

金沢大学理学部附属

低レベル放射能実験施設

研究概要・年次報告

1994.4 ~ 1999.3 (Part II)

1999.4 ~ 2001.3

Annual Progress Reports of

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

巻頭言

環境の変化を捉える放射能研究の重要性

(平成 9 ~ 11 年度客員教授・鈴木 曄) 2

研究における意外性とその重要性を思う

(平成 10 年度客員教授・今村 峯雄) 3

測定技術の開発

核反応による ^{95m}Tc トレーサーの製造 4

極低レベル放射能測定における S/N 比改善と海産物への適用 5

海藻の人工および天然放射性核種濃度 - 温水浸出 ^{40}K 法の海藻試料への適用 - 7

尾小屋鉱山跡を利用して

旧尾小屋銅鉱山湧水のアルカリ土類金属およびウラン系列核種 11

旧尾小屋銅鉱山における湧水中の ^{222}Rn の連続測定 12

金の放射化からみた中性子の影響範囲 13

環境中性子による放射化 17

JCO 関連

JCO 敷地内外の土壌中ウラン系列核種の放射非平衡 19

JCO 敷地内土壌中の中性子誘導放射性核種 21

 ^{32}P 生成量からの速中性子束の推定 25

環境放射能関連

環境中での ^{242m}Am 探査 - アイリッシュ海の沿岸堆積物 - 27天然放射性核種 ^{210}Pb をトレーサーとした森林樹冠への乾性沈着速度評価 29日本海地域における宇宙線生成核種 ^{35}S と SO_4^{2-} 降下量 31

旧ソ連核実験場セミパラチンスク周辺の環境放射能の現状 33

湖水の滞留時間評価への宇宙線生成核種 ^{22}Na の導入 41

平成 11 年度施設備品・運営人事関係諸資料・研究報告および見学来訪・出張記録等 43

平成 12 年度施設備品・運営人事関係諸資料・研究報告および見学来訪・出張記録等 46

環境の変化を捉える放射能研究の重要性

静岡大学理学部教授

当施設前客員教授 鈴木 款

私の専門は大気および海洋の化学物質の循環である。私の研究の場所は海と大気であるために、時には船に乗り、人のあまり行かない海で、船酔いと闘いながら研究をする。海の美しさに感動したかと思えば、反対に嵐の中で恐ろしさを目の前に感じ、昼夜の別なく仕事をする。何のために研究しているのだろうと自問するが、自然の美しさと変化の要因と環境の物質循環のシステムの仕組みを知りたいという好奇心からである。とにかく自然の変化のダイナミックスを知りたいというのが一番強い動機である。

環境の変化を捉えると言っても容易なことではない。その最大の理由は環境の物質変化というのはさまざまな時間スケールをもつさまざまな要因が重なって起きているからである。例えば海水中の二酸化炭素濃度の変化と生物過程について解析しようとする、光合成による変化、呼吸による変化だけでなく、海水の混合拡散による変化、海洋と大気の気体の交換による変化についても、個々にどの程度寄与しているのかを知る必要がある。

どのように知るか。海水あるいは海洋生物中の放射性物質 ($^{32}\text{P}/^{33}\text{P}$, ^{14}C , ^{210}Pb , ^{234}Th , ^{222}Rn 等) はそれぞれ固有の時間軸を持っている。これらの時間軸をトレーサーとして利用し物質循環の速度を解析することである。しかしながら、これらの環境の放射性物質を正確に検出することは高度の技術と設備と研究者の高い能力が必要である。今日本でこれに応えることのできる研究施設は当施設をおいて他にないと言える。

私が客員教授の間に科研費で海水中の粒子態有機物中の $^{32}\text{P}/^{33}\text{P}$ を測定する方法を開発する研究を共同で行った。この測定にはBGが極めて低いことが必要で、当施設の尾小屋にある測定器以外では測定することはほとんど不可能である。この施設と有能なスタッフのおかげで測定を確立することができた。これにより海水中の粒子態有機物の回転時間を求めることができた。

放射能の研究により環境のさまざまな物質の変化の時間を知ることができる。放射能の研究は単に放射能そのものを知ることだけでない。当施設は環境の時間軸の情報を与える「環境変動時間計測局」であるといえる。

研究における意外性とその重要性を思う

国立歴史民俗博物館教授

当施設客員教授 今村 峯雄

小村さんが進めて来られた尾小屋の高感度放射線測定装置については、常々小村さんから、その究極に近いバックグラウンドの小ささを見聞きし感心していたが、JCOの放射線事故の調査にLLRLの尾小屋の装置が活躍することになったことを聞いた時は、ある感慨を覚えたものである。それは、1987年に、大マゼラン星雲の超新星から飛来した11個のニュートリノを捕らえたという東京大学宇宙線研究所からのニュースの時を思い出したからである。このニュースは、私にとって内容の重要性とともに、意外性を伴った驚きであった。同じ田無キャンパスにあった原子核研究所に在籍していた時のことで、当時、宇宙線研究所が神岡鉱山地下に設置した3000トンの純水タンクの検出器は、陽子崩壊現象のシグナルを待っていたはずであった。その装置は、ニュートリノ物理の最先端装置として、現在のスーパーカミオカンデへとつながっていったわけである。

私が関係する考古学のような未開拓の分野では、一つの“小さな”発見が、従来の考え方を根底から覆すということはしばしばあるが、先端的な分野では、目的を持って始めたことが初期の目的以外で重大な貢献をするという場面も時々見られる現象である。

なぜこのようなことを述べたかと言うと、今後議論されるであろう大学の独立法人化への対応では、大学部局全体としての理念や考え方が強調されるあまり、研究の内容がプロジェクト偏向になるのではないかと懸念されるからである。具体的な中長期計画の設定となると、方法的に特色のあるものでも、はじき出される恐れがある。企業においては、小さなベンチャー企業が将来の発展の芽として期待されている。ベンチャー企業が大企業になる確率は低いけれども、どこかでその独創が活かされ、社会全体では活性化が進むわけである。大学でも、個々の研究者が独自の考え方に従って、つぎつぎと新しい研究の展開を作っていく姿が望ましい形ではないだろうか。発展の方向が定まったものを、より大きなプロジェクトとして展開する仕組みは大学の外に設定することが適当なのではないかと、私は思っている。

現代の科学への取り組みと言うものも、あかりのついた街灯の下を探る情景に例えられる。科学が、本来探究すべき対象から見ると、われわれの周りに生起する事象についての理解はごく一面的な部分についてのみである。科学が生み出したものの功罪を正しく認識することでさえできなかった人間の未熟さを歴史は示してきた。これからは、科学はますます我々の未来に関わる多様な課題への取り組みを要請されているように思う。微量の放射性物質に関する研究が、いろいろな分野と手を結んで新しい展開をみせることを望んでいる。

核反応による ^{95m}Tc トレーサーの製造

Production of ^{95m}Tc Tracer via the Nuclear Reaction

1. はじめに

一般環境試料中の ^{99}Tc ($T_{1/2}=2.1 \times 10^5$ y) を化学分析する際、トレーサーを添加してその化学収率を補正することが必要であるが、市販されているテクネチウムトレーサー (^{95m}Tc として ^{99m}Tc) はモリブデンを出発物質としており、微量の ^{99}Tc の汚染が認められる。 ^{95m}Tc ($T_{1/2}=61$ d) は ^{99m}Tc ($T_{1/2}=6$ h) よりも半減期が長い利点がある。しかしながら、市販の ^{95m}Tc トレーサーはモリブデンから製造されており、 ^{99}Tc の汚染が認められ、極微量の ^{99}Tc 分析の際に誤差を与える原因となりうる。例えば、米国・Du Pont 社製 ^{95m}Tc は $^{96}\text{Mo}(p,2n)^{95m}\text{Tc}$ で製造されているが、同時に $^{100}\text{Mo}(p,2n)^{99}\text{Tc}$ 反応も起こるので微量ではあるが ^{99}Tc が混入してくる。我々が測定したところ、1.5 Bq/ml 程度の ^{99}Tc が混入していた。このような理由から、 ^{99}Tc 汚染のない ^{95m}Tc トレーサーを製造することが必要である。本研究では、金属ニオブをターゲットとしてアルファ粒子照射により ^{95m}Tc を製造し、化学分離精製後、テクネチウムトレーサーとして利用することを目的として行った。

2. 実験

ターゲットには厚さ 425 mg/cm^2 の金属ニオブ板 (99.9 %) を用意し、理化学研究所・安部文敏博士の協力のもと、AVFサイクロトロンで加速したアルファ粒子を 30~150 分程度照射した。照射時のアルファ粒子エネルギーは 32 MeV、フラックスは $2 \mu\text{A}$ であった。照射直後のニオブ板は放射能レベルが高く即座に輸送することが出来なかったため 56 日間の冷却時間を置いた後、HP-Ge 半導体検出器で放射能測定を行った。

3. 結果

照射後 56 日目の金属ニオブ板の γ 線スペクトルの一例を Fig. 1 に、照射直後に換算した金属ニオブターゲットの放射能測定結果を Table 1 に示す。Fig. 1 のスペクトルから、 ^{95m}Tc ($T_{1/2}=61$ d)、そして副生成物質の ^{96}Tc ($T_{1/2}=4.2$ d)、 ^{92m}Nb ($T_{1/2}=10.15$ d) を同定することが出来た。副生成物質は半減期が ^{95m}Tc に比べて短いので適当な冷却時間を置くことで除去することが出来る。核反応 $^{93}\text{Nb}(\alpha,2n)^{95m}\text{Tc}$ で生成した ^{95m}Tc の収率は、文献値 (核反応断面積: $70 \sim 40 \text{ mb}$ 程度) [N. Ramamoorthy, *et al.*, *J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles*, **98**, No. 1, 1986] と同程度の値を示した。この照射により生成した ^{95m}Tc は多いもので $11.6 \mu\text{Ci}$ にも達しており、化学分離時の損失を考えても十分な量の ^{95m}Tc トレーサーが得られるものと考えている。

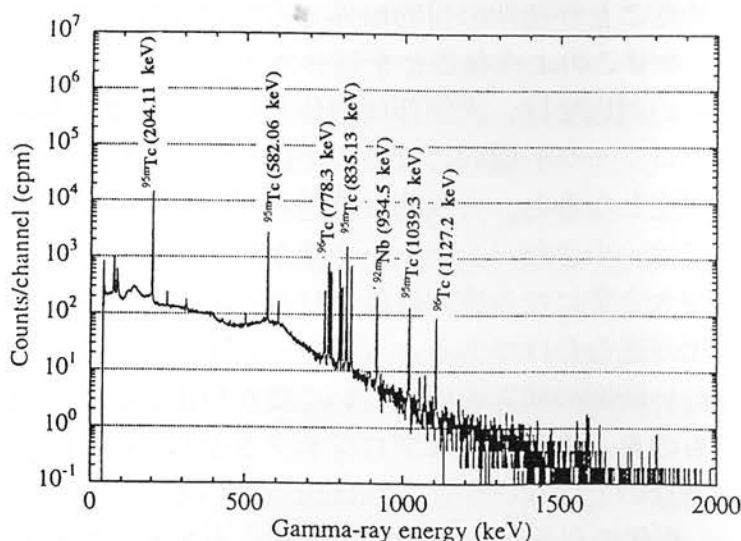


Fig. 1 An example of γ -ray spectrum of irradiated Nb thickness target

Table 1 Production yields of technetium and niobium isotopes

Target No.	Production yield ($\mu\text{Ci}/\mu\text{AH}$)		
	^{95m}Tc	^{96}Tc	^{92m}Nb
1	1.85 ± 0.06	35.5 ± 0.8	0.42 ± 0.01
2	1.90 ± 0.03	35.6 ± 0.9	0.41 ± 0.02
3	1.57 ± 0.01	34.1 ± 0.8	0.37 ± 0.01
Average	$1.77 \pm 0.18^*$	$35.1 \pm 0.8^*$	$0.40 \pm 0.03^*$

*One sigma standard deviation

[本研究は主として大学院生 及川真司により行われた。]

極低レベル放射能測定におけるS/N比改善と海産物への適用

Improvement of S/N Ratio on Extremely Low Level Radioactivity Measurement and Its Application to Marine Organism

はじめに

低レベル放射能測定の分野では、測定条件を改良するための指針として、Figure of Merit (FOM) = S^2/B を最大にするのが大方針であり、信号(S)を最大にし、バックグラウンド成分(B)を最小にする方法を吟味することが必須である。しかし、海産生物試料を測定する場合には、放射能の大部分が ^{40}K であり、そのコンプトン散乱線に埋まるピークから極微量の人工放射性核種の検出・測定を余儀なくされる。測定を妨害する核種の化学処理(分離)によるS/N比改善は有効であるが、多数の試料を処理・測定することを考えると、複雑な分離操作のない、簡便で確実な化学処理が望ましい。

本研究では、原子力施設由来の放射性腐食生成物(^{60}Co , ^{51}Cr , ^{65}Zn , ^{59}Fe , $^{110\text{m}}\text{Ag}$ など)による海洋環境中の放射能汚染の予測に資する迅速で簡便な化学処理法を確立するための基礎として、温水による浸出操作での海産物灰化試料中の ^{40}K 除去と上記微量金属元素の挙動を検討した。

実験

実験には石川県沿岸で採取した海藻(ホンダワラ)の灰化試料を主として用いた。(1)灰化試料20gに温水350ml(約30℃)を加え、残渣と上澄み溶液(0.45 μm 孔径ミリポアフィルター)を分離し γ 線スペクトロメトリーにより、 ^{40}K 除去率と浸出時間との関係を検討した。(2)腐食生成物の挙動を検討するために灰化試料を立教大原子炉にて放射化した。この放射化試料数10mgを灰化試料10gに添加し、種々の条件(攪拌時間、pH、塩濃度及びキャリアの有無)で上記と同様な方法で処理した。

結果と考察

灰化試料の5~60分間の ^{40}K 除去の温水浸出実験では、溶液のpHはいずれも10前後であり、重量にして試料の50~60%が溶解した。 ^{40}K は灰化試料から迅速に溶解しており、除去率は浸出時間によらず97%であった(Table1)。以後の実験では便宜上、浸出時間を15分とした。

Fig. 1に放射化した試料を用いた浸出実験の結果を示す。試料に温水を加え攪拌した時点でのpHは10~10.5である。NaOH溶液及びHClを用いてpH6~12の範囲でpH依存性を検討した。Fig. 1よりpH6~12の範囲で実験した限り、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 以外は全て上記核種が100%($\pm 3\%$)残渣に残った。Agについては当初AgClとして100%残渣に残ることを期待したが実験条件によって数%溶液に残ることが確認され、 Ag^+ とNaClをキャリアとして加え、ろ過に使うフィルターの孔径(0.20~0.45 μm)を変えてさらに検討した。その結果 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ は上記結果と同じ挙動を示し、灰化試料中に高濃度に存在するClイオンのためAgClのごく一部がアルカリ性で AgCl_2^- 錯イオンとして溶解していることが示唆される。

以上より海産物灰化試料の温水浸出での ^{40}K 除去の際は、測定対象であるCr, Fe, Zn, Coの微量金属は溶出すること無く100%残渣に残ることが分かった。またその浸出時間と ^{40}K 除去率に相関は無く、特定の金属キャリアを入れる必要もない。海産物中の上記放射性腐食生成物の測定には、複雑な分離操作を必要とせず、簡単な温水浸出により γ 線測定の際に最も大きな妨害となる ^{40}K を極めて有効に除去がすることができ、検出感度の大幅な向上が可能なことを確

認した。今後この手法をホンダワラ試料に適用することにより、低バックグラウンドからみた石川県沿岸の志賀原発付近における放射性核種の挙動を探る予定である。

Table 1 Removal experiment of ^{40}K in ashed sample of sargasso.

Exp. No.	Leaching (min.)	Residual ^{40}K (cpm)	Removal ^{40}K (%)
1	5	0.65 ± 0.02	96.8 ± 2.6
2	15	0.62 ± 0.02	97.0 ± 2.7
3	30	0.57 ± 0.02	97.2 ± 2.6
4	60	0.56 ± 0.02	97.3 ± 2.7

Non-treated sample: $^{40}\text{K}=17.9 \pm 0.1$ cpm

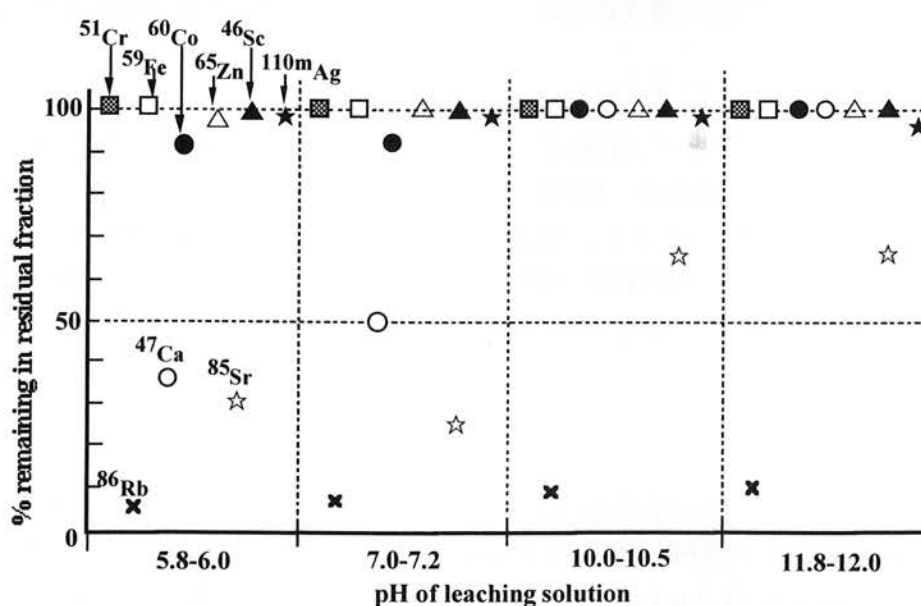


Fig. 1 Leaching results of several radionuclides in ashed samples activated

[本研究は主に大学院生小藤久毅と卒研生笹川秀樹によりおこなわれた。]

海藻の人工および天然放射性核種濃度

--- 温水浸出 ^{40}K 除去法の実験的適用 ---

Activities of artificial and natural radionuclides in seaweed

--- Application of low background γ -ray measurement to seaweed ---

はじめに

海藻など海産物試料の γ 線測定においては、 ^{40}K のコンプトン散乱線に埋まるピークから極微量の放射性核種の検出・測定を余儀なくされる。当施設では ^{40}K を分離する簡便で実用的な温水浸出法の採用によりバックグラウンドの低減を試みてきた。本研究ではこの手法を日本海沿岸で採取された海藻試料に適用し、さらには尾小屋地下測定室を利用することにより、極低バックグラウンド γ 線測定を試みる。その成果として、原子力施設由来の放射性腐食生成物(^{60}Co , ^{51}Cr , ^{65}Zn , ^{59}Fe , $^{110\text{m}}\text{Ag}$)など海洋沿岸の放射能汚染モニタリングおよび天然放射性核種の海洋での詳細な挙動に関して議論する。

試料および実験

試料：海藻(ホンダワラ)を沿岸海水とともに石川県・志賀町・志賀原発周辺($r < 3 \text{ km}$)の赤住(AK)、百浦(MM)、丹和(NW)、水の潤(MZ)の4地点において、1998年12月より2001年1月の間に1~2ヶ月に1度の割合で採取した。

海藻処理：海藻および海水試料の化学処理スキームをFig. 1に示す。約60分の温水浸出をおこなった。温水浸出時Csの大部分はKと共に上澄み液に溶出する。リンモリブデン酸アンモニウム(AMP)の共沈分離により上澄み液からの回収した。

海水処理：目的核種を BaSO_4 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 沈殿として回収した。 Ba^{2+} キャリアに関してはRa汚染の一桁少ない医療用造影剤の BaSO_4 (カイゲン)を使用した。

γ 線測定：海藻、海水試料ともNaClを加え10 gディスクとし、尾小屋地下測定室内に設置したGe半導体検出器で、約2日間の γ 線測定をおこなった。

海藻試料の測定結果と考察

回収率：海藻模擬試料から求めた、温水浸出における腐食生成物の回収率は100%近かった(本報告書5, 6ページ)。今回処理前後の γ 線測定結果から ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{238}U (^{234}Th)、および ^{226}Ra の回収率をそれぞれ84~101%、83~110%、77~118%、91~114%と見積もった(Fig. 2)。計数誤差も大きく、より詳細な議論が必要であろう。その一方で妨害核種、 ^{40}K の大部分(95~99%)が除去されたことも確認された。

γ線スペクトル： 未処理および処理済み海藻試料の極低バックグラウンドγ線スペクトルをFig. 3に比較した。バックグラウンドは1/10以下に減少し、その結果検出感度の大幅な向上につながった。天然の ^{238}U 系列核種(^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{210}Pb), ^{232}Th 系列核種(^{228}Ac , ^{212}Pb)の他、宇宙線生成核種 ^7Be および人工放射性核種 ^{137}Cs のピークがみられる。

人工放射性核種： 放射性腐食生成物については、処理済み試料においても検出できるレベルでは存在せず、かつての核実験、また志賀原発などの汚染の影響はなかった。 ^{137}Cs 濃度(<~0.1 Bq/kg-wet)においても、汚染の影響はみられなかった。

