

# 低レベル放射能実験施設

## 研究概要・年次報告

1992.4～1993.3

Annual Progress Reports of  
Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

### 目 次

青年期を迎えて（理学部長）	2
尾小屋地下測定室の進捗状況と建設予定地の <sup>222</sup> Rn の測定	3
γ線検出器のバックグラウンド低減	4
エンドキャップ改造によるGe-LEPS のバックグラウンド低減	6
日常食を通じての <sup>210</sup> Po と <sup>210</sup> Pb の摂取量	7
日本人の歯牙中の <sup>226</sup> Ra 濃度	8
Sellafield 核燃料再処理工場からの <sup>237</sup> Np 及び <sup>238</sup> Pu の年間放出量の推定	10
高分解能 ICP-MS による極微量 <sup>237</sup> Np の定量	12
水田土壤の <sup>237</sup> Np 蓄積量の時間的推移	13
リチウムの <sup>6</sup> Li (n, α) T 反応によるリチウムの定量とその応用・第5報	14
平成4年度・施設設備品・運営人事関係諸資料・研究報告	15
平成4年度・会合・調査出張・見学来訪記録等	16

## 青年期を迎えて

理学部長・施設運営委員会委員長 小西 健二

本年5月上梓の「金沢大学理学部白書“教育の現状と展望”Vol. 1」で9ページにわたり記されている低レベル放射能実験施設の過去5年間の活動状況と、昭和63年刊の創立10周年記念誌(LLRL-PR-1)に収められた開設後10年間の活動記録とを併読すると、施設の創設時に培われた方針を継承・推進しつつ新しい方向を模索する、上野先生はじめ施設職員の皆様の御苦労のほどがよくわかり、その御努力に心から感謝と声援を贈ります。

四十年半ばの大学・学部が誕生以来最大の変革期にある昨今、未成年の若さに漲る施設は、好機至れりと、小委員会の許、次なる発展への実施案の策定に活発な討議を進めていると伺い、理学部としてもその実現化にむけ万全の協力を約すとともに、結論の行手を見守っております。順調に成長を遂げた青年期に相応しい新鮮で現実的な方針と、それを支える設備と組織が必要なことでしょう。

長年にわたり化石の放射年代や表層海水組成の経年変動に関する共同研究を通じて施設を利用してきた一人として、高い精度をもとめ観測機器が放射性炭素測定はタンデトロン加速器、ウラン・トリウム測定は超高感度固体質量分析器へと置き換わる事態を前に、放射能研究のハードウェアの補強も不可欠かと愚考しております。

理学部のみならず金沢大学の顔として重要な役割を演じてきた施設が、客員・研修員・大学院をさらに活用・拡充され、研究発表会なども常時開催するなど、地域社会の環境問題のよき助言者として機能するとともに、内外の環境放射能研究者の育成交流のための世界に誇る研究組織として活躍されることを切に期待しております。



インドネシアからの留学生シャルバイニ氏  
(修士課程)



尾小屋地下測定室入口 電源設備の設置により長時間にわたるラ  
ドンと風速の同時測定が可能になった

## 尾小屋地下測定室の進捗状況と建設予定地点の $^{222}\text{Rn}$ の測定

### Progress of Ogoya Underground Laboratoy and Measurement of $^{222}\text{Rn}$ in the Tunnel

石川県小松市の旧尾小屋鉱山跡のトンネルに建設を計画している地下測定室 (LLRL-AR-15, p. 3; LLRL-AR-16, p. 3 参照)の昨年から今年にかけての進捗状況とトンネル内での $^{222}\text{Rn}$ の測定結果を報告する。

#### [進捗状況]

92年 5月	トンネル内の通路の整備、地下水、岩石当の採取測定と宇宙線減衰の測定
92年 10月	第35回放射化学討論会 (都立大学) で尾小屋での研究成果を報告
92年 11月	渋谷工業からの奨励金をもとにトンネル内へ配電。当面 40 A 間での設備で稼働
	7.6cmφ x 7.6cm NaI(Tl) 検出器による宇宙線減衰の測定
92年 12月	Pylon AB-5 型ラドンモニターによる坑内 $^{222}\text{Rn}$ の測定開始
92年 3月	地球化学研究所からの研究奨励金をもとに風速計 (KANOMAX 製 Model 6621) 購入
	坑内での風速と $^{222}\text{Rn}$ の同時測定開始

なお、トンネル内に予定しているプレハブ小屋については中島工務店 (岐阜県) より寄付の申し出があり、次年度当初に設置することになった。

#### [トンネル内の $^{222}\text{Rn}$ ラドンレベルの測定]

空気中の $^{222}\text{Rn}$ は放射線測定のさいのバックグラウンドとして寄与するため、極低レベル放射能測定では $^{222}\text{Rn}$ の影響は無視できない。そこで、トンネル内の $^{222}\text{Rn}$ の濃度レベルを測定しその変動とトンネル内の空気の流速との関連について調べた。

測定は、入口から 290m の最も土被りの厚い地下測定室建設予定地点で行った。 $^{222}\text{Rn}$ の測定には Pylon 社製 CPRD (Continuous Passive Radon Detector) 型 Lucas Cell を用い、計数の記録は AB-5 型の携帯型ラディエーションモニタで行った。この検出器は、自然換気で CPRD 内に入ってきた $^{222}\text{Rn}$ の娘核種が放出する $\alpha$ 線を内側に塗布した ZnS(Ag) で検知する方式である。風速と風温は KANOMAX 製 MODEL 6621 型風速計を用いた。 $^{222}\text{Rn}$ は 30~60 分、風速は 5~10 分間隔で、1~3 日間の測定を繰り返した。

測定を 3月末から 6 月のトンネル内の $^{222}\text{Rn}$ は最大 89 Bq/m<sup>3</sup>、平均 19 Bq/m<sup>3</sup>であり、トンネル内の $^{222}\text{Rn}$ 濃度としては非常に低いことが分かった。測定例を Fig. 1 に示す。 $^{222}\text{Rn}$ 濃度が低いのはトンネルの長さが 546m と短くて外気との換気による希釈があるためと思われる。 $^{222}\text{Rn}$ 濃度と風速には逆相関があることが分かったので、極端に高い場合と低い場合の 2 点を除いて $^{222}\text{Rn}$ 濃度の逆数と風速の相関をとったところ、相関計数 0.83 という高い値が得られた。このことは、トンネル内の $^{222}\text{Rn}$ の大部分がトンネル内で生成したもので、外気による希釈効果が支配的で外気の $^{222}\text{Rn}$ の寄与は比較的小ないと考えられる。トンネル内の $^{222}\text{Rn}$ の変動を計算で再現するため、名古屋大学が辰口で連続測定をしている屋外の $^{222}\text{Rn}$ 濃度の変動を尾小屋の外気にあてはめ、トンネル壁からの $^{222}\text{Rn}$ 散逸率を一定として風速をパラメータとするシミュレーションを試みている。

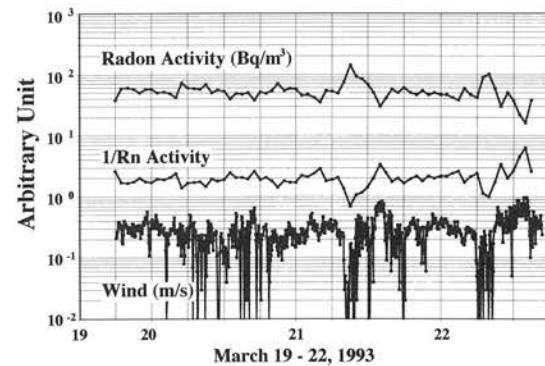


Fig. 1 Concentration of radon and wind speed in Ogoya Tunnel.

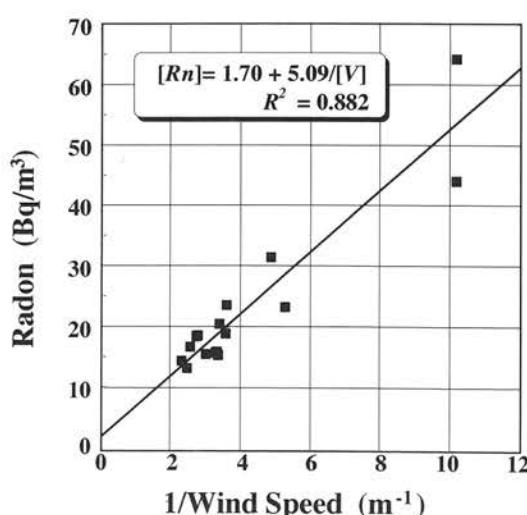


Fig. 2 Correlation between radon and wind speed.

