

低レベル放射能実験施設 研究概要・年次報告

1991.4～1992.3

Annual Progress Reports of
Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

しっかりした施設の将来構想を（理学部長）	2
地下測定室建設を目的とするトンネル内での宇宙線寄与の測定	3
航空機利用による宇宙線被ばく評価（II）	4
降水中のウラン・トリウム同位体	5
日本人の ²²⁶ Ra摂取量の推定	6
Irish海の沿岸堆積物中のCm同位体	8
Irish海沿岸堆積物のNp, Pu, Am濃度の深度分布	10
樹木年輪中のトリチウムの定量に及ぼすセルロースの水酸基の水素の影響	12
人体組織中の ²¹⁰ Pbと ²¹⁰ Po濃度(2)－突然死群と病死群の比較	14
平成3年度・施設設備品・運営人事関係諸資料・研究報告	15
平成3年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

しっかりした施設の将来構想を

理学部長・施設運営委員会委員長 木村 實

低レベル放射能実験施設が活動を開始してから丸16年を迎えた。

角間地区への理学部の移転によって施設のある辰口キャンパスからは5キロ余り遠くなつたが、市の中心街を通過しなくて済むので時間的にはむしろ近くなったのは幸いである。当施設の角間地区への移転についての議論もなされ、施設の将来に関して魅力ある計画が俎上にのぼつていて検討が進められている。

施設発行の研究概要・年次報告には毎年の研究成果が簡潔にまとめられており、データ集としての役割も兼ねているという。内容については分野が違うので良く分からぬが、バックナンバーも含めて眺めてみると放射能・放射線測定を手段として基礎から応用まで実に幅広い研究を手掛けられ、優れた業績を挙げてこられたことは、広く認められている。

また、東南アジア諸国が中心ではあるが、IAEAを通じてあるいは国費留学生として教育や研究の指導を希望する外国人を受け入れている実績も多い。少ない研究費の中で着実に実績をつんでいることを評価したい。

大学の研究は、かつてのように象牙の塔にこもりっきりで社会と切り離された世界での活動であつてならない。研究費がほとんど増額されず、限られた財源の中で管理費の比率が研究費を大幅に上回る事態になりつつある現在、社会情勢の変化や要請に適切に対処し研究が続けられるような環境を整えることも必要である。当施設の研究分野について見れば、環境保全の重要性が叫ばれ、フロンによる大気オゾンの破壊や二酸化炭素増大による温室効果などに社会的関心が高まっている中で、(環境) 放射能に関する問題も地球的規模でますます重要性が高くなっていることも見逃すことが出来ない。こうした状況の下で、低レベル放射能実験施設の歴史は新たな発展の時期を迎えていたといつてよいであろう。この時期に将来計画の検討に着手されていることはまことに時宜を得たものというべく、拙速に走らず、実現性がありしかも柔軟性のある結論を期待する。理学部としてもその実現に全力を挙げたい。



地下測定室建設を計画している尾小屋鉱山
第三トンネル入り口付近



山本助手留学先のドイツ(GSF研究所)での大気浮遊塵
および雨水の採取装置の前で (左から, Dr. R. Winkler,
Dr. K. Bunzl, Dr. G. Rosner, Dr. M. Yamamoto)

地下測定室建設を目的とするトンネル内での宇宙線寄与の測定

Measurement of Cosmic-Ray Contribution in the Tunnel Proposed for Construction of Underground Laboratory

極低レベル放射能測定を目的とする地下測定室の建設を検討している石川県小松市の旧尾小屋銅鉱山跡のトンネル及び過去10年にわたって使用している岐阜県白川村の御母衣地下発電所のトンネル内で $3'' \times 3''$ NaI(Tl)検出器を用いて宇宙線（主としてmuon）寄与の変化を土被り厚さの相関を求めた。

両トンネルの入り口からの距離と土被りの厚さをFig.1に示す。尾小屋トンネルは小松市役所土木課所有の道路地図を基に、また御母衣発電所の導入トンネルは電源開発(株)の図面を基に作成したもので、不確かさは5m以内と考えている。尾小屋では入り口より25m間隔で土被り厚さ135mまで、御母衣では土被り厚さ280mまでの数地点で測定を行なった。土（岩石）の比重を2.7と仮定すれば尾小屋の最深部は360mwe、御母衣は750mwe相当となる。御母衣に設置してある地下測定室（240m: 650mwe）では極めて ^{210}Pb 含有量の低い鉛による遮蔽を施した中に設置したNaI(Tl)検出器のバックグラウンド評価も試みた。

Fig. 2 に土被り厚による宇宙線成分の減衰を示す。3MeV以下はトンネルを作っている岩石や空気中の放射性核種からの γ 線の寄与があり、3-5MeV領域は検出器構成材に含まれる α 線放射体からの寄与が、また7MeV付近までは中性子捕獲による即発 γ 線の寄与が考えられるので10 MeV相当以上の成分を宇宙線寄与とした。図から分かるように、両対数表示すると土被りと宇宙線寄与の間には直線関係が存在するよう見える。直線と見なした時の勾配は尾小屋では-1.73、御母衣ではやや急勾配の-2.04となる。全測定データを用いれば勾配-1.96が得られる。勾配の違いは岩石の密度の違いも一因と考えられるが、天頂角に対する入射宇宙線の広がりを考へると、トンネルの実効厚みが断面図から得られる直上方向の厚さよりも大きいためと考えられる。10 MeV以上の成分の計数率は200m以上の厚さでは極めて低く、数時間測定では計数の統計誤差が大きくて宇宙線強度の経時変動などにも起因するかも知れない。この測定で得られた勾配約-2という値はトンネルの土被り厚さを推定するパラメータとして有用と考えられる。

御母衣地下測定室遮蔽内に設置した低バックグラウンド仕様の $3'' \times 3''$ NaI(Tl)検出器のバックグラウンド計数は0.1-3.0MeV領域に対して52.2cpmで、ほぼ同じ条件で得た地上での値79.5cpmの2/3となった。Fig.3 から分かるように検出器自身に含まれる ^{40}K の寄与が大きく、厳選すれば低減可能である。

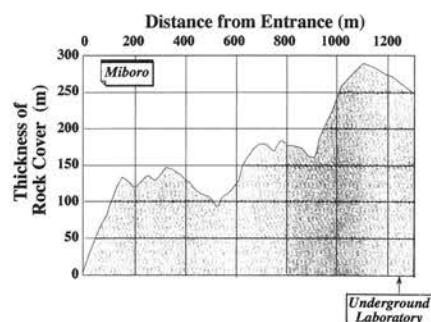
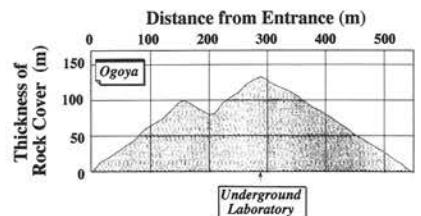


Fig. 1 Cross sectional view of Ogoya and Miboro Tunnels.

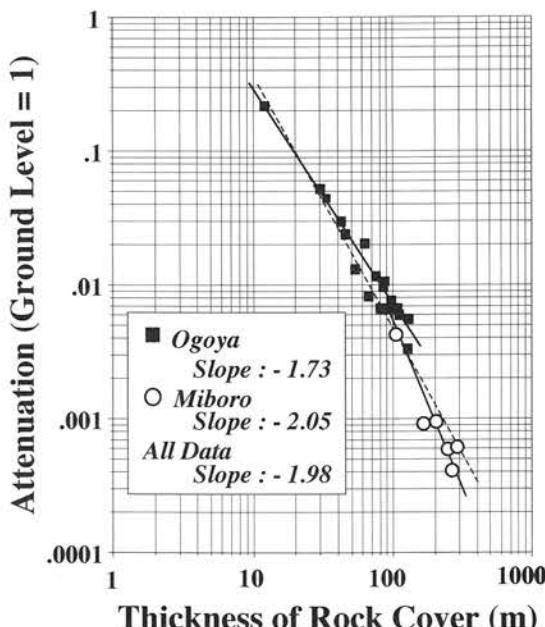


Fig. 2 Relation between thickness of rock cover and intensity of cosmic-ray.

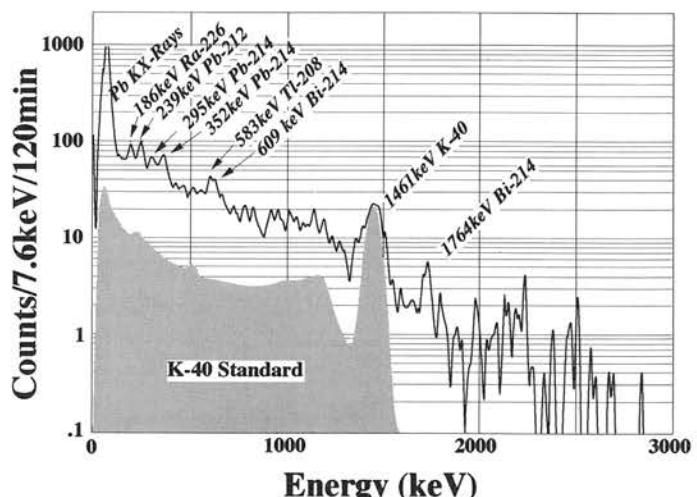


Fig. 3 Background spectrum of $3'' \times 3''$ NaI(Tl) detector in special lead shield at Miboro.