天然放射性核種： U, Th 系列核種の非平衡は、これら核種の海中における挙動を探る重要な指標となり得る。同一海藻試料における ^{234}Th 濃度の変動をFig. 4に調べた。 ^{234}Th ($t_{1/2} = 24.1 \text{ d}$)の急激な減衰は、海藻に ^{238}U に比べ著しく ^{234}Th が選択的に濃集していることを示唆する($^{234}\text{Th}/^{238}\text{U} = >\sim 10$)。海藻中の ^{234}Th は試料中の親核種 ^{238}U から生成する他に、海水から取り込む成分の寄与が大きいと考えられる。U系列の $^{210}\text{Pb}/^{226}\text{Ra}$ 比においても $>1\sim 8$ 倍の大きな非平衡がみられた。 ^{210}Pb の降水(陸水)の影響も考慮するため ^7Be と $\text{excess}^{210}\text{Pb}$ 濃度の関係をFig. 5に示した。 ^{210}Pb 濃度は宇宙線生成核種 ^7Be 濃度と関係がみられ、特に1地点(水の澗)において ^7Be , ^{210}Pb が共通して高濃度を示した。 ^{210}Pb は大気中の ^{222}Rn の壊変生成物であり、 ^7Be 同様降水に伴い海面にもたらされる。この地点については降水を多く含む河川水の影響といった局所的な要因も考えられる。

海水試料： 海藻と同時に採取された海水試料におけるγ線スペクトルの一例をFig. 6に示した。海藻試料同様、天然の ^{238}U 系列核種(^{234}Th , ^{226}Ra , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{210}Pb), ^{232}Th 系列核種(^{228}Ac , ^{212}Pb)の他、宇宙線生成核種 ^7Be および人工放射性核種 ^{137}Cs のピークがみられる。日本海海水の ^{137}Cs 濃度においてはかつて、チェルノブイリ原子力発電所事故および旧ソ連の放射性廃棄物投棄による急増およびその後の減少が報告された。本結果(1.5~3 mBq/l)には汚染の影響はみられなかった。今後UおよびTh系列核種の非平衡がもたらす、これら核種の海洋における挙動に関する議論にも期待される。

今後の課題

放射性核種の挙動、特にU系列の非平衡について今後より詳細な議論を進めていくうえで、ICP-MSによる測定を併用するのが望ましいであろう。また放射性腐食生成物以外の核種の回収率の確認とその改良、さらには海藻以外の試料(例えば魚貝類)への適用の議論があげられる。

[本研究は石川県委託研究としておこなわれ、その成果の一部は第44回放射化学討論会(於神戸市)において報告された。]

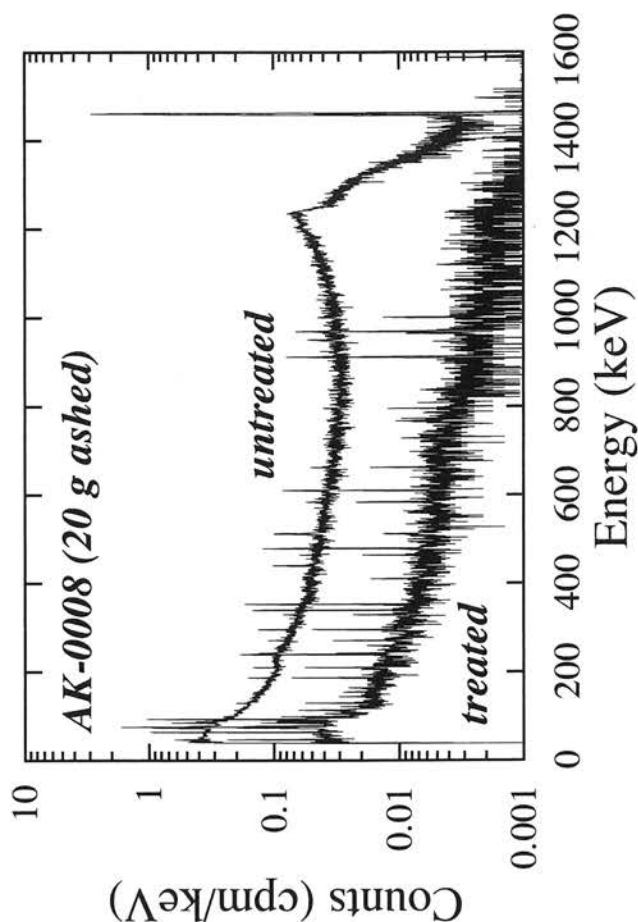
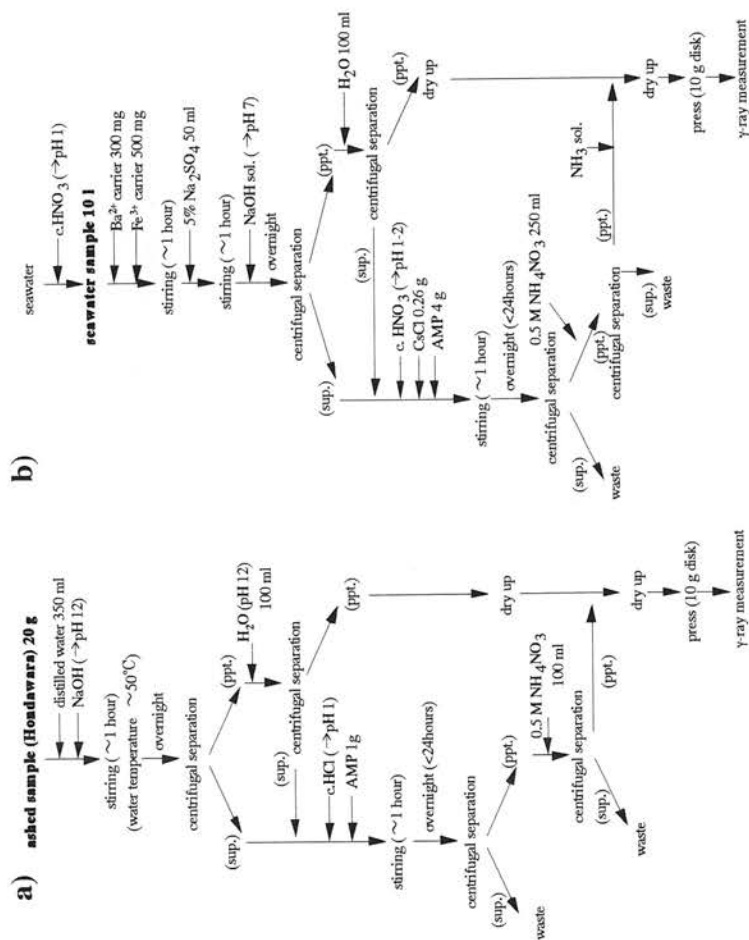


Fig. 1 (Upper, Left) Schemes for chemical treatment of
a) seaweed and b) seawater samples.

Fig. 2 (Lower, Left) Yielding factors of ^7Be , ^{137}Cs , ^{238}U and ^{226}Ra
during the treatment process.

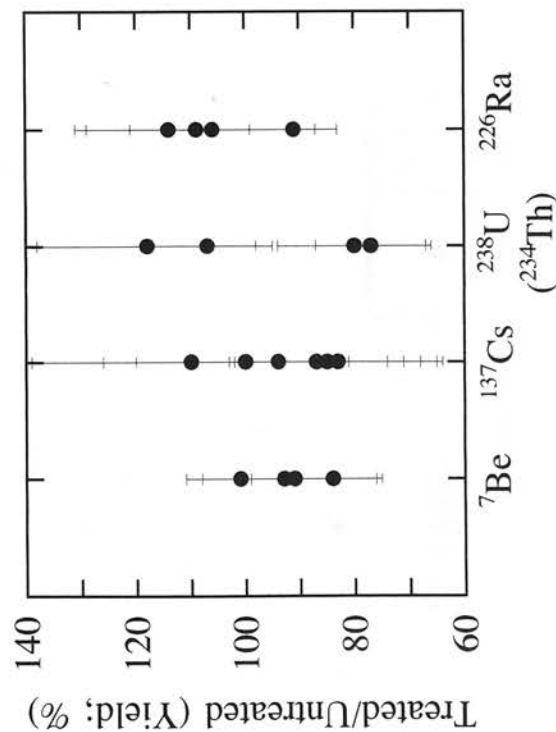


Fig. 3 (Upper, Right) γ-ray spectrum (0-1600 keV) of hondawara
(AK, Aug. 2000).

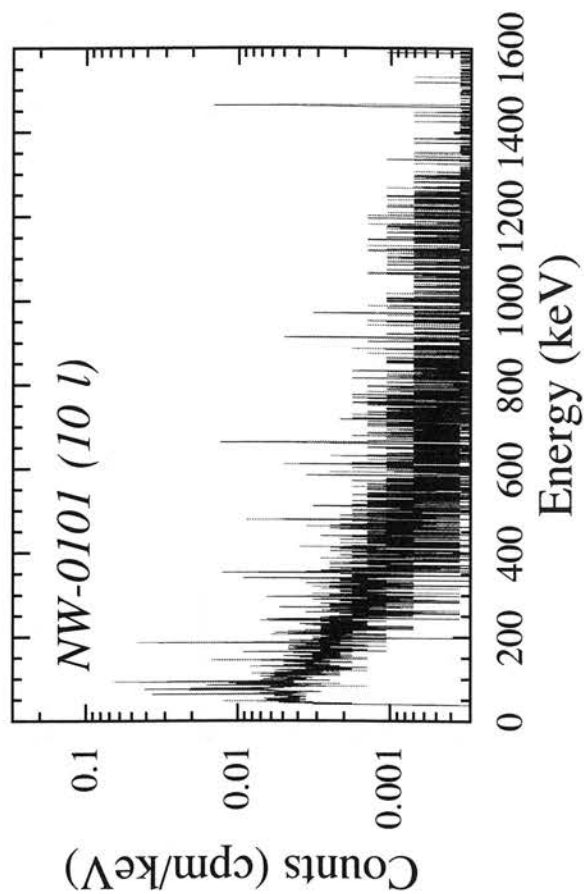
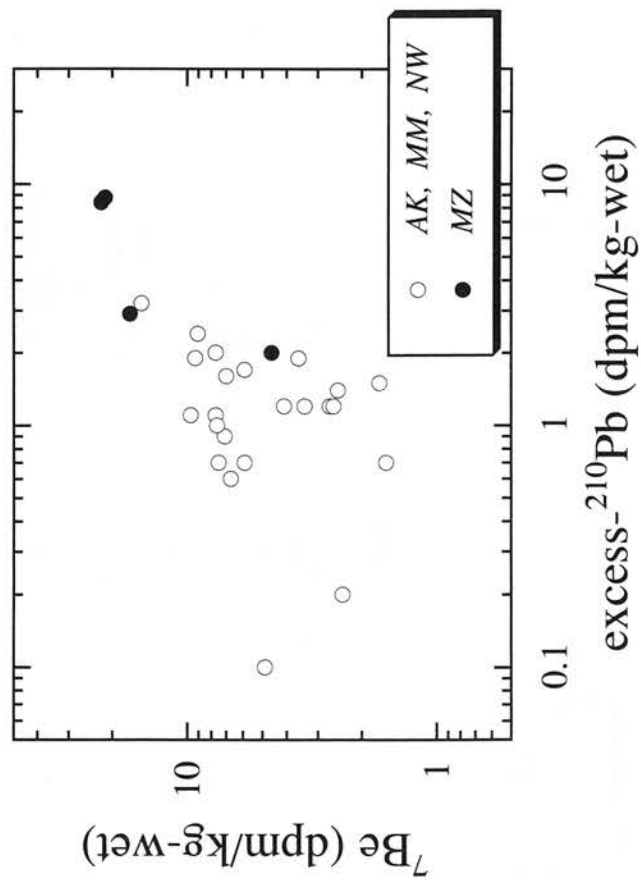
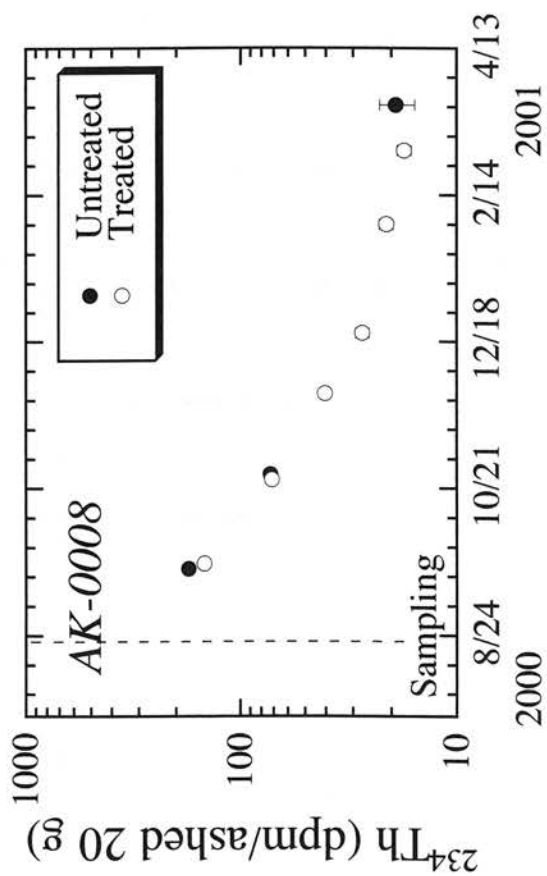


Fig. 4 (Upper, Left) Temporal change of radioactivity of ^{234}Th (64 keV) in hondawara (AK, Aug. 2000).

Fig. 5 (Lower, Left) Plot of ^7Be vs. excess- ^{210}Pb activities in hondawara.

Fig. 6 (Upper, Right) γ -ray spectrum of (0-1600 keV) of seawater (NW, Jan. 2001).

旧尾小屋銅鉱山湧水のアルカリ土類金属およびウラン系列核種 Alkarine earth metal and Uranium series nuclides in outflow water from Ogoya copper mine

旧尾小屋銅鉱山跡からの湧水は強い酸性 (pH4程度) を呈しており, 岩石と反応して地下深部の情報を持つと考えられる。本施設では, この湧水を利用した ^{222}Rn の連続測定を予定している。本研究では, その予備調査として, 銅鉱山跡から湧き出している2箇所の湧水について, 湧水中のアルカリ金属 (Na, K), アルカリ土類金属 (Mg, Ca, Sr, Ba), $\text{Fe}, \text{SO}_4^{2-}$ 濃度の経時変動, および ^{222}Rn , ^{226}Ra 濃度, $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比の測定を行った。

【実験】

実験は, 旧尾小屋銅鉱山跡から湧き出ている2箇所の湧水について行った。測定地点を Fig. 1 に示す。試料のサンプリングは1997年11月から12月にかけて, 数日おきに17回行った。採水時に現地で水温とpHの測定を行った。各試料中のNa, K, Mg, Ca, Feの濃度は誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) で, Sr, Ba, U濃度は原子吸光光度分析 (AAS) で, SO_4^{2-} 濃度は重量法で測定した。 ^{226}Ra 濃度はγ線スペクトロメトリーで, ^{222}Rn 濃度はトルエン抽出後, 液体シンチレーションカウンター (LSC) で, $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比はα線スペクトロメトリーにて測定した。

【結果および考察】

2地点での各項目の測定結果を示す (Table 1)。当研究所の小藤が同年7月に測定した値を参考に載せている。各元素の濃度は, Baを除いて井戸が堅坑よりも高い値を示した。連続測定をした期間内では, どの元素も大きな濃度変動はなく, 水質はほぼ一定であった。7月の結果と比べると, Na, K, Mgについては同程度の値であったが, Ca, Feに関しては7月の値が約半分であり, 季節変動の可能性を示した。Baについては, 他の元素と非常に相関が低く, SO_4^{2-} との沈殿平衡の影響を受けていると考えられる。 ^{222}Rn の濃度は井戸の濃度は堅坑の10倍にもなり, 堅坑では地下から上がってくるまでに崩壊しているためと考えられる。

以上の結果から, ^{222}Rn の連続測定には井戸の方が適当であるといえる。

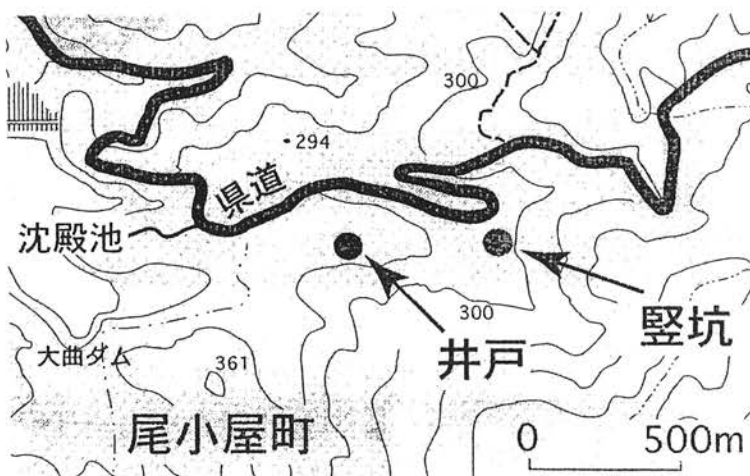


Fig. 1 Sampling points of spring water from Ogoya copper mine.

Table 1 Chemical compositions at shaft and well in Ogoya copper mine

	November and December (1997)			July (1997)		
	Shaft	well	Shaft/Well	Shaft	Well	Kakehasi river
pH	3.5	4.5				
temp.(°C)	13.5	14.5				
Na* (ppm)	8.7 (7.6-10.0)	10.3 (9.1-11.0)	0.84	13.2	15.7	14.5
K* (ppm)	8.5 (7.0-10.2)	11.7 (10.0-13.0)	0.72	5.2	7.9	1.7
Mg* (ppm)	91.6 (63.1-11.4)	109 (87-124)	0.84	84.7	133.7	13.7
Ca* (ppm)	34.9 (24.8-47.1)	69.6 (47.1-82.4)	0.50	60.3	159.9	13.0
Sr* (ppm)	0.215 (0.168-0.260)	0.440 (0.360-0.473)	0.49			
Ba* (ppb)	19.0 (12.9-25.7)	9.29 (8.48-10.2)	2.05			
Fe* (ppm)	48.2 (23.7-71.0)	61.1 (46.6-66.3)	0.79	15.6	36.3	0.3
SO_4^* (ppm)	410 (210-690)	660 (510-790)	0.62			
Ra (mBq/ℓ)	1.0±0.7	12±1.0				
Rn (cps/ℓ)	~1	~10				
U (ppt)	~50	~50				
$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	13.7±1.20	16.6±1.30				

* : Mean Value of 17samples (SO_4^{2-} 7samples), (Minimum Value - Maximum Value)

[本研究は主として4年生奥山通利が行った。]

旧尾小屋銅鉱山における湧水中の ^{222}Rn の連続測定 Continuous measurements of ^{222}Rn concentrations in outflow water from Ogoya copper mine

ウラン系列のラドン同位体 ^{222}Rn は、その半減期の長さ ($T_{1/2} = 3.825\text{d}$) から自然界における大気や地下水の短期の動きを調べる tracer としてよく利用されてきた。地下水中へのラドンの主な供給源としては、岩石中の ^{226}Ra の α 崩壊する際の反跳が上げられる。そのため、その濃度変化は、地下の流水経路や岩盤の状態などを反映していると考えられる。また、地震の起こる前にラドン濃度の特異な変化が観測される例が多く見いだされ、地震予知の観点からも、地下水中のラドン濃度の変化を連続して測定することは大きな意義がある。そこで、水中のラドン濃度を連続して測定できる検出器を作成し、旧尾小屋銅鉱山跡にある湧水井戸に設置してラドン濃度の連続測定をして得られた結果について報告する。

【実験】

水中ラドン濃度連続測定用の検出器として、岐阜大学の田坂らが開発したものを使用した [1]。この検出器は、気水分離膜を通過してきたラドンの娘核種 (^{218}Po , ^{214}Po) を逆バイアスをかけた photo diode 上に捕集して、その α 線を測定する (Fig. 1)。

この検出器を、旧尾小屋銅鉱山坑道からの湧水井戸に設置した。この井戸は、閉山時に埋められた坑道への入り口で、井戸底面から常時大量の水が湧き出している。検出器への電源はカーバッテリーで提供し、約1ヶ月間の連続測定が可能である。検出器からの出力は、井戸から約300m離れた北陸鉱山作業屋内に設置したポータブル MCA (Series 35+) で MCS モードにて 30分毎のカウント数を測定した。

【結果及び考察】

Fig. 2 に1998年8月頃の湧水中のラドン濃度の測定結果と降水量、そして同時期に岐阜・長野県境で起きていた群発地震の発生日とそのマグニチュードを示す。この井戸からの湧水中のラドン濃度が約1日の周期で変動していることがわかる。変動幅もほぼ一定であるので、この湧水は、地震起源によるラドン濃度変動の観測に適しているといえる。8/4と8/17あたりからラドン濃度が数日に渡り増加している。これは、それぞれの数日前に降った多量の降水による降水量の増大に起因していると考えられる。ただ、同時期に岐阜・長野の県境で群発地震が起っており、湧水中のラドン濃度が上昇する前に M4 程度の地震が起っており、その影響が出ている可能性もある。現在までに得られたデータでは、どちらの要因の影響が大きいかを判断するまでにはいたっていない。

以上の結果から、この湧水中のラドン濃度の変動要因として降水、地震の両方の可能性があることが示された。今後は、さらに測定項目を増やし、より詳細な測定を行うことで湧水中のラドン濃度の変動要因をはっきりさせる予定である。