[本研究は主として大学院生渡口輝が行った。電源設備は渋谷学術文化スポーツ振興財団からの奨励金を、風速計の購入には地球化学研究所からの奨励金を使用した。 $^{222}\text{Rn}$ 測定器は N I ハイテック社より借用した。]

## γ線検出器のバックグラウンド低減

### Background Reduction of Gamma-Ray Detectors

#### (1) 遮蔽材の選択及び遮蔽条件の改善によるγ線検出器のバックグラウンド低減

市販の「低バックグラウンド」放射線検出装置は、期待した程バックグラウンドが低くないものが多い。究極までバックグラウンドを下げるには、検出器の構成材料に至るまで吟味が必要であり、地下測定室の利用も考慮しなければならないが、遮蔽体の改善と遮蔽材の選択によってバックグラウンド計数を大幅に低減出来る。

#### [遮蔽効果の判定]

遮蔽の改善の判定は(1)測定領域の全計数率と(2)ウラン系列、トリウム系列核種および<sup>40</sup>Kのピーク計数率の減少の度合いを基準にした。

NaI(Tl) 検出器と通常のGe検出器では<sup>208</sup>Tlからの2614 keV以上の高エネルギーのγ線を測定することがほとんどないので 100 - 2700 keV 領域の全計数率を、また Ge-LEPS 等の低エネルギーγ線検出器では 10 - 400 keV 領域の全計数率を指標にした。

エンドキャップ等の検出器構成材にはウラン系列やトリウム系列核種がかなり含まれており、遮蔽体内のラドンの寄与もあるので、外部からのγ線に対する遮蔽効果の指標としては<sup>40</sup>Kの1461 keV γ線が適している。検出器構成材の汚染を評価するにはウラン系列核種由来の186 keV (<sup>235</sup>U, <sup>226</sup>Ra), 295 keV, 352 keV (<sup>214</sup>Pb), 609 keV, 1764 keV (<sup>214</sup>Bi), トリウム系列核種由来の239 keV (<sup>212</sup>Pb), 583 keV (<sup>208</sup>Tl), 911 keV (<sup>228</sup>Ac), 2614 keV (<sup>208</sup>Tl) のピーク計数率の減少が参考になる。このさい、ピーク計数率をγ線の放出率で割った「見かけの検出効率曲線」を取れば、系列核種の平衡状態や存在場所についての大まかな情報が得られる。

低エネルギーγ線検出器では46.5 keV (<sup>210</sup>Pb), 63.2 keV 及び 93 keV (<sup>234</sup>Th = <sup>238</sup>U), 186 keV (<sup>226</sup>Ra, <sup>235</sup>U), 239 keV, 295 keV, 352 keV のピーク計数率が指標となるが、検出器の窓やエンドキャップの材料の汚染も一般に大きいためこれらを交換しない限りバックグラウンド計数の低減には限界がある。

#### [遮蔽材]

放射線遮蔽材として「陸奥」鉄の神話」がある。しかし「陸奥」の鉄材は<sup>60</sup>Co の心配はないものの U, Th 濃度が特に低いとは言えず、他の材料ではあるかに安価で性能のよい遮蔽を組むことができる。

Table 1 に市販の鉛試料と旧金沢城内の建物に使われていた古い鉛の測定結果を示す。鉛中の放射性不純物は46.5 keV の低エネルギーγ線放射体の<sup>210</sup>Pb がほとんどであり測定しにくいので<sup>210</sup>Pb のピークの代わりに娘核種<sup>210</sup>Biからの高エネルギーβ線( $E_{\beta\max} = 1.3$  MeV) 由来の制動放射線の寄与を判定材料とした。これから分かるように鉛インゴットの<sup>210</sup>Pb 濃度は試料によって数桁も違うことがあり、遮蔽用の鉛を購入するさいに十分確認しておく必要がある。金沢城内の鉛は試料を置かない時より低いバックグラウンドを与えることからも分かるように、<sup>210</sup>Pb 濃度の高い通常の鉛の内側に 2.5 cm の「きれいな鉛」を置くことで<sup>210</sup>Bi の寄与を十分抑えることが可能である。安価な通常の鉛と、「きれいな鉛」の組み合わせで遮蔽体を組めば、高価な鉄材や「価格の高い中程度」の鉛で全体を構成するよりも、ずっと安価で低バックグラウンドのシステムを作ることが可能である。

7.6 cmφ × 7.6 cm の NaI(Tl) 検出器を用いて市販の鉛 10 cm の基本遮蔽の内側に 2 - 5 cm 厚の高純度材を遮蔽に用いた時のバックグラウンド計数を Table 2 に、そのγ線スペクトルを Fig. 1 に示す。この図から 1 MeV 以下の領域が最も顕著に変化し、古い鉛 > 水銀 >> 無酸素銅 = 真鍮の遮蔽効果が大きいことが分かる。

Fig. 1 Background spectra of 7.6 cmφ × 7.6 cm NaI(Tl) detector under various shielding conditions.

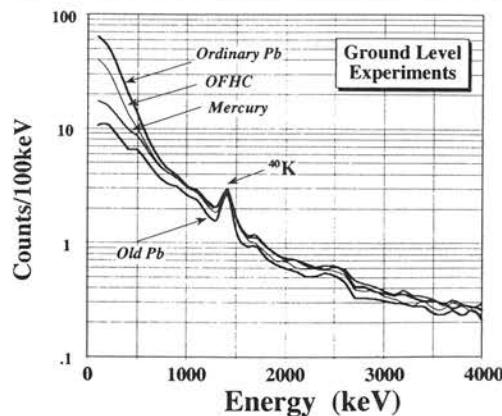
Table 1. Background activity of old lead, mercury and commercial lead.

Shielding Condition	Energy Region (keV)	
	50-500 (net cpm)	50-2650 (net cpm)
Old Pb	-0.94	-1.75
Hg	-0.74	-1.73
No Sample	0.00	0.00
Pb-1a	1.80	1.39
Pb-1b	2.12	2.23
Pb-2	6.80	6.32
Pb-3a	33.00	33.52
Pb-3b	33.33	34.11

\* about 600g of sample was measured.

Table 2. Background count rates of 7.6 cmφ × 7.6 cm NaI(Tl) detector under various shielding conditions.

Shielding Condition	0.1-2.7 MeV (cpm)	Relative (%)
10 cm Pb (Original)	219.94	100.0
10 cm Pb + 2.5 cm Brass	158.07	71.9
10 cm Pb + 2.5 cm Cu	157.58	71.6
10 cm Pb + 2.0 cm Hg	74.48	33.9
10 cm Pb + 2.5 cm Old Pb	67.20	30.6
10 cm Pb + 5.0 cm Old Pb	66.58	30.3



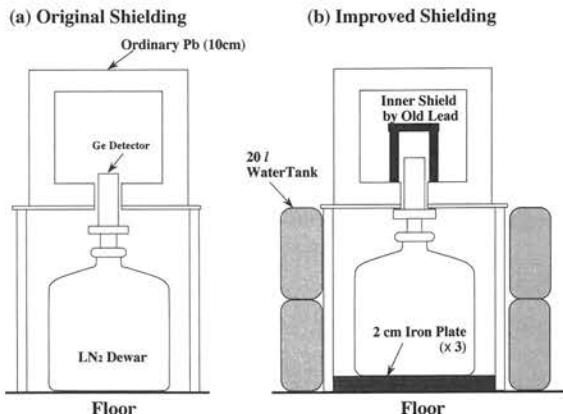


Fig. 2 Shielding conditions of Ge detector.

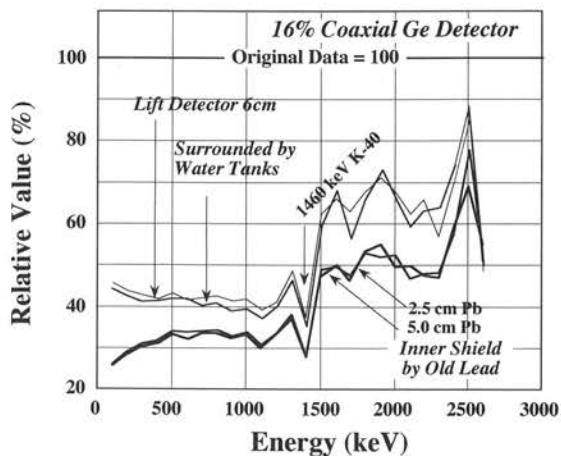


Fig. 3 Reduction of background continuum relative to original condition.

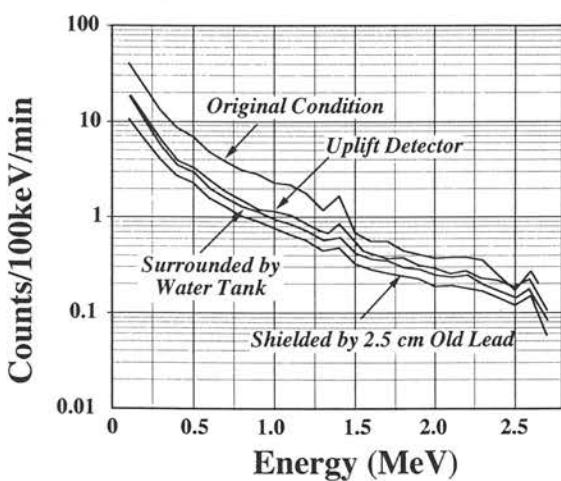


Fig. 4 Background spectra of a 16% Ge under various shielding conditions.

### [遮蔽体の構造]

遮蔽の弱い所が一箇所でもあればバックグラウンド計数に大きく寄与するので、検出器から見てどの方向も十分な厚さを確保することが遮蔽の基本である。

今回遮蔽の改善を行った検出器システムにはFig. 2 (a)に示すように底の部分に遮蔽のない「頭隠して尻隠さず」の状態のもので、さらにマリネリビーカーのように大きな試料を測定するための大きな空間を持ち、検出器ヘッドを遮蔽体の中に僅かしか入れていないものである。このため精選した遮蔽材を大量に使ってもバックグラウンドが減らないばかりか、遮蔽体内の空間のラドン（室内空気の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は一般に $10\text{--}20\text{Bq}/\text{m}^3$ ）の寄与が大きくて低レベル放射能測定器として実用にはならない。

この検出器の場合Fig. 2 (b)に示すように検出器の下に6cmの鉄板を敷いて検出器をぎりぎりの高さまで上げ、下方向からの $\gamma$ 線の入射立体角を大幅に減らすことによって大幅にバックグラウンドを低減できた。内側にさらに2.5cm厚の低バックグラウンド鉛を用いて検出器を囲む(5方向)ことでFig. 3, 4及びTable 3に示すようにバックグラウンドの大幅な低減が出来た。今回の改造によって最も効果的なエネルギー領域はFig. 3から分かるように1MeV以下の領域である。全体として $100\text{--}2700\text{keV}$ 領域の計数率は約1/4に、ピーク計数率では1461 keVのピークが改造前の1/26となった。

低エネルギー検出器では鉛のKX線(72–85 keV)領域も測定領域なので、鉛が直接検出器に面するような配置は勧められない。鉛のKX線を防ぐには原子番号の低い金属で内張りをすればよいが上で述べたように、原子番号の低い材料では、散乱線の吸収が十分出来ないので、厚すぎるとラジエーターの役割をしてバックグラウンド計数をかえって増加させるので、必要最小限の厚さにする必要がある。

Table 3. Reduction of gross and peak count rate of a 16% Ge by improvement of shielding condition.

