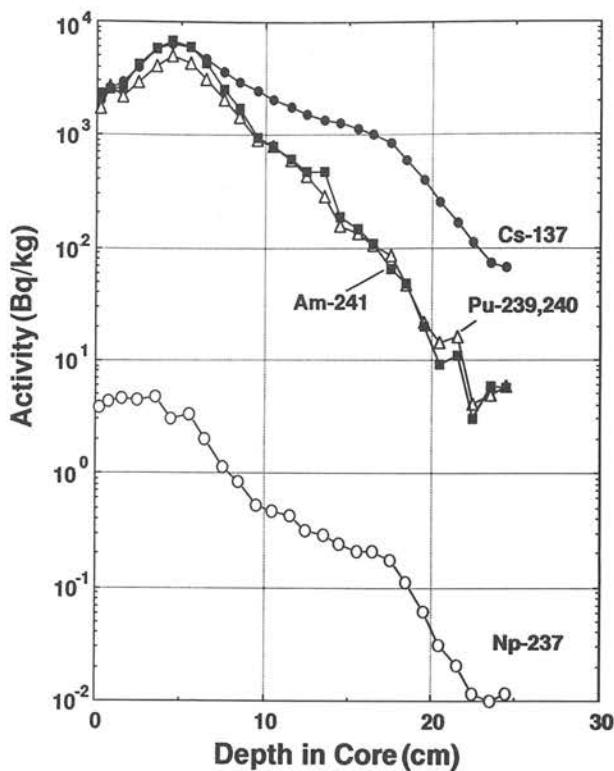


Fig. 2 Depth profiles of ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs in sediment core from the ESK Estuary.

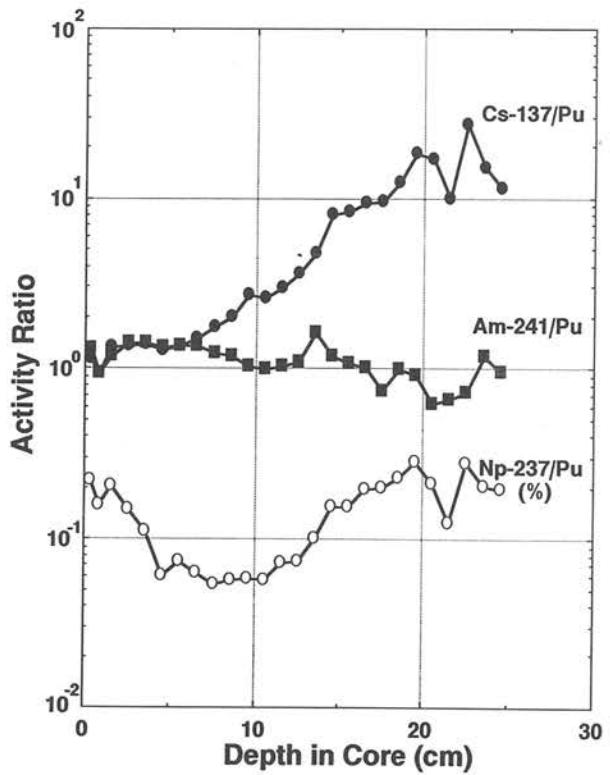


Fig. 3 Depth profiles of $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{137}\text{Cs}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios in sediment core from the ESK Estuary.