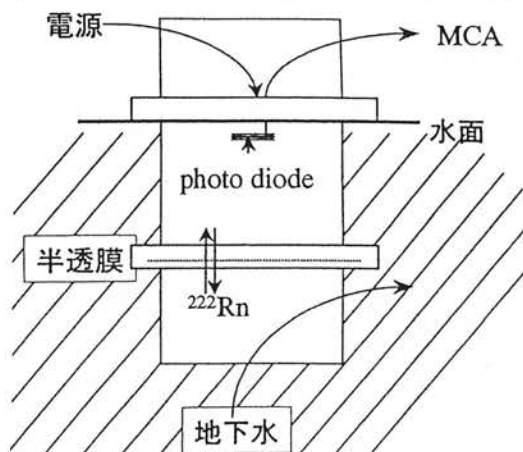


Fig. 1 Sectional view of a ^{222}Rn detector

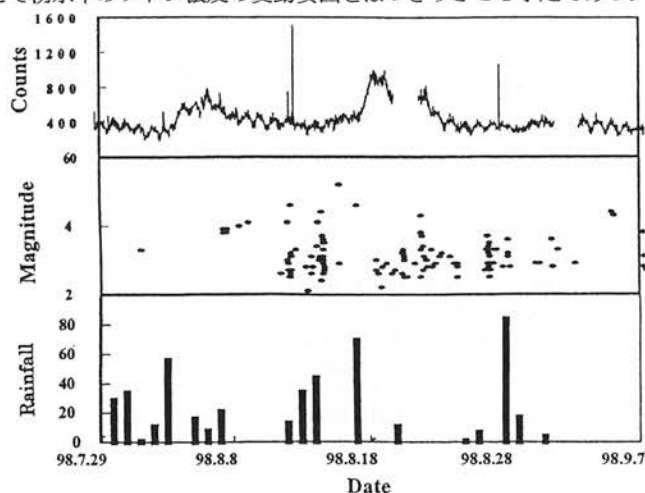


Fig. 2 Comparison with the ^{222}Rn concentrations and rainfall and earthquakes

[1] 田坂茂樹, 佐々木嘉三, Radioisotope, 45, 741(1996)

[本研究は主として非常勤講師室山俊浩が行い、成果は室山, 小村, 奥山, Yousef の連名で第42回放射化学討論会に発表された。]

金の放射化からみた中性子の影響範囲

Evaluation of environmental impact of neutrons evaluated by activation of gold

はじめに

極低バックグラウンドGe検出器を使用することによって、地上レベルの環境中性子($0.008\text{ncm}^{-2}\text{s}^{-1}$)で生成する ^{198}Au (半減期2.7日)を始めとする様々な天然の放射性核種を検出することが可能となった。1999年9月30日のJCO臨界事故は中性子が漏洩して環境物質を放射化した我が国で初めての重大事故であった。事故を想定し、20時間一定の中性子束で照射されて生成する誘導放射性核種を、1週間後から1週間測定する場合の相対的な検出感度をTable 1に示す。 ^{198}Au を使った中性子フルエンスの評価はもっとも有効であり他の核種を圧倒している。金は中性子の検出感度が高いばかりでなく、指輪、ネックレス、コインなどに使われているので複数の試料の入手が比較的容易である。また事故時の照射状況が割とはっきりしていることも利点となる。金を用いる環境中性子の評価については、事故発生直前1999年7月末の「第一回環境放射能・放射線夏の学校」(於 金沢大学辰口共同研修センター)で紹介したこともあり、事故直後より日本原子力研究所、東北大金研大洗研および放医研の環境グループが被曝した金の測定を試みている。しかし測定器のバックグラウンド性能や検出器の台数の制約から遠方の試料に対する測定はほとんどされていなかった。広島・長崎の原爆中性子による誘導核種 ^{60}Co と ^{152}Eu の測定では1kmを超えると実測値が計算値を大幅に上回るという結果になっており、金における結果が注目されていた。このような背景もあり、金を使ったJCO事故による中性子の影響範囲の評価は非常に重要な位置を占める。

試料の収集と運搬

文部省学術調査班による第1次調査2日目の10月8日と第二次調査の10月24日の2回行われた。金試料は東海村および那珂町の住民から18個を借用・購入した。試料の被曝地点は最も近いもので事故サイトから約350m、最も遠方のものは2.7kmである(Fig. 1)。試料は指輪、ネックレス、コイン等様々(3g~30g)である(Table 2)。したがって、中性子捕獲断面積が大きいために、試料内での中性子の吸収の効果や γ 線の検出効率の効果を慎重に考慮しなければ信頼性の高い結果を得ることは困難である。金の放射化は感度が高いとはいえ、事故発生地点から1kmを超える地点で被曝した試料の放射能は近距離の試料と比較して数桁は低いと予想される。また試料の数が多いため、1試料にかけられる測定時間が限られてしまい、待ち時間中の減衰が問題となる。このために一刻も早く測定を開始できるように能率良く運搬する必要がある。地表より2桁程中性子フラックスが高い飛行高度での放射化を避けるために航空機を使わずに常磐線、上越新幹線、北陸線の特急を乗り継いで運搬した。

測定

測定は、旧尾小屋鉱山のトンネル内(270mwe)に設置した地下測定室で行った。測定開始は10月9日午後8時過ぎとなり、 ^{198}Au の放射能は臨界終息時の約1/10にまで減衰していた。事故サイトより至近距離にあった試料(2次調査で収集)の測定開始は10月28日となったが、この時点で ^{198}Au の放射能は生成時の1/1000以下にまで減衰していた。遠距離の試料はサイト近傍の試料より4~5桁放射能が低いことと予想されるので、遠方の試料から測定を開始することとし、あわせて検出器の検出特性とおよび試料の重量を考慮して、最大の測定成果が得られるような時間配分を行った。被曝した金試料の412keV領域の γ 線スペクトルをFig. 2に示す。測定時間が短かいにもかかわらず、全ての試料に加え、体温計の水銀中にも ^{198}Au が検出された。

解析

熱中性子に対する金の放射化断面積は98バーンと極めて大きい上に、共鳴領域での断面積が大きいので、試料内での中性子の吸収を無視することはできない。また測定試料の形状や重量及び金含有量の違いによる ^{198}Au 生成量の違いを正しく評価することも必要である。これには模擬照射実験が有効であるが、今回は、事故以前に0.7mmの金板、1~2mmの金粒、金貨およびネックレス等の金試料を使って環境中

性子の測定で求められている ^{198}Au 生成量の平均値50atom/g-goldを暫定値として用いることとした。

スペクトル解析により求めた412keV γ 線のピークカウントから出発し、臨界終息時に事故による ^{198}Au の原子数(atom/g-gold) ^{198}Au の生成量を算出するために次のような手順を踏んだ。

1) すべて ^{198}Au が壊変した時のカウント数 C_0 の計算

$$C_0 = C / [1 - \exp(-\ln(2) \times T_m / 2.695)]$$

(C = 測定時間中の412keVピークのカウント : T_m = 測定時間 (day))

2) 測定開始時点での ^{198}Au 原子数 A (atom) の計算

$$A = C / E / B$$

(E = 412keV γ 線に対する検出効率 : B = 412keV γ 線の放出率 (0.96))

3) 尾小屋地下測定室に運び ^{198}Au の生成が終了した時点での ^{198}Au 原子数 A_0 (atom) および比放射能 X (atom/g-gold) の計算

$$A_0 = A / \exp(-\ln(2) \times T_w / 2.695)$$

$$X = A_0 / W$$

(T_w = 測定開始までの待ち時間 (d) : W = 金試料中の金の量 (g))

4) 臨界事故による ^{198}Au 原子数 X_i の計算

$$X_i = X - N$$

(N = 環境中性子による金1g当たりの ^{198}Au 生成量, 暫定値50 atom/g-gold を使用)

5) 臨界終了時の ^{198}Au 原子数 X_0 (atom/g-gold) の計算

$$X_0 = X_i / \exp(-\ln(2) \times T / 2.695)$$

(T = 臨界終息 (10月1日午前6時15分) から測定室搬入までの時間 (day))

なお、使用した4台のGe検出器の412keV γ 線に対する検出効率は事故以前に類似試料で得た値を使用した。誤差は30%以内と考えている。

結 果

Fig. 3に事故由来の ^{198}Au 原子数 (atom/g-gold) を距離の関数としてプロットした。中性子フルエンスで表わさなかったのはエネルギースペクトルが不明でありフルエンスを求めることが困難なからである。Fig. 3から事故による ^{198}Au 生成はサイトから1400m地点まで確認できた。1056mのネックレス〔○〕が異常に高い放射能を示したため、所有者に問い合わせたところ、犬の世話のため350m内にある自宅に2回帰ったことがわかった。バースト時とその後20時間にわたる臨界継続中の中性子の放出の割合を11%と89%〔一様な放出率を仮定〕として自宅に帰った時間 (各約30分) の中性子被曝の寄与を差し引くと実測値の約1/30 (●) に補正出来ることが分かった。また2150m地点のネックレス〔○〕は20gもあるために、統計誤差が小さい有意な生成があったかに見えたので、事故50日目に再度借用して測定した。しかし ^{198}Au のピーク計数率は事故10日後に測定した値と統計的に一致しており、事故による生成を確認することは出来なかった。したがって2150m地点の値は矢印先のように補正される。ネックレスは身に付けていたものであり、人体による中性子の減速効果によりが高まった、あるいは東海村一帯の環境中性子のレベルが高いということも考えられる。事故サイトに近い試料で生成量では距離がほぼ等しいのに生成量に1桁近くの違いがある。臨界が継続している間に遠方へ避難したか、事故サイトから離れて存在する自宅に帰ったために中性子被曝が少なかったことも考えられる。Fig. 3の曲線は中性子輸送計算コードDOT3.5 (中性子の遮蔽を考慮しない) を用いて臨界出力を1.8kWhとして求めた ^{198}Au 生成量を示す。 ^{198}Au の実測値は理論計算と良く一致している。ウラン沈殿槽内および建物の壁材 (シボレックス) による中性子の吸収を考慮したMORSEコードでは臨界出力を約1桁高い16.8kWhとすると実測値をほぼ説明できる。先に中性子フルエンスの推定はエネルギースペクトルの情報がないと困難であると述べたが、暫定的にすべての ^{198}Au が熱中性子で生成したものと仮定すれば350m及び1500m地点の (熱) 中性子は約 10^8 cm^{-2} および 10^4 cm^{-2} 相当にする。1800m地点では事故と環境中性子 ($0.008 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$) により生成した ^{198}Au の量ものがほぼ同レベルになると推定される。しかし事故による中性子が20時間にわたって漏洩した (一定と仮定) ことで生成したものであり、これが環境中性子による飽和値に等しいとすれば、1800m地点の中性子フラックスは環境中性子の5倍に相当する $0.04 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であったと推定される。今回の ^{198}Au

の測定は事故発生後10日後から始めたものであり、 ^{198}Au の放射能が1/10に減衰していたことを考えると、事故直後には1700m地点まで ^{198}Au の検出が可能であったと考えられる。試料の形状や重さの違いを考慮してデータの精密化をはかるために、広島大学の原医研の ^{252}Cf 中性子線源による金箔、金板、ネックレス、コイン、金粒の模擬照射実験を行なった。実験結果を整理しているところである。臨界事故による漏洩中性子による金の放射化の距離依存性の測定は、広島・長崎の原爆中性子による誘導放射性核種 ^{152}Eu と ^{60}Co の実測値が遠方で大きく食い違うことの解明につながると期待されていた。しかし金では計算と実測の一致がよく、 ^{152}Eu と ^{60}Co における不一致の謎は依然として未解決の問題として残される。

Table 1. Relative sensitivity of radionuclides produced by thermal neutrons for 20h irradiation, 7day decay and 7 day measurement

Target	Isotopic abundance (%)	Cross section (barns) ^a	Product	Half-life (day)	Saturation factor for 20h irradiation	Decay (7d) before meas.	Decayed fraction during 7 day meas.	Relative ^b E _γ (keV)	γ-ray abundance	Sensitivity by γ-ray meas. ^c	Normalized to ¹⁹⁸ Au = 10000	
¹⁹⁷ Au	100	98.7	¹⁹⁸ Au	2.6943	0.1930	0.1652	0.8348	262.6	412	96	25210	10000
¹⁹¹ Ir	37.3	930	¹⁹² Ir	73.83	0.0078	0.9364	0.0636	16.10	317	82.8	1333	529
¹³⁹ La	99.91	9	¹⁴⁰ La	1.678	0.2912	0.0555	0.9445	13.73	1596	95	1304	517
¹²¹ Sb	57.36	0.4+5.5	¹²² Sb	2.70	0.1926	0.1658	0.8342	9.015	564	69	622	247
¹⁵² Sm	26.7	26.7	¹⁵³ Sm	1.928	0.2589	0.0807	0.9193	13.70	103	31.4	430	171
¹⁹³ Ir	62.7	105	¹⁹⁴ Ir	0.7979	0.5151	0.0023	0.9977	7.736	328	13.1	101	40.2
⁴⁵ Sc	100	27	⁴⁶ Sc	83.32	0.0069	0.9434	0.0566	0.996	889	99.98	99.5	39.5
¹⁸⁶ W	28.6	36	¹⁸⁷ W	0.9925	0.4412	0.0075	0.9925	3.395	686	27.3	92.7	36.8
¹⁰⁹ Ag	48.16	4.4+87	^{110m} Ag	249.9	0.0023	0.9808	0.0192	0.191	658	94	17.94	7.12
³¹ P	100	0.16	³² P	14.26	0.0397	0.7116	0.2884	0.130	no γ	0	13 ^d	5.20
⁵⁰ Cr	4.345	16	⁵¹ Cr	27.7	0.0206	0.8393	0.1607	0.193	320	10	1.93	0.77
¹³³ Cs	100	29	¹³⁴ Cs	752.4	0.0008	0.9936	0.0064	0.014	605	97.56	1.39	0.55
²³ Na	100	0.43	²⁴ Na	0.625	0.6031	0.0004	0.9996	0.011	1368	100	1.10	0.44
¹⁵¹ Eu	47.8	6000	¹⁵² Eu	4868.6	0.0001	0.9990	0.0010	0.034	344	26.48	0.90	0.36
⁵⁹ Co	100	20.7+16.4 ^e	⁶⁰ Co	1926	0.0003	0.9975	0.0025	0.003	1173	99.9	0.28	0.11
⁶⁸ Zn	48.6	0.77	⁶⁹ Zn	244.3	0.0024	0.9803	0.0197	0.002	1115	50.6	0.09	0.03

a : Taken from Nuclide chart

b : calculated by [abundance]x[sat.factor]x[decay factor]x[fraction of decay]/[half-life]

c : calculated by [Relative]x[γ-ray abundance] : detection efficiency is not considered.

d : β-ray counting

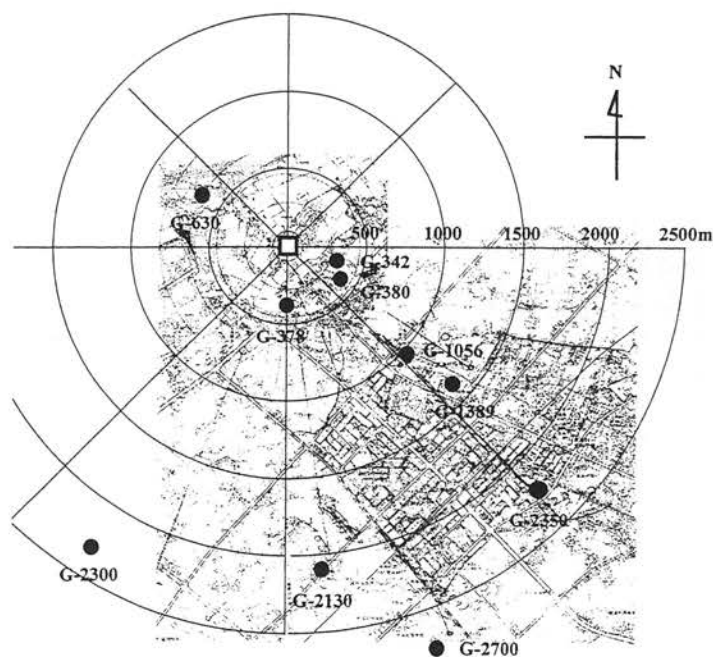


Fig. 1 Sampling points of gold items in Tokai-mura and Naka-machi.

Table 2 Gold samples measured for ^{198}Au induced by the JCO accident.

Name	Material	Distance (m)	Weight (g)
G-342	K14 string	342	5.11
G-370	K18 Necklace	370	3.24
G-378	K18? Ring	378	4.40
G380	K18 Necklace	380	2.70
G-630a	K18? Ring	630	2.12/3.47
G-630b	K14 Necklace	630	16.64
G-1056	K14 Necklace	1056	5.74
G-1248	K14 Necklace	1248	2.29
G-1389a	K18 Ring	1389	4.19
G-1389b	K18 Ring	1389	3.64
G-1389c	K18 Ring	1389	2.83
G-2000	K24 Coin	2000	20.00
G-2130	K18 Necklace	2130	16.52
G-2300	K18 Bracelet	2300	31.31
G-2350	K18? Ring	2350	3.59
G-2700	K18 Necklace	2700	21.20
Hg	Thermometer	600	5 lots
Blank-1	K18 Ring	Tatunokuchi	4.60
Blank-2	K18 Necklace	Tatunokuchi	15.06

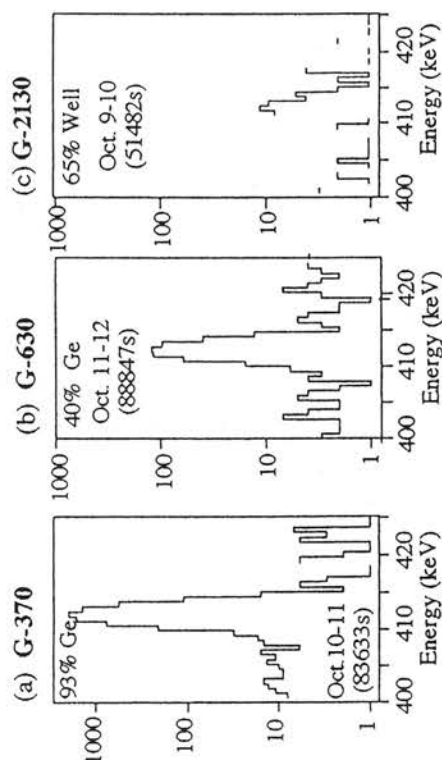


Fig. 2 Gamma-ray spectra of gold samples near JCO. Detectors and measuring times are shown in the spectrum.

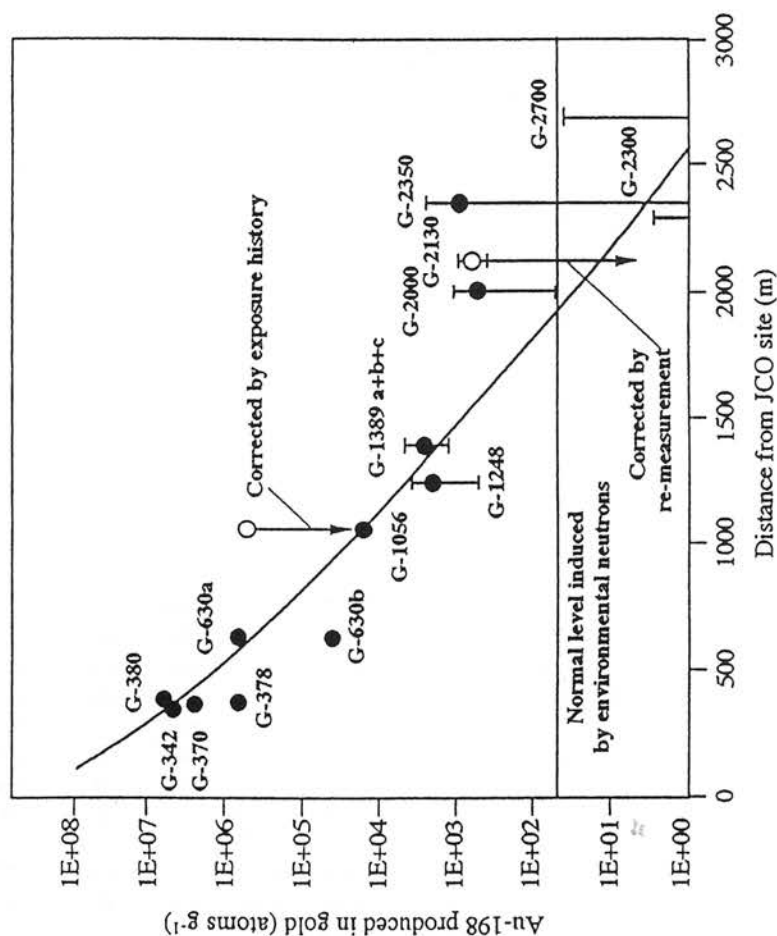


Fig. 3 Gold-198 production by JCO accident and environmental neutrons.