Shielding Condition	0.1 - 2.7 MeV		K-40	
	(cpm)	(%)	(cpm)	(%)
Original	121.25	=100	0.805	=100
Uplift Detector	54.19	44.7	0.132	16.4
Inner Shield by 2.5cm Pb	35.71	29.4	0.078	9.6
use 6cm Fe Base	31.34	25.8	0.031	3.9

[本研究に当たって、当研究室の大学院生・渡口輝、理学部物理地学卒研生・向井真紀子のほか、琉球大学理学部、富山大学教養部、岡山理科大学理学部、大阪大学理学部の協力をいただいた。]

## エンドカップ改造によるGe-LEPSのバックグラウンド低減

### Background Reduction of Ge-LEPS by Replacement of End-Cup Materials

低エネルギー $\gamma$ 線測定用の検出器(Ge-LEPS)は $\gamma$ 線の透過率を確保するため入射窓にBe(原子番号Z=4)が使用されている。一般にBe金属中のU濃度は高く、特に精選したBeを使用しないかぎりバックグラウンドにかなり寄与する。小口径の検出器ではBeの量が少なくてあまり問題にならないが、大口径の検出器では、耐圧性を確保するために比較的厚いBeが使用されるので、 $^{234}\text{Th} (=^{238}\text{U})$ 由来の63keVと93keVのピークと $^{235}\text{U}$ 由来の186keVピークが顕著に現われ、微量のUの定量が著しく困難になる。対策として精選したBe材で窓を作り直すか低エネルギー $\gamma$ 線の透過を考慮して、原子番号が低くて強靭な材料に置き換えるのが有効である。

当施設には13年前に購入した45.3mm $\phi$  5mm (15cm<sup>2</sup>)のGe-LEPSが稼働しているが、Be中のU由来のバックグラウンドが高いため0.1ppm程度のUを含む試料では十分な測定精度が得られなかった。このためエンドカップの交換によるバックグラウンドの低減を試みた。

改善の要点は、(1) Be窓を黒色の強化プラスチック(FRP)に交換する、(2) Al製のエンドカップを無酸素銅(OPFHC-Cu)に交換する、の2点である。FRPはHeを僅かに透過させるので、これを抑えると共に輻射でFRP窓の温度低下がおこって結露するのを避けるためにFRP内面にAlを蒸着した。

Fig.1に改善前と改善後のバックグラウンドスペクトルを示す。遮蔽は10cmの普通鉛の内側に全ページに紹介した古い鉛2.5cmを配置したもので、鉛のKX線カットのため0.5mm厚のCdを用いた。今回の改善によって63keVは1/13.6、93keVは1/9.4に、186keVのピークは1/5.0と大幅に低減した。この他238keVのピークや46.5keVのピーク計数率もか低減することができた。また、10-400keV領域の全計数は約1/2になった。これらは地上レベルでの測定であり、宇宙線の寄与が少ない地下では1/10以下まで低減できると予想される。

窓材をBe(Z=4)からC(Z=6)に変えたことによる検出効率の低下が懸念されたが、今回の改造によって窓とGe結晶の距離が近づいたためか $^{210}\text{Pb}$ の46.5keV $\gamma$ 線の効率は返って高くなった。

この結果、ウランの検出限界は大幅に改善され、0.1ppm程度のウランの定量が可能となった。これにより化石珊瑚の非破壊年代測定の精度の向上と測定時間の短縮を実現した。

Table 1. Reduction of background count of a Ge-LEPS.

Assign	Energy (keV)	Original (cpm)	Repaired (cpm)	Improved Ratio
Gross	10 - 400	14.5	7.78	1.9
Pb-210	46.5	0.026	0.005	5.1
Th-234	63.2	0.197	0.014	13.6
Th-234	92.8	0.312	0.033	9.4
U-235	185.7	0.065	0.013	5.0
Pb-212	239.6	0.036	0.014	2.6

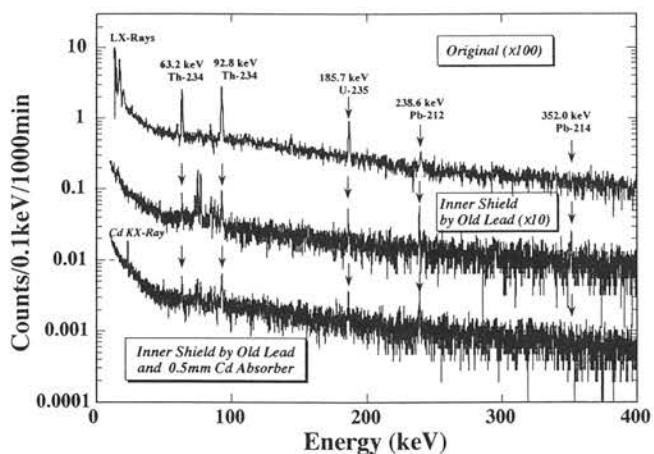


Fig. 1 Background spectra of a Ge-LEPS before and after replacement of end-window and end-cup.

[Ge-LEPSの窓の交換とエンドカップ作成は仁木工芸で行なった]

## 日常食を通じての<sup>210</sup>Poと<sup>210</sup>Pbの摂取量

### Intake Levels of <sup>210</sup>Pb and <sup>210</sup>Po through Daily Diet.

<sup>210</sup>Pb ( $T_{1/2}=22.3$ y,  $\beta^-$ )と<sup>210</sup>Po ( $T_{1/2}=138.38$ d,  $\alpha$ )は、ウラン(<sup>238</sup>U)系列の末端に位置する放射性核種である。環境中には、<sup>210</sup>Pbと<sup>210</sup>Poの対で岩石、土壌、水中に、あるいは土壤表面から揮散したラドン(<sup>222</sup>Rn)の娘核種として大気中に広く分布・存在している。

食品の摂取は、<sup>210</sup>Pbと<sup>210</sup>Poが人体に入る最も重要な経路である。一般に<sup>210</sup>Pbと<sup>210</sup>Poの濃度は、肉や乳製品では低く、穀類と野菜は中間で、海産物は高いことが知られている。我が国では、海産物の消費割合が多いので、欧米諸国と比べて<sup>210</sup>Pbと<sup>210</sup>Poの摂取量が大きいことが予想でき、また指摘もなされているが、測定データは少なく不明な点が多い。1988年の国連科学委員会報告によれば、<sup>210</sup>Poは<sup>210</sup>Pb - <sup>210</sup>Bi - <sup>210</sup>Poシリーズによる内部被曝線量の大部分を占め、自然放射線源からの内部被曝線量の中でラドン(<sup>222</sup>Rn - <sup>214</sup>Po), <sup>40</sup>K, トロン(<sup>220</sup>Rn - <sup>208</sup>Tl)に次いで寄与が大きい(約8%)核種である。

当研究室では日本人の<sup>210</sup>Pbと<sup>210</sup>Poの吸入や経口摂取にともなう内部被曝線量を推定することを目的に、これまでに人体組織(LLRL-AR-16, p.14), 大学病院の普通給食(LLRL-AR-15, p.10), 海産物(LLRL-AR-15, p.11)などの試料についてこれらの核種の測定を行ってきた。1990年から県内の2町で陰膳方式によって日常食1日分を毎年各20世帯について2度収集した80試料、3年間で計240試料を対象に、<sup>210</sup>Pbと<sup>210</sup>Poの測定を行った。

今回は測定が終了した160試料(1990と1991年度の結果)についての結果を報告する。分析には、凍結乾燥試料約20gを用いた。<sup>210</sup>Pbと<sup>210</sup>Poの分析結果から求めた1人1日あたりの摂取量については、2町村での年度間および地域差は認められなかったので、全体として1つにまとめた結果をFig. 1およびFig. 2に示した。Fig. 1の<sup>210</sup>Po摂取量の分布を見ると大部分は1Bq/dより下にあるが、7Bq/dあるいはそれ以上と極めて大きく変動しており、<sup>210</sup>Po摂取量は、食事内容に大きく依存していることがわかる。一方、Fig. 2に示す<sup>210</sup>Pbについては、<sup>210</sup>Poほど大きな変動を示さず1Bq/d以下で、その全体の分布は比較的良好なポアソン分布をしている。

<sup>210</sup>Poと<sup>210</sup>Pb摂取量の幾何平均は、暫定値ではあるがそれぞれ約200mBq, 600-700mBqと見積もられる。このようなデータは、これまで報告してきた国内のデータとも大きく矛盾しない。日本人の<sup>210</sup>Pbと<sup>210</sup>Po摂取量の代表的な値を評価するためには、食品中のこれら核種の濃度が空間的、時間的に非常に変動が大きいことなどを念頭におきながら、今後ともデータ取得のための測定を積み重ねていく必要がある。

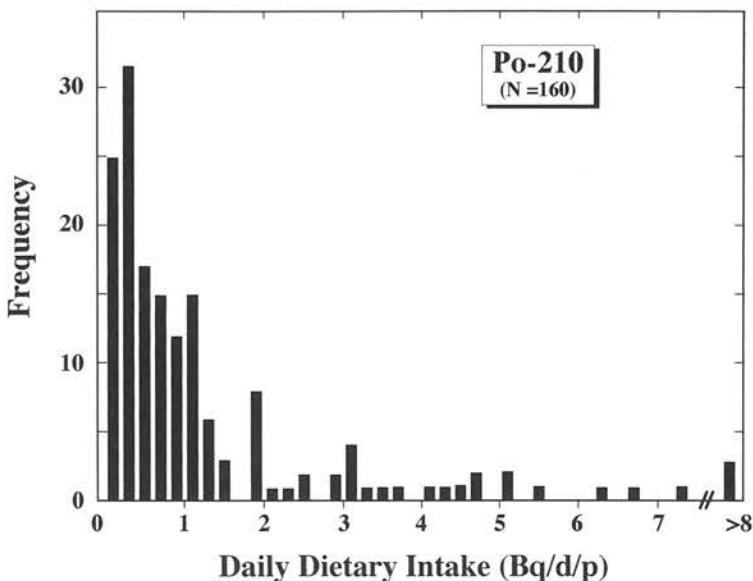


Fig. 1 Daily dietary intake of Po-210 in Ishikawa Prefecture.