する必要がある。一方、深度分布から求めた蓄積量と Sellafield 核燃料再処理工場からの総放出量(1977年以前の ^{237}Np 放出量を $\text{Pu-}\alpha$ の 1 % と仮定)との比較 (Fig. 4) から、 ^{241}Am は $\text{Pu-}\alpha$ とほとんど同じ割合で、 ^{237}Np は $\text{Pu-}\alpha$ の 1/15程度しか堆積物に移行していないと考えられる。

	$\text{Pu-}\alpha$	Am-241	Np-237	Cs-137
Inventory (Bq/cm^2)	44.4	48.7	0.036	66.6
Discharge (1960-1988) (TBq)	712	860	* ₁ * ₂ * ₃	9 30800

*₁ Decay corrected Am-241 + Ingrowth Am-241 from Pu-241

*₂ Assume annual discharge of Np-237 before 1977 to be 1 % of $\text{Pu-}\alpha$

*₃ Decay corrected

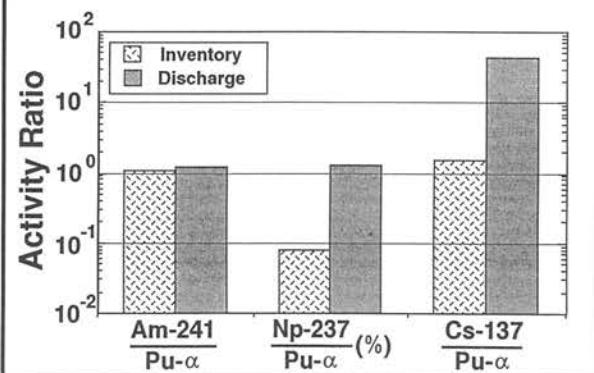


Fig. 4 Comparison of inventories in sediment core and discharges from BNFL Sellafield.

[本研究は、主として卒研生・永井英雄が行い、成果の一部は第34回放射化討論会（於 東京）で発表した。]

Irish 海沿岸堆積物中の ^{99}Tc

^{99}Tc in Coastal Sediments of the Irish Sea

イギリスとアイルランドの間に位置する Irish 海は、Sellafield 核燃料再処理施設から放出された放射性核種で高度に汚染されている。例えば、この海域の ^{137}Cs や超ウラン元素諸核種の濃度は放出口に近いところでは一般環境の約1000倍高いことが知られており（ LLRL-AR-14, p. 10-11 ），環境放射能の観点から特異な地域として以前から多くの測定が行われている。本研究では、一般環境中の ^{99}Tc の測定を最終目標に、昨年報告した方法（ LLRL-AR-14, p. 5-6 ）を Irish 海沿岸堆積物に適用したので報告する。

^{99}Tc の測定に用いた試料の採取地点を Fig. 1 に示す。これらの試料は昨年報告した ^{137}Cs , ^{237}Np , Pu 同位体, ^{241}Am 及び Cm 同位体の測定試料と同一である。測定した試料のうち18個で ^{99}Tc を検出することができた。 $^{239,240}\text{Pu}$ 濃度を横軸にとり ^{99}Tc , ^{137}Cs , ^{237}Np および ^{241}Am 濃度を縦軸にとって Fig. 2 に示す。図から分かるように ^{99}Tc 濃度は $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am より約2桁低く、 ^{237}Np の数倍で極めて低いが、他の核種の測定結果から予想されたとおり ^{99}Tc の場合も Sellafield 核燃料再処理施設に近い Esk 川河口からの距離とともに濃度が低くなっている。図中に示すガイドラインから分かるように、 ^{99}Tc の傾きは ^{137}Cs よりも ^{237}Np や ^{241}Am に近い。海水中での ^{137}Cs と ^{99}Tc の主な化学状態は Cs^+ および TcO_4^- と考えられており、これらのイオン種の堆積物に対する分配係数値（ K_d : $\text{Cs}, \text{Tc} = 10^1 - 10^2$; $\text{Np} = 10^3 - 10^4$, $\text{Pu} = 10^4 - 10^5$, $\text{Am} = 10^6$ ）から予想される傾向とは一致しない。 Tc の分配係数は通常のVII価状態での値であり、今回の Irish 海のデータからは Tc がVII価以外の酸化状態にあることも考えられる。