[今回の調査は文部省 科研費 (No. 10480024) の補助を受けて実施した。貴重な金試料を提供してくださった東海村および那珂町の住民の皆さんに深く感謝する。本研究は、KEKセミナー2000 (於 高エネルギー加速器研究機構) において発表された。]

環境中性子による放射化

広島・長崎の原爆中性子評価におけるバックグラウンド成分
としての天然の放射性ユーロピウム及びコバルト

Radionuclides induced by environmental neutrons

Natural ^{152}Eu and ^{60}Co as background component in the evaluation of Atomic
Bomb neutron in Hiroshima and Nagasaki

はじめに

広島・長崎原爆中性子によって誘導された ^{152}Eu と、 ^{60}Co の実測値が中性子輸送モデルから推定された距離依存性より遠方で多くて、1kmを超えるとその違いは1桁を超えてしまうことが知られている。しかしその謎はいまだに解明されていない。環境中性子による ^{152}Eu と ^{60}Co の生成が発見されたことでその寄与を評価することが大きな意味を持っている。本稿では、天然の ^{152}Eu と ^{60}Co の発見の経過と試薬等における濃度、広島・長崎原爆被曝試料において考えられる環境中性子寄与について考察する。

天然の ^{152}Eu と ^{60}Co の発見

実測と計算の違いの原因が環境中性子の寄与で説明できないかという思い付きから1980年代に購入した1gの酸化ユーロピウム試薬を尾小屋地下測定室の平板型Ge検出器で測定を始めた(1998年4月)、ところ、1日後には ^{152}Eu の存在を示唆する122keVと344keVの γ 線ピークが見つかった(Fig. 1)。これが環境中性子による誘導核種探索の出発点となった。10gのユーロピウム試薬を測定することによってさらに ^{154}Eu 及び ^{155}Eu が存在していることが明らかになった。 ^{152}Eu と ^{154}Eu は ^{151}Eu と ^{153}Eu の中性子捕獲反応による生成で説明可能であるが、 ^{155}Eu は ^{154}Sm の中性子捕獲により生成した ^{155}Sm が β 壊変して生成した ^{155}Eu がユーロピウムの分離精製時にユーロピウムフラクションに濃縮されたものと考えられる。

一方、 ^{60}Co に関しては、広島・長崎原爆被曝試料における実測と計算の違いを説明する以外にも「コバルト試薬は人工の ^{60}Co で汚染されている」という「常識」を覆すことも目的となっている。これは古い試薬で ^{60}Co の存在を証明することが必要であり、可能な限り古い試薬の入手を試みた。幸い、金沢大工学部の分析化学教室で金沢工専時代の試薬棚に古いコバルト試薬(酸化コバルト、亜硝酸コバルトナトリウム塩)あることが分かった。ロウで密封したガラス瓶に貼ってある旧字体で書かれたラベルから判断して第二次世界大戦前に製造された試薬と思われる。測定の結果 ^{60}Co の存在を確認した。

試薬中の ^{152}Eu と ^{60}Co 濃度

これまで測定した試料の測定結果をTable 1, 2にまとめた。コバルト及びユーロピウムとも中性子捕獲断面積が大きいために、小分けしたとしてもかなり中性子が試薬内で吸収されてしまう。簡単のために、球形の容器を考え、熱中性子が試薬による吸収を受けた場合を考える。中性子捕獲断面積の値として、 ^{151}Eu 、 ^{153}Eu 及び ^{60}Co の熱中性子吸収断面積をそれぞれ5900, 320, 20 barnとし、5及び10g cm⁻²の酸化ユーロピウムあるいは金属Coターゲットを通過した時の生成量を計算すると無限に薄いターゲットの場合と比較すると酸化ユーロピウムでは約1/50及び1/100に金属Coでは1/1.6及び1/2.3となる。

これは極端なケースであるが、実測された放射能値は、薄いターゲットの場合よりかなり低くなっており、ユーロピウムでは桁違いに低いことに注意しなければならない。

自己吸収がない場合の ^{151}Eu 飽和値は5.36dpm g⁻¹となるが、環境中性子0.008cm⁻²s⁻¹すべてを熱中性子として計算しているので、実際にはこの数分の1になると思われる。しかし、過大評価の分を差し引いても、実測値は計算値より1桁は低い。 ^{151}Eu は半減期が長いので飽和値に達していないことも考えられるが、試薬では自己吸収がかなり効いていることは確かである。一方 ^{60}Co の実測値は計算値の1/5~1/2でありほぼ推定値に近い。

広島・長崎の被曝試料における環境中性子の寄与

試薬中の ^{151}Eu の実測値は、計算値よりかなり低いのが原爆中性子に被爆した岩石や瓦における中性子の自己吸収は試薬よりもずっと少ないと考えられる。また、水や土壌中での ^{198}Au 生成量の測定明らかになったように、速中性子成分の減速により約10gcm⁻²入ったところの生成量が表層よりも多いことも原爆被曝試料の解析では考慮しなければならない。

現段階では広島・長崎の原爆被曝試料で検出された ^{151}Eu 及び ^{60}Co の実測値が計算値より高い理由のす

すべてを環境中性子の寄与で説明することは残念ながらできないようである。

Table 1. Natural ^{60}Co activity in cobalt reagents

	Natural ^{60}Co activity			
	Old Co Na Nitrite		Recent Co metal	
Activity	dpm/g-Co	error	dpm/g-Co	error
	0.0234	0.0087	0.0197	0.0043
Atom number	Atom/g-Co	error	Atom/g-Co	error
	9.34E+04	3.47E+04	7.86E+04	1.72E+04
60/59 atom ratio ($\times 10^{-18}$)	atom/atom	error	atom/atom	error
	9.15	3.4	7.7	1.68
			18.93	0.98

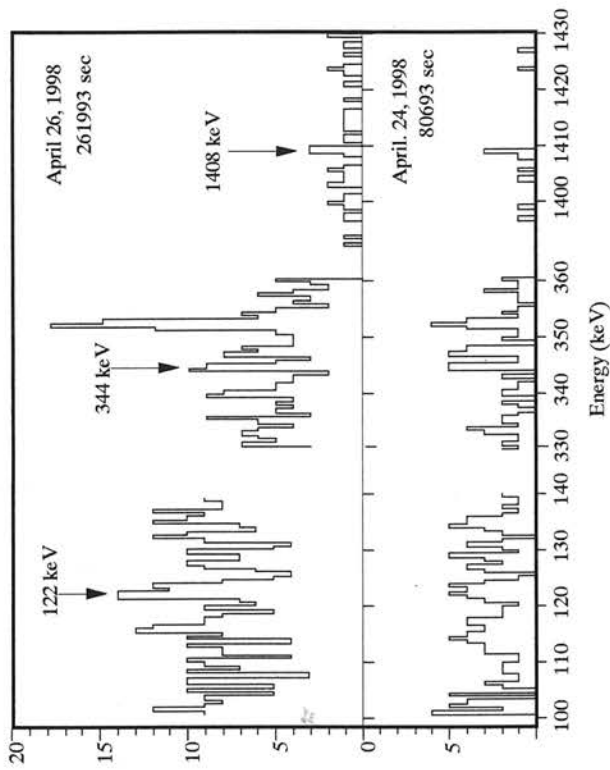


Fig. 1. Discovery of natural Eu-152 induced by environmental neutrons.
Sample : 1g Eu 2O_3 , Detector : 93.5% coaxial Ge in Ogoya Lab.

Table 2. Natural radioactive europium isotopes in europium reagents.

Sample	Mitsuwa Co.		Shin'etsu Co.		Shin'etsu old Eu	
	dpm/g-Eu	error	dpm/g-Eu	error	dpm/g-Eu	error
Eu-105	0.0974	0.0131	0.1355	0.0118	0.0053	0.0033
Eu-152	0.1715	0.0080	0.1440	0.0062	0.0581	0.0040
Eu-154	0.0348	0.0056	0.0245	0.0040	0.0063	0.0017
Atom number per g-Eu						
Atom number	atom/g	error	atom/g	error	atom/g	error
Eu-105	3.70E+05	4.90E+04	5.10E+05	4.40E+04	2.00E+04	1.20E+04
Eu-152	1.70E+06	8.00E+04	1.50E+06	6.30E+04	5.90E+05	4.00E+04
Eu-154	2.30E+05	3.70E+04	1.60E+05	2.60E+04	4.20E+04	1.10E+04
Activity ratio						
Activity ratio	dpm/dpm	error	dpm/dpm	error	dpm/dpm	error
155/152	0.57	0.08	0.94	0.09	0.09	0.06
154/152	0.2	0.03	0.17	0.03	0.11	0.03
Atom ratio (product/target atom)						
155/ nat. Eu ratio	0.92	0.12	1.29	0.11	0.05	0.03
152/151 ratio	9.14	0.42	7.67	0.33	3.1	0.21
154/153 ratio	1.12	0.18	0.79	0.13	0.2	0.05

[本研究は、KEKセミナー2001 (於 高エネルギー加速器研究機構) において発表された。]

JCO 敷地内外の土壤中ウラン系列核種の放射非平衡

The radioactive disequilibrium of uranium series nuclide in soil internal and external the JCO site

[はじめに]

1999年9月30日に茨城県東海村の燃料加工施設(株)ジェー・シー・オー(以下JCOと省略)転換棟内にて臨界事故が発生した。JCO敷地内土壤中のウラン同位体($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比)の異常についてはすでに田中らや吉田らによって報告されている(J. Environmental Radioactivity, 50, 2000)。本研究では、ウラン系列核種の放射非平衡の観点から土壤中のウラン異常の起源と汚染程度について検討した。

[試料採取および実験方法]

1999年10月7日および1999年10月26日に、茨城県東海村JCO敷地内とその周辺にて、表層5cmおよび10cmの土壌試料(計27地点)と、30cmまでのコア土壌試料3地点(計12試料)を採取した(Fig.1および2)。

試料を70°Cで乾燥後、2mmのふるいにかけ、乳鉢(Fritsch Mortar Grinder)で粉碎・混合した。2.00gを精秤し、500°Cで灰化した。テフロンビーカーを用いて灰化試料を $\text{HNO}_3\text{-HF-HClO}_4$ で分解・抽出後、残渣についてはさらに Na_2CO_3 で融解し、全分解を行った。その後、 ^{232}U および ^{229}Th トレーサーを添加し、陰イオン交換カラム法にてウランとトリウムを逐次、分離・精製した。 α 線スペクトロメトリにより、 ^{234}U 、 ^{238}U および ^{228}Th 、 ^{230}Th 、 ^{232}Th 同位体を各核種が数千カウント以上になるように4~7日間測定し、定量した。標準試料JG-1を用いて、上記の分析スキームにしたがってUおよびTh同位体の分離・精製を行った。得た測定値とJG-1の保証値との比較により、本スキームの妥当性を確認した。一方、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比は、ICP-MSを用いて定量した。

[結果と考察]

各核種の濃度を測定した結果、 ^{38}U は0.011~0.069 Bq/g、 $^{34}\text{U}/^{238}\text{U}$ の放射能比(Bq/Bq)は1.00~3.74、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ の原子数比(%)は0.724~4.37であった。また、 ^{232}Th は0.015~0.035 Bq/g、 ^{230}Th は0.010~0.024 Bq/gの範囲であった。

$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 、 $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 、 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比の検討から、大部分の地点においてウラン・トリウム系列核種間の放射平衡が保たれていることが明らかとなった(Fig. 3)。しかし、転換棟近傍および一部遠方で明らかなウラン系列核種の放射非平衡が認められた。これらの試料について、もともとの土壌はウラン系列の ^{238}U から ^{230}Th まで放射平衡が成立しており、非平衡は汚染物によるものと仮定し、 ^{230}Th を用いて過剰 ^{238}U 、 ^{235}U を次式により計算した。

$$\left(\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}\right)_p = \frac{^{235}\text{U}_m - ^{235}\text{U}_n}{^{238}\text{U}_m - ^{238}\text{U}_n} = \frac{^{235}\text{U}_m - ^{230}\text{Th}_m \left(\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}\right)_n}{^{238}\text{U}_m - ^{230}\text{Th}_m}$$

ここで、 $(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})_p$ および $(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})_n$ は、汚染物および天然の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比、 $^{235}\text{U}_m$ および $^{235}\text{U}_n$ は、測定値および土壌起源の ^{235}U 放射能(Bq/g)、 $^{238}\text{U}_m$ および $^{238}\text{U}_n$ は、測定値および土壌起源の ^{238}U 放射能(Bq/g)、 $^{230}\text{Th}_m$ は、 ^{230}Th 放射能の測定値(Bq/g)である。得た結果をTable1に示す。見かけ上、0.94~7.2%の範囲の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 同位体比が

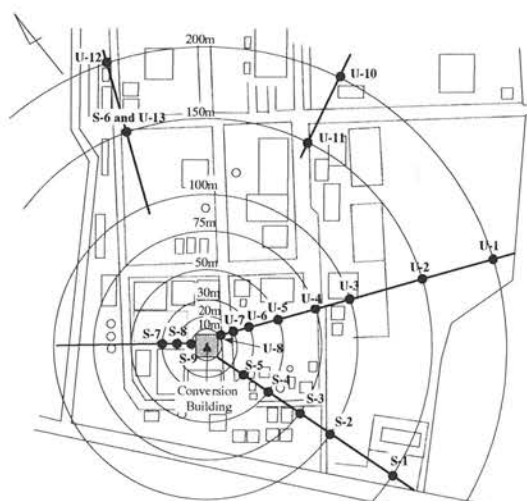


Fig.1 Sampling points of soils in the JCO first survey

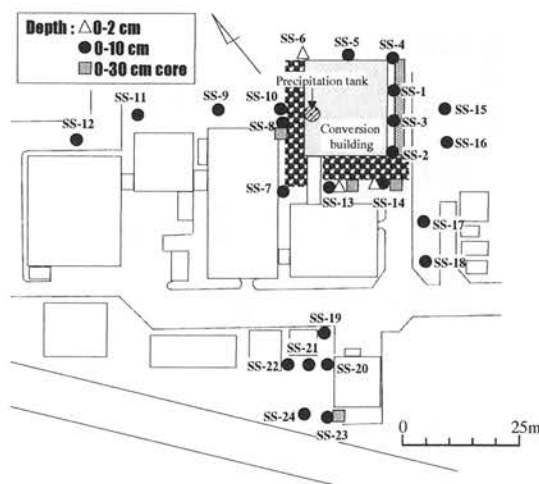


Fig.2 Sampling points of soils in the JCO second survey

見いだされた。また、汚染についてさらに詳細に調べるために、2成分混合について検討した。2つの異なる $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を持つ成分 A と B の混合物を考えた場合、混合物中の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は次式で表すことができる。

$$\left(\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}\right)_M = \frac{a}{U_M} + b$$

ここで、 $(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})_M$ は、混合物中の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比、 U_M は混合物中の U 濃度、a および b は成分 A と B の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比と U 濃度および混合比によって変化する変数である。JCO 敷地内の土壌の汚染が、1種類である場合、つまり土壌と汚染物との2成分の混合である場合は、 $1/U_M$ を横軸、 $(^{235}\text{U}/^{238}\text{U})_M$ を縦軸にとったグラフ上にプロットした場合、全データが1つの直線上にプロットされるべきである。実際に測定したデータを、グラフ上にプロットしたものを Fig.4 に示す。Fig.4 のグラフは、1つの直線上にプロットされておらず、JCO 敷地内の汚染は、単純な1種類の汚染物による汚染ではなく、さまざまな $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比を持つ複数の種類の汚染物によって汚染されていることが推測される。JCO では、常陽用高濃度ウラン（約20%）から、濃縮度がほぼ天然比であるイエローケーキまで濃縮度の異なるウランを扱っていたと報告されている。JCO 敷地内の土壌は、これら濃縮度の異なったウランによって複数回汚染されたことが示唆される。

一方、 ^{235}U および ^{234}U の放射能値を横軸と縦軸にプロットしたものを Fig.5 に示す。 ^{235}U と ^{234}U の放射能の間に高い相関が見いだされ、その $^{235}\text{U}/^{234}\text{U}$ 放射能比は放射平衡にある天然 U 比 0.047 とほぼ同じであった。このことは、 ^{234}U と ^{235}U の同位体分別が、U 濃縮過程で起こらなかったことを示唆している。

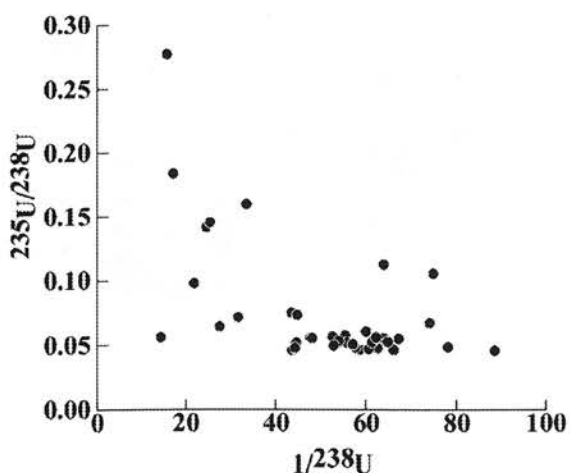


Fig.4 The verification of the number of the pollution source based on the equation of 2 component mixing

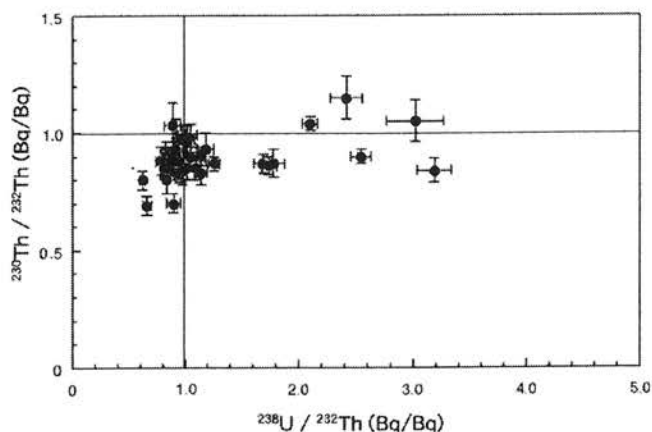


Fig.3 The verification of U series radioactive equilibrium of the soil sample

Table1 The estimate of superfluous ^{234}U , ^{235}U , ^{238}U and $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ of the soil sampling in which there is the U series in the radioactive disequilibrium

	excess ^{238}U (mBq/g-dry)	excess ^{234}U (mBq/g-dry)	excess ^{235}U (mBq/g-dry)	excess $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ (atomic ratio %)
<i>Surface (0-5cm*, 0-10cm**)</i>				
U-4*	24.0	74.0	3.48	2.3
U-8*	37.7	197.6	9.78	4.1
S-6*	20.5	102.6	4.83	3.7
S-9*	19.9	115.0	4.81	3.8
SS-3**	41.4	337.4	16.58	6.3
SS-5**	8.3	54.9	3.76	7.2
SS-15**	3.0	20.0	0.93	4.9
<i>Core</i>				
SS-8 (0-5cm)	51.2	63.0	3.05	0.9
SS-8 (5-10cm)	17.5	33.3	1.46	1.3
SS-13 (0-5cm)	16.2	36.0	1.54	1.5

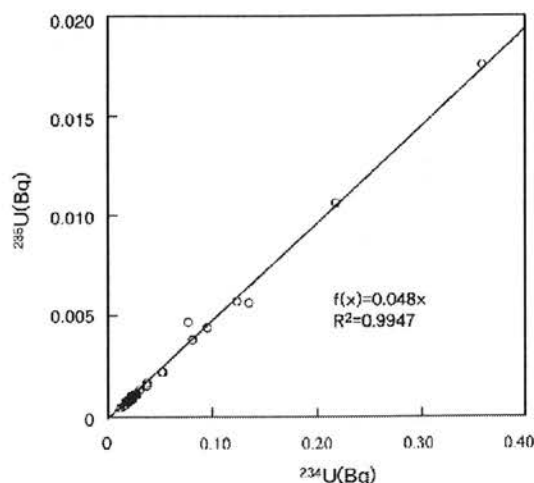


Fig.5 The correlation between ^{234}U and ^{235}U radioactivity of the soil sampling

[本研究は、平成 11～12 年度科学研究補助金により、主として研究機関研究員・川端良子が行い、成果の一部は第 44 回放射化学討論会（於 甲南大学）において発表された。]

JCO 敷地内土壌中の中性子誘導放射性核種 Neutron induced radionuclides in soil from the JCO site

[はじめに]

1999 年 9 月 30 日、茨城県東海村にある JCO 東海事業所のウラン加工施設において、臨界事故が発生し、中性子が JCO 周辺に漏洩した。外部に放出された中性子により、JCO 内部の労働者だけでなく、周辺に住む一般住民までもが被曝を受けるとともに、さまざまな環境物質が放射化された。事故による中性子線量を評価することは、被曝した住民の健康影響を考える上で、極めて重要である。中性子線量の評価には、放出された中性子のフルエンスおよびエネルギースペクトルの情報を得る必要があり、中性子により放射化された環境物質中の誘導放射性核種の比放射能値を定量することが、大きな手がかりとなる。

土壌は、Na や Fe をはじめとするさまざまな元素を含有しており、熱中性子、熱外中性子および速中性子との核反応によって、多くの誘導放射性核種が生成する。本研究では、JCO 敷地内土壌中の中性子誘導放射性核種を定量することによって、JCO 周辺の中性子フルエンスおよびエネルギースペクトルに関する情報を得ることを試みた。

[試料採取および実験方法]

土壌試料の採取を、第 1 次および第 2 次 JCO 敷地内調査時（1999 年 10 月 7 日および 10 月 26 日）に行った。第 1 次調査時のサンプリング地点を Fig.1 に、第 2 次調査時のそれを Fig.2 に示す。第 1 次サンプリングでは、事故が発生した沈殿槽から 10, 20, 30, 50, 75, 100, 150, 200 m の地点で、50mm ϕ $\times$ 5 cm 採取器を使用して試料を採取した。短寿命核種である ^{24}Na ($T_{1/2}=14.96$ h) や ^{140}La ($T_{1/2}=40.27$ h) の存在を考慮して、試料採取後、直ちに空輸で金沢大学低レベル放射能実験施設 (LLRL) に持ち帰り、未処理のまま 60 mm ϕ $\times$ 37 mm のプラスチック容器に詰めたものを γ 線測定用試料とした。同施設および尾小屋地下測定室の高純度 Ge 半導体検出器を使用し、各試料半日の測定時間で短寿命放射性核種の定量を行った。測定が一通り終了した後、試料を乾燥機で乾燥させ、2 mm のふるいにかけ、乳鉢を用いて均質化した。60 mm ϕ $\times$ 22 mm のプラスチック容器に詰め、測定時間約 2 日で γ 線スペクトロメトリーを実施し、 ^{46}Sc ($T_{1/2}=83.82$ d) や ^{59}Fe ($T_{1/2}=44.50$ d) などの寿命が比較的長い核種の定量を行った。