航空機利用による宇宙線被ばく評価（II） Evaluation of Cosmic-ray Dose of Passenger

国内旅行における航空機の利用が一般的となり、1990年の海外旅行者が年間1,500万人を超えたと報道されており、宇宙線被ばくへの関心が高まっている。宇宙線による被ばく線量を推定するため、飛行中の航空機に様々な検出器を載せた測定や、環境放射線計測に使用されている小型の簡易測定器による測定もなされている。しかし後者では使用した検出器の特性やエネルギー依存性を十分配慮した測定は少なく、得られた値をそのまま使用することはできない。

昨年の計算では上昇及び下降時の線量計算に問題があつたので再評価を試みた。宇宙線強度の高度依存性は昨年と同じく日本原子力研究所の森内茂氏が提案した近似式を用いたほか、飛行距離と実飛行時間、上昇と下降を要する時間、飛行高度の情報は国内の主要な航空会社の運航部より入手した値をもとにした。計算の簡略化のため、これらのデータから多項式近似を行ない、最終的に運航距離と被ばく線量の関係式を導いて路線毎の被ばく線量を求め、これに乗客数を乗じて年間線量を求めた。運輸省及び法務省統計による1990年までの年間乗客数の変遷をFig. 1に、計算の基礎とした森内の式による宇宙線強度の高度依存性をFig. 2に、航空会社からの資料に基づく運航距離と上昇下降時間、水平飛行時間と高度の関係を採用した近似値をFig. 3の曲線で示す。

1988年の国内の150余の全路線について運輸省統計データを基に算出した国内線利用による宇宙線被ばく線量はTable 1のように計算された。この値は昨年発表した値の約半分で全路線の合計で68 man · Svとなる。航空乗務員については利用人数の多い主要路線では定員500人余の*Super Jumbo*の運航が主流で、客室及び運航乗務員数を実乗客数の約1/30(13人)として2.3 man · Svと見積られる。これらを合わせると国内線利用による宇宙線被ばくは年間約70 man · Svとなる。国民一人当たりに換算すれば0.58 μ Svとなる。国際線利用による被ばく計算は未完であるが、年間旅客数が往復約3000万人(1990年)あることや、水平飛行時間が長く飛行高度が高いことに加えて地磁気緯度の高いコースが多いことから国内線の2倍以上と予想される。

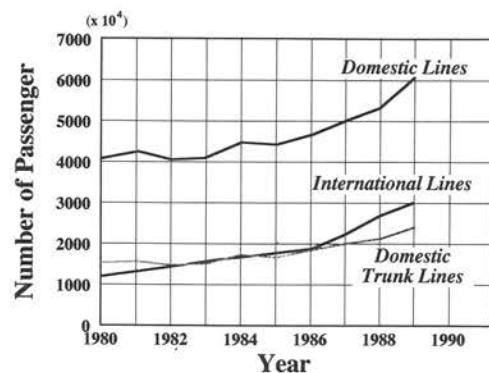


Fig. 1 Altitude dependence of cosmic-ray components based on the equations proposed by Moriuchi, JAERI.

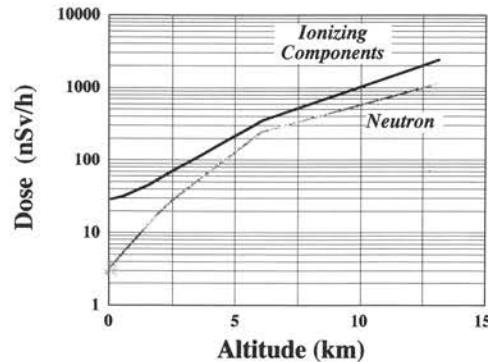


Fig. 2 Annual variation of number of passengers for domestic and international air lines.

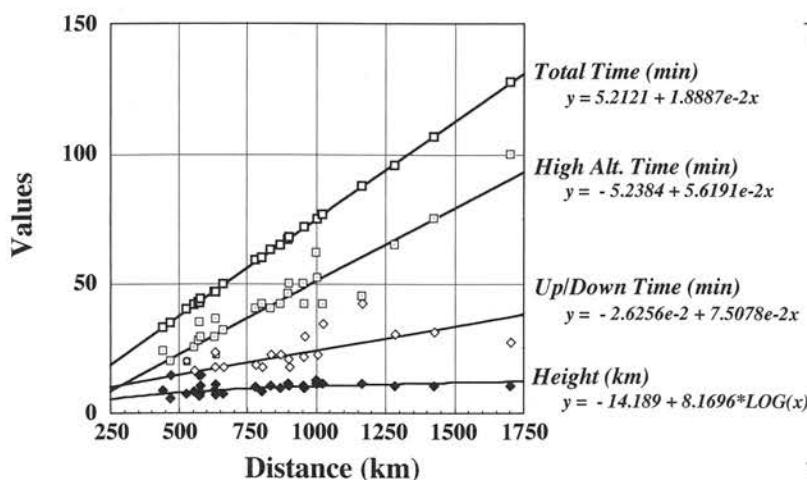


Fig. 3 Least squares fitted parameters used in the calculation.

Table 1. Examples of the estimation of cosmic-ray dose for the flight between Tokyo-Osaka and Tokyo-Sapporo.

	Tokyo - Osaka	Tokyo - Sapporo
Passenger (man)	3,614,959	5,958,052
Distance (km)	530	897
Total Time (min)	40	67
Up/Down Time (min)	15	22
High Alt. Time (min)	25	45
Ionizing Comp. (nSv/Flight)	329	962
Neutron (nSv/Flight)	191	506
Total Dose (nSv/Flight)	520	1,478
Annual Dose (manSv)	1.88	8.81

Table 2. Annual cosmic-ray dose estimated by present study.

Unit	Value
Passenger (man)	52,415,393
Mean Dose (nSv/Flight)	1,295
Annual Dose (manSv)	67.9
Air Crew (manSv)	2.3
Population Dose (manSv)	70.2

降水中のウラン・トリウム同位体

Uranium and Thorium Isotopes in the Precipitation

大気・降水中のウラン(U)・トリウム(Th)含量およびそれらの同位体比に関する研究は比較的少ない。U, Thの発生源としては、表層の土壤あるいは岩石の舞い上がりが大部分を占めているものと考えられるが、その他に、火山の噴火灰、風送塩に由来するもの、更に人工的なものとして化石燃料の燃焼、原子力施設からの放出、核爆発実験や原子炉搭載衛星の事故による放出も含まれる。このように、大気・降下水のU, Th含量およびそれらの同位体比の測定は、降下量や発生源の推定、さらに吸入に伴う内部被曝の評価などの環境放射能の面からのみならず、気圧を通じての物質輸送などの地球化学的研究面からも意義がある。

ここでは、1986年1月から1989年12月にわたり当研究施設屋上(地上12m)で採取(受水面積0.5m²)した1ヶ月分の降水について、U, Th含量およびそれらの同位体を測定した結果を報告する。

1ヶ月分の試料水(20~200l)を、まず0.45μmミリボアフィルターを用いて濾過操作を行い、可溶成分と不溶成分を分画した。前者はFe(OH)₃共沈を、後者はHNO₃-HF-HClO₄を用いて全分解を行い、それについて陰イオン交換分離後電着してα線スペクトロメトリーによりU(²³⁸U, ²³⁴U)とTh(²³²Th, ²³⁰Th, ²²⁸Th)を定量した。1ヶ月間の全降下量は、可溶成分と不溶成分のU, Th同位体を合計して求めた。

Table 1にU, Th同位体の年間降下量を示した。²³⁸U, ²³²Thの年間の降下量は、それぞれ0.43~0.57Bq(35~46μg/m², 0.50~0.65Bq(124~162μg)/m²であった。Table 1 1.2~1.5倍過剰に存在する。Fig.1に示すように、²³⁸Uと²³²Thの降下量は、ほぼ同じような変動を示しており、冬から春先にかけての降下量は最も少なくなる夏から秋季の5~10倍多い。春先に大陸から飛来する黄砂が、この原因の1つとして考えられる。U, Th同位体間の放射能比をFig.2に示した。²²⁸Th/²³²Th比の変動は、²³⁸U/²³²Th比と比較的良く似た変動を示す²³⁰Th/²³²Th比とくらべて幾分異なっているが、いずれの放射能比も明らかに周期的季節変動を示さない。現在、²²⁶Ra, ²¹⁰Pb, さらに安定元素Si, Alなどの測定も加えて更に測定を継続している。

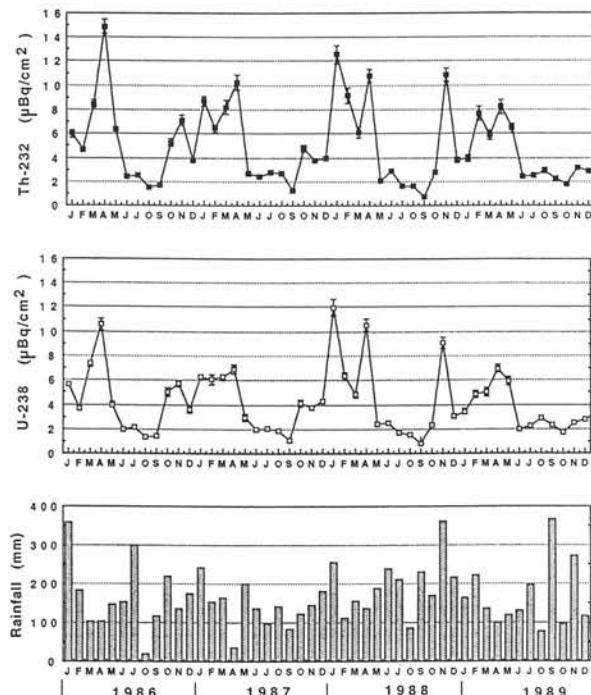


Fig. 1 Variation with time of monthly deposition of ²³⁸U, ²³²Th and rain fall at Tatsunokuchi, Ishikawa.