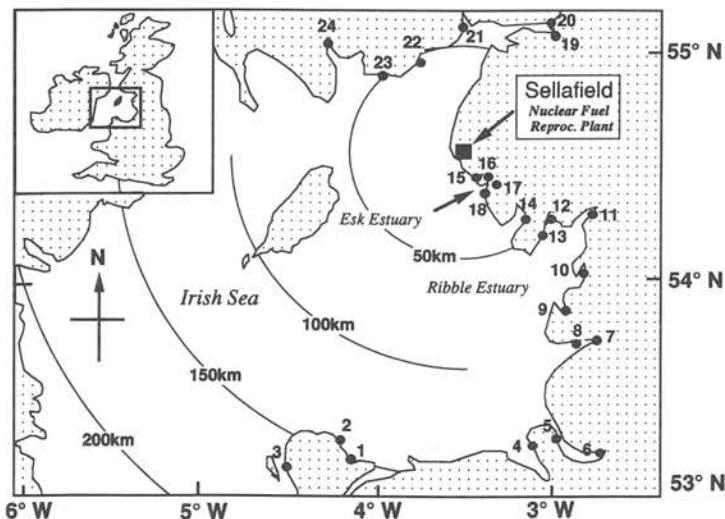


Fig. 1 Sampling locations of coastal sea-sediment.

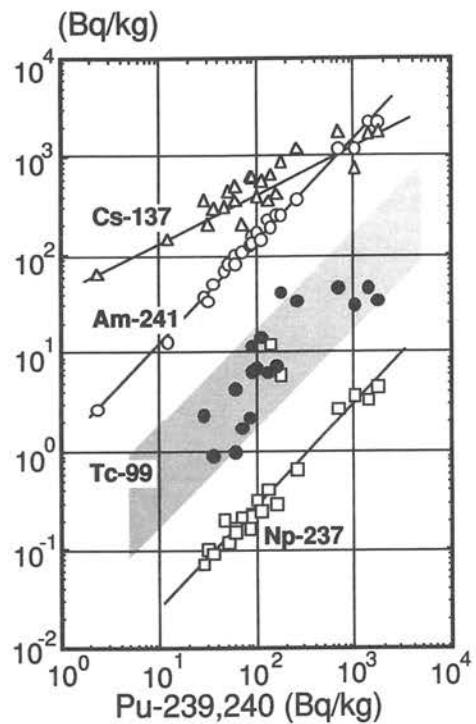


Fig. 2 Correlation between $\text{Pu}-239, 240$ and other nuclides.

[本研究は主として大学院生宮下文和が行い、成果の一部は第33回放射線影響学会（於 仙台）で発表した。]

《施設職員》

施設長(併) (教 授)	上 野 騐
教 授	上 野 騐
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

《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	山 本 善 一 稲 部 勝 幸
教 育 学 部	泉 長 秀
教 養 部	池 田 修
医療技術短大	安 東 醇

《研修員》

沙 連茂(中国) 平成 2年 4月～10月

IAEA 計画による技術研修員

コンピューター	マッキントッシュ II 2MB/HD40 漢字モデル
カラーディスプレイ	NANAO 9500 US (株式会社 NANAO より寄贈)
レーザープリンター	データプロダクト LZR-650
放射能測定装置	TENNELEC TC-256 (2台)