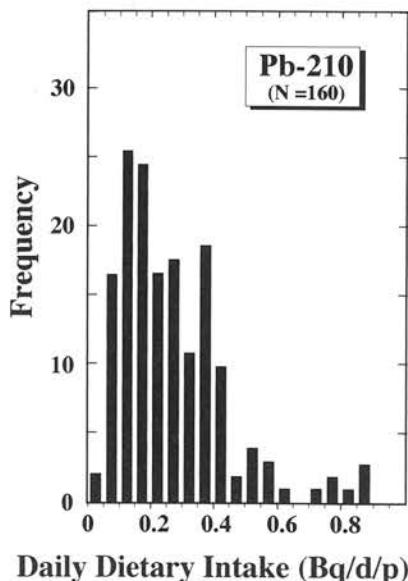


Fig. 2 Daily dietary intake of Pb-210 in Ishikawa Prefecture.

## 日本人の歯牙中の<sup>226</sup>Ra濃度

### Concentration of <sup>226</sup>Ra in Teeth of Japanese

#### [はじめに]

半減期1,600年の $\alpha$ 線放射体の<sup>226</sup>Raは、骨親和性の代表的な核種として重視され、その研究は世界各国で広範に行われてきた。しかし、本邦においては、試料収集の困難性もあって骨中の<sup>226</sup>Raのデータは極めて少ない。最近我々は、東京で1981年から1987年にかけて収集した骨(主としてvertebra)試料約100検体について<sup>226</sup>Raを分析[LLRL-AR-14, p. 4]したが、<sup>226</sup>Ra濃度と年齢との関係や地域差など、なお検討すべき多くの課題がある。

骨はリン酸カルシウム(アバタイト結晶)を主体とする石灰化組織であり、骨が形成されるさいに、Caと同じアルカリ土類金属に属するRaが、類似の化学性のゆえにCaの代謝にともなって骨中に蓄積する。したがって骨と同じようなリン酸カルシウムを含む石灰化組織の歯にも<sup>226</sup>Raが取り込まれると考えられる。歯牙では、いったん形成が完了するとそれ以後はほとんど代謝がないため、Sr(<sup>90</sup>Sr)はそのまま歯質中に蓄積されるといわれている。それ故、もし歯牙中の<sup>226</sup>Raが骨とほぼ同じレベルで存在しているなら、歯牙中の<sup>226</sup>Raの分析によって人体中のCa源として大きな寄与をしている骨中<sup>226</sup>Raの分布や生体負荷量などの推定が可能となる。本研究では、このような観点に立って、骨と違って収集が比較的容易である歯牙中の<sup>226</sup>Raを測定することにし、歯種、抜歯年、地域差を検討すると共に骨中<sup>226</sup>Ra濃度との比較を試みた。

#### [実験方法]

試料は、国内各地の病院、診療所に依頼して収集した抜去歯牙(ドナーの生年、歯齢、部位、性別、抜歯年などが明らかなもの)である。付着物をスケーラーで除去した後、さらにサンダブラスターでガラスピースを6気圧で噴射して着色物を除去した。その後、1群16本以上の試料群では歯牙を長軸方向に頬舌的に二等分した。歯種、抜歯年ごとに半切した1群16-30本の歯牙を一まとめにして500-600°Cで灰化し、めのう乳鉢で歯牙を粉碎、53mmの篩を通過させたものを分析試料とした。

Raの分析には、試料約10gを用い、<sup>225</sup>Raを収率トレーサーとしてBaSO<sub>4</sub>共沈-陽イオン交換(CyDTA)- $\alpha$ 線スペクトロメトリーにより<sup>226</sup>Raを定量した[LLRL-AR-16, p. 6]。試料中のCaおよび一部の試料についてのMg、Sr、Baは島津ICPS-2000を用いて測定した。

#### [結果と考察]

永久歯は歯種によって形成時期および時間が異なるので、まず始めに、<sup>226</sup>Ra濃度の歯牙差と年齢差について検討した。東京で収集した歯牙について、同一の歯種ごとに10歳間隔でグループ分けした歯の結果をTable 1に示す。この表より、すべてのグループで平均約0.5mBq/g·Ca濃度の<sup>226</sup>Raが見い出され、年齢差や歯牙差がないことがわかる。第3大臼歯以外のすべての歯は、10歳までにはエナメル質が、15歳までには歯根の形成が完了するので、これらの歯種の<sup>226</sup>Ra濃度は形成完了後数十年経過したときの値を示している。

一方第3大臼歯においては、エナメル質の形成完了が12-16歳、口腔への出現が17-21歳、歯根の形成完了が18-25歳と言われており、他の歯と比べて形成時間が長い。10-19歳のグループの歯牙についての<sup>226</sup>Ra濃度は、この歯のエナメル質の形成時期の値を最も強く反映しているものであり、それ以降の年齢グループの<sup>226</sup>Ra濃度とほとんど変わらない。このような結果は、歯に取り込まれた<sup>226</sup>Raはいったん形成が完了するとそれ以後はほとんど代謝がないことを強く示唆している。

Table 1. Concentrations of Ra-226 in permanent teeth of different specimens and different age groups. Samples were collected from Tokyo.

Tooth type	Donor's age when the teeth were extracted					(mBq/g.Ca)
	10 - 19	20 - 29	30 - 39	40 - 49	50 - 59	
1st. incisors				0.484	0.637	
2nd. incisors				0.573	0.552	
Canines				0.441	0.537/0.077	
1st. bicuspids			0.566	0.442		
2nd. bicuspids			0.404	0.540	0.488/0.077	
1st. molars				0.530	0.616	
2nd. molars				0.541	0.474	0.540/0.058
3rd. molars	0.507 0.504 0.539	0.392 0.539 0.464	0.589 0.456 0.562	0.455 0.442 0.543	0.519 0.469 0.513	0.522 0.543 0.496
Average/s.d.				0.511/0.053	0.526/0.066	
Average/s.d.	0.517/0.019*	0.500/0.075*	0.480/0.055*	0.500/0.027*	0.520/0.024*	0.511/0.061**

\* 3rd molars only

\*\* All samples

次に20歳代の第3大臼歯に限定して<sup>226</sup>Ra濃度の地域差を検討した。その結果をFig.1に示した。

<sup>226</sup>Ra濃度(mBq/g·Ca)は、札幌0.46、東京0.50、呉0.67、小倉、佐世保、福岡0.70であり西日本の方に高い傾向がある。前回推定した<sup>226</sup>Ra摂取量[LLRL-AR-16, p. 6]についても同じような傾向が見い出されており、歯牙中の<sup>226</sup>Ra濃度が<sup>226</sup>Ra摂取量に依存していると推測できる。

東京で得た歯牙中の平均<sup>226</sup>Ra濃度0.51±0.06mBq/g·Caは、東京での成人の骨(vertebra)の平均<sup>226</sup>Ra濃度1.14±0.56mBq/g·Caの約半分となった。他の地域の歯牙中の<sup>226</sup>Ra濃度も東京の骨のそれよりも低い傾向にある。歯はその組織構成からエナメル質、象牙質、セメント質、歯髄に分けられるが、歯髄を除く三者は石灰化組織として特徴的なものである。骨はどちらかと言えば、象牙質に近い組成をもつと言われている。そこで、歯と骨の<sup>226</sup>Ra濃度の違いが、象牙質とエナメル質中の<sup>226</sup>Ra含有量の違いに起因しているのではないかと考え、これらの成分を別々に測定した。第3大臼歯のエナメル質と象牙質を注意深く分離したものについて<sup>226</sup>Raを他のアルカリ土類金属と共に測定した結果をTable 2に示す。表から分かるように、Ca 1 g 当りの濃度で比較すると、Sr(Sr<sup>2+</sup>=1.10)はエナメル質、象牙質ともに同じ濃度で存在しているが、Ca(Ca<sup>2+</sup>=1.06)よりイオン半径の小さなMg(Mg<sup>2+</sup>=0.65)および大きなBa(Ba<sup>2+</sup>=1.35)とRa(Ra<sup>2+</sup>=1.43)では明らかにエナメル質の方が濃度が低くなっている。今回測定した象牙質のみの<sup>226</sup>Ra濃度は上記の骨中<sup>226</sup>Ra濃度より低い。このような測定結果を総合的に考えると、歯と骨では見かけ上同じリン酸カルシウムを主体とした石灰化組織であるが、<sup>226</sup>Raのような微量元素の濃度差は、組織の特殊性、アパタイト結晶の結晶度合、タンパク質その他の有機物等の諸要因がからみあった結果と考えられる。

結論として、歯牙中の<sup>226</sup>Ra濃度は骨よりも幾分低い値を示すが、歯牙は生体の<sup>226</sup>Raのすぐれた指標物質となり得ると考える。

Table 2. Concentration of alkaline earth metals in enamel and dentin of human tooth and their ratios to Ca

Sample	Concentration				
	Mg (mg/g ash)	Ca (mg/g ash)	Sr (ug/g ash)	Ba (ug/g ash)	Ra-226 (mg/g ash)
Enamel	2.23	405	0.166	1.40	2.52×10 <sup>-12</sup>
Dentin	7.27	299	0.115	2.48	4.28×10 <sup>-12</sup>
Ratio to Ca					
Enamel	1.0	5.51×10 <sup>-3</sup>	4.10×10 <sup>-4</sup>	3.46×10 <sup>-6</sup>	6.22×10 <sup>-15</sup>
Dentin	1.0	2.43×10 <sup>-2</sup>	3.85×10 <sup>-4</sup>	8.29×10 <sup>-6</sup>	1.43×10 <sup>-14</sup>