第 2 次サンプリング試料は、沈殿槽のある転換試験棟周辺および中性子の遮蔽となる大きな障害物がない、転換棟から見て北西方向、南西方向で試料を採取した。試料の採取には、47 mm ϕ $\times$ 10 cm 採取器を主に使用し、3 地点のみスコップで表層土壌を採取した。また、誘導放射性核種の深度分布を調べるため、4 地点で 47 mm ϕ $\times$ 30 cm 採取器を使用し、コア試料を採取した。コア試料は、表層から 5 cm 毎に分割し、それぞれを測定試料とした。第 2 次試料はすべて、風乾し、乳鉢で均質化した後に 2 mm のふるいにかけた。これを 60 mm ϕ $\times$ 22 mm のプラスチック容器に詰めたものを γ 線測定用試料とした。Ge 半導体検出器で 2 日間ずつ各誘導放射性核種の濃度を測定した。

各土壌試料から 50 および 100 mg ずつ正確に測り取り、ポリ袋に詰めて封じた。立教大学原子炉にて 50 mg のものは 1 時間、100 mg のものは 18 時間中性子照射を行い、Ge 半導体検出器で各放射性核種の放射能を測定した。標準試料 (JB-1, JG-1 および試薬) との計数率の比較により、土壌試料中の安定元素濃度を定量し、安定元素と中性子誘導放射性核種の定量値を使って、各比放射能値を計算した。

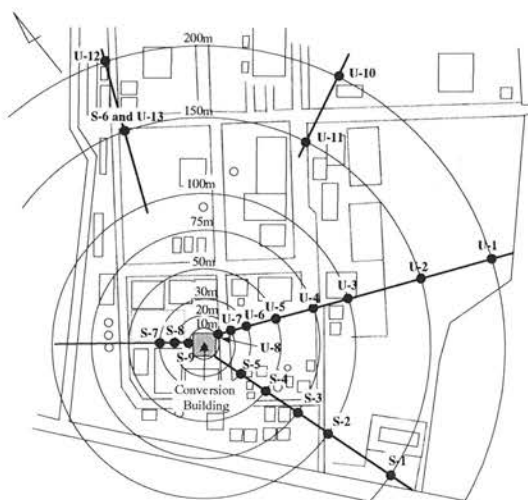


Fig.1 Sampling points of soils in the JCO first survey

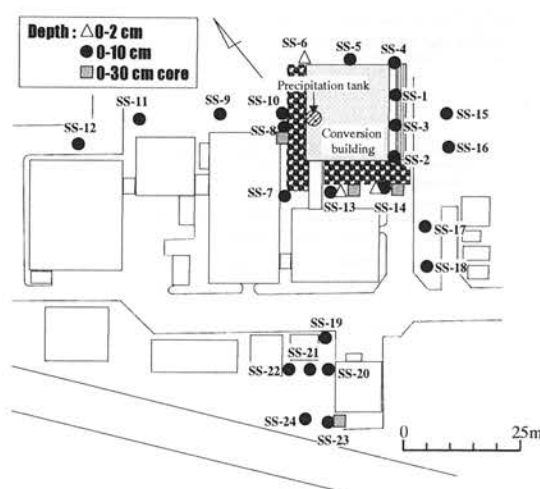


Fig.2 Sampling points of soils in the JCO second survey

【結果と考察】

土壌中の中性子誘導放射性核種として、 ^{24}Na 、 ^{46}Sc 、 ^{54}Mn 、 ^{59}Fe 、 ^{60}Co 、 ^{65}Zn 、 ^{82}Br 、 122 、 ^{124}Sb 、 ^{134}Cs および ^{140}La が検出された。このうち、 ^{54}Mn は速中性子による $^{54}\text{Fe}(n, p)^{54}\text{Mn}$ 反応によって生成し、それ以外の誘導放射性核種は、すべて熱中性子および熱外中性子との (n, γ) 反応によって生成したと考えられる。各誘導放射性核種の比放射能を Table1～3 に示す。これらの値は、臨界の終了した 10 月 1 日午前 6 時 14 分に補正した。

Table 1 Specific activities in surface soil samples collected at the first JCO survey

Sampling points	distance r (m)	direction* θ (°)	Specific activities (Bq/g-element)							
			$^{46}\text{Sc}/\text{Sc}$	$^{59}\text{Fe}/\text{Fe}$	$^{60}\text{Co}/\text{Co}$	$^{24}\text{Na}/\text{Na}$	$^{140}\text{La}/\text{La}$	$^{134}\text{Cs}/\text{Cs}$	$^{65}\text{Zn}/\text{Zn}$	^{122}Sb
U-5	55	70	77.2 ± 8.5	0.0231 ± 0.0067		320 ± 110				
U-6	35	65	186 ± 12	0.0459 ± 0.0065		254 ± 39				
U-7	25	60	186 ± 13	0.0657 ± 0.0109		921 ± 47	770 ± 120			
U-8	16	90	320 ± 14	0.0851 ± 0.0078	18.5 ± 3.3	3300 ± 210	1120 ± 110			6190 ±
S-4	55	120	126 ± 18	0.039 ± 0.010		394 ± 59				
S-5	35	120	63 ± 13			146 ± 29				
S-7	25	280	123 ± 10	0.0248 ± 0.0057	10.6 ± 3.6	312 ± 80	620 ± 180			
S-8	15	285	735 ± 19	0.1569 ± 0.0068	36.2 ± 3.8	3160 ± 480	2630 ± 510	60 ± 10		3900 ±
S-9	5	270	10600 ± 100	2.54 ± 0.03	501 ± 13	44000 ± 2100	17200 ± 1300	547 ± 47	111 ± 8	19500 ±

*沈殿槽の接する転換試験棟の壁に平行の方向（沈殿槽から北東）を θ とし、時計回りで計測したときの角度

Table 2 Specific activities in surface soil samples collected at second JCO survey

Sampling points	distance r (m)	direction* θ (°)	Specific activities (Bq/g-element)						
			$^{46}\text{Sc}/\text{Sc}$	$^{59}\text{Fe}/\text{Fe}$	$^{60}\text{Co}/\text{Co}$	$^{134}\text{Cs}/\text{Cs}$	$^{65}\text{Zn}/\text{Zn}$	$^{124}\text{Sb}/\text{Sb}$	$^{54}\text{Mn}/\text{Fe}$
SS-1	17	73	291 ± 20	0.055 ± 0.009	22.5 ± 4.7				
SS-2	17	107	451 ± 24	0.122 ± 0.011	41.5 ± 6.7				
SS-3	16	90	462 ± 24	0.111 ± 0.010	31.0 ± 5.5				
SS-4	19	58	230 ± 17	0.077 ± 0.01	18.3 ± 5.7				
SS-5	12	36	541 ± 23	0.136 ± 0.009	42.0 ± 5.5				
SS-6	10	348	884 ± 38	0.232 ± 0.013	56.5 ± 7.5			236 ± 184	
SS-7	10	304	2420 ± 50	0.560 ± 0.017	122 ± 7		11.6 ± 1.0		0.0073 ± 0.0018
SS-8	6	239	3990 ± 70	1.01 ± 0.03	197 ± 10	290 ± 31	25.2 ± 2.6		0.0281 ± 0.0041
SS-9	15	281	1920 ± 50	0.479 ± 0.023	121 ± 11				
SS-10	6	301	5480 ± 10	1.49 ± 0.04	309 ± 14	310 ± 41	34.3 ± 3.3		0.0389 ± 0.0053
SS-11	40	270	66 ± 10						
SS-12	52	265	37.0 ± 6.6						
SS-13**	11	153	2670 ± 60	0.718 ± 0.025	135 ± 10	256 ± 20	50.5 ± 2.5	3060 ± 40	
SS-13	11	153	2150 ± 50	0.517 ± 0.019	117 ± 8	36100 ± 190	91.9 ± 6.4		
SS-14**	14	135	1230 ± 40	0.298 ± 0.017	75.6 ± 7.2	1440 ± 220	53.4 ± 4.5		
SS-14	14	135	1100 ± 30	0.271 ± 0.013	61.3 ± 5.4	9260 ± 470	32.2 ± 2.7		
SS-15	30	85	152 ± 14	0.025 ± 0.01					
SS-16	30	100	128 ± 11	0.026 ± 0.007		254 ± 145			
SS-17	35	132	149 ± 14	0.187 ± 0.029					
SS-18	42	140	110 ± 13	0.067 ± 0.011					
SS-19	48	175	79 ± 18						
SS-20	55	175	52 ± 10						
SS-21	55	180	51.8 ± 8.2						
SS-22	55	185	26.4 ± 7.0						
SS-23	70	175	30.7 ± 7.7						
SS-24	70	180	38.0 ± 7.7						

*沈殿槽の接する転換試験棟の壁に平行の方向（沈殿槽から北東）を θ とし、時計回りで計測したときの角度

**スコップを使用して、表層土壌を採取したもの

Table 3 Specific activities in core soil samples collected at second JCO survey

Sampling points	depth (cm)	Specific activities (Bq/g-element)					
		$^{46}\text{Sc}/\text{Sc}$	$^{59}\text{Fe}/\text{Fe}$	$^{60}\text{Co}/\text{Co}$	$^{134}\text{Cs}/\text{Cs}$	$^{65}\text{Zn}/\text{Zn}$	$^{54}\text{Mn}/\text{Fe}$
SS-8	0-5	$(1.17 \pm 0.02) \times 10^4$	2.93 ± 0.07	578 ± 20	917 ± 232	17.2 ± 1.3	0.114 ± 0.007
	5-10	$(7.95 \pm 0.14) \times 10^3$	2.04 ± 0.06	315 ± 13	618 ± 134	10.4 ± 1.3	0.0359 ± 0.0058
	10-15	$(4.16 \pm 0.09) \times 10^3$	0.994 ± 0.033	164 ± 9			0.0091 ± 0.0022
	15-23	$(1.60 \pm 0.04) \times 10^3$	0.321 ± 0.017	63.6 ± 5.7	110 ± 20		
SS-13	0-5	$(2.53 \pm 0.06) \times 10^3$	0.553 ± 0.020	113 ± 8	164 ± 13	7.67 ± 0.66	199 ± 14
	5-10	$(1.65 \pm 0.05) \times 10^3$	0.393 ± 0.019	75.9 ± 7.4	112 ± 26	5.85 ± 0.84	78 ± 27
	10-15	781 ± 30	0.194 ± 0.016	34.0 ± 5.1	69.4 ± 13.3		
	15-23	222 ± 15	0.039 ± 0.008				
SS-14	0-5	$(1.14 \pm 0.04) \times 10^3$	0.087 ± 0.006	41.3 ± 4.0	41.4 ± 2.9		
	5-10	$(1.16 \pm 0.05) \times 10^3$	0.111 ± 0.009	28.9 ± 3.8	0.68 ± 0.13		
	10-15	620 ± 24	0.046 ± 0.004	22.9 ± 3.4	6.06 ± 1.14		
	15-20	386 ± 22	0.038 ± 0.004	22.6 ± 3.6			
	20-25	125 ± 14	0.011 ± 0.004	16.9 ± 4.4			

^{46}Sc は沈殿槽から約 75m 以内の試料で検出され、誘導放射性核種の中では最も広範囲に検出された核種であった。 ^{24}Na および ^{59}Fe は、50m 以内の試料で検出された。上記の 3 核種以外の誘導放射性核種は、沈殿槽のある転換試験棟近傍で採取した土壤中にのみ検出された。 ^{46}Sc 、 ^{59}Fe 、 ^{24}Na 、 ^{60}Co の比放射能値を沈殿槽からの距離に対して方位別にプロットしたものを Fig.3 に示す。沈殿槽からの距離の増加とともに、比放射能が減少することが明確であるが、方位間の違いは顕著に認められなかった。

SS-8, 13, 14 コア試料中の深度分布を Fig.4 に示す。深度と減少率の関係を確認するため、全核種とも 2.5 cm の値を 1 として規格化してある。速中性子によって生成した ^{54}Mn は、他の熱中性子および熱外中性子による誘導核種と比べて減少率が高い。したがって、速中性子が、土壌によって急速に減速され、熱中性子化したと推測される。

熱中性子および熱外中性子のフルエンスを、式(1)を使用して求めた。

$$A = \lambda N(\phi_{\text{th}}\sigma_{\text{th}} + \phi_{\text{epi}}\sigma_{\text{epi}}) \quad (1)$$

ここで、 A は比放射能 (Bq/g-element), λ は壊変定数 (s^{-1}), N は元素 1 g あたりの標的核の原子数 (g^{-1}), ϕ_{th} および ϕ_{epi} は熱中性子および熱外中性子フルエンス (cm^{-2}), σ_{th} および σ_{epi} は標的核の熱中性子および熱外中性子に対する反応断面積 (barn) である。測定により求めた各中性子誘導放射性核種の比放射能を式(1)に代入すると、熱中性子および熱外中性子フルエンスに関する二項式となる。この二項式を、横軸を熱中性子フルエンス、縦軸を熱外中性子フルエンスとしたグラフ上にプロットし、交点から熱中性子および熱外中性子のフルエンスを求めた。3 核種以上の交点が明確に定まらない場合は、 ^{46}Sc はすべて熱中性子によって生成したと仮定し、式(2)を使用して、 ^{46}Sc の比放射能から熱中性子フルエンスのみを計算した。

$$\phi = A / (\lambda N \sigma) \quad (2)$$

一方、 $^{54}\text{Mn}/\text{Fe}$ の比放射能および $^{54}\text{Fe} (n, p) ^{54}\text{Mn}$ 反応の原子炉中性子の平均反応断面積 82.5 mb を式(2)に代入することにより、暫定的な速中性子のフルエンスを計算した。以上のフルエンスの計算結果を Table 4 および 5 に示す。距離に対する各中性子フルエンスをプロットしたものを、Fig.5 に示す。

中性子のエネルギースペクトルによって、 $^{54}\text{Fe} (n, p) ^{54}\text{Mn}$ の反応断面積が大きく異なるので、今回計算したフルエンスのうち、速中性子に関しては確度が低いと考えられる。原研報告書においては、沈殿槽から 1.8 m 地点に位置していたステンレスネット中の ^{54}Mn からの速中性子フルエンスを試算する際に、 $^{54}\text{Fe} (n, p) ^{54}\text{Mn}$ の反応断面積として中性子輸送計算コード MCNP-4B から求めた 26.8 mb を使用していた。沈殿槽からの距離が遠くなるほど、速中性子成分が減速し、熱中性子化されていくので、 $^{54}\text{Fe} (n, p) ^{54}\text{Mn}$ のみかけの反応断面積は小さくなると考えられる。採取し、測定した土壌のうち、沈殿槽から最も近い土壌でも 5 m の距離にあり、この位置での反応断

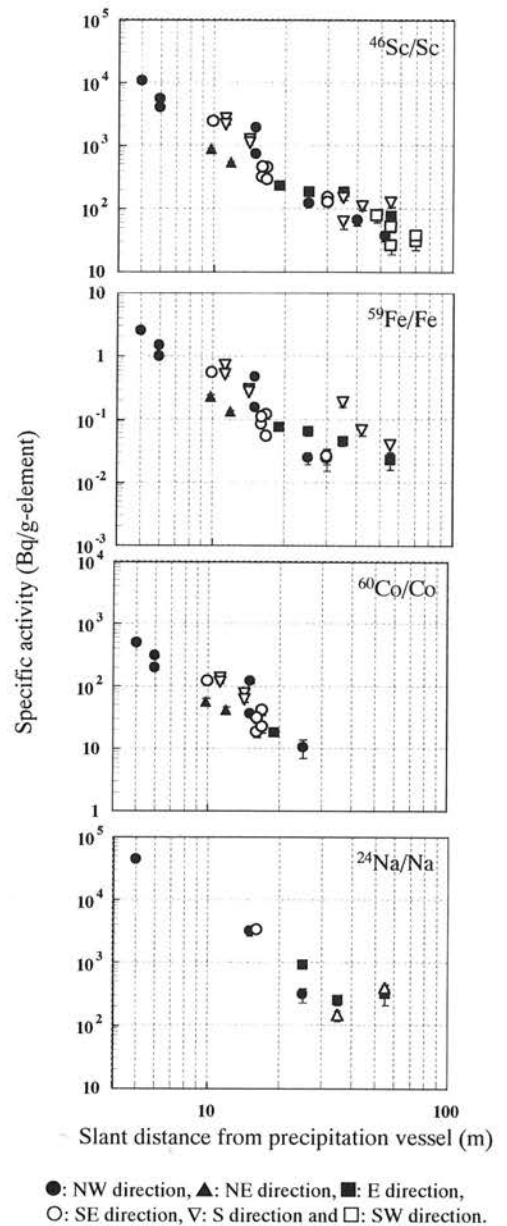


Fig. 3 Plots of specific activities of ^{46}Sc , ^{59}Fe , ^{60}Co and ^{24}Na against the slant distance from precipitation vessel, whose data is separated by 8 directions

Fig.4 The specific activity value for the depth in the core sample (all nuclides are also normalized at the value of the 2.5cm depth)

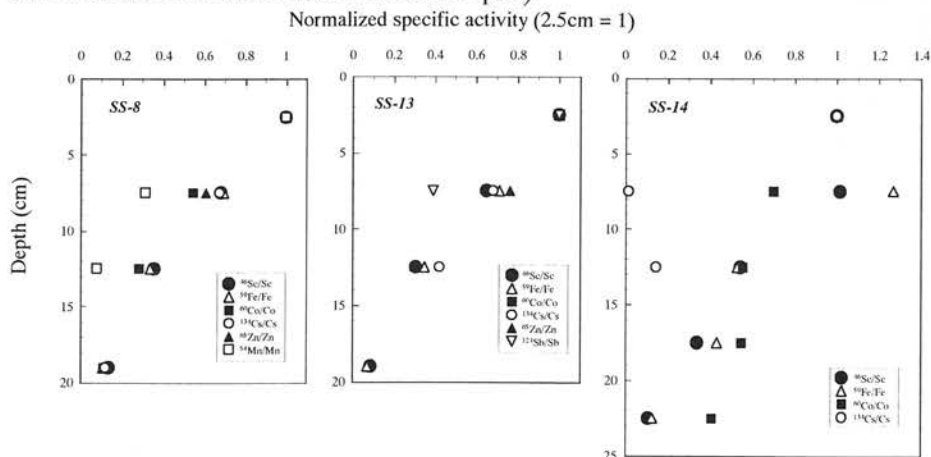


Table4 Thermal, epi-thermal and fast neutron fluences estimated by surface soil samples

Sampling points	Neutron fluence (cm ⁻²)		
	Thermal neutron	Epithermal neutron	Fast neutron
U-5	(2.2 ± 0.2) × 10 ⁹		
U-6	(5.3 ± 0.4) × 10 ⁹		
U-7	(5.3 ± 0.2) × 10 ⁹		
U-8	(9.2 ± 0.4) × 10 ⁹		
S-4	(3.6 ± 0.5) × 10 ⁹		
S-5	(1.8 ± 0.4) × 10 ⁹		
S-7	(3.5 ± 0.3) × 10 ⁹		
S-8	(2.1 - 2.2) × 10 ¹⁰	(0.4 - 1.0) × 10 ⁹	
S-9	(3.0 - 3.1) × 10 ¹¹	(3.5 - 6.0) × 10 ¹⁰	(5.6 ± 0.3) × 10 ¹⁰
SS-1	(8.3 ± 0.6) × 10 ⁹		
SS-2	(1.3 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
SS-3	(0.7 - 1.3) × 10 ¹⁰	(2.0 - 6.0) × 10 ⁹	
SS-4	(0.5 - 1.0) × 10 ¹⁰	(1.0 - 4.0) × 10 ⁹	
SS-5	(1.6 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
SS-6	(2.8 - 3.0) × 10 ¹⁰	(3.0 - 4.0) × 10 ⁹	
SS-7	(7.0 ± 0.2) × 10 ¹⁰		(5.4 ± 1.4) × 10 ⁹
SS-8	(1.1 - 1.2) × 10 ¹¹	(4.5 - 6.7) × 10 ⁹	(2.1 ± 0.3) × 10 ¹⁰
SS-9	(4.9 - 5.0) × 10 ¹⁰	(1.3 - 1.4) × 10 ¹⁰	
SS-10	(1.6 ± 0.3) × 10 ¹¹		(2.9 ± 0.4) × 10 ¹⁰
SS-11	(1.9 ± 0.3) × 10 ⁹		
SS-12	(1.1 ± 0.2) × 10 ⁹		
SS-13*	(6.9 - 7.7) × 10 ¹⁰	(4.0 - 8.0) × 10 ⁹	
SS-13	(6.2 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
SS-14*	(3.1 - 3.3) × 10 ¹⁰	(6.8 - 8.3) × 10 ⁹	
SS-14	(3.2 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
SS-15	(4.4 ± 0.4) × 10 ⁹		
SS-16	(3.7 ± 0.3) × 10 ⁹		
SS-17	(4.3 ± 0.4) × 10 ⁹		
SS-18	(3.2 ± 0.4) × 10 ⁹		
SS-19	(2.3 ± 0.5) × 10 ⁹		
SS-20	(1.5 ± 0.3) × 10 ⁹		
SS-21	(1.5 ± 0.2) × 10 ⁹		
SS-22	(7.6 ± 0.2) × 10 ⁹		
SS-23	(8.8 ± 2.2) × 10 ⁸		
SS-24	(1.1 ± 0.2) × 10 ⁹		

Table 5 Specific activities in core soil samples collected at second JCO survey

Sampling points	depth (cm)	Neutron fluence (cm ⁻²)		
		Thermal neutron	Epithermal neutron	Fast neutron
SS-8	0-5	(3.2 - 3.4) × 10 ¹¹	(1.4 - 2.3) × 10 ¹⁰	(8.5 ± 0.5) × 10 ¹⁰
	5-10	(2.0 - 2.8) × 10 ¹¹	(1.0 - 6.0) × 10 ¹⁰	(2.7 ± 0.4) × 10 ¹⁰
	10-15	(1.2 ± 0.1) × 10 ¹¹		(6.8 ± 0.2) × 10 ⁹
	15-23	(4.6 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
SS-13	0-5	(7.2 - 7.5) × 10 ¹⁰	(2.8 - 5.3) × 10 ⁹	
	5-10	(4.6 - 4.8) × 10 ¹⁰	(1.3 - 2.4) × 10 ⁹	
	10-15	(2.1 - 2.6) × 10 ¹⁰	(1.6 - 5.0) × 10 ⁹	
	15-23	(6.4 ± 0.4) × 10 ⁹		
SS-14	0-5	(3.3 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
	5-10	(3.3 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
	10-15	(1.8 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
	15-20	(1.1 ± 0.1) × 10 ¹⁰		
	20-25	(3.6 ± 0.4) × 10 ⁹		