Table 1 Yearly deposition of U and Th isotopes and rainfall during the period from 1986 through 1989 at Tatsunokuchi.

Year	Yearly deposition					Rainfall (mm)
	U-238 (Bq/m ²)	U-234 (Bq/m ²)	Th-232 (Bq/m ²)	Th-230 (Bq/m ²)	Th-228 (Bq/m ²)	
1986	0.53/0.01	0.55/0.01	0.65/0.01	0.52/0.01	0.98/0.02	2014
1987	0.48/0.01	0.49/0.01	0.58/0.01	0.48/0.01	0.75/0.02	1700
1988	0.57/0.01	0.62/0.01	0.65/0.01	0.57/0.01	0.78/0.02	2362
1989	0.43/0.01	0.46/0.01	0.50/0.01	0.43/0.01	0.86/0.02	1998

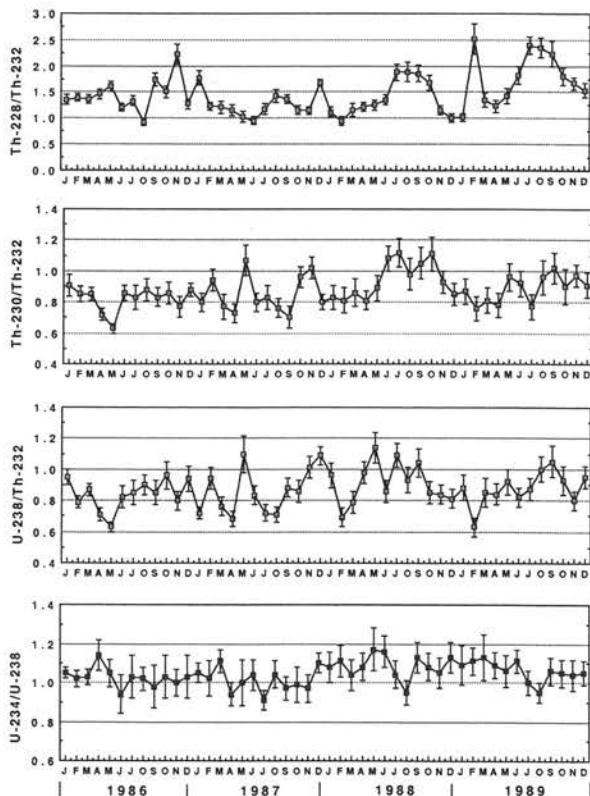


Fig. 2 Season change in the activity ratios among U and Th isotopes of precipitation at Tatsunokuchi, Ishikawa.

日本人の²²⁶Ra 摂取量の推定

Estimation of Daily Dietary Intake of ²²⁶Ra in Japanese

原子力利用の進展とともに、核燃料再処理さらには高レベル放射性廃棄物の処理処分に伴う公衆の被ばく線量評価がますます重要な研究課題となっている。とりわけ、 α 線放射体のアクチノイド核種に対しては、内部被ばく線量算定モデルに対する ICRP Publication 30 の代謝および線量算定モデルの適用の妥当性がひとつの大きな課題である。これまでに、Puと常に対比される²²⁶Ra($T_{1/2} = 1600$ y)について、新しい手法 [LLRL-AR-13, p.10]を取り入れた放射化学分離 - α 線スペクトロメトリーによる方法を開発し、骨試料中の²²⁶Ra分析、さらに標準日本人データを導入した成人の骨組織に対する α 線の年線量当量などを検討してきた [LLRL-AR-14, p.9]。今年度は、日本人の²²⁶Raの標準的摂取量を知ることを目的に²²⁶Ra分析法の検討を行うとともに、3種類の収集法により得た食事試料の²²⁶Raを分析した。

微量²²⁶Ra分析法の検討

試料中の²²⁶Raを予備濃縮する場合、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)共沈法が最適であるが、微量の²²⁶Raを定量する際には、Ba試薬中に混入している²²⁶Raの存在が無視できず使用には問題がある。前回の骨中の微量²²⁶Ra分析では、この点を考慮して、Ba担体を用いない0.5M HNO₃-90%メタノール混合溶液からの陰イオン交換予備濃縮法を開発した [LLRL-AR-13, p.10]。しかし、試料が2~3gと少ない場合には適しているが、5~10g、あるいはそれ以上になるとカラムを大きくする必要があって煩雑である。そこで今回は、Ba担体を用いることにして、まず、最初にできるだけ少ない²²⁶Ra含量の市販Ba試薬の探査を試みた。

Table 1に、市販されているいくつかのBa試薬について、化学分離- α 線スペクトロメトリーおよび非破壊 γ 線スペクトロメトリーで定量した²²⁶Ra濃度を示す。表から分かるように今回²²⁶Ra含量の極めて少ないBa試薬(Ba(NO₃)₂)を見い出すことができた。一試料当たり20mgのBaを担体として添加した場合のバックグラウンドは、化学収率を70%、 α 線測定の効率を30%と仮定すると、0.001 cpm(1.5カウント/日)になる。Fig.1に食事試料に適用したBaSO₄共沈-CyDTA・陽イオン交換(BaとRaの分離)- α 線スペクトロメトリーによる分析・測定法を示した。収率補正用のトレーサーには、²²⁵Raを用いた。

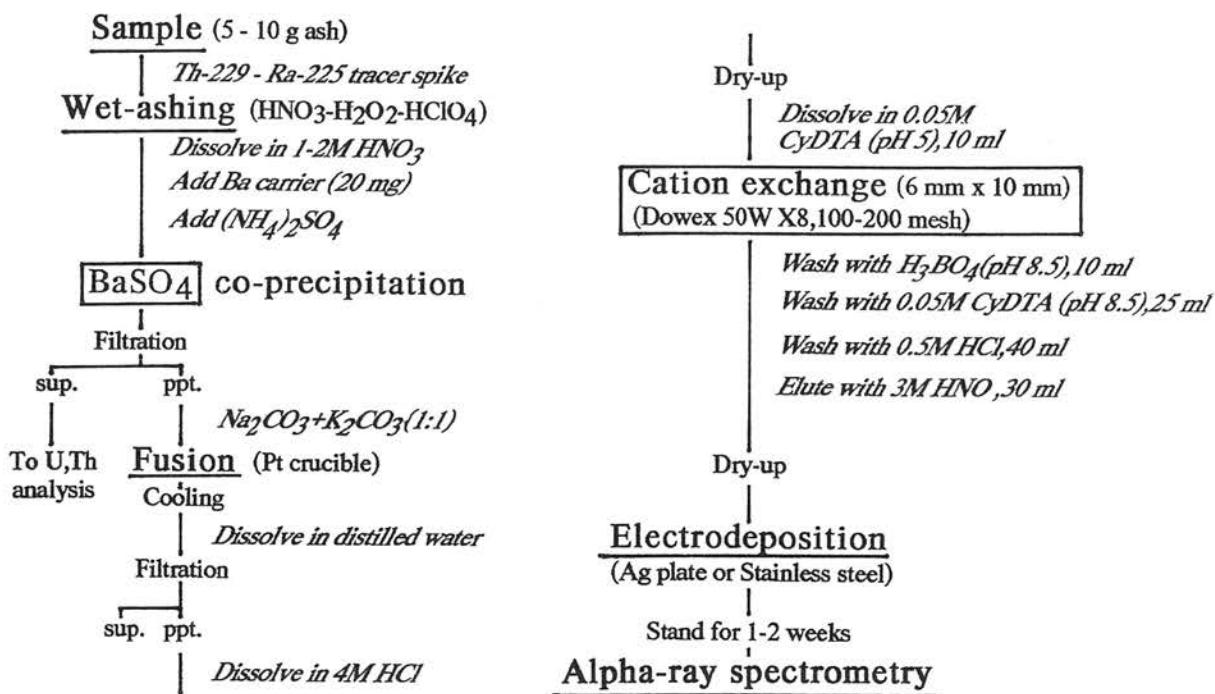


Fig. 1 Analytical flowsheet of ²²⁶Ra in a daily dietary sample.