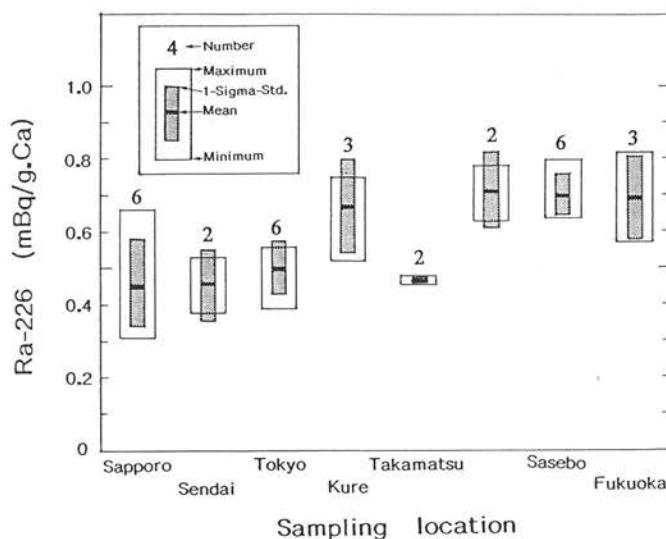


Fig. 1 Comparison of Ra-226 content in 3 rd, molars from different Sampling Locations

Sellafield 核燃料再処理工場からの  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{238}\text{Pu}$  の年間放出量の推定  
 Estimation of Annual Discharges of  $^{237}\text{Np}$  and  $^{238}\text{Pu}$  from Sellafield Nuclear Fuel  
 Reprocessing Plant

## [はじめに]

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。

これまでに、Irish 海沿岸の Esk 川河口より採取した 3 本の堆積物コアについての超ウラン元素諸核種の深度分布を報告した [ LLRL-AR-15, p. 12-13, LLRL-AR-16, p. 10-11 ]。今回、移流拡散方程式を用いたシミュレーションにより堆積物中の超ウラン元素の放射能濃度深度分布の再現を試み、1 本のコアについて拡散や混合の影響が極めて小さく再処理工場からの過去の放出歴を非常に良く保存していることを確認した。さらに、この結果を用いて過去の放出歴がわかっていない  $^{237}\text{Np}$  及び  $^{238}\text{Pu}$  についてコア中の深度分布からの放出歴の推定を行った。

## [シミュレーションによる深度分布の再現]

過去の放出歴のわかっている  $\text{Pu-}\alpha$  ( $^{238}\text{Pu} + ^{239}, ^{240}\text{Pu}$ ) 及び  $^{241}\text{Pu}$  について、再処理工場からの放出データをもとに Fig. 1 に示す移流拡散方程式を用いたシミュレーションによる堆積物コア中の核種の深度分布の再現を試みた。同一のパラメータを用い、異なる放出歴及び半減期をもつ複数の同位体について深度分布を再現することでシミュレーションの方法が正しいことを確認することができる。Esk - 3 Core についての  $\text{Pu-}\alpha$  放射能及び  $^{241}\text{Pu} / \text{Pu-}\alpha$  放射能比の深度分布の測定値と計算値を Fig. 2 に合わせて示す。図中で深度分布パターンは最大値で規格化してある。この結果、セシウムの見かけの拡散係数を  $1 \times 10^9 \sim 10^{10} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、プルトニウムの見かけの拡散係数を  $< 1 \times 10^{10} \text{ cm}^2/\text{sec}$ 、さらにこのコアの堆積速度を  $1.4 \text{ g/cm}^2\text{y}$  と見積った。 $\text{Pu-}\alpha$  及び  $^{241}\text{Pu}$  の深度分布はどちらも浅い部分はシミュレーションで再現することができなかった。これは、近年の放出量が 1960 年代のピーク時と比べて数  $1/10 \sim 1/100$  と非常に減少しているために、過去の放出の残存成分や堆積物からの再溶解、再浮遊成分等の寄与が放出量からのそれを上回っていることによるものと考えられる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - V \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C \quad (1)$$

C : 放射能 (Bq/kg)

Z : 深度 (g/cm<sup>2</sup>)

D : 見かけの拡散係数 (g<sup>2</sup> cm<sup>-4</sup> y<sup>-1</sup>)

V : 堆積速度 (g cm<sup>-2</sup> y<sup>-1</sup>)

$\lambda$  : 壊変定数 (y<sup>-1</sup>)

初期条件 :  $C(z, 0) = 0$  , 境界条件 :  $C(0, t) = 1$   
 $C(\infty, t) = 0$

(1) 式の解を  $F(z, t)$  とすると堆積物中の深度分布は次式で与えられる

$$C(z) = C_0(1) \cdot \{F(z, 1) - F(z, 0)\} + C_0(2) \cdot \{F(z, 2) - F(z, 1)\} + \dots + C_0(n) \cdot \{F(z, n) - F(z, n-1)\} + \dots \quad (2)$$

$C_0(n)$  : n 年前の年の年間放出量(TBq)

Fig. 1 Mass balance equation and reappearance method of depth profile

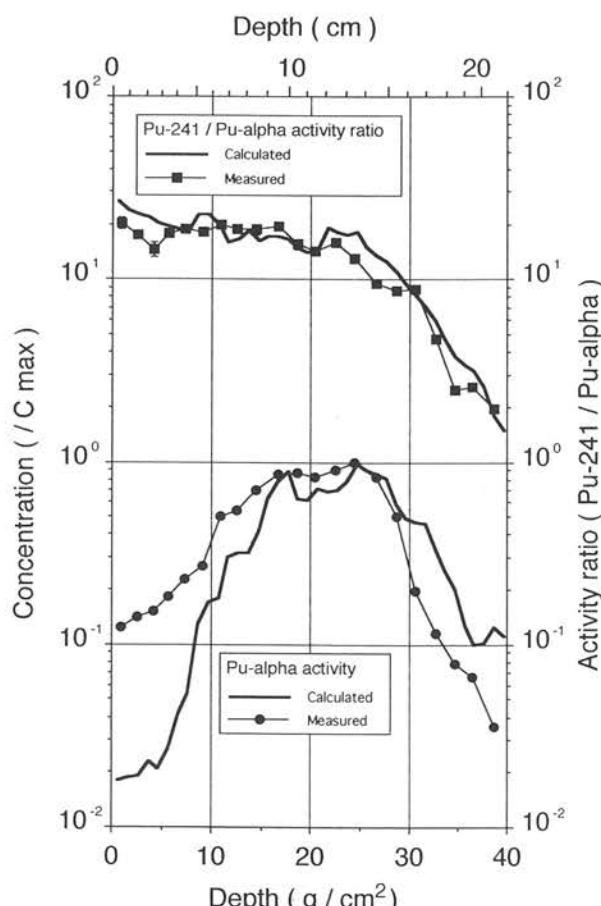


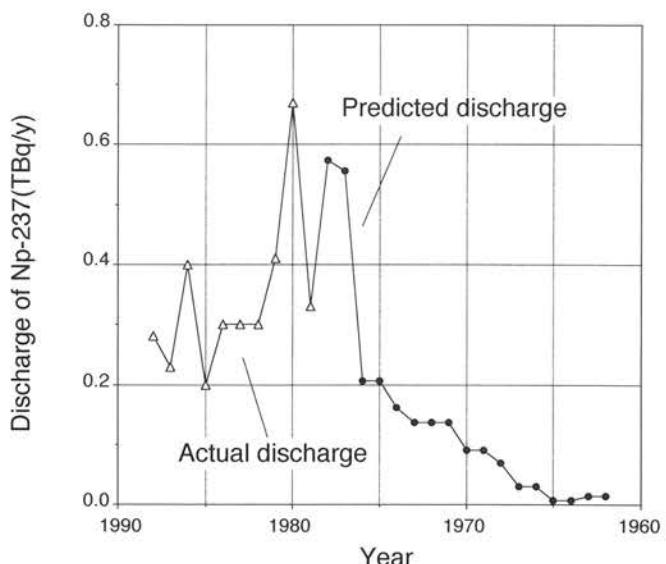
Fig. 2 Measured and calculated depth profiles of  $\text{Pu-}\alpha$  and  $^{241}\text{Pu}/\text{Pu-}\alpha$

## [再処理工場からの年間放出量の推定]

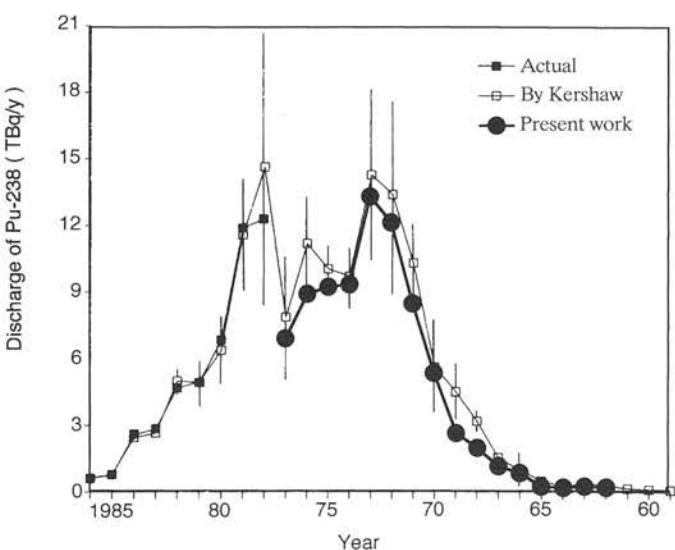
 $^{237}\text{Np}$ 

$^{237}\text{Np}$ については、1978年以前の再処理工場からの放出データは報告されていない。このため、Esk - 3 Core 中ではネプツニウムもプルトニウムと同様の拡散挙動を示し、堆積物中でほとんど移動せず過去の放出歴を良く保存していると仮定し、このコア中の $^{237}\text{Np}$ の放射能の深度分布から再処理工場からの年間放出量を推定した。