面積は、1.8 m位置での26.8 mbよりもさらに小さくなると予想される。本研究で、速中性子フルエンスを計算する際に使用した値は82.5 mbであり、フルエンスの値を過小評価していると考えられる。そこで、これを補正するための目安として、(⁵⁴Mn/Fe)/(⁴⁶Sc/Sc)比を計算した。⁴⁶Scの標的核である⁴⁵Scは、検出された誘導放射性核種の標的核中では、熱外中性子に対する熱中性子の反応断面積の比が最も高く、生成する⁴⁶Scの放射能は、熱中性子のフルエンスによって支配されていると思われる。したがって、(⁵⁴Mn/Fe)/(⁴⁶Sc/Sc)比は熱中性子フルエンスに対する速中性子フルエンスの比を示していると考えられる。実際、沈殿槽から5 mの距離に位置するS-9では、(⁵⁴Mn/Fe)/(⁴⁶Sc/Sc)比は7.0 × 10⁻⁶、6 mに位置するSS-8およびSS-10では7.0 × 10⁻⁶および7.1 × 10⁻⁶とほぼ同じ値であるのに対して、10 mに位置するSS-7では3.0 × 10⁻⁶と約半分まで減少する。

また、沈殿槽から2 mに位置するコンクリートブロック試料の(⁵⁴Mn/Fe)/(⁴⁶Sc/Sc)比を計算したところ、2 × 10⁻⁵となり、5 m付近よりも数倍高い値である。これらの結果は、距離の増加とともに速中性子フルエンス成分が減少し、⁵⁴Fe (n, p) ⁵⁴Mnの反応断面積が小さくなったことを支持するものである。(⁵⁴Mn/Fe)/(⁴⁶Sc/Sc)比と⁵⁴Fe (n, p) ⁵⁴Mnの反応断面積との関係について、さらに詳しく調査し、各土壌試料の位置における、正確な反応断面積を用いた、精度の高い速中性子フルエンスの見積もりを行う必要がある。

本研究は、JCO敷地内土壌中の誘導放射性核種の比放射能を定量し、原子炉中性子の平均反応断面積を用いて、中性子フルエンスのおおよその見積もりを行った。本研究で得たこれらのデータは、今後の中性子輸送計算によるシミュレーションによる、より正確な中性子フルエンスの推定を行うにあたり、有益な情報となるであろう。

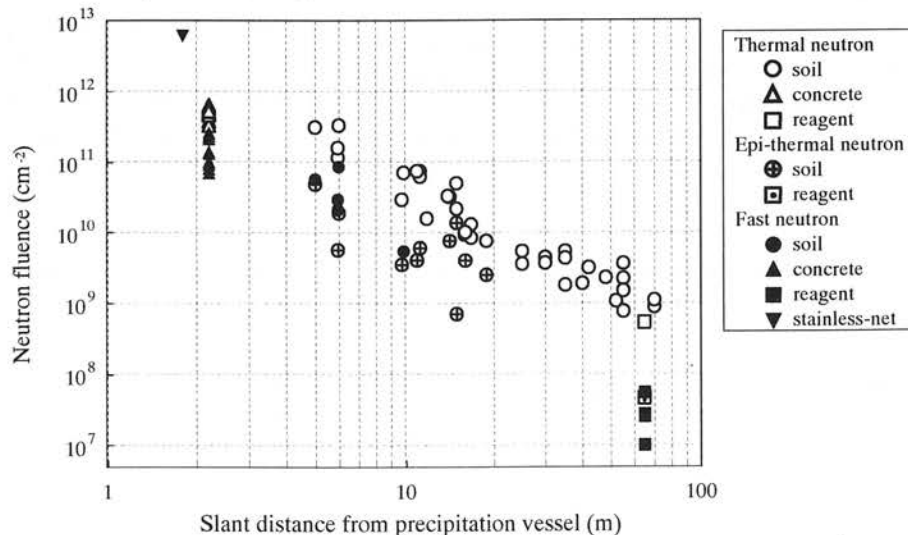


Fig.5 Plots of the thermal , epi-thermal and fast neutron fluences estimated from the soil, concrete block and chemical reagent samples as a function of slant distance from the precipitation vessel

[本研究は、平成 11～12 年度科学研究補助金により、主として大学院生・村田祥全が行い、成果の一部は第 43 回放射線影響学会(於 明治大学)において発表され、J. Environmental Radioactivity, 50, 2000 に掲載された。]

^{32}P 生成量からの速中性子束の推定

An estimation of fast neutron flux by ^{32}P production rate

JCO 事故の特徴は一般環境に多量の中性子線が放出されたことである。中性子による被曝線量を評価するためには、フルエンスだけでなくエネルギースペクトルを明らかにする必要がある。広島・長崎の原爆の際は、中性子による誘導放射性核種のデータが中性子線量評価に用いられた。今回の事故でも様々な試料中に生成した誘導放射性核種が測定されており、そのデータから中性子線量の評価が試みられている。一連の研究の中で、我々は $^{35}\text{Cl}(n,\alpha)^{32}\text{P}$ 反応(56.5mb for fission neutron)及び $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応(69.6mb for fission neutron)により生成する ^{32}P を測定し、現場周辺での速中性子束の分布について検討を試みた。

現場周辺民家の食塩(20-500g), JCO 敷地内湿式試験棟の 3M KCl 溶液(100ml), BaCl_2 (150g)及び $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ 試薬(60g) (Fig. 1), 更に事故初期に救助活動にあたった救急隊員の毛髪(0.1-0.16g)を試料とし, Fig. 2 に示すスキームで分析を行った。 ^{32}P の β 線測定は尾小屋地下測定室に設置した Passivated Implanted Silicon 検出器(CANBERRA SPD-300-17-500; PIPS)で行った。この検出器は井戸型 NaI シンチレーション検出器により逆同時計数を行っており、本研究で用いた条件でのバックグラウンドは 0.012 cpm, 計数効率 は 32%であり, 測定時間を 1 日とした場合の検出限界は 0.027 dpm である。

先に結果の一部を暫定値として報告したが⁽¹⁾, 距離及び回収率を補正した最終結果を Table 1 に示す。沈殿槽からの試料までの距離は住宅地図及び国土地理院の航空写真から読み取った(誤差 $\pm 5\text{m}$)。また, 供試量・回収率及び事故から測定までの日数により検出限界(ND)値は試料毎に異なるため, 検出限界以下の試料については事故当時の値としての ND 値を示してある。

ターゲットの原子数に対する ^{32}P 生成数を距離の関数として Fig. 3 に示す。全体的傾向として ^{32}P 生成量は事故現場からの距離とともに漸減していたが, JCO の南側, 南西側及び西側の試料では傾向から大きく外れて低い値を示した。事故現場である転換試験棟周辺は東側が林及びグラウンドで大きな建物が無いのに対して南側から北側にかけては事務棟などが密集しており, これら建造物による遮蔽効果によって敷地外に放出された速中性子束に方向分布が生じたと考えられる。但し, 湿式試験棟内の KCl 及び BaCl_2 で ^{32}P 生成量に 4.6 倍の差があるうえ, 同一の塩袋(2 kg)内の試料でも上部から採った GP-2 の生成量は下部から採った GP-3 よりも 1.6 倍大きい。このように ^{32}P 生成量は建物内の位置により数倍程度は変化しているため, 全体傾向ではなく個々の地点での速中性子束を評価する場合は注意が必要がある。

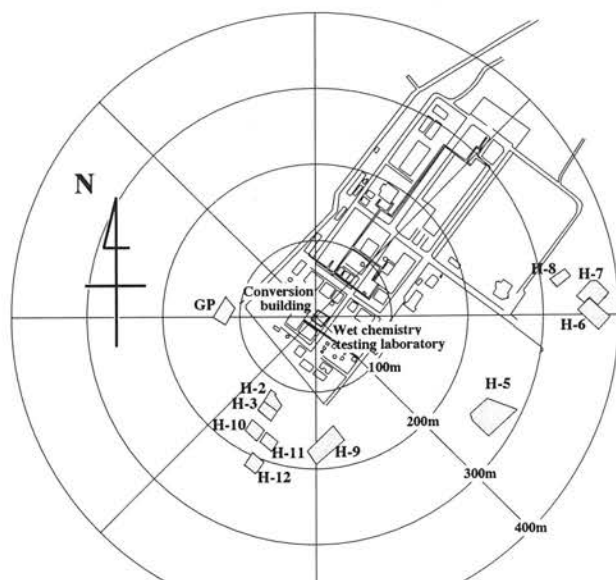


Fig. 1 Sampling location of table salts and reagents.

中性子の吸収や遮蔽が少なかったと考えられる 5 点を用いて距離の二乗での拡散及び空気中での減衰を考慮した回帰式でフィッティングしたところ, 空気中

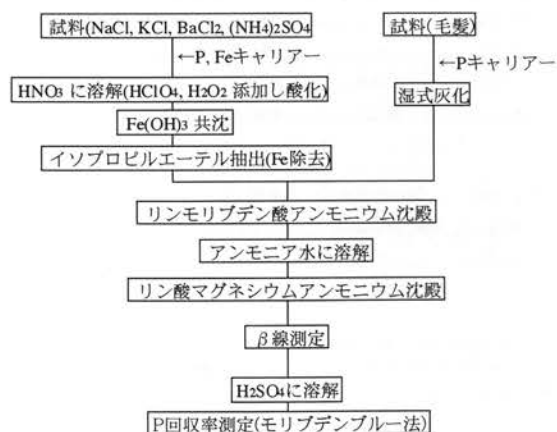


Fig. 2 Separation scheme of phosphors.

での見かけの減衰係数は 0.008 m^{-1} 、半価層は約 80 m と見積もられた。なお、広島原爆の場合は、 $^{32}\text{S}(\text{n,p})^{32}\text{P}$ 反応に寄与した速中性子の半価層は約 380 m と見積もられている^(2,3)。今回の事故では臨界反応が水中で起こったため、中性子は沈殿槽から放出された時点でかなり減速されており、なおかつ発生源が地表付近であったことにより障害物による遮蔽効果が大きく、広島原爆の際よりも速中性子の減衰が大きかったと考えられる。また、1999 年 11 月の科学技術庁の中間報告によれば、事故当時現場で測定された中性子線量の距離による減衰係数は 0.0048 m^{-1} 、半価層は 144 m であり我々が速中性子成分よりも減衰は小さかった。これは熱中性子による線量への寄与に加え、我々が測定した試料はいずれも事故当時屋内にあったものであるため、家屋による遮蔽効果が寄与していると考えられる。事故当時の中性子線量測定は屋外で行われたものである。既にモデル計算により屋内での被曝線量が推定されているが、更に信頼性を向上させるためには本研究の結果を含めた実測データを併せた評価が必要であろう。

【文献】

- 1) H.Kofuji et al., J. Environ. Radioactivity, 50, 49-54 (2000)
- 2) 山崎文男, 杉本浅雄, 原子爆弾災害調査報告集, 日本学術会議原子爆弾災害調査報告書刊行委員会編, 18-19 (1953)
- 3) 杉本浅雄, 同上, 19-20 (1953)

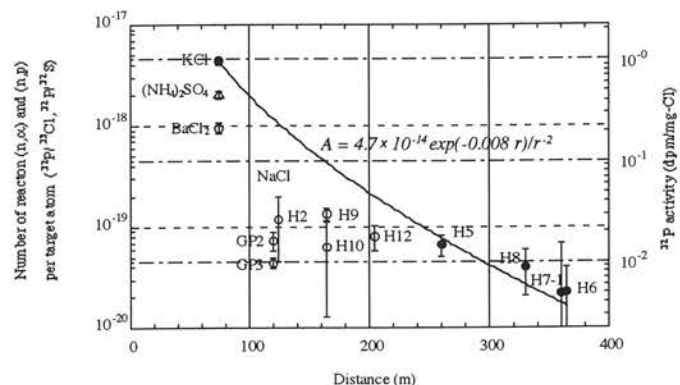


Fig. 3 ^{32}P production rate in ^{35}Cl and ^{32}S target

Table 1 Activities of ^{32}P in table-salt, reagent and hair samples decay-corrected to 1st October 1999.

サンプル		方角	距離 (m)	サンプル量 (g)	P回収率 (%)	Activity at 10/1(dpm/g)	Activity at 10/1(dpm/g-Cl)	$^{32}\text{P}/^{35}\text{Cl}$ 10/1 (atom/atom)
slt-H2	食塩	南南西	125	21.76	36.5*	0.032 ± 0.020	0.052 ± 0.033	1.2E-19 ± 7.5E-20
slt-H3	"	南南西	135	20.75	34.6*	ND (< 0.09**)	ND (< 0.06**)	ND (< 1E-19**)
slt-H5	"	東南東	260	40.37	98.2	0.018 ± 0.004	0.029 ± 0.007	6.8E-20 ± 1.6E-20
slt-H6	"	東	365	36.39	94.8	0.006 ± 0.004	0.010 ± 0.007	2.3E-20 ± 1.7E-20
slt-H7-1	"	東	360	40.02	100	0.006 ± 0.012	0.009 ± 0.020	2.2E-20 ± 4.7E-20
slt-H7-2	"	東	360	41.17	94.0	ND (< 0.04**)	ND (< 0.03**)	ND (< 7E-20**)
slt-H8	"	東	330	97.33	86.4	0.011 ± 0.005	0.017 ± 0.008	4.0E-20 ± 1.9E-20
slt-H9	"	南	165	86.29	100	0.035 ± 0.005	0.057 ± 0.008	1.3E-19 ± 1.9E-20
slt-H10	"	南南西	165	23.25	96.1	0.017 ± 0.013	0.027 ± 0.022	6.3E-20 ± 5.0E-20
slt-H11	"	南南西	170	21.07	97.3	ND (< 0.04**)	ND (< 0.03**)	ND (< 7E-20**)
slt-H12	"	南南西	205	99.74	97.9	0.021 ± 0.006	0.035 ± 0.010	8.1E-20 ± 2.2E-20
slt-GP2	"	西	120	54.42	95.5	0.019 ± 0.004	0.031 ± 0.007	7.2E-20 ± 1.5E-20
slt-GP3	"	西	120	512.99	78.6	0.012 ± 0.001	0.019 ± 0.002	4.4E-20 ± 4.9E-21
JCO-KCl	KCl溶液	南東	75	23.26	73.9	0.909 ± 0.075	1.91 ± 0.16	4.4E-18 ± 3.6E-19
BaCl2	BaCl2	南東	75	154.77	67.0	0.141 ± 0.017	0.41 ± 0.05	9.6E-19 ± 1.1E-19
							Activity at 10/1(dpm/g-S)***	$^{32}\text{P}/^{32}\text{S}$ 10/1 (atom/atom)
JCO-硫安	(NH4)2SO4	南東	75	60.51	90.0	0.207 ± 0.012	0.85 ± 0.05	2.0E-18 ± 1.1E-19
hai-1	毛髪 (消防隊員)			0.1486	89.4	ND (< 0.8**)	ND (< 16**)	ND (< 3E-17**)
hai-2	"			0.0959	100	ND (< 1.2**)	ND (< 23**)	ND (< 4E-17**)
hai-3	"			0.1637	80.8	ND (< 1.0**)	ND (< 20**)	ND (< 3E-17**)

* 回収率が極端に低いのは、回収したPフラクションの半分を液体シンチレーションカウンターでの測定に供したため。

** PIPS検出器での検出限界 (0.027dpm) , 供試量, P回収率及び事故から測定までに経過した時間から算出。

*** 毛髪中のS含有量を5%と仮定して算出

[本研究は、平成 11～12 年度科学研究補助金により、主として大学院生・小藤久毅が行い、成果は第 43 回放射線影響学会 (於 明治大学) 及び第 28 回放射医研環境セミナーにおいて発表され、J. Environmental Radioactivity, 50, 2000 に掲載された。]

環境中での ^{242m}Am 探査-アイリッシュ海の沿岸堆積物-

Searching ^{242m}Am in the Environment-Coastal Sediment in the Irish Sea, UK

Bowen & Livingston (1975)が、1962年の核実験からの局地的ファールアウトで汚染された海水を用いて、 ^{242}Cm (^{242m}Am からの壊変生成物)を検出した。それ以来、核実験からのファールアウトや核燃料再処理工場からの放射性廃液で汚染された環境試料を用いて、 ^{242m}Am の探査が行われてきたが定量的な評価は不十分であった。イギリスのセラフィールド核燃料再処理工場からの放射性廃液で汚染されているアイリッシュ海沿岸においても、 ^{242}Cm 測定から ^{242m}Am の存在を示唆するデータが報告されているが、存在量、放出量等には触れていない。

我々は、アイリッシュ海の超ウラン元素(Np, Pu, Am)の沿岸堆積物への移行挙動をこれまで研究してきた。今回は、この ^{242m}Am の探査を目的として、併せて Cm 同位体の測定を行い、他の超ウラン元素との比較を試みた。アイリッシュ海での Cm 研究は非常に少ない。検出される可能性のある Cm 同位体には、 $^{242}\text{Cm}(t_{1/2}=162.8 \text{ d}, \alpha)$ 、 $^{243}\text{Cm}(t_{1/2}=29.1 \text{ y}, \alpha \text{ and EC})$ と $^{244}\text{Cm}(t_{1/2}=18.1 \text{ y}, \alpha)$ があり、高燃焼度核燃料の再処理からの初期廃液においては全 α の中で高い α 寄与(^{242}Cm , ^{244}Cm)を持つ。娘核種は Pu である。 $^{242m}\text{Am}(t_{1/2}=141 \text{ y}, \text{IT})$ は、 ^{241}Am の中性子捕獲反応(約 10% が ^{242m}Am になる)で生成し、 $^{242}\text{Am}(t_{1/2}=16.02 \text{ h}, \beta (82.7\%) \text{ and EC})$ に壊変する。 $\beta (82.7\%)$ 壊変によって ^{242}Cm が生成する。 ^{242}Cm は、 $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm} (\text{unsupport})$ と $^{241}\text{Am}(n, \gamma)^{242m}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Am} \rightarrow ^{242}\text{Cm} (\text{support})$ の2通りのルートで生成するので、 ^{242m}Am 探査には support ルートからの ^{242}Cm 評価が必要である。

試料は、アイリッシュ海の Esk 河口(放出口から南に約 10km)で採取した3本のコアのうち、高濃度で汚染されている C 地点のコア(Nov. 20, 1990 年採取, 直径 5cm, 深さ 25cm, 表層から 1cm 毎に切断)を用いた(Fig.1)。 ^{242m}Am については、 ^{242}Cm から評価した。10-50 g を用いて硝酸-メタノール陰イオン交換カラム法で Cm (Am と同一挙動)を分離・精製し、電着後、 α 線スペクトロメーターで ^{241}Am が少なくとも十万 counts 以上になるまで測定した。その一例を Fig.2 に示す。 ^{242}Cm と $^{243, 244}\text{Cm}$ が検出でき、Cm 標準試料との比較から ^{243}Cm は無視できると考えられる。また、同じ線源について約2年間測定した際の、 $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ と $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比の経時変化を Fig.3 に示す。 $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ 放射能比の減衰カーブから ^{242}Cm には unsupport と support 成分があることが明確である。

以上の検討を踏まえて、実際のコア試料の Cm 分析を、他の超ウラン核種も併せて実施した。 ^{242}Cm の測定は、電着線源作成後、直ぐ測定その後 2.5-3 年経過した後、に再測定(support ^{242}Cm)を行い ^{242m}Am を評価した。Fig.4 に、測定した核種濃度の深度分布を示す。Table 1 に、それぞれの核種の蓄積量と放射能比を示した。深度分布は、 ^{137}Cs と ^{237}Np を除くと、他の核種は類似しており、蓄積量は以下の順である： $^{241}\text{Pu} > ^{137}\text{Cs} > ^{241}\text{Am} > ^{239, 240}\text{Pu} > ^{238}\text{Pu} > ^{244}\text{Cm} > ^{237}\text{Np} > ^{242m}\text{Am}$ 。セラフィールド(以前はウインズケール)核燃料再処理工場は 1952 年から稼働しており、1988 年までに総 Pu(α)放出量は 700TBq と評価されている。Pu と Am が沿岸への移行・堆積挙動に関してほぼ同一の挙動を示すとして、蓄積量の $^{242m}\text{Am}/\text{Pu}(\alpha)$ 比 0.035% 及び ^{242m}Am の放射壊変を考慮して ^{242m}Am 放出量を見積もると 0.2-0.3TBq となる。このように、今回初めて ^{242m}Am の定量的な評価を行うことが出来た。

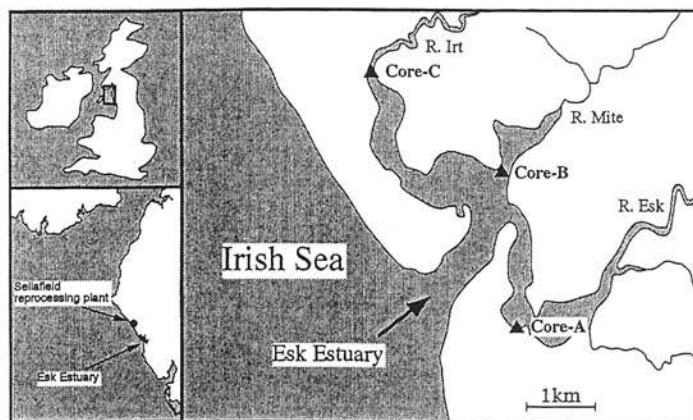


Fig. 1. Location map of Esk Estuary in the Irish Sea, with sampling sites of sediment cores.