新規納入設備

使 用 量	液 体 窒 素 6,400 ℥
	A 重 油 3,076 ℥
	電 気 156,146 KWH
	水 道 2,609m³

- K. Komura, M. Yamamoto and K. Ueno : Abundance of Low-Energy Gamma Rays in the Decay of ^{238}U , ^{234}U , ^{230}Th , ^{227}Ac , ^{226}Ra , and ^{214}Pb , Nucl. Instr. Meth., A 295, 461-465 (1990).
- M. Yamamoto, S. Igarashi, K. Chatani, K. Komura and K. Ueno : Determination of ^{237}Np and ^{241}Pu in Environmental Samples : in Soil and Sediment, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 138 (2), 365-376 (1990).
- M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Chatani, S. Igarashi, K. Komura and K. Ueno : Fallout ^{237}Np , Pu Isotopes and ^{241}Am in Lake and Sea Sediments from the Coastal Area of the Sea of Japan, Radiochim. Acta, 51, 85-95 (1990).
- Y. Takizawa, L. Zhao, M. Yamamoto, T. Abe and K. Ueno : Determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in Human Tissues of Japanese, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 138 (1), 145-152 (1990).
- Y. Igarashi, C. Kim, Y. Takaku, K. Shiraishi, M. Yamamoto and N. Ikeda : Application of Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry to the Measurement of Long-Lived Radionuclides in Environmental Samples, Analytical Sciences, 6, 157-164 (1990).
- S. Hisamatsu, Y. Katsumata, Y. Takizawa, Y. Inoue, K. Isogai, J. Kim, H. Katagiri, Y. Takashima, T. Kaji, F. Nagatani, K. Ueno and M. Itoh : Interlaboratory Comparison of Low-level Organic Tritium Measurement in Environmental Samples, Radioisotopes, 39 (10), 457-463 (1990).
- 趙 蘭才, 山本政儀, 陳 英民, 阪上正信: 中国, 日本等国40種香烟中鉛-210鉛-210の測定(Determination of Pb-210 and Po-210 in 40 Blends of Cigarettes from China, Japan and Other Countries), 中国公共衛生學報 (Journal of Radiological Health), 9 (5), 257-260 (1990).
- 趙 蘭才, 李 福生, 陳 英民, 山本政儀: 鉛-209示踪α譜法則定生物样品中的鉛-210和鉛-210 (Determination of Po-210 and Pb-210 in Biological Samples by using Po-209 Tracer and Alpha-Ray Spectrometry), 放射衛生 (Chinese Journal of Public Health), 3, 87-89 (1990).
- 山本政儀, 米田 茂, 中西 孝: 固体飛跡検出器CR-39による屋内ラドン濃度測定, ラドン族調査研究委員会編「統一大気中のラドン族と環境放射能」, 日本国原子力学会発行, 221-228 (1990).
- 山本政儀, 阪上正信: 神岡鉱山の巨大水槽水チエレンコフ検出器周辺のバックグラウンドとしてのラドン, ラドン族調査研究委員会編「統一大気中のラドン族と環境放射能」, 日本国原子力学会発行, 229-238 (1990).

山本政儀, 小村和久, 上野 騐: 石川県における個人被ばく線量に関する調査研究, 平成元年度石川県委託研究「環境放射能調査報告書」, pp. 55-72 (1990).

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「平成元年度外来研究員研究経過報告書」, pp. 87-93 (1990).

山田芳宗, 鍛治 聰, 岡崎雅子, 江川賀英子, 桐山典城, 駄 幹夫, 小村和久, 上野 騐: ^6Li (n, α) ^3H 反応を利用するリチウムの定量, 平成元年度近畿大学原子炉等利用共同研究経過報告書, pp. 57-59 (1990).

滝澤行雄, 阿部 享, 山本政儀: Po-210, Pb-210の人体組織中および血液中濃度, 平成元年度文部省科学研究費総合研究(A)報告書「環境生態系に関与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」, pp. 41-45 (1990).

石榑顕吉, 上野 騐, 小林義威, 立川圓造, 藤野威男, 横山 淳, 吉田善行: 原子力ハンドブック 第II編 原子力の基礎4章 原子力の化学, オーム社発行 (1989)。