堆積速度を  $1.4 \text{ g/cm}^2\text{y}$  とし、深さを放出年に対応させ、深度分布を 1979 年以降の放出データと比較した結果、類似したパターンをしていることを確認した。そこで、1979 年以降の放出データと対応する深度分布から、深度分布を放出量に変換するファクターを求め、1978 年以前の放出歴をコア中の深度分布から推定した。推定した $^{237}\text{Np}$ の年間放出量を Fig. 3 に示す。この結果 $^{237}\text{Np}$ の再処理工場からの放出を 1988 年までの総放出量として約 6.4 TBq と見積った。この値は Pu- $\alpha$  の総放出量約 730 TBq に対して約 1 % に相当する。

Fig. 3 Actual and predicted discharge history of  $^{237}\text{Np}$  $^{238}\text{Pu}$ 

Pu 同位体の再処理工場からの放出は、稼働以来 Pu- $\alpha$  と  $^{241}\text{Pu}$  の 2 種類のデータが報告されてきており、1978 年以降は $^{238}\text{Pu}$  と  $^{239},^{240}\text{Pu}$  は分離して報告されている。Pu- $\alpha$  等について行なったシミュレーションでは堆積物表層近傍の深度分布を再現することはできなかったため、報告されている $^{238}\text{Pu}$  の 1978 年以降の放出パターンも堆積物中には保存されていないと考えられる。そこで堆積物コア中の $^{238}\text{Pu}$  と  $^{239},^{240}\text{Pu}$  の放射能比の深度分布から $^{238}\text{Pu}$  の放出パターンを $^{238}\text{Pu}$  / Pu- $\alpha$  放射能比として推定し、この値に Pu- $\alpha$  の年間放出データを乗じて $^{238}\text{Pu}$  の年間放出量を推定した。推定した $^{238}\text{Pu}$  の年間放出量を Fig. 4 に示す。この結果、 $^{238}\text{Pu}$  の再処理工場からの放出を 1988 年までの総放出量として 123 TBq と見積った。また、推定した放出量は Kershaw (1990) による推定値とも良く一致している。

Fig. 4 Actual and predicted discharge history of  $^{238}\text{Pu}$

## 高分解能 ICP-MS による極微量 $^{237}\text{Np}$ の定量

Determination of Ultratrace  $^{237}\text{Np}$  by High Resolution Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry

現在、環境中に存在する  $^{237}\text{Np}$  ( $T_{1/2} = 2.14 \times 10^6 \text{ y}$ ) はそのほとんどが大気圏内核実験からの fallout に由来するものであり、そのレベルは  $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{239,240}\text{Pu}$  と比べて格段に低い。そのため放射能測定は非常に難しく、報告されているデータは非常に少ない。このような長寿命放射性核種の測定に対しては、放射能測定よりも原子数を直接測定する質量分析法のほうが感度よく検出できる。 $\alpha$  線スペクトロメトリーによる  $^{237}\text{Np}$  の測定では、エネルギーの近接した  $^{234}\text{U}$  が妨害となる。質量分析では同重体が妨害となるが、環境中に存在する質量数 237 の核種は  $^{237}\text{Np}$  のみであるため Np の分離精製法の簡略化が可能であることが予想される。本研究では当研究室で  $\alpha$  線スペクトロメトリー用に開発した Np 分離法を基に、誘導結合プラズマ質量分析装置 (ICP-MS) による極微量  $^{237}\text{Np}$  定量法について検討した。試料は、あらかじめ  $\alpha$  線スペクトロメトリーによって  $^{237}\text{Np}$  を定量した土壤試料 (福井県吉野) を使用し、Fig. 1 の Scheme I 及び II の手順で Np を分離精製した後、20 ml の 1 M HNO<sub>3</sub> 溶液とした。測定装置は農業環境技術研究所の二重収束型 ICP-MS ( Plasma Trace, VG Elemental, Winsford, Cheshire, United Kingdom ) を使用した。

この ICP-MS での  $^{237}\text{Np}$  の検出限界は 0.04 pg/ml と報告されていたが、本研究では 0.01~1.0 pg/ml の濃度範囲の標準溶液に対して最大で誤差 17 % のよい直線性を得ることができ、更に低いレベルの  $^{237}\text{Np}$  を測定できることがわかった。前述の土壤試料 10~40 g を用い、図の Scheme I 及び Scheme II で分離後 HR-ICP-MS で測定した結果を Table 1 に示す。Scheme I で分離したものは、使用した試料量に関わらず  $\alpha$  線スペクトロメトリーで得た値と誤差の範囲で一致した。HR-ICP-MS では試料量 10 g の場合でも誤差 11 % (4 回測定での標準偏差) であり、100 g 使用した  $\alpha$  線スペクトロメトリーでの誤差約 30 % (計数誤差) と比較して精度が良い。しかし、分離スキームを極力簡略化した Scheme II での結果は 2 倍以上高い値となった。これは原子数で  $^{237}\text{Np}$  の数 1000 倍共存する  $^{238}\text{U}$  による質量数 237 領域への干渉のためである。従って、今回行った一般環境土壤試料のように  $^{237}\text{Np}$  測定溶液の濃度が最終的に ppt 以下のレベルになる場合は  $^{238}\text{U}$  の除去が極めて重要であり、原子数比で  $^{237}\text{Np}$  の約 1000 倍以下にまで除去が必要があることがわかった。

Table 1. Measurement of  $^{237}\text{Np}$  in soil\* by HR-ICP-MS using different separating methods.

Separating Scheme	Analytical Weight (g)	Chemical Yield (%)	Ion Count Np-237	Np-237 Content		Ion Count U-238	Ion Count Ratio U-238 / Np-237
				(pg/g-soln.)	(mBq/kg)		
I	10.15	68.4	38 ± 5	0.030 ± 0.004	2.2 ± 0.3	17157 ± 1348	460 ± 70
I	10.10	61.8	36 ± 4	0.028 ± 0.003	2.4 ± 0.3	36353 ± 1211	1020 ± 110
I	40.28	81.4	139 ± 6	0.123 ± 0.005	2.0 ± 0.1	10181 ± 860	73 ± 7
I	40.13	82.6	145 ± 4	0.128 ± 0.004	2.0 ± 0.1	14018 ± 1551	97 ± 11
II	40.10	68.7	401 ± 27	0.363 ± 0.025	6.9 ± 0.5	2279551 ± 51706	5700 ± 400
II	40.15	62.3	552 ± 38	0.363 ± 0.025	10.5 ± 1.1	2305919 ± 46590	4200 ± 300

The error denotes one sigma standard deviation of 4 times measurements.

\* The value of Np-237 content by alpha-ray spectrometry through Scheme-I :  $2.4 \pm 0.7 \text{ mBq/kg}$ .

[本研究は、主として卒研生・小藤久毅が行い、測定には農業環境技術研究所・津村昭人氏、山崎慎一氏の協力を頂いた。]

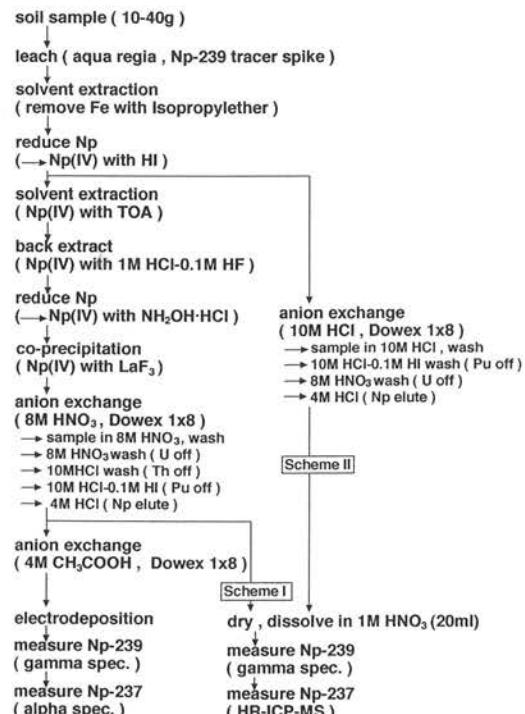


Fig. 1 Chemical separation scheme for the determination of  $^{237}\text{Np}$  by alpha-ray spectrometry and HR-ICP-MS.

## 水田土壤の<sup>237</sup>Np蓄積量の時間的推移

### Time Variation of <sup>237</sup>Np Deposition in Paddy Field Soils

環境中に存在する超ウラン元素諸核種は大部分が大気圏内核実験に由来するものであり、これらの元素の地上での挙動を定量的に研究するためには地上へのインプットである降下量の経年変化を明かにしておく必要がある。<sup>239,240</sup>Pu, <sup>90</sup>Sr 及び <sup>137</sup>Cs などについては詳細な報告がなされているが、<sup>237</sup>Npについてはほとんどデータがない。本研究では年代別に採取した土壤試料中の<sup>237</sup>Npを定量し、蓄積量の経年変化について検討した。

試料は1959から89年にわたり4, 5年間隔で秋田、新潟、石川の3地点で採取した水田表層土壤(0~12, 16 cm)である。試料中の<sup>137</sup>Cs, <sup>239,240</sup>Pu 及び<sup>237</sup>Npはそれぞれ非破壊γ線スペクトロメトリー、α線スペクトロメトリー及びHR-ICP-MSで定量した。天然放射性核種であるU, Th系列核種及び<sup>40</sup>Kの定量結果から、それぞれの地点の土壤は採取期間を通して大きくは変化していないことがわかっている。測定例としてFig. 1に秋田水田試料の結果を示す。<sup>137</sup>Cs, <sup>239,240</sup>Pu, <sup>237</sup>Np蓄積量は、1959~67年の試料で急激に増加し、以後は漸減していく傾向がみられる。Fig. 2に<sup>237</sup>Np/<sup>239,240</sup>Pu 及び<sup>237</sup>Np/<sup>137</sup>Cs放射能比の経年変化を示す。<sup>237</sup>Np/<sup>239,240</sup>Pu放射能比は平均0.27%である。1959年の放射能比は0.22%で、これが1967年には0.31%にまで上昇し、以後は漸減している。