IAEAが国際的なクロスチェックのために調整した混合海藻試料“IAEA-305”を用いて、今回の分析測定を検討し、実試料に十分適用できることを確認した。

²²⁶Ra摂取量の推定

3種類の収集法により得た食事試料を用いて、日本人の²²⁶Raの標準的摂取量の推定を行うことにした。第1の試料は陰膳法により、複数の成人男子を対象とし、31都道府県より1981-1982間に年2度収集した広域の試料である。第2の試料は水戸在住の成人男子、1名を対象にした長期間(1984-1989)の陰膳法による収集試料である。第3の試料の収集はマーケット・バスケット方式により行った。1987年の国民栄養調査のデータを用いて食品を4群に分類し、各群別の分析から各群の寄与と1日の摂取量を推定した。食事試料は乾式灰化後、約5gの灰分を用いた。

Table 1. ²²⁶Ra contents in Ba chemical reagents.

Reagent	Grade	Ra-226 (dpm/g·Ba)	Remarks
BaCO ₃	1st.G*1	1.53 ± 0.22	Ishizu Pharmaceutical Co.Ltd. No.82721
BaCO ₃	Pr.G*2	17.6 ± 0.15	Wako Pure Chem. In. Ltd. 027-00115 Lot No. TLE5018
BaCO ₃	Pr.G	19.1 ± 0.2	Wako Pure Chem. In. Ltd. 024-00125 Lot No. SAP2067
BaCl ₂ ·2H ₂ O	G*3	8.21 ± 0.07	Ishizu Pharmaceutical Co.Ltd.
BaCl ₂ ·2H ₂ O	G	15.5 ± 1.3	Wako Pure Chem. In. Ltd. 029-00175 Lot No. SAP2309
BaCl ₂	G	26.3 ± 1.4	Wako Pure Chem. In. Ltd.
BaCl ₂	E.P*4	18.2 ± 1.2	Wako Pure Chem. In. Ltd.
Ba(NO ₃) ₂	1st.G	13.2 ± 0.2	Katayama Chemical Lot No. 1207623
Ba(NO ₃) ₂	E.P	0.37 ± 0.03*	Kojima Kagaku Co. Ltd.
Ba(NO ₃) ₂	G	0.25 ± 0.02*	Wako Pure Chem. In. Ltd. 029-00295 Lot. No. SAP2067
BaSO ₄	1st.G	0.27 ± 0.02*	Wako Pure Chem. In. Ltd. 022-00425 Lot No. SAQ3715
Ba(OH) ₂ ·8H ₂ O	G	6.45 ± 0.38	Kanto Chemical Co. INC. Lot No. 911R1161
Ba(OH) ₂ ·8H ₂ O	G	4.14 ± 0.41	Wako Pure Chem. In. Ltd. 024-00245 Lot No. SAN2488
BaO	Pr.G	0.40 ± 0.02*	Kishida Chemical Co. Ltd. Lot No. 17435
BaO	Pr.G	0.67 ± 0.03*	Wako Pure Chem. In. Ltd. 020-00345 Lot No. ECN4204
Ba(CH ₃ COO) ₂	G	3.88 ± 0.37	Wako Pure Chem. In. Ltd. 026-00065
Ba(CH ₃ COO) ₂	G	2.40 ± 0.35	Wako Pure Chem. In. Ltd. 026-00065 Lot No. SAN2426
Ba(HCOO) ₂	Pr.G	3.88 ± 0.35	Wako Pure Chem. In. Ltd. 023-00232 Lot No. CTN0378
BaC ₂ O ₄ ·H ₂ O	Pr.G	14.5 ± 0.14	Wako Pure Chem. In. Ltd. 029-00315 Lot No. CTL3327
BaI ₂ ·2H ₂ O	Pr.G	7.61 ± 0.75	Wako Pure Chem. In. Ltd. 024-00262 Lot No. AWH4939

*1: 1st grade reagent, *2: Practical grade reagent, *3: Guaranteed reagent, *4: Extra Pure reagent.

*: By gamma-spectrometry.

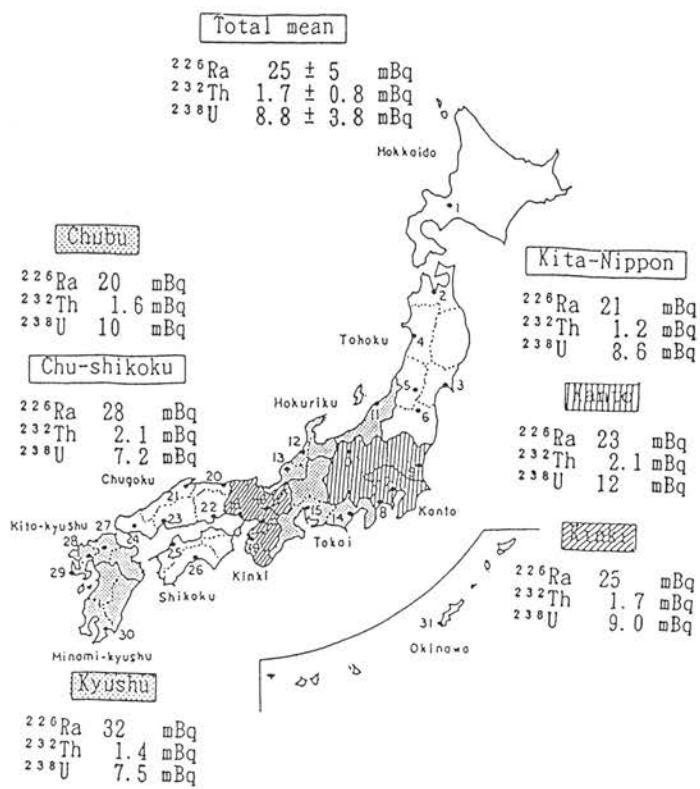


Fig. 2 Daily intakes of ²²⁶Ra, ²³²Th, and ²³⁸U for adult males in 6 areas of Japan. Map numbers refer sites in the 31 prefectures where data were collected.

31都道府県から収集した試料に関して、全国を6の地域に分けた時の一人当たりの1日²²⁶Ra摂取量を、同一試料について白石等がICP-MSで測定したU, Thと共にFig.2に示した。²²⁶Ra摂取量は、北日本21mBq、関東23mBq、近畿25mBq、中・四国28mBq、九州32mBqであり、西日本の方に高い傾向がある。全国平均は、25±5mBqであった。次に、水戸の平均は22±2mBq(n=7)であった。一方、マーケット・バスケット方式による食品群別の一日の摂取量は1群(卵、牛乳、乳製品)2.0mBq、2群(肉類、魚介類)8.1mBq、3群(芋類、果実類、野菜類)5.2mBq、4群(穀類、豆類、油脂、調味料)6.7mBqであり、これより1日摂取量は22mBqとなった。3種類の収集方法による摂取量の差は1割強であり全国平均25mBqは日本成人男子の摂取量として妥当な値と推定される。山崎の1960年代の報告値、15mBq(札幌)、37mBq(京都)とも比較して大きな差は認められない。

[本研究は、放射線医学総合研究所・白石久二雄氏、日本分析センター・吉清水克己氏との共同で行った。]

Irish海の沿岸堆積物中のCm同位体

Cm Isotopes in Coastal Sediments in the Irish Sea

はじめに

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超ウラン元素等の挙動についての知見を得る格好のフィールドである。筆者らは、これまでIrish海の表層堆積物およびコア堆積物中の²³⁷NpをPu同位体、²⁴¹Amと共に測定し、²³⁷Npの堆積物への沈積挙動を検討してきた。

今回は、これら試料中のCm同位体 [²⁴⁴Cm ($T_{1/2} = 18.1$ y, α), ²⁴³Cm ($T_{1/2} = 28.5$ y, α , EC), ²⁴²Cm ($T_{1/2} = 162.8$ d, α)] の測定を試みた。Cm同位体は、高燃焼度の使用済み核燃料の初期再処理廃液中において、全 α 放射能の中で最も高い割合で含まれており、局地的な α 汚染を引き起す可能性がある点で重視されている。また、²⁴²Cmについては、その壊変を追跡することにより親核種 [^{242m}Am ($T_{1/2} = 141$ y, IT) \rightarrow ²⁴²Am ($T_{1/2} = 16$ h, β^-) \rightarrow ²⁴²Cm] である^{242m}Amの存在を確認できたので併せて報告する。

試料および測定

試料は、1988年7月にIrish海周辺の沿岸や河口の24地点で採取した表層堆積物(深さ1cm)およびEsk川河口の河口で採取した深さ25cmのコア試料(直径8.2cm, 1cm毎に切断)を用いた(Fig.1)。²³⁷Np, Pu同位体、²⁴¹Amなどは測定済みである。Cmの分析は、試料1~数10gを用い、この元素が化学分離・精製、電着中、Amと同じ化学挙動を取る大和らの方法(塩酸-メタノール-チオシアン酸-陰イオン交換)を用いて行った。 α 線スペクトロメトリーにより^{243,244}Cm/²⁴¹Am (α 線スペクトロメトリーでは²⁴³Cmと²⁴⁴Cmの α 線エネルギーが接近しているため弁別不可能)と²⁴²Cm/²⁴¹Am 放射能比を測定した。絶対量は²⁴³Amをトレーサとして別に求めた²⁴¹Am濃度を上記の放射能比に乗じて求めた。