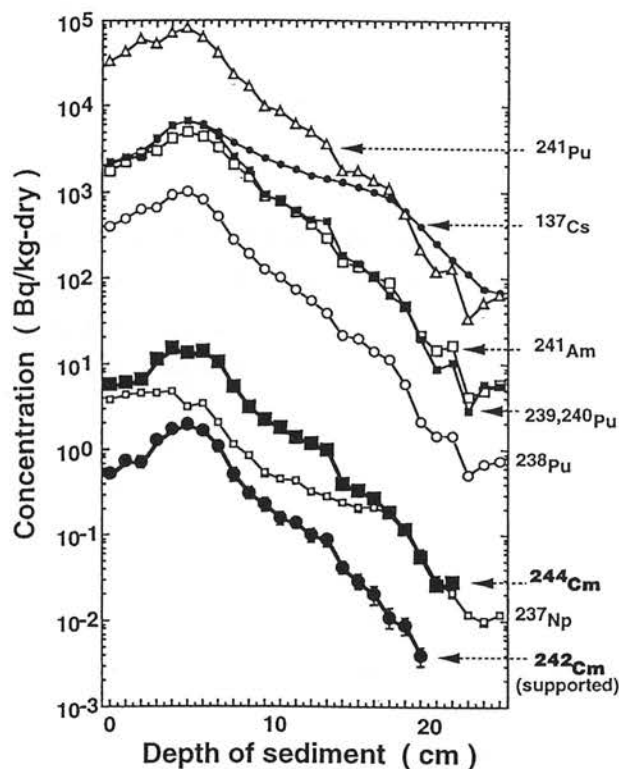


Fig. 4. Depth profiles of radioactivity concentrations of radionuclides measured in the sediment core from Esk Estuary.

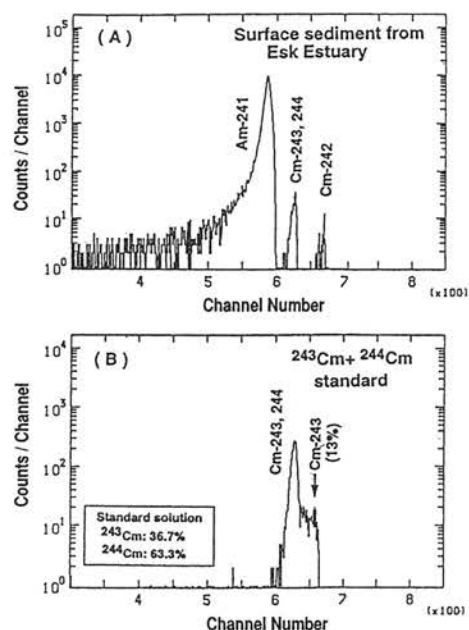


Fig. 2. Alpha-spectra of (A) Cm(Am) fraction separated from the surface sediment in the Esk Estuary and (B) $^{243,244}\text{Cm}$ standard solution.

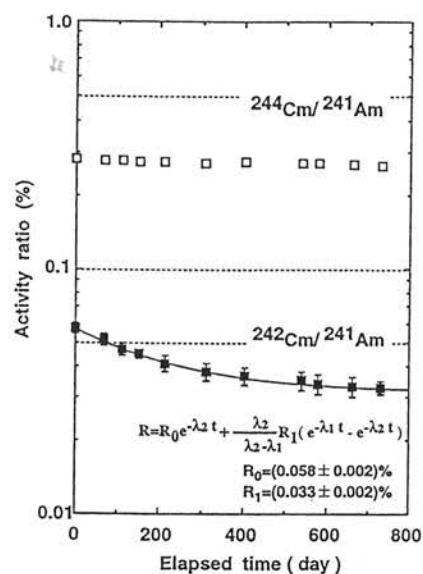


Fig. 3. Radioactivity ratios of $^{242}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ and $^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$ measured at some intervals over a period of about 2 years.

Table 1. Inventories of $^{242\text{m}}\text{Am}$ including some radionuclides in the sediment core and their inventory ratios

Nuclide	Inventory (Bq/cm ²)	Inventory ratio	
		(%)	
^{137}Cs	66.6 ± 0.2		
^{237}Np	0.0360 ± 0.0007		
^{238}Pu	6.93 ± 0.12	$^{242\text{m}}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$	0.041 ± 0.002
$^{239,240}\text{Pu}$	37.6 ± 0.5	$^{242\text{m}}\text{Am}/^{241}\text{Am}$	0.032 ± 0.001
$\text{Pu}(\alpha)^a$	44.5 ± 0.5	$^{242\text{m}}\text{Am}/\text{Pu}(\alpha)$	0.035 ± 0.002
^{241}Pu	573 ± 8		
^{241}Am	47.7 ± 0.5	$^{244}\text{Cm}/^{239,240}\text{Pu}$	0.30 ± 0.01
$^{242\text{m}}\text{Am}^b$	0.0153 ± 0.0006	$^{244}\text{Cm}/^{241}\text{Am}$	0.24 ± 0.01
^{242}Cm	0.0127 ± 0.0005	$^{244}\text{Cm}/\text{Pu}(\alpha)$	0.25 ± 0.01
^{244}Cm	0.113 ± 0.003		

^a $\text{Pu}(\alpha) = ^{238}\text{Pu} + ^{239,240}\text{Pu}$.

^b The value of $^{242\text{m}}\text{Am}$ was estimated by considering the branching (82.7%) of beta-decay leading on ^{242}Cm .

本研究は、イギリスのウェールズ大学・海洋研の Dr. J. Assinder との共同研究として実施し、成果は、Radiochim. Acta, 83,121-126(1998)に掲載。

天然放射性核種 ^{210}Pb をトレーサーとした森林樹冠への
乾性沈着速度評価

An Attempt to evaluate Dry Deposition Velocity of Airborne
 ^{210}Pb in a Forest Ecosystem

地球環境問題の中で、被害が最も著しいのは酸性雨の影響で数十年前より世界各国で湖沼の酸性化や森林枯死が広範囲に生じ深刻化している。大規模な森林枯死問題に関しては、さまざまな角度から原因やその対策が検討されており、酸性雨のみならず、オキシダントをはじめとする種々の汚染物質の影響を含めた総合的な研究が行われている。国土の 7 割近くを森林が占める我が国の酸性雨も含めた環境問題にとって、森林生態系での物質循環(動態)研究を充実しておくことは極めて重要である。すでにいくつかの基礎研究が実施されているが、"定性的"なデータが多く、"定量的"な評価が強く望まれている。大気中に放出された汚染物質は降水とエアロゾルを主な媒体として、すなわち湿性沈着と乾性沈着によって森林にもたらされる(Fig.1)。本研究では、森林への汚染物質の負荷量に関して、平地と比べて森林がどの程度エアロゾルとして森林に入ってくる汚染物質を捕捉する能力があるのかを定量的に評価することを試みた。この目的のために、大気中に常に存在し、しかも森林生態系を含めた一般環境で定常状態にあると考えられる放射性核種 ^{210}Pb ($T_{1/2} = 22.26$ y: 表層土壤中から大気中に散逸した ^{222}Rn の娘核種でその大部分がエアロゾルに捕捉されて存在)をトレーサとして、LLRL 施設周辺で (1) 平地(LLRL 施設屋上)での大気中 ^{210}Pb 濃度(1 週間間隔)及び ^{210}Pb の湿性沈着と乾性沈着量(1 ヶ月間隔)の測定を約 2 年間(1993 年 3 月~1994 年 12 月)継続し、併せて、(2) 松林の樹冠内の林床土壤中(0-30 cm 深さ)の Excess- ^{210}Pb 蓄積量の測定を行い、(3)森林樹冠による捕捉の結果としての乾性沈着速度の評価を行った。

その結果、(1) 大気中 ^{210}Pb 濃度は $0.38 \sim 1.25 \text{ mBq/m}^3$ 、平均 $0.81 \pm 0.34 \text{ mBq/m}^3$ であった(Table 1)。一方、(2) ^{210}Pb の月間降下量は、湿性沈着と乾性沈着成分合わせて $5.0 \sim 237 \text{ Bq/m}^2$ で、冬期に高く夏期に低くなる明確な季節変動を示し、その大部分(>90%)が湿性沈着で地表にもたらされる。12 月から 2 月までの冬期 3 ヶ月間の ^{210}Pb 降下量は年間の ^{210}Pb 降下量の 49~55%を占め、雪によるスカベンジング寄与が非常に大きいことが示唆された。(3) 松林の樹冠内の土壤中 Excess- ^{210}Pb 蓄積量は $28.1 \sim 44.6 \text{ kBq/m}^2$ で、平地での降下量から予想される量の 1.05~1.67 倍多いことが分かった(Table 2)。(4) 以上の結果を用いて、松林の樹冠による捕捉の結果としての乾性沈着速度を見積もったところ、 $0.9 \sim 0.8 \text{ cm/s}$ の値が得られ平地での値 $0.12 \pm 0.09 \text{ cm/s}$ ($0.06 \sim 0.28 \text{ cm/s}$)と比べて約 10 倍高いことが明らかになった (Table 3)。

Table 1 Concentration of Pb-210 in precipitation and air, and total, wet and dry deposition velocities at Tatsunokuchi, Ishikawa Pref. (1993-1995)

Sampling date	Amount of rainfall (mm)	Deposition				Air (Monthly Ave.) (mBq/m ³)	Deposition velocity (V)		
		Total (wet + dry) (Bq/m ²)	Wet (Bq/m ²)	Dry (Bq/m ²)	Dry/Total (%)		V _{wet} (cm/sec)	V _{wet} (cm/sec)	V _{dry} (cm/sec)
1993 Jan.	259.5	171.8 ± 1.12*							
Feb.	236.0	149.1 ± 3.5							
Mar.	112.0	66.7 ± 2.3							
Apr.	63.5	41.0 ± 1.2				1.20 ± 0.10*	1.32		
May	177.5	26.8 ± 1.1				0.76 ± 0.05	1.31		
June	200.0	28.6 ± 1.0	23.1 ± 1.0*	4.0 ± 0.2*	14.0	0.59 ± 0.04	1.86	1.50	0.26
July	316.5	39.4 ± 1.6	35.0 ± 1.6	2.5 ± 0.2	6.3	0.38 ± 0.03	3.89	3.46	0.25
Aug.	305.5	33.6 ± 0.9	26.4 ± 0.9	1.8 ± 0.2	5.4	0.56 ± 0.04	2.24	1.76	0.12
Sep.	268.5	34.3 ± 0.8	32.3 ± 0.8	2.1 ± 0.1	6.1	0.84 ± 0.04	1.57	1.48	0.10
Oct.	150.0	56.6 ± 1.7	56.9 ± 1.8	2.1 ± 0.4	3.7	1.00 ± 0.04	2.11	2.12	0.08
Nov.	167.5	49.0 ± 1.0	48.0 ± 1.0	1.5 ± 0.2	3.1	0.86 ± 0.03	2.19	2.15	0.07
Dec.	183.5	136.6 ± 3.8	—	—	—	0.85 ± 0.04	6.01		
1994 Jan.	229.0	149.9 ± 3.6	136.2 ± 3.6	3.1 ± 0.1	2.1	1.03 ± 0.04	5.41	4.92	0.11
Feb.	133.0	96.9 ± 2.1	86.6 ± 2.1	2.3 ± 0.0	2.4	1.10 ± 0.04	3.63	3.25	0.09
Mar.	91.0	100.9 ± 1.9	97.2 ± 1.9	3.7 ± 0.1	3.7	1.25 ± 0.04	3.00	2.89	0.11
Apr.	75.0	29.7 ± 0.4	22.3 ± 0.4	7.4 ± 0.2	25.0	1.03 ± 0.09	1.11	0.83	0.28
May	106.5	30.5 ± 1.2	25.2 ± 1.3	5.3 ± 0.6	17.4	0.75 ± 0.03	1.53	1.26	0.27
June	114.5	19.5 ± 0.9	17.8 ± 0.9	1.7 ± 0.3	8.7	0.77 ± 0.02	0.97	0.89	0.08
July	35.5	10.0 ± 0.6	8.9 ± 0.6	1.1 ± 0.1	11.0	0.65 ± 0.04	0.58	0.51	0.06
Aug.	48.0	5.0 ± 0.3	4.0 ± 0.4	1.0 ± 0.2	20.0	0.51 ± 0.03	0.37	0.30	0.07
Sep.	218.0	50.9 ± 2.0	48.9 ± 2.0	2.0 ± 0.2	3.9	0.93 ± 0.06	2.12	2.03	0.08
Oct.	128.5	41.3 ± 0.6	39.9 ± 0.6	1.4 ± 0.2	3.4	0.90 ± 0.06	1.72	1.66	0.06
Nov.	136.0	67.9 ± 0.8	65.8 ± 0.9	2.1 ± 0.3	3.1	1.14 ± 0.06	2.29	2.22	0.07
Dec.	224.5	143.8 ± 2.6	142.0 ± 2.6	1.8 ± 0.3	1.3	0.99 ± 0.03	5.41	5.34	0.07
1995 Jan.	433.5	236.5 ± 4.6	233.7 ± 4.6	2.8 ± 0.2	1.2				
Feb.	170.5	124.0 ± 4.0	121.8 ± 4.0	2.2 ± 0.3	1.8				
Mar.	201.5	87.3 ± 2.7	83.6 ± 2.7	3.7 ± 0.3	4.2				
Apr.	168.0	38.9 ± 2.3	35.2 ± 2.3	3.7 ± 0.3	9.5				
May	198.0	39.6 ± 2.3	37.3 ± 2.3	2.3 ± 0.3	5.8				
June	133.0	29.7 ± 1.8	26.5 ± 1.8	3.3 ± 0.3	10.9				
July	454.0	49.7 ± 2.1	46.6 ± 2.1	3.1 ± 0.3	6.2				
Aug.	174.5	18.0 ± 0.8	17.2 ± 0.8	0.9 ± 0.2	4.7				
Sep.	82.0	35.8 ± 2.7	33.9 ± 2.7	1.9 ± 0.3	5.4				
Oct.	84.0	70.7 ± 4.2	67.6 ± 4.2	3.1 ± 0.4	4.4				
Nov.	318.5	169.5 ± 4.2	167.4 ± 4.2	2.1 ± 0.4	1.2				
Dec.	324.0	154.3 ± 3.1	151.4 ± 3.1	2.9 ± 0.4	1.9				
Range					1.2-25.0	0.38-1.25	0.37-6.01	0.30-5.34	0.06-0.28
Average ± 1 σ					6.6 ± 5.8	0.86 ± 0.23	2.41 ± 1.60	2.14 ± 1.39	0.12 ± 0.09
Geometric mean					4.8	0.83	1.9	1.7	0.11

*: One sigma standard deviation from counting statistics

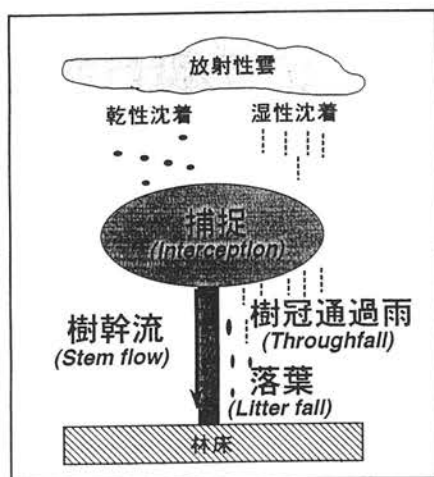


Fig. 1 Flowing of materials from atmosphere to forest floor

Table 2 Levels of excess Pb-210 in soil under the canopies of pine stands

Sampling No.	Age of pine stand, y	Sampling depth, cm	Accumulated excess ²¹⁰ Pb	
			Total (Inventory) kBq/m ²	Annual mean deposition, kBq/m ² ·y
St. 1	50-80	25	28.11±0.94	0.875±0.029
St. 2	50-80	23	30.43±0.99	0.947±0.031
St. 3	60-80	24	44.64±1.48	1.390±0.046
St. 4	60-80	23	34.59±1.85	1.077±0.058
St. 5	50-80	23	31.44±1.64	0.979±0.051

Table 3 Evaluation of deposition velocity of Pb-210 in each pine stand

Sampling No.	Dry deposition velocity (V _d), cm/s (Age of pine stand)					D (dry, f) / I (total, f) %
	50 y	60 y	70 y	80 y	Steady-state	
St. 1	0.33	0.31	0.29	0.28	0.26	7.8
St. 2	0.65	0.61	0.58	0.56	0.51	14.2
St. 3	2.63	2.45	2.34	2.26	2.07	39.0
St. 4	1.23	1.15	1.09	1.06	0.97	23.6
St. 5	0.79	0.74	0.70	0.68	0.62	16.7
Range	0.33-2.63	0.31-2.45	0.29-2.34	0.28-2.26	0.26-2.07	7.8-39.0
Mean±1 σ	1.13±0.90	1.05±0.84	1.00±0.80	0.97±0.77	0.89±0.71	23.4±11.1
Geometric mean*	0.89	0.83	0.79	0.76	0.7	17.8

本研究は、大学院生 小藤 久毅 氏が協力し、成果はJ. Radioanal. Nucl. Chem., 227,81-87 (1998)に掲載

日本海地域における宇宙線生成核種 ^{35}S と SO_4^{2-} 降下量

Cosmogenic radionuclide ^{35}S and sulfate depositions in the Sea of Japan side

はじめに

大気中に存在する硫黄化合物は、酸性雨との関係からその発生源、輸送、循環など、最近では硫黄の同位体比も利用してさかんに研究されている。硫黄同位体の中でもう一つ利用可能な硫黄として、放射性の ^{35}S ($T_{1/2}=87.5\text{d}$, β^-) がある。この核種は成層圏及び対流圏上層で宇宙線と Ar との核反応により生成し、地上の硫黄発生源と異なり、同緯度では比較的均一な生成密度を持っている。生成した ^{35}S は速やかに酸化され、その後の挙動は他の安定同位体と同様であると考えられている。日本海側における酸性雨については、特に冬期の季節風の強い時期に pH が低くなり、東アジア諸国からの硫黄酸化物の長距離輸送が懸念されている。

本研究では、硫黄の挙動等を知るためのトレーサーとして ^{35}S を利用する可能性も検討課題に置きながら、石川県辰口町で 1998 年から降下物中の ^{35}S と硫酸イオンの降下量の関係など、同時に測定してきた ^7Be 及び ^{210}Pb も交えて検討した結果を報告する。

実験方法

降下物試料は当研究施設屋上にて 1998 年 1 月から約 10 日間毎に採集（受水面積 0.74m^2 ）し、試料重量を測定後、化学成分測定用に 300ml 分取（直ちに $0.45\mu\text{m}$ フィルターでろ過）した。その後、試料を直接陽イオン及び陰イオン交換樹脂（Graver Company 社製 POWDEX）を充填した 2 段カラム（直径 5cm、下部カラムに各 40g、上部カラムに各 30g）に通して放射性核種を含む懸濁物及び溶存イオンを捕集した。乾燥・混合した樹脂を測定線源としてまず γ 線スペクトロメトリーにより ^7Be 及び ^{210}Pb を定量した。測定後、4M HCl で樹脂から硫黄を浸出させ、鉄共沈操作後 Ba キャリアを加えて硫黄を硫酸バリウムとして回収した。沈殿を乾燥した後、炭酸ナトリウムで融解した。融解物を水で溶解させ生じた炭酸バリウムをろ別後、ろ液に HCl を加え炭酸を分解して蒸発乾固した。生じた乾固物を水で一定容（20ml）とし、シンチレーター（Packard 社製 Hionic-Fluor 80ml）と混合し液体シンチレーションカウンター（Aloka LB3）で ^{35}S の β 線を測定した。クエンチングの補正には効率トレーサー法を用いた。降下物中の主な化学成分はイオンクロマトグラフで測定した。

結果と考察

1998-1999 年の 2 年間に亘って 10 日間毎に測定した降下量の季節変動を Fig. 1 に示した。図に示すように ^{35}S , ^{210}Pb , nss-SO_4^{2-} の降下量は明らかに晩秋から冬季に高く春-夏季に低い傾向を示す。 ^7Be についても同様な結果が得られた。このようなパターンは、太平洋側での春季と秋季にピークを示すパターンとは全く異なる。 ^{35}S , ^{210}Pb , ^7Be , nss-SO_4^{2-} の 1999 年の年間降下量は、それぞれ、 61.5 Bq/m^2 , 865 Bq/m^2 , 5158 Bq/m^2 , 4.5 g/m^2 であり、11~2 月までの冬季間の降下量は、それぞれ全降下量の 67, 71, 68, 53% を占めている。 nss-SO_4^{2-} の割合が ^{35}S , ^{210}Pb , ^7Be と比べて多少低い。最も興味ある $^{35}\text{S}/\text{nss-SO}_4^{2-}(\text{Bq/mg-SO}_4^{2-})$ 値は、秋-冬季(0.017 ± 0.008)が春-夏季(0.010 ± 0.004)より高い傾向にあり、変化していることが示唆される。10 日間毎の降下量に対しての $^{35}\text{S}/^7\text{Be}$ 放射能比は、季節変動が少なく平均 0.0125 ± 0.0034 で成層圏での生成率から予想される比の変動範囲内にある。 $^{35}\text{S}/\text{nss-SO}_4^{2-}$ 値の変動原因については、さらに検討を行っている。