大気圏内核実験の約95%が1962年までに行われていることから、1967年以後の試料中の放射能比の変化は主に各元素の挙動の違いを反映していると考えられ、土壤中でNpはPuよりも速やかに失われていくことが示唆される。図中の直線は<sup>137</sup>Csの半減期による減衰のみを考えた場合の<sup>237</sup>Np/<sup>137</sup>Cs放射能比の変化を1967年の値を起点としてプロットしたものである。1967年以後の<sup>237</sup>Np/<sup>137</sup>Cs放射能比の増加の傾きが図中の直線よりも小さいことから、NpがCsよりも移行しやすいことが示唆される。移行の原因としては耕作に伴う下方への浸透、表面水中への溶出や土壤の流出あるいは稲による吸い上げなどが考えられるが、いずれが主要因であるかを明らかにするには、深度別の蓄積量の経年変化を調査する必要がある。

測定誤差を無視してはいるが、1967年以後の秋田での実際の蓄積量の減少率と<sup>137</sup>Cs, <sup>239,240</sup>Pu降下量データを使用したシミュレーションとの比較から、水田表層の<sup>137</sup>Cs, <sup>239,240</sup>Puの採取した深度までの見かけの滞留時間をそれぞれ約60~140, 90~140年と算出した。<sup>237</sup>Npについては、降下量を<sup>239,240</sup>Puの0.3%と仮定し、実際の蓄積量の減少率と比較した結果、滞留時間は約50~70年となった。秋田試料における、1959~67年にかけての<sup>237</sup>Np/<sup>239,240</sup>Pu放射能比の急激な増加は、核実験が行われた2つの期間で降下物中の<sup>237</sup>Np/<sup>239,240</sup>Pu放射能比が異なっていたことを示している。1961~62年に行われた核実験は、1945~58年に比較して規模が大きくなり、全爆発量に対する核分裂量の比が減少している。両元素の滞留時間を考慮すると、1959~67年の放射能比の増加から、1959年以前は降下物中の<sup>237</sup>Np/<sup>239,240</sup>Pu放射能比は0.2~0.3%であったが60年代には0.4%近くにまで上昇しているという結論を得た。

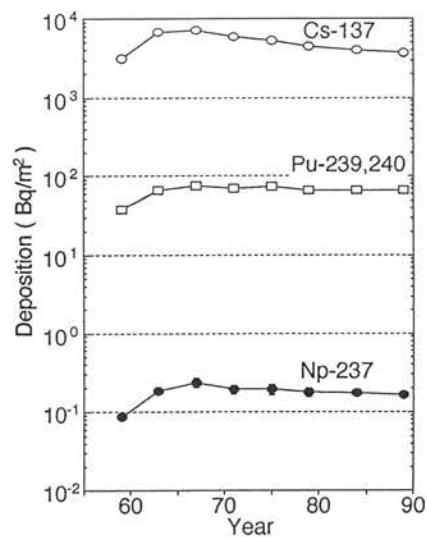


Fig. 1 <sup>237</sup>Np, <sup>239,240</sup>Pu and <sup>137</sup>Cs deposition of 13cm deptn in paddy field soils collected from Akita during 1959-1989.

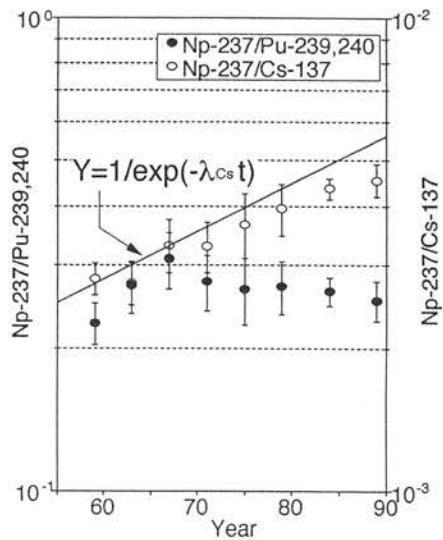


Fig. 2 Activity ratios of <sup>237</sup>Np/<sup>239,240</sup>Pu and <sup>237</sup>Np/<sup>137</sup>Cs in paddy field soils of Akita.

[本研究は、主として卒研生・小藤久毅が行い、測定には農業環境技術研究所・津村昭人氏、山崎慎一氏に協力頂き、試料採取には同じく農業環境技術研究所・駒村美佐子氏、結田康一氏の協力を頂いた。]

## リチウムの ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 反応によるリチウムの定量とその応用 - 第5報 -

### Determination of Lithium by ${}^6\text{Li}(n,\alpha)\text{T}$ Reaction and its Application

#### [はじめに]

原子炉を利用した熱中性子照射により ${}^6\text{Li}$ から ${}^3\text{H}$ が生成することを利用して環境試料中のリチウムを定量することができる。またこれを逆に利用してリチウムの中の ${}^6\text{Li}$ の存在度を求める事もできる。今回は高い濃度領域におけるリチウム定量の可能性と、 ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ の同位体組成の決定について検討を加えた。本法の利点は試料を水溶液の形で照射することにより、反応で生じた ${}^3\text{H}$ が取扱いが容易な水の形に速やかに変化し、蒸留操作により同時に生成した他の放射性核種を除去できる利点がある。

#### [実験]

試料として潮解性のない炭酸リチウムの飽和溶液と1300 mg/lまでの濃度領域の炭酸リチウム水溶液を調製し、ポリエチレン試験管に封入して近畿大学原子炉中央ストリンガー内( $1.1 \times 10^7 \text{n/cm}^2 \cdot \text{s}$ )で6時間中性子照射を行った。同位体存在比の異なる試料は ${}^6\text{Li}$ と ${}^7\text{Li}$ のそれぞれ100%同位体存在比の炭酸リチウム水溶液を種々の割合で混合させたものを調製し同様に中性子照射した。照射した試料はクエンチングの原因となる塩類を除去するために炭酸銀を添加後減圧蒸留した。得た蒸留水8 mlを乳化シンチレーター(Instagel)12 ml 20 mlテフロンバイアル中でよく混合して2日間冷暗所で保存後、低BG液体シンチレーションカウンタLSC-LB1を用い50分間測定を20回ないし40回行った。クエンチングの補正是外部標準線源チャンネル比法(ESCR法)により行った。

#### [結果と考察]

照射した水溶液中のリチウム濃度と生成した ${}^3\text{H}$ 濃度との関係をFig.1に示す。図から明らかなように1000 ppmまでの広い濃度範囲で原点を通る直線関係が成り立つことが認められた。

Fig.2に ${}^6\text{Li}$ の同位体組成を5%から95%まで変化させたりチウム水溶液とその中性子照射により生成した ${}^3\text{H}$ 濃度との関係を示す。外挿すれば原点を通る直線であることから妨害の可能性のある ${}^7\text{Li}$ からの ${}^3\text{H}$ の生成は無視し得るくらい小さく、本法により同位体組成を求めることが可能であることがわかる。また精度を確認するために質量分析計とのクロスチェックを行い、Table 1にその結果を示す。中性子放射化分析法と質量分析法で得た ${}^6\text{Li}$ の同位体組成は良い一致をしており本法を用いることによりリチウムの同位体組成を決定することができる。

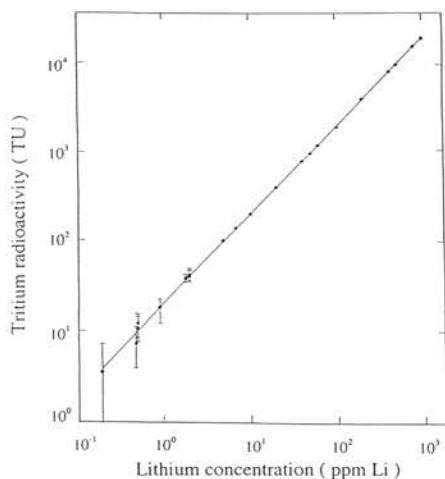


Fig. 1 Log-Log plot of the lithium concentration and tritium radioactivity.  
Nutron irradiation condition :  
thermal neutron flux density,  
 $1.1 \times 10^7 \text{n}^2 \text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$   
Irradiation time, 6h

Table 1. Comparison of results by different method

Isotopic abundance of lithium-6		
fond by Mass spectrometry*	fond by Neutron activation (atom %)	Difference (atom %)
0.013 ± 0.0002	0.013 ± 0.0015**	- 0.00
4.647 ± 0.0031	4.69 ± 0.033	+ 0.04
9.289 ± 0.0058	8.39 ± 0.043	- 0.9
47.21 ± 0.009	48.96 ± 0.097	+ 0.175
66.64 ± 0.020	67.6 ± 0.12	+ 1
85.957 ± 0.0077	86.3 ± 0.13	+ 0.3
95.662 ± 0.0033	94.8 ± 0.16	- 0.9

\* These data were analysed by Dr. S. Tamura and Dr. K. Tamura,  
Japan Atomic Energy Research Institute.

\*\*This datum was obtained at the lithium concentration of 200 mM,  
while the other data were obtained at 10 mM.