結果と考察

- (1) Fig.2(A)に実際の試料から分離・精製したCm(Am)同位体の α 線スペクトル例を示す。²⁴²Cmを計数誤差10%以内で測定するためには、²⁴¹Amの計数値が50~100万カウントに達する。Fig.2(B)に示す²⁴³Cmと²⁴⁴Cmを含む標準溶液の α 線スペクトルとの比較から、試料には²⁴³Cmがほとんど含まれていないことがわかる(以後^{243,244}Cmを²⁴⁴Cmと記す)。
- (2) Irish海周辺の沿岸や河口の24地点からの試料中の²⁴⁴Cmと²⁴²Cmについては、Esk川河口で最も高い7.1Bq/kgと1.2Bq/kgの値をそれぞれ検出し、放出口からの距離が遠くなるにつれて濃度が漸減している。²⁴⁴Cm/²⁴¹Am比および²⁴²Cm/²⁴¹Am比は測定日(試料採取から12~15ヵ月経過)での値で(0.28~0.39)%および(0.025~0.058)%であった。
- (3) ²⁴²Cmについては、Unsupported ²⁴²Cmと^{242m}Amから生成されるSupported ²⁴²Cmが存在している可能性があるので、Esk川河口の堆積物約20gを用いてCm(Am)を分離・精製し、約2年間定期的に測定を繰り返してみた。Fig.3にその結果を示すが、Supported ²⁴²Cm、すなわち親核種の^{242m}Amが^{242m}Am/²⁴¹Am放射能比で(0.033±0.001)%存在していることがわかった。
- (4) Esk川河口からのコア試料については、深さ20cmまでの試料について²⁴⁴Cm、²⁴²Cmが検出でき、²⁴⁴Cm/²⁴¹Am比および²⁴²Cm/²⁴¹Am比でそれぞれの(0.17~0.27)%、(0.024~0.040)%であった。²⁴²Cmの親核種^{242m}Amの量を評価するために、2年後にこの一連のコア試料の線源を再び測定した。得た²⁴²Cm/²⁴¹Am比(0.018~

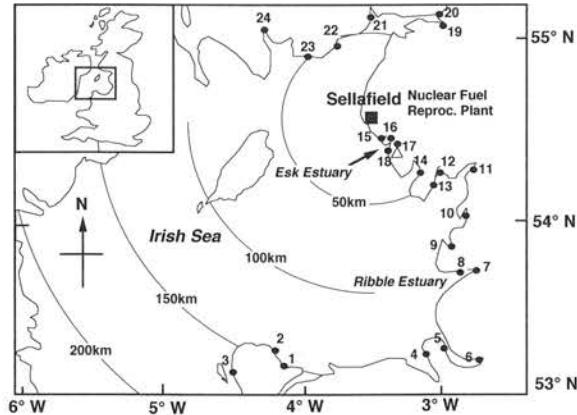


Fig. 1 Sampling locations of (•) surface sediment and (△) sediment core.

0.029) % が $^{242m}\text{Am}/^{241}\text{Am}$ 比と等しいと仮定して、このコア試料の ^{242m}Am 蓄積量を試算すると 12.4 ± 0.5 mBq/cm², ^{241}Am 蓄積量 (47.7 ± 0.5 Bq/cm²) の比で 0.026 ± 0.002 % となる。1968 年から 1988 年の間に 504 TBq の ^{241}Am が放出されており、その他に、親核種 ^{241}Pu からこの間に 356 TBq の ^{241}Am が成長している。それ故、 ^{241}Am の全放出量は 859 TBq となる。この両者と ^{242}Am の $^{242}\text{Cm} \rightarrow$ の β 壊変分岐比 83 % より ^{242m}Am 放出量は 0.27 TBq と推定した。

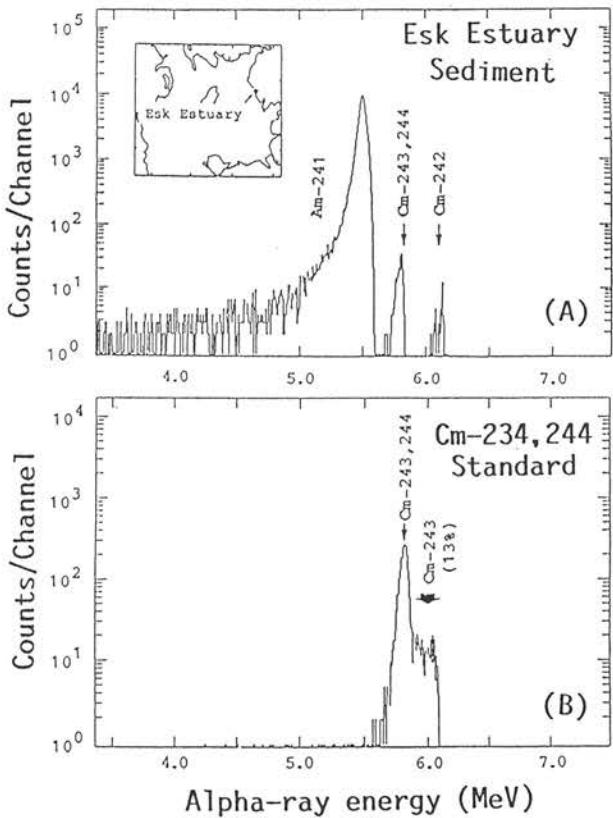


Fig. 2 Alpha-ray spectra of (A) Cm(Am) fraction from the sediment sample and (B) Cm-234, 244 standard.

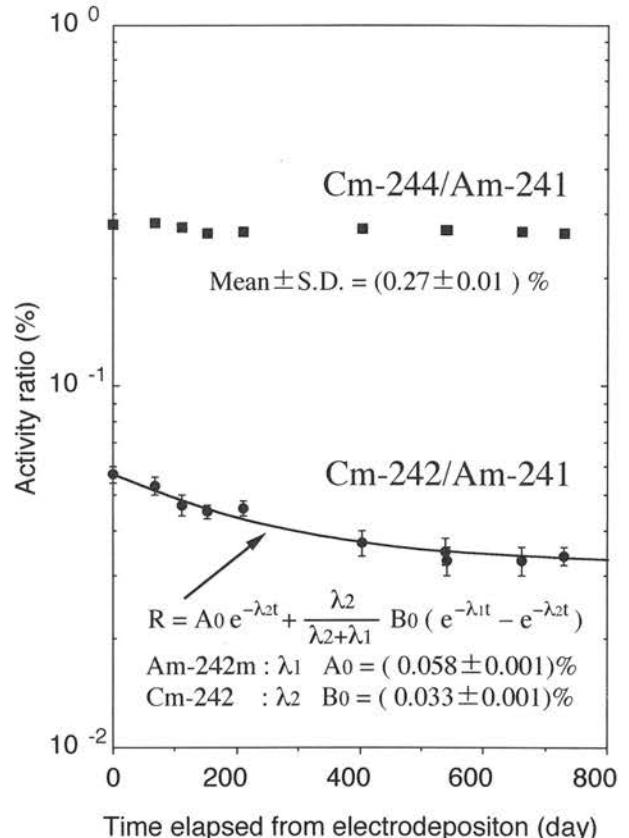


Fig. 3 Decay of Cm-244/Am-241 and Cm-242/Am-241 activity ratios in sediment from Esk Estuary.

[本研究は、大学院生・山内喜通（現通商産業省）及び桑原潤が行い、試料採取にはイギリス Wales 大学・D.J.Assinder 氏の協力を頂いた。]

Irish海沿岸堆積物のNp, Pu, Am濃度の深度分布

Depth Profiles of Np, Pu and Am Isotopes in the Coastal Sediments of the Irish Sea

沿岸海洋に放出された超ウラン元素の挙動を解明することを目的として、イギリスのIrish海沿岸をフィールドに研究を行っている。

これら元素の堆積物への移行は、その元素の存在状態、堆積物の種類及び構成成分によって大きく左右され、また河口に広がる潮間帯においては潮の干満に伴うpH、塩分等の変動も大きく影響する。Sellafield核燃料再処理工場の南東約10kmにあるEsk川河口は潮の干満の差が激しく潮間帯におけるNp, Pu, Amの挙動を解明するうえで貴重なフィールドを提供している。昨年、Esk川河口より採取した堆積物コア試料中の²³⁷Npについて報告したが

(LLRL-AR-15, p. 12-13)、今回さらに2本の堆積物コア試料について²³⁷Np, Pu同位体および²⁴¹Amの測定を行つたのでその結果を示す。

試料及び測定

1990年11月に採取した2本のコア試料(Esk-2 Core, Esk-3 Core)を1cm毎に切断し風乾し分析試料とした。この試料を粉碎・混合後一部を用いて非破壊γ線スペクトロメトリーにより¹³⁷Cs及び²⁴¹Amを定量した。その後試料

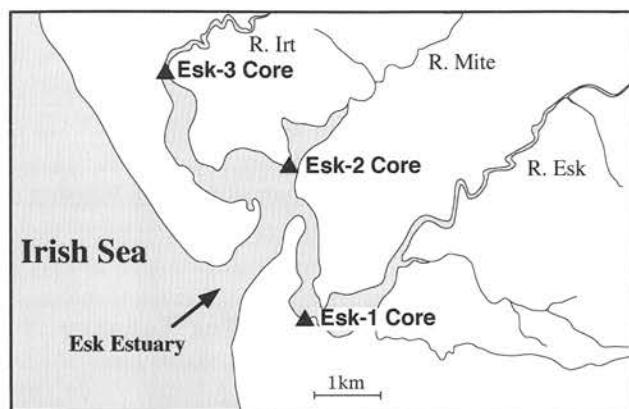


Fig.1 Sampling location of sediment core samples.