中井敏夫, 石森富太郎, 上野 騐, 星 三千男: 放射化学概論, 日本国原子力研究所発行 (1990)。

上野 騐, 星 三千男: 放射化学概論-生活環境の放射性核種, 日本国原子力研究所発行 (1990)。

上野 騐: 放射能と放射線一身のまわりの放射線, 日本国原子力振興財團発行 (1990)。

研
究
論
文著
書

平成 2 年度 見学来訪・調査出張記録

- 平成 2 . 4.3-10.4 IAEA 中国研修員 沙 連茂氏 (中国核工業部輻射防護研究所) 研修のため来所
 4.24 南カリフォルニア大学 日下部正志氏見学
 4.27 理学部 長尾年恭氏 学生 2 名研究打ち合せ
 5.16 根本特殊化学 矢島 充氏研究打ち合せ
 5.28 動力炉核燃料開発事業団中部事業所 目黒 昇氏研究打ち合せ
 5.31 金沢大学名誉教授 阪上正信氏研究打ち合せ
 6.6 新潟県衛生公害研究所 殿内重政氏, 霜鳥達夫氏見学
 6.11-15 秋田大学医学部 阿部 享氏測定のため来所
 6.21 医療技術短期大学助教授 天野良平氏研究打ち合せ
 日本核燃料開発 NFD 大内淳弘氏研究打ち合せ
 会計検査院 第二局文部検査第二課総括副長 柳 智隆氏見学
 6.22 動力炉核燃料開発事業団中部事業所 落合洋治氏研究打ち合せ
 6.25-7.1 [琉球大学との共同研究打ち合せ, 試料採取]
 7.5 ◎平成 2 年度運営委員会 (於 理学部)
 九州大学理学部教授 (LLRL 客員教授) 高島良正氏, 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
 7.26 日本原子力研究所 柳瀬信之氏研究打ち合せ
 9.10 九州大学理学部講師 大崎 進氏研究打ち合せ
 10.6 岡山理科大学理学部講師 蟻川清隆氏研究打ち合せ
 10.23 [助原子力工学試験センター 鳴田達朗氏研究打ち合せ
 10.28-11.2 [桜島, 久住, 沖縄で試料採取]
 11.1 九州大学理学部 百島則幸氏研究打ち合せ
 11.2 医療技術短期大学学生 40 名見学
 11.21 名古屋大学工学部教授 池辺幸正氏, 飯田孝夫氏, 学生 3 名研究打ち合せ
 11.26 理学部自然科学研究科 Billah Mokarram 氏 (Bangladesh) 見学
 11.26 理学部化学科 3 年生 34 名見学
 11.26-12.1, 3.2.11-14 [日本原子力研究所共同利用研究]
 12.12 ◎運営委員会 (於 理学部)
 12.17 石川県衛生公害研究所部長 矢鋪満雄氏研究打ち合せ
 12.28 薬学部教授 大熊勝治氏, 佐藤 均氏研究打ち合せ
 平成 3 . 1.9 宮城県原子力センター 加茂泰彦氏, 佐藤健一氏見学
 1.19-22 島根大学大学院生 亀井一成氏測定のため来所
 1.26, 2.16 文学部教授 守屋以智雄氏研究打ち合せ
 1.28-29 [立教大学原子炉共同利用研究]
 2.14 岐阜県御母衣ダム地下測定室にて環境放射能測定
 2.23 北陸大学放射薬品学助教授 山田芳宗氏講演
 3.6 理学部 長尾年恭氏, 学生 3 名研究打ち合せ
 3.8 理学部教授 梅鉢幸重氏, 学生 15 名見学
 3.11 新潟県衛生公害研究所研究員 霜鳥達雄氏, 米田和広氏研究打ち合せ
 3.19-22 ハノイ大学教授 Dang Huy Uyen 氏, 金沢大学名誉教授 阪上正信氏研究打ち合せ
 3.27 浙江省環境放射性監測站 高級工程師 劉 景武氏
 福井県衛生公害研究所主任研究員 吉岡満夫氏研究打ち合せ
 3.28 放射線医学総合研究所那珂湊支所 河村日佐男氏研究打ち合せ

低レベル放射能実験施設 平成 2 年度研究概要・年次報告 1991 年 7 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