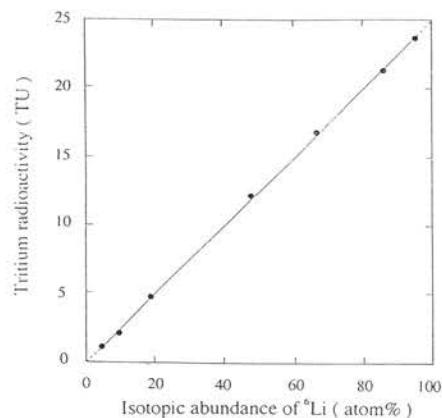


Fig. 2 Linear relationship between the isotopic abundance of  ${}^6\text{Li}$  and tritium radioactivity.  
Lithium concentration: 10 mM

[本研究は近畿大学原子炉共同利用研究として大学院生・斎 幹夫と北陸大学助教授・山田芳宗、助手・安池賀英子の協力により行われ、第113回日本薬学会（大阪）で口頭発表(31DB-10-4)した。]

## 〈施設職員〉

施設長(併)	上野 馨
(教 授)	
教 授	上野 馨
客員教授	平良 初男 (琉球大学理学部教授)
客員教授	卷出 義紘 (東大アイソトープ総合センター教授)
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 学 部	坂本 浩	大村 明雄
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	稻部 勝幸
教育学部	泉 長秀	
教 養 部	池田 修	
医療技術短大	安東 醇	

ドライフットチャンバー ヤマト科学(株) FYS-120SZ  
電導度計 東亜電波工業(株) CM-40S  
風速計 日本カノマックス(株) 6621-PA  
ハイボリュームエアサンプラー  
柴田科学 HVC-1000N  
小型発電機 サンヨー(株) デミパワー GE-550  
攪拌器 柴田科学 MGH-320  
コンピュータ MACINTOSH IIci (8MB/100MB HD)  
プリンター キヤノン(株) BJ-10V Select  
プリンター キヤノン(株) BJC-820J  
光磁気ディスクユニット ロジテック(株) LMO-M300

使 用 量	液体窒素	4,800	l
	A重油	2,592	l
	電気	137,130	KWH
	水道	1,699	m <sup>3</sup>

M. Yamamoto, Y. Yamauchi, H. Kawamura, K. Komura, K. Ueno : Measurements of Pb-210 and Po-210 in Japanese Human Hair, Jour. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, **157** (1), 37-45 (1992).

H. Kawamura, G. Tanaka, K. Shiraishi, M. Yamamoto : Human Data and Internal Dose Assessment-Japanese Reference Man Data and Its Application, Intern. Symp. on Radiati. Effect and Protection (JARI, March 1992), 402-407 (1992)

Y. Takizawa, T. Abe, M. Yamamoto, R. Yuan : Fallout Plutonium Concentration in Japanese Tissues : A New Look at the Old Samples, Jour. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, **156** (1), 175-182 (1992).

K. Terai, K. Fujii, M. Nakazawa, T. Hamada and K. Komura : Studies on In-Situ Measurement of Fallout Nuclides Derived from the Chernobyl Reactor Accident Using High-Purity Germanium Detector, Proceedings of Intern. Radiat. Protection Association (IRPA 8), Montreal, May 17-22, 1992, 1701-1704 (1992).

K. Shiraishi, Y. Muramatsu, T. Nakajima, M. Yamamoto, Ivan P. Los, Igor Yu, Kamarikov and M. G. Buzinny : A Comparison of Some Radionuclide Contents in Environmental Samples Between Kiev and Mito, Intern. Conf. on Radiat. Effects and Protection (JAERI, March 1992), 351-354 (1992).

K. Shiraishi, Y. Nishimura, S. Hongo, H. Yamaguchi, M. Yamamoto and K. Yoshimizu : Internal Dose Estimated from the Intakes of Ra-226, Th-232, and U-238 by Japanese using the Internal Dose Estimation System (IDES), International Conference on Radiation Effects and Protection (JAERI, March 1992), 413-416 (1992).

Y. Igarashi, K. Shiraishi, Y. Takaku, K. Masuda, R. Seki and M. Yamamoto : Application of Isotope Dilution for the Determination of Thorium in Biological Samples by Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry, Anal. Sci., **8**, 475-479 (1992).

趙蘭才, 陳英民, 李福生, 程杰, 陳耀, 山本政儀, 上野馨 : 人体組織中のPb-210とPo-210濃度と線量評価, 放射衛生 (Chinese Journal of Radiological Health), **1** (1), 23 (1992).

小村和久, 内田賢吾, 山本政儀, 上野馨, 坂元隼雄 : 桜島から放出されるラドンの娘核種, Proc. of the '91 Radon Symp., Kumatori, Aug. 8-10, 1991, 下道国, 辻本忠編「環境ラドン」, (財)電子科学研究所, 167-176 (1992).

飯田孝夫, 池辺幸正, 鈴木国弘, 上野馨, 小村和久, 加藤岩夫 : 静電捕集型ラドン濃度連続測定装置, 同上, 410-419 (1992).

飯田孝夫, 池辺幸正, 下道国, 郭秋菊, 山西弘城, 阿部史朗, 落藤澄, 横山真太郎, 上野馨, 小村和久, 加藤岩夫, 藤波直人, 米原英典他 : パッシブ法による日本与中国における屋外ラドン濃度調査, 同上, 287-295 (1992).

中西孝, 山本政儀, 上野馨, 須田英博 : 光電子倍増管用ガラス(放射線稀現象測定用)中の極微量U, Th, Kの定量ーフィション・トラック法および放射化分析法による-, 昭和63年度武藏工業大学原子炉等利用共同研究成果報告書, **13** (1988), 122-125 (1989).

小村和久, 宮下文和 : Tc-99の測定を目的とする $\alpha$ 線スペクトロメトリーの試作, 「テクネチウムの挙動ーその今日的課題ー」専門研究会報告書(1990年11月26-27日), 京大原子炉実験所 KURRI-TR-362, 75-80 (1992).

山本政儀, 中西孝 : 光電子倍増管用ガラス中の極微量U, Th, Kの定量ーフィション・トラック法および放射化分析法による-, 平成3年度立教大学原子炉利用共同研究成果報告書, UTRCN-R-21, 38-40 (1992).

坂本浩, 小村和久, 中西孝, 橋本哲夫 : 第3章4節 微弱放射能測定技術(飛跡測定, 年代測定を含む), 日本化学会編著 第4版実験化学講座 14「核・放射線」丸善株式会社, 268-334 (1992).

小村和久(分担執筆) : 原子力関係者のための放射線の健康影響用語集, (社)日本原子力学会発行, 全126 p. (1992).

小村和久(分担執筆) : 生活環境放射線(国民線量の算定), 第2第6章, (財)原子力安全研究協会発行, 原安協-231, 全158p. (1992).

山本政儀 : ドイツ連邦共和国の環境放射能について, RADIOISOTOPES, **41** (9), 467-473 (1992).

人事

新規購入設備

研究論文

総説

## 平成4年度 見学来訪・調査出張の記録

- 平成 4. 4.7-9,6.5, 9.14 文学部教授 守屋以智雄氏, 学生2名実験のため来所  
 4.15-19 [琉球大学との共同研究打ち合せ, 試料採取]  
 4.19, 平成 5.2.24, 3.5 石川県保健環境センター部長 矢舗満雄氏, 間幹夫氏研究打ち合せ  
 5.14 (財)環境科学技術研究所 片桐裕実氏, 三菱マテリアル(株) 森岡信男氏, 在間直樹氏来所  
 5.16-25 小村助教授 IRPA8 (カナダ・モントリオール) 会議出席  
 5.22 福井県衛生公害研究所 早川博信氏研究打ち合せ  
 5.22. 5.28, 6.24 金沢大学名誉教授 阪上正信氏来所  
 5.28, 6.6, 6.30, 7.27, 9.4 北陸大学放射薬品学 助教授 山田芳宗氏測定のため来所  
 6. 6, 8.4-5 [岐阜県御母衣ダム地下測定室にて環境放射能測定]  
 6. 9-12 [秋田大学との共同研究打ち合せ, 試料採取]  
 6. 9 (財)電力中央研究所 立田 穂氏研究打ち合せ  
 6.21 動力炉核燃料開発事業団 清水武彦氏, Syarbaini氏(インドネシア) 来所  
 6.23 ◎平成4年度運営委員会(理学部)琉球大学理学部教授(客員教授) 平良初男氏, 東京大学  
     アイソトープ総合センター教授(客員教授) 卷出義絃氏来所  
 7. 5-8 [鹿児島大学との共同研究打ち合せ, 試料採取]  
 7.13 理学部化学科3年生35名見学  
 7.15, 8.10 石川県保健環境センター 牛島茂氏研究打ち合せ  
 7.22-25 [東北大学金属材料研究所附属材料試験炉共同研究]  
 7.27-28 一橋大学教授 上田 望氏実験のため来所  
 8. 6-7 東京大学農学部助教授 中西友子氏データ処理のため来所  
 8.19 日本原子力研究所 柳瀬信之氏研究打ち合せ  
 8. 6-10 Dr.G.Rosner氏(GSF-Forschungszentrum für Umwelt und Gesundheit GmbH, Germany) 来所  
 9.20 杉尾憲一郎氏(Universidade de São Paulo Inst.de Geociências, Brasil) 来所  
 11. 2 Mrs. Dang Thi Phuong Nam (ベトナム大学核物理学教室講師) 来所  
 11. 6 Prof.V. Ivanov氏(Krasnoyarsk State Medical Institute, Russia) 来所  
 11.16 医療技術短期大学学生40名見学, 日本原子力研究所 柴是行氏, 加藤清氏来所  
 11.16-19 ノイコーポレーション 上野信幸氏来所  
 12. 1-2 小村助教授富山大学理学部にて集中講義  
 12. 3 富山大学教養部学生16名見学  
 12. 7-8 名古屋大学工学部教授 池辺幸正氏, 学生研究打ち合せ  
     総合研究(A)「地球規模汚染の予測手法の確立」研究報告会議のため5名来所  
 12.19 作陽短期大学教授 馬淵久夫氏来所  
 平成 5. 2. 8 大阪大学理学部 豊田 新氏見学  
 2.23-24 [立教大学原子炉共同利用研究]  
 3. 8 農林水産省農業工学研究所 小前隆美氏, 浜田浩正氏, 今泉眞之氏研究打ち合せ  
 3.26 北陸電力 奥谷外喜雄氏来所  
 3.27 日本原子力研究所 長岡 鋭氏研究打ち合わせ見学

低レベル放射能実験施設 平成4年度研究概要・年次報告 1993年9月30日発行

〒923-12 石川県能美郡辰口町和氣

TEL (0761) 51-4440  
 FAX (0761) 51-5528

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