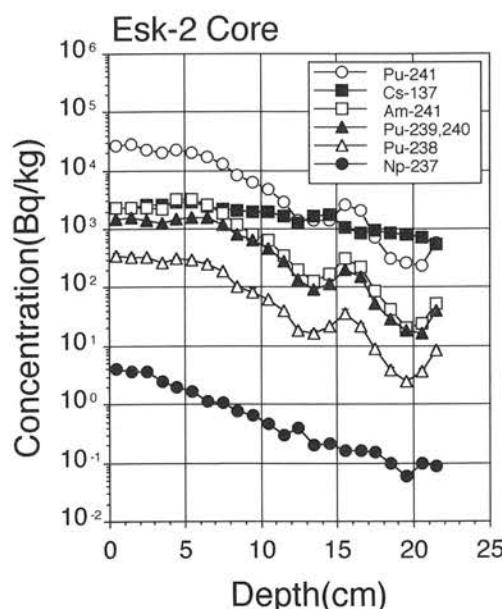


Fig.2 Concentration - depth profiles of measured nuclides in Esk-2 Core.

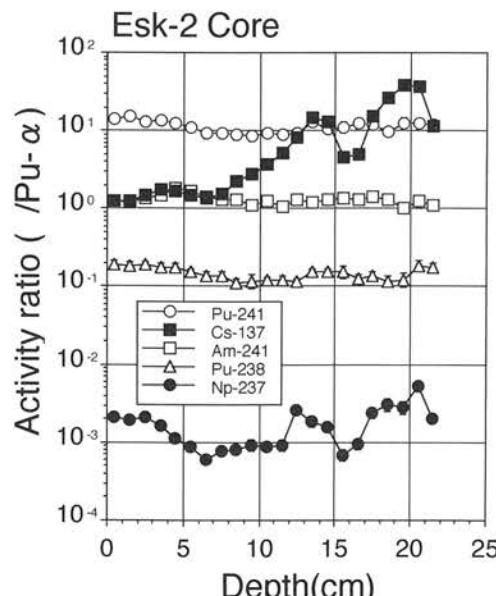


Fig.3 Activity ratio - depth profiles of measured nuclides in Esk-2 Core.

2~20gよりネプツニウムを、試料0.5~3gよりプルトニウムを分離・精製して、 α 線スペクトロメトリーにより ^{237}Np , ^{238}Pu 及び $^{239,240}\text{Pu}$ を定量した。またプルトニウム精製フラクションの一部を用いて、液体シンチレーシヨンカウンターによる β 線測定により ^{241}Pu を定量した。

結果と考察

試料採取地点をFig.1に示す。測定した核種の放射能及びそれらのPu- α (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ の和)に対する放射能比の深度分布をEsk-2 CoreについてFigs. 3にEsk-3 CoreについてはFig.4, 5にそれぞれ示す。Esk-2 Coreの濃度の深度分布はどの核種も表層部が最も濃度が高く、またPu同位体及び ^{241}Am については深さ約16cmにピークを持つ特異な分布となっている。Pu- α に対する放射能比の深度分布はPu同位体及び ^{241}Am ではコアの全ての深さを通じてほぼ一定であり、堆積物中ではアメリシウムがプルトニウムと良く似た挙動をとることを示唆している。 ^{237}Np , ^{137}Cs については深くなるにつれPu- α に対する放射能比が高くなる傾向が見られ、プルトニウムやアメリシウムとの拡散挙動の違いを反映しているものと思われる。一方Esk-3 Coreは採取した3本のコア試料のうち最も高濃度に超ウラン元素を蓄積しており、 ^{237}Np 以外の核種は深さ10~15cmの所にピークをもっている。このピークが過去のSellafield核燃料再処理工場からの放出のピークに対応していると考え、Pu同位体や ^{137}Cs についてピーク位置に基いて両者を比較すると比較的良く一致していることが確認できた。Pu同位体間の放射能比の深度分布が一定の比で分布していないことからもEsk-3 CoreがSellafield核燃料再処理工場からの過去の放出歴を良く保存していることが確認出来た。今後過去の放出歴が分かっていない ^{237}Np についてEsk-3 Core中の深度分布を用いて放出歴を推定することを検討している。

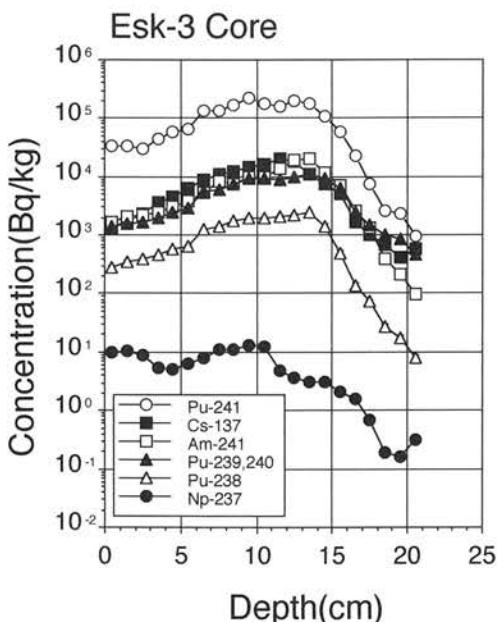


Fig.4 Concentration - depth profiles of measured nuclides in Esk-3 Core.

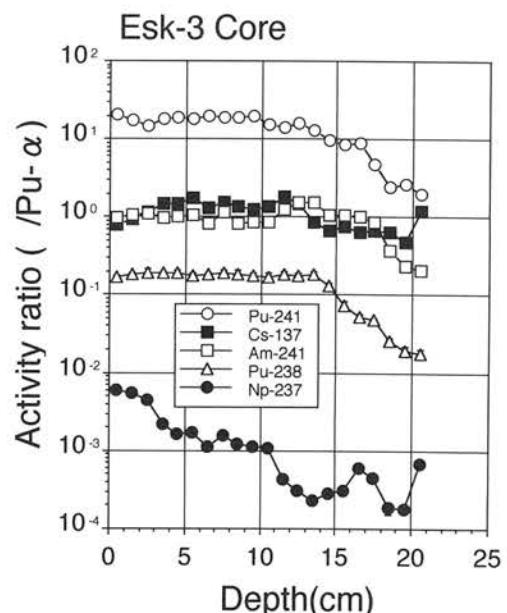


Fig.5 Activity ratio - depth profiles of measured nuclides in Esk-3 Core.

[本研究は大学院生・桑原潤が行い、試料採取にはイギリスWales大学・D.J.Assinder 氏, ^{241}Pu の測定には福井県衛生公害研究所・五十嵐修一氏の協力をそれぞれ頂いた。]

樹木年輪中のトリチウムの定量に及ぼすセルロースの水酸基の水素の影響

Effect of OH-Hydrogens of Cellulose on Measurement of Tritium in Tree Rings

1年毎に分離した樹木の年輪からセルロースを精製し、その中のトリチウムの定量を行うことによって、環境トリチウムの時間的変動に関する知見を得ることができる。セルロースに固定された水素のトリチウム濃度は、セルロースが合成された当時の環境水の濃度を反映しているからである。しかし、セルロース中の水酸基の水素の一部は、同位体交換反応によって後年入れ替わった可能性があり、そのトリチウム濃度は、合成時の濃度を代表しているとは限らない。一方、年輪セルロース中のトリチウムの定量は、セルロースを乾燥・熱処理した後燃焼させ、得た燃焼水のトリチウム濃度を測定して行うが、乾燥・熱処理過程でOH-水素の一部が除去され、これが測定値に影響を及ぼす可能性がある。このような観点から、セルロース中の交換可能なOH-水素の割合とその熱的安定性について検討し、これらの要因が樹木年輪中のトリチウムの定量に及ぼす影響について明らかにした。

方法

(1) セルロース中の交換可能なOH-水素の割合

室温及び高温(92°C)で、セルロースを長期間高濃度のトリチウム水に浸した後、セルロースのOH-水素と同位体交換したトリチウムを測定し、セルロース中の全水素原子に対する交換可能なOH-水素の割合を求めた。