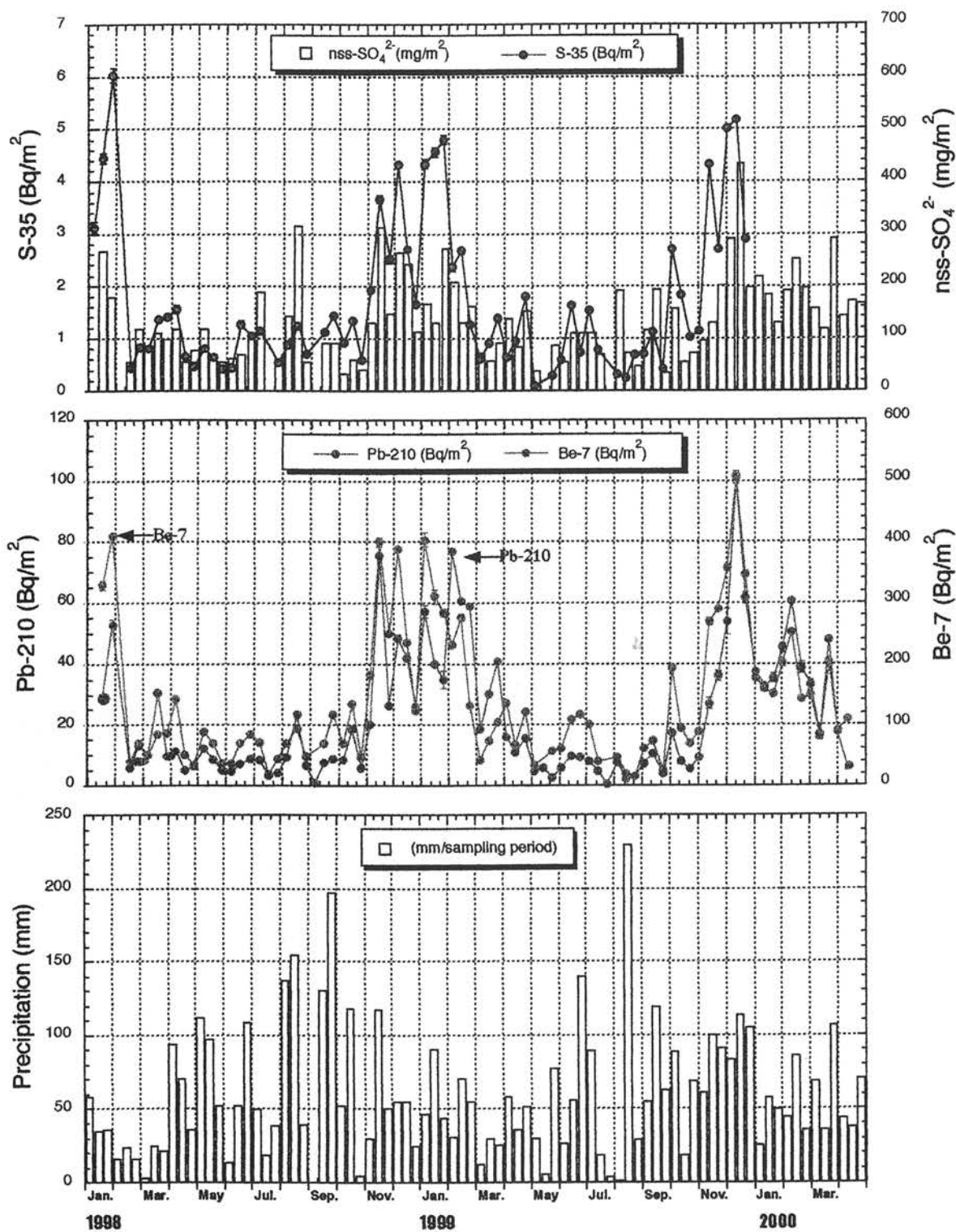


Fig. 1. Time variation of ^{35}S , ^7Be , ^{210}Pb and nss- SO_4^{2-} deposition, and amounts of precipitation at Tatsunokuchi (Our Laboratory, LLRL).

本研究は、大学院生舟津 優の協力よりおこなわれ、福井県原子力環境監視センターの徳山秀樹氏、松浦廣幸氏が液沈による ^{35}S 測定に協力した。2000 年日本放射化学会年会で発表した。

旧ソ連核実験場セミパラチンスク周辺の環境放射能の現状 Present Radiological Situation around the Former Soviet Union's Semipalatinsk Unclear Test Site

大気、地上、地下併せて 450 回以上の核実験を実施したセミパラチンスク核実験場(1949-1989)は、周辺住民に核実験を予告することなく情報は隔離され、旧ソ連が崩壊した現在もなお大半の情報は秘匿されたままである。数十万の人々がレベルを異にする長期の低線量被曝を受けたと伝えられているが、その詳細は不明である。

我々は、この地域(Fig.1)において、テーマの1つとして、まず現状の残留放射能(半減期の長い Cs-137 とプルトニウム(Pu)同位体)の実態を科学的に明らかにすることを第1の目的として国際学術調査・研究(代表: 京都大学, 塚谷 恒雄 教授(1994-1995), 広島大, 星 正治 教授(1995-2000))を開始した。ここで得られた結果は、現在の汚染状況の把握のみならず、外部被曝や食物連鎖による内部被曝線量の評価、さらに被曝線量評価モデル構築の基礎データに資すると考えている。これまでに調査(土壌採取)を実施した地域は、1) 核実験場内(1995: 京都大), 2) セミパラチンスク市-モステイク、ドロソ方面(1995), 3) セミパラチンスク市-北のコロステリー方面(1996) 4) 東のウスチ・カメノゴルスク市方面(1997), 5) 実験場周辺の6つの湖の堆積物採取(1998), 6) 南のサルジャール, カラウル, カイナル方面(1999), 7) アルマトイから中国との国境沿い-セミパラチンスク市(2000)であり、当初予定した広範囲をおおまかにカバー出来た(Fig.1)。

主な結果として、1) 核実験場周辺の Cs-137 蓄積量は日本での Global fallout Cs-137 蓄積量($3000\text{--}8000\text{Bq/m}^2$)と比べて、同レベルかもしくはやや低いレベルである(Figs.2-5)。2) Pu については、調査したすべて地点(南のカイナル, カラウル方面, 中国国境沿いは測定中)が原爆級 Pu で汚染されており、周辺近傍で $500\text{--}1000\text{Bq/m}^2$, 距離と共に漸減しセミパラチンスク市、さらに遠方のウスチ・カメノゴルスク市で $200\text{--}300\text{Bq/m}^2$ で日本のレベル($40\text{--}100\text{Bq/m}^2$)の数倍~数十倍高い(Figs.6-8)。3) 分布は、不均一で特に Pu は通常の硝酸リッチングでは定量的に抽出されない。この地域の大部分の Pu は、爆発時に蒸発した土壌や原爆構成物などの様々な大きさの凝集粒子に取り込まれた状態で存在している(Fig.9)。4) Pu-240/Pu-239 同位体比測定より、実験場から東に約 300km 離れたウスチ・カメノゴルスク市方面で Local (Close-in) fallout Pu の寄与が 30-60%もあることが判明した(Tables 1-3, Fig.10)。5) 湖の湖底堆積物の調査から、その周辺の汚染経歴が解明でき、併せて U(天然ウラン)の異常な蓄積挙動を見出した。6) 中国との国境沿いの集落では、中国の核実験からの影響が懸念されているが、今回(2000年)の調査では Cs-137 の高汚染地域は見出せなかった。このように、残留放射能に関しては、当初の目的であるレベルと分布を把握できた。

土壌測定以外に、現在、主にセミパラチンスク市で得た人体の骨組織について、Pu, Sr-90 および U の分析を進めている。Pu や Sr-90 のレベルは、最近の日本人のレベルと比べて高くはないが、サルジャール, ドロソなどの核実験場近傍住民のレベルを把握する必要がある、他の組織(肺, 肝臓など)も併せて試料採取が可能な段階になっている。さらに、食物連鎖との関連で水試料中の U 分析も実施しており、この地域全体の地下水の U 濃度が高いことも分かってきた。今後、この地域でさらに内部被曝に関係する研究を推進する必要があると考えている。

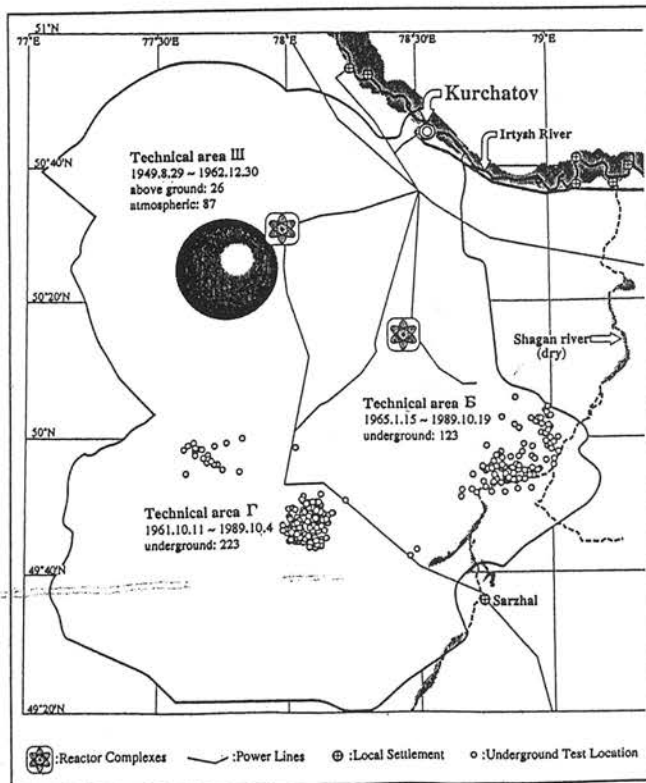


Fig.1 Former Soviet Union's Semipalatinsk Nuclear Test Site (SNTS) and the surrounding area.



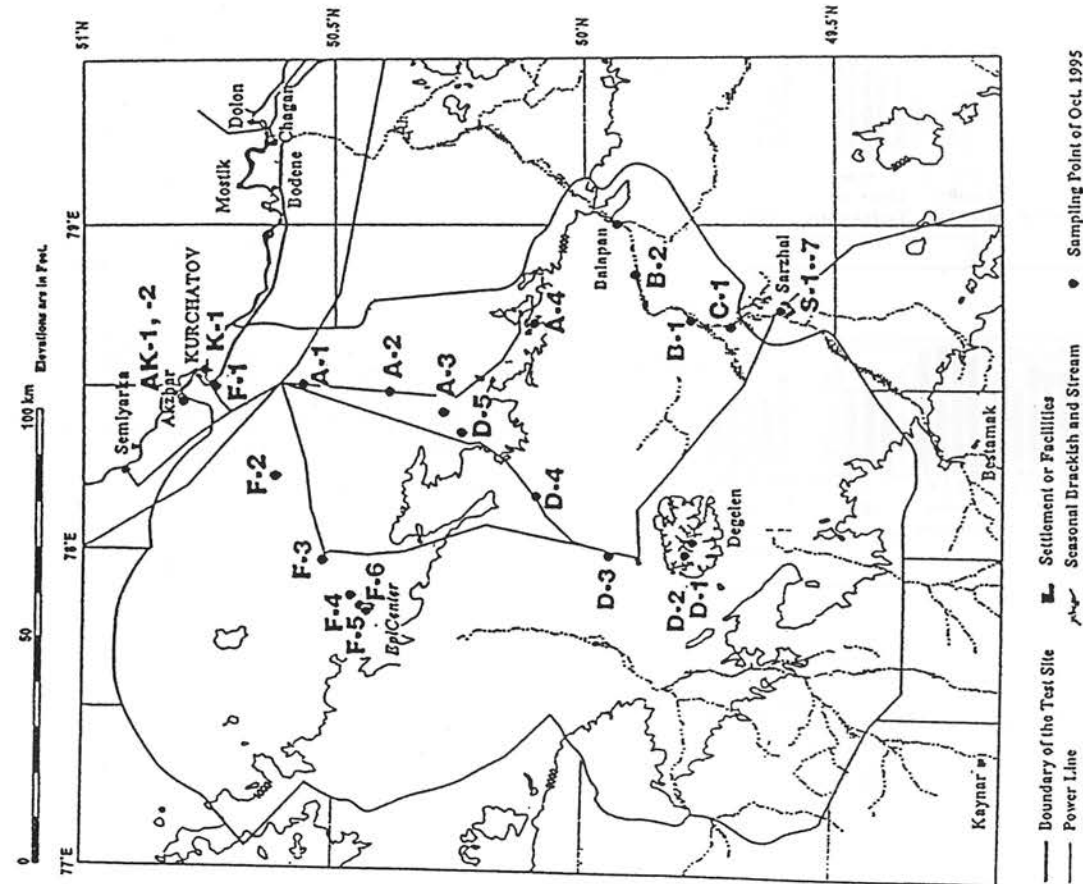


Fig. 2 Sampling sites of soil within the SNTS territory and at its adjoining settlement, Sarzhai.

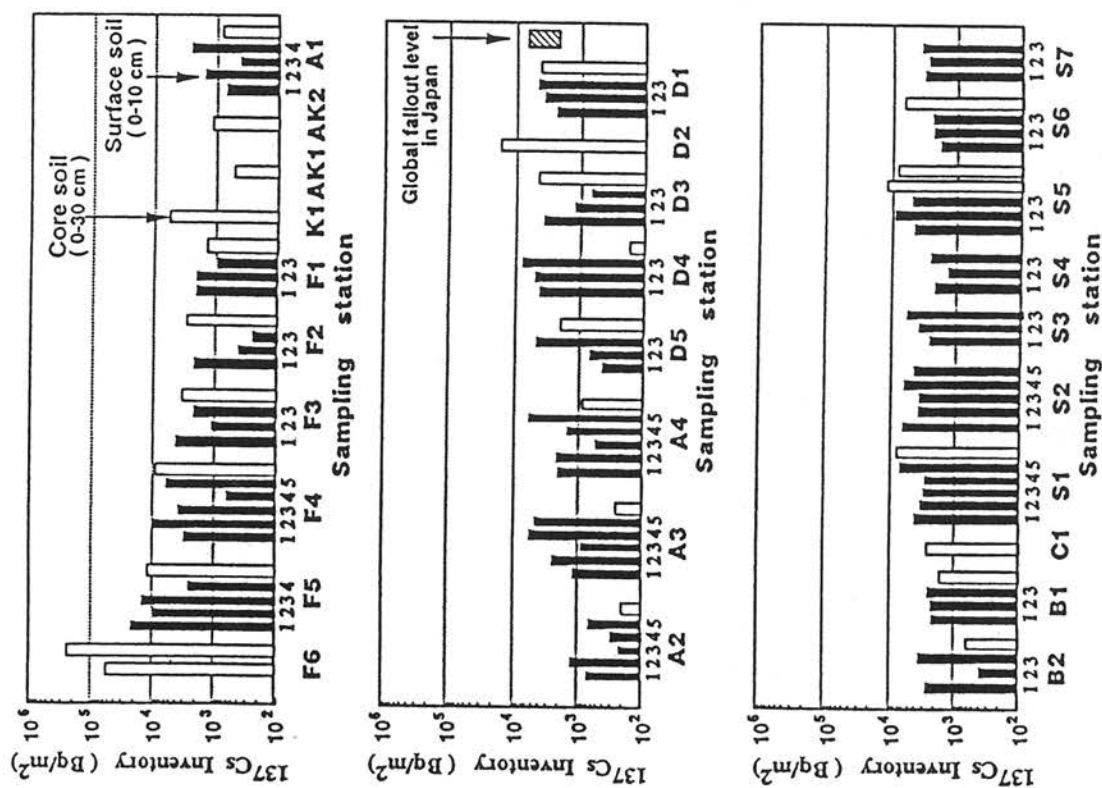


Fig. 3 Accumulated levels (Bq/m^2) of ^{137}Cs for surface (10 cm depth) and core soil (ca. 30 cm depth) from sites within the SNTS and Sarzhai settlement.

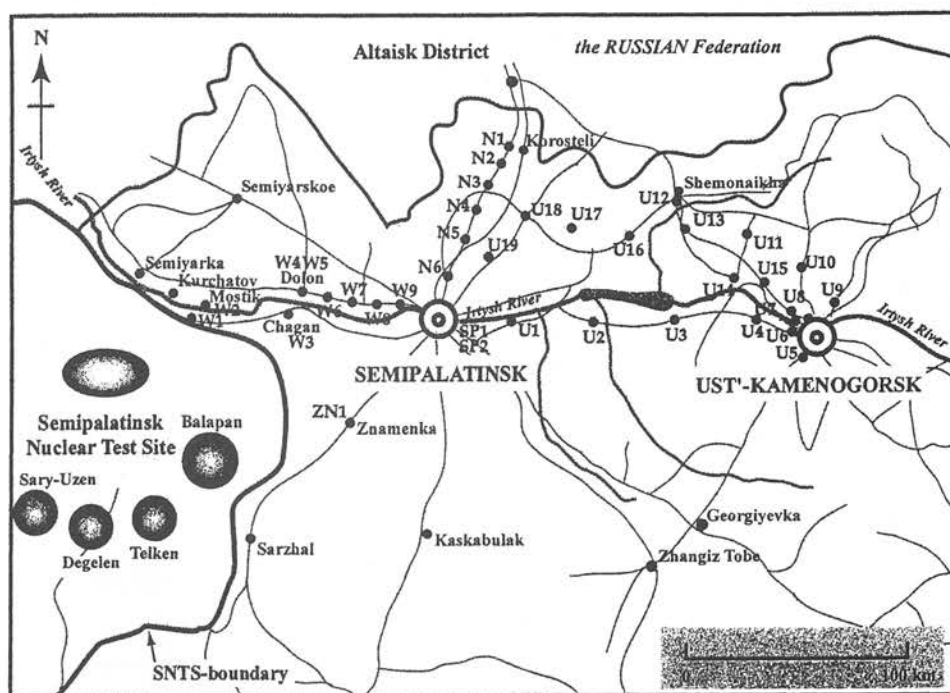


Fig. 4 Sampling locations of soil samples from the areas outside the SNTS territory.

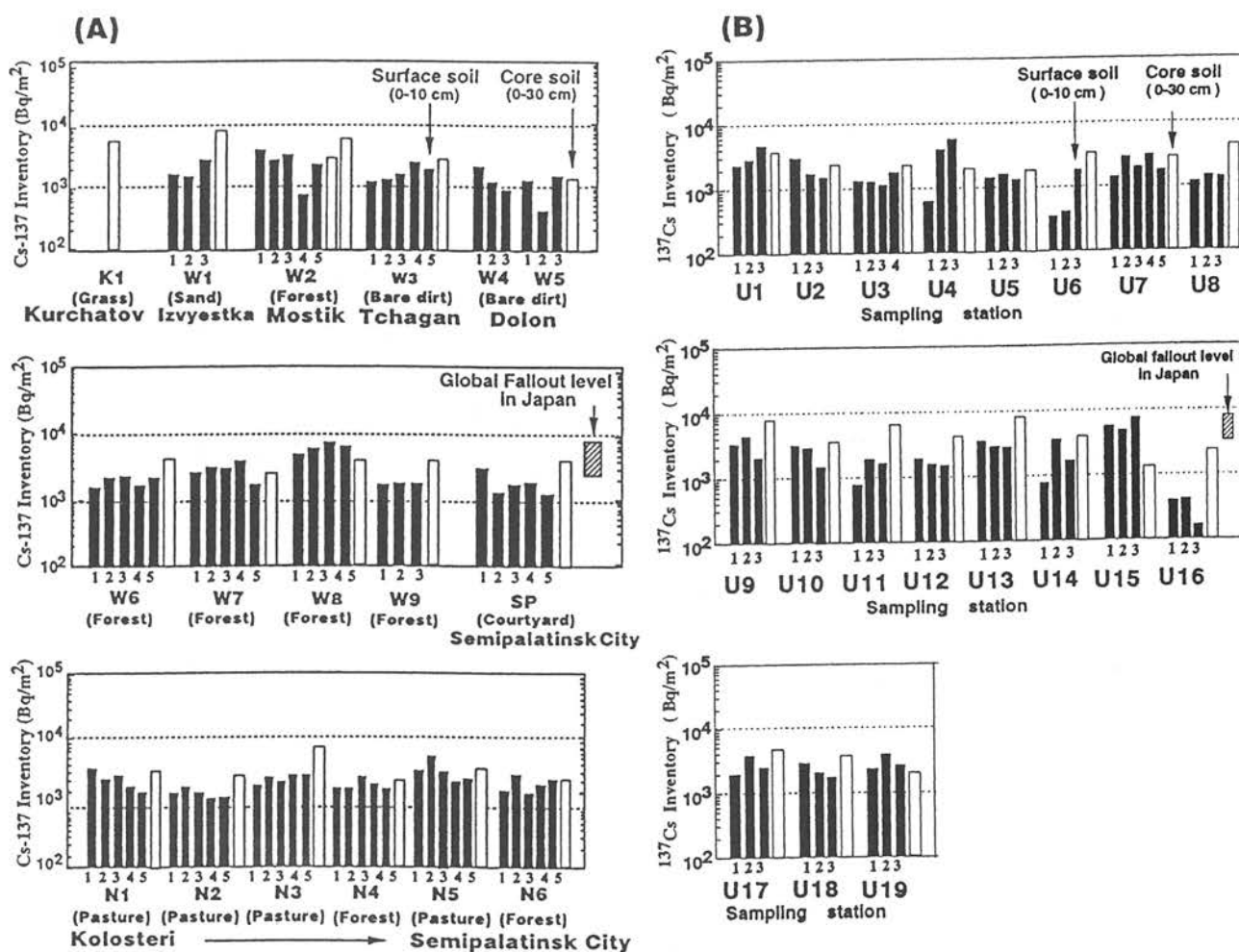


Fig. 5 Accumulated levels (Bq/m^2) of ^{137}Cs for surface (10 cm depth) and core (30 cm depth) soil from several sites outside the SNTS territory.