(2) 乾燥・熱処理によるセルロース中の交換可能なOH-水素の除去率

(1)で調製した標識セルロースを110°Cのガス気流中で乾燥・熱処理した後、セルロース中の残留トリチウムを測定して求めた。

結果

Fig. 1に、pH = 6.2でセルロースを室温および92°Cのトリチウム水に浸した日数と、トリチウムと交換したセルロース中の水素原子の割合との関係を示す。セルロースの10個の水素原子のうち3個がOH-水素なので、縦軸の30%という値は、OH-水素の全てがトリチウムと交換したことを意味する。この図から、トリチウム水からセルロース方向へのトリチウムの交換反応は、6時間以内に約10.5%の交換が完了する早い交換過程と、2日後からゆっくり進行する遅い交換過程の2段階から成っていることがわかる。遅い交換過程では、温度により交換速度に違いがみられ、交換したセルロース中の水素原子の割合は、室温では、3年間経過してもほとんど変化せず約10.5%であるのに対し、92°Cに加温すると、3週間後には全水素原子の20%，すなわち、OH-水素の3分の2の交換が起きている。これに対し、セルロースから水方向へのトリチウムの交換速度は、非常に

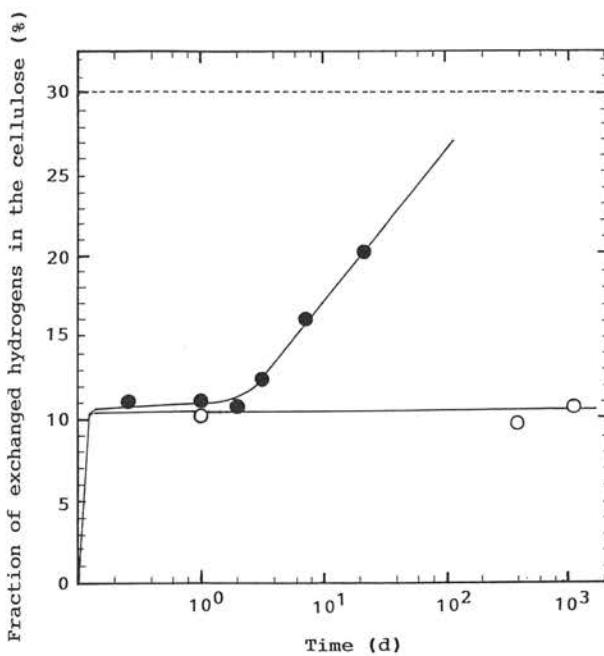


Fig. 1 Effects of temperature and time on the exchange reaction of tritium between cellulose and tritiated water,
● : 92°C, ○ : room temperature, pH = 6.2

速く、セルロース中のトリチウムの全ては1時間以内に溶出した。このように、2方向のトリチウムの交換挙動が異なるのは、セルロースを長時間高温水に浸すと、交換性の乏しいOH-水素のうちの一部が交換可能なOH-水素に変わるためにと考える。

Table 1は、セルロース中の交換性の高い水素原子のうち110°Cのガス気流中での乾燥・熱処理によって除去される割合を、標識セルロース中の残留トリチウム量から求めた結果である。セルロース中のトリチウムは、酸素及び水が供給されない条件(No. 2)では、ほとんど除去されないが、それ以外の条件では除去され、特に、水が存在する場合(No. 1)と、酸素とCuOが共存する場合(No. 7とNo. 10)では、除去率が高い。これは、前者は水の水素原子との同位体交換、後者は酸素によるセルロースの脱水が関与していると考える。

これらの知見から、樹木の生育温度では、樹木年輪セルロース中の全水素原子のうちの約10.5%が、年輪形成後に水の水素原子と同位体交換した可能性があるが、樹木年輪セルロース中のトリチウムの定量の際には、セルロースを燃焼する前にNo. 10の条件で乾燥・熱処理を行って、上記の交換性の高い水素原子を除去すれば、測定値に及ぼす影響を無視できるとの結論を得た。

Table 1. Extent of eliminated tritium from the cellulose labelled with tritium and fraction of remaining labile hydrogens to total hydrogen atoms in the cellulose following heat-treatment at 110°C.

Sample ^{a)}	Condition of heat-treatment	Eliminated tritium, (%)	Remaining labile hydrogens, (%)
1	wet N ₂ , 2h	96	0.4
2	dried N ₂ , 6h	1	11.0
3	dried N ₂ , 2h	76	2.7
4	dried N ₂ , 2h with Cu ₂ O	42	6.4
5	dried O ₂ , 2h	41	6.5
6	dried O ₂ and N ₂ (1:1), 2h	53	5.2
7	dried O ₂ and N ₂ (1:1), 2h with CuO	82	2.0
8	dried O ₂ and N ₂ (1:1), 2h with Cu ₂ O	66	3.7
9	dried O ₂ and N ₂ (1:1), 6h	73	3.0
10	dried O ₂ and N ₂ (1:1), 6h with CuO	99	0.1

a): All samples were prepared by equilibration with tritiated water at room temperature for 3 years.
The value of the fraction of labile hydrogens was 11.1% for a standard sample without heat-treatment.

人体組織中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po濃度(2)－突然死群と病死群の比較

Concentrations of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in Human Tissues

- Comparison of Sudden Death and Death from Sickness -

日本人の²¹⁰Pbと²¹⁰Poの吸入や経口摂取にともなう内部被ばく線量を推定することを目的に、人体組織中のこれらの核種を測定している。このような研究においては、正常人の突然死の組織がベストであるが、試料収集の困難さもあって、これまで測定例を増やすことを目的に病死(主に癌)の組織も測定してきた。今回、測定数も大幅に増加したので、病死群($n = 24$)と突然死群($n = 17$)に分けて組織中の²¹⁰Pbおよび²¹⁰Po濃度の検討を試みた。

方法

分析試料は、秋田県および新潟県で解剖時に年齢、性別、死因の記録と共に入手したもので、年齢層は19-85才である。喫煙歴は調査できず不明である。²¹⁰Pbは、試料10-50 gに²⁰⁹Poトレーサーを添加し、湿式灰化後0.5 M HCl溶液として銀板上にPoを析出させ、 α 線スペクトロメトリーにより定量した。一方、²¹⁰Pbは、²¹⁰Po析出後の溶液を数ヶ月放置し、この間に²¹⁰Pbから成長した²¹⁰Poを同様に分析・測定することにより間接的に評価した。

結果と考察

Fig.1に、病死群と突然死群に分けて人体組織中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po濃度を比較した結果を示す。両群の各組織中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po濃度をU-検定(危険率5%)したところ、²¹⁰Pbは筋肉のみで、²¹⁰Poは肝臓、腎臓、筋肉で有意差が認められた。この原因については、食事内容の違いや投薬による非生理的な代謝の差が大きく影響しているものと考える。結果として、人体組織中の²¹⁰Pbや²¹⁰Po濃度の分布さらに身体負荷量などの評価にはこのような病死群の組織を用いることは非常に危険である。Table 1に、上記の検定で有意差のない組織については両群合わせた平均を、一方、有意差のある組織については突然死群のみの平均を用いて試算した²¹⁰Pbと²¹⁰Poの組織別含有量とその割合(%)および身体負荷量を示した。このデータを見る限り、日本人の肝臓での²¹⁰Po量が約24%と諸外国の通常地域の人々の値4~9%と比べて特に大きい値になっている。これは一つには、骨(skelton)の値として、今回胸骨(ParfenovおよびLadinskayaらのデータによると胸骨の²¹⁰Pbと²¹⁰Po濃度は、脊椎や大たい骨の値の約1.5倍低い)の値を用いているために、過大評価になっている恐れもあるが、仮に1.5倍した値を骨中²¹⁰Po濃度として用いても約19%となおも高い値になる。このことは、日本人が²¹⁰Po濃度の高い海産物を諸外国とくらべて多量に摂取していることに関係しているかもしれない。いずれにしても、平均的な骨中濃度を早急に求めることが今後の研究課題である。

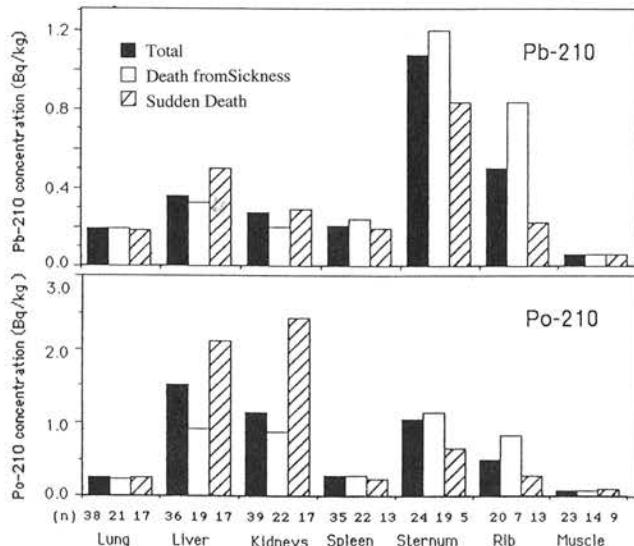


Fig. 1 Comparison of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po concentrations (median) in two groups.

Table 1. Calculation of the total ²¹⁰Po and ²¹⁰Pb concentration of the individual organs and human body as whole.

Organs	ICRP Ref. Man (kg)	Concentration (Bq/kg.wet)		Total content	
		Po-210 (Bq)	Pb-210 (Bq)	Po-210 (%)	Pb-210 (%)
Skeleton*	10.0	1.17	1.26	11.7	49.5
Liver	1.8	3.11	0.54	5.60	23.7
Kidneys	0.3	2.67	0.34	0.80	3.4
Lungs	1.0	0.31	0.21	0.31	1.3
Spleen	0.2	0.29	0.24	0.06	0.2
Pancreas	0.1	0.23	0.18	0.02	0.1
Muscles	28.0	0.08	0.07	2.24	9.5
Blood	5.5	0.10	0.16	0.56	2.4
Others*	23.1	0.10	0.16	2.36	9.9
Total	70.0			23.6	100
				20.6	100

*: Po-210 and Pb-210 contents in skeleton and others were assumed equal to sternum and blood, respectively.

人事

《施設職員》	
施設長(併) (教授)	上野 馨
教 授	上野 馨
客員教授	橋本哲夫 (新潟大学理学部教授)
客員教授	平良初男 (琉球大学理学部教授)
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

《運営委員》

(任期 平成3年5月～平成5年5月)	
理 學 部	小 西 健 二
醫 學 部	久 田 欣 一
藥 學 部	二 隆 堂 修
工 學 部	山 本 善 一
教 育 部	泉 長 秀
教 養 部	池 田 修
医 療 技 術 部	安 東 醇

新規購入設備

マルチプレクサ・ルーター TENNELEC TC-306 (2台)
 増幅器 TENNELEC TC-244
 高圧電源 TENNELEC TC-952
 コンピュータ Macintosh Power Book 170
 リムーバブルハードディスク ヤノ電器(株)
 カラーディスプレイ NANAOS 9500 US
 無停電電源装置 サンケン電気 MPS-500NH

使用量

液 体 窒 素	6,800 liters
A 重 油	2,221 liters
電 気	142,478 KWH
水 道	1948 m ³

研究論文

- M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Chatani, S. Igarashi, K. Komura, K. Ueno and M. Sakanoue : Distribution of Global Fallout Np-237, Pu Isotopes and Am-241 in Lake and Sea Sediments, J. Radioanal. Nucl. Chem. Articles, **147** (1), 165-176 (1991).
- H. Kawamura, M. Yamamoto, Y. Igarashi, K. Shiraishi and K. Ueno : Naturally Occurring Ra-226 Concentrations in Bone at Various Ages and α Doses in Adults, Health Physics, **61** (5), 615-622 (1991).
- L. Sha, M. Yamamoto, K. Komura and K. Ueno : Pu-239,240 Am-241 and Cs-137 in Soils from Several Areas in China, J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters, **155** (1), 45-53 (1991).
- M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Komura, K. Ueno and D. J. Assinder : Chemical Leaching Behavior of Np-237 from Intertidal Coastal Sediment in the Irish Sea, J. Radioanal. Nucl. Chem. Letters, **154** (5), 299-307 (1991).
- D. J. Assinder, M. Yamamoto, C. K. Kim, R. Seki, Y. Takaku, Y. Yamauchi, K. Komura, K. Ueno and G. S. Bourne : Neptunium in Intertidal Coastal and Estuarine Sediments in the Irish Sea, J. Environ. Radioactivity, **14**, 135-145 (1991).
- M. Yamamoto, K. Kawamura, Y. Igarashi, K. Shiraishi and K. Ueno : Measurement of Low-Level Ra-226 in Human Bone by Using Ra-225 Tracer and Alpha-Spectrometry : Approach without Use of Ba Carrier, Radiochimica Acta, **55**, 163-166 (1991).
- C. K. Kim, R. Seki, S. Morita, S. Yamasaki, A. Tsumura, Y. Takaku, Y. Igarashi and M. Yamamoto : Application of a High Resolution Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometer to the Measurement of Long-lived Radionuclides, J. Analytical Atomic Spectrometry, **6**, 205-209 (1991).
- K. Komura, K. Uchida, M. Yamamoto and K. Ueno : Pb-210 and Po-210 from Active Volcanoes in Japan, The Third International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research - Global Environment and Nuclear Energy -, March 13-15 1991, Mito Ibaraki, Japan, pp. 68-75 (1991).
- S. Kobayashi, K. Fujimoto, T. Iwasaki, M. Uchiyama, Y. Nakamura, M. Doi, T. Tsuchiya, S. Sawada, A. Takeda, T. Mori, T. Aoyama, H. Yonehara, M. Sakanoue, K. Ueno, M. Yamamoto, F. Sato and H. Amano : Nation-Wide Survey of Indoor Radon Concentration in Japan, The Third International Symposium on Advanced Nuclear Energy Research - Global Environment and Nuclear Energy-, March 13-15 1991, Mito Ibaraki, Japan, pp. 63-67 (1991).
- 小村和久 : 放射能と縞模様, 地球, **13** (7), 480-498 (1991).

報告

- 久松俊一, 大村外志雄, 滝澤行雄, 勝又貞一, 井上義和, 酒 幹夫, 上野 馨, 阪上正信 : 食品から人体へのトリチウムの移動とリスクの評価, 平成元年度文部省科学研究費エネルギー特別研究(核融合)研究成果報告書「トリチウム水の個体レベル代謝とモニタリングに関する研究」, pp. 20-25 (1990).
- 上野 馨, 藤根幸雄, 久保田益充, 吉田善行 : 再処理・群分離の化学, 平成2年度文部省科学研究 総合研究(A)研究成果報告書「核燃料サイクルバックエンドにおける基礎化学的研究」 pp. 42-57 (1991).

総説

- 山本政儀 : 長半減期核種: 放医研環境セミナーシリーズ, No. 17, 岩倉哲男, 稲葉次郎編, 「環境モニタリングの今日説的意義」, 放射線医学総合研究所発行, pp. 105-116 (1991).
- 小村和久: 低レベル放射能研究室からの手紙, 日本分析センター広報 **19**, pp. 2-13 (1991).

平成3年度 見学來訪・調査出張の記録

- 平成3. 4.23 日本グレーン研究所岡田昭次郎氏研究打ち合せ
 6.17 岡山理科大学理学部講師蜷川清隆氏, 松隈泰之氏, 中村啓作氏, 研究打ち合せ
 6.17-20 秋田大学医学部阿部 享氏測定のため来所
 6.20, 6.26, 8.30, 9.27, 10. 2, 平成4.2.10
 北陸大学放射薬品学助教授山田芳宗氏測定のため来所
 7. 5 ◎ 平成3年度第1回運営委員会(於理学部)
 新潟大学理学部教授(LLRL客員教授)橋本哲夫氏, 琉球大学理学部教授(LLRL客員教授)
 平良初男氏研究打ち合せ
 7.16 福井県衛生研究所早川博信氏研究打ち合せ
 7.17 北陸電力上沢敏男氏, 奥谷外喜雄氏, 石田敏幸氏研究打ち合せ
 7.20, 9.12, 11.28, 4.1.10
 金沢大学名誉教授阪上正信氏研究打ち合せ
 8.12 富来町役場総務課長土田勇二氏研究打ち合せ
 8.22 理学部長木村 實教授視察
 8.27 小村助教授福井大学教育学部にて集中講義
 8.28 福井大学教育学部理科専攻3, 4年生14名実習のため来所
 9.12 名古屋大学工学部飯田孝夫氏, 学生4名研究打ち合せ
 9.13 北陸電力原子力本部清水昌夫氏研究打ち合せ
 9.19-21 動力炉核燃料開発事業団圓尾好宏氏研究打ち合せ
 東電環境エンジニアリング菅野健司氏, 大森洋司氏見学
 9.24, 9.27, 9.28, 10. 3, 10. 8
 文学部教授守屋以智雄氏, 学生2名実験のため来所
 9.25 石川県環境部吉田 弘氏, 樹田武史氏研究打ち合せ
 10. 5 通商産業省金沢支所検査課山内喜通氏研究打ち合せ
 10. 8 国立予防衛生研究所歯科衛生学部樋出守世氏研究打ち合せ
 10. 8 田鶴浜町役場総務課長水野宇太郎氏研究打ち合せ
 10.17- 平成4. 5.15
 山本助手ドイツ(GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit, Institut für Strahlenschutz, Neuherberg)へ留学
 11.18 北陸電力奥谷外喜雄氏, 古谷俊直氏研究打ち合せ
 11.18 理学部化学科3年生30名見学
 11.29 医療技術短期大学学生40名見学
 12. 1 根本特殊化学矢島 充氏研究打ち合せ
 12.12, 4. 2.17
 石川県衛生公害研究所部長矢鋪満雄氏, 間 幹夫氏研究打ち合せ
 12.21 石川県衛生公害研究所部長矢鋪満雄氏, 牛島 茂氏研究打ち合せ
 平成4. 1. 7 ◎ 平成3年度第2回運営委員会(於理学部)
 3. 5-6 岡山県環境保健センター片岡敏夫氏研究打ち合せ
 3. 6 東京大学アイソトープ総合センター遠藤正志氏見学
 3. 9 福井県衛生公害研究所主任研究員吉岡満夫氏特別講演
 3.18 動力炉核燃料開発事業団圓尾好宏氏研究打ち合せ
 東電環境エンジニアリング井手義彦氏, 島津 浩氏見学

低レベル放射能実験施設 平成3年度研究概要・年次報告 1992年10月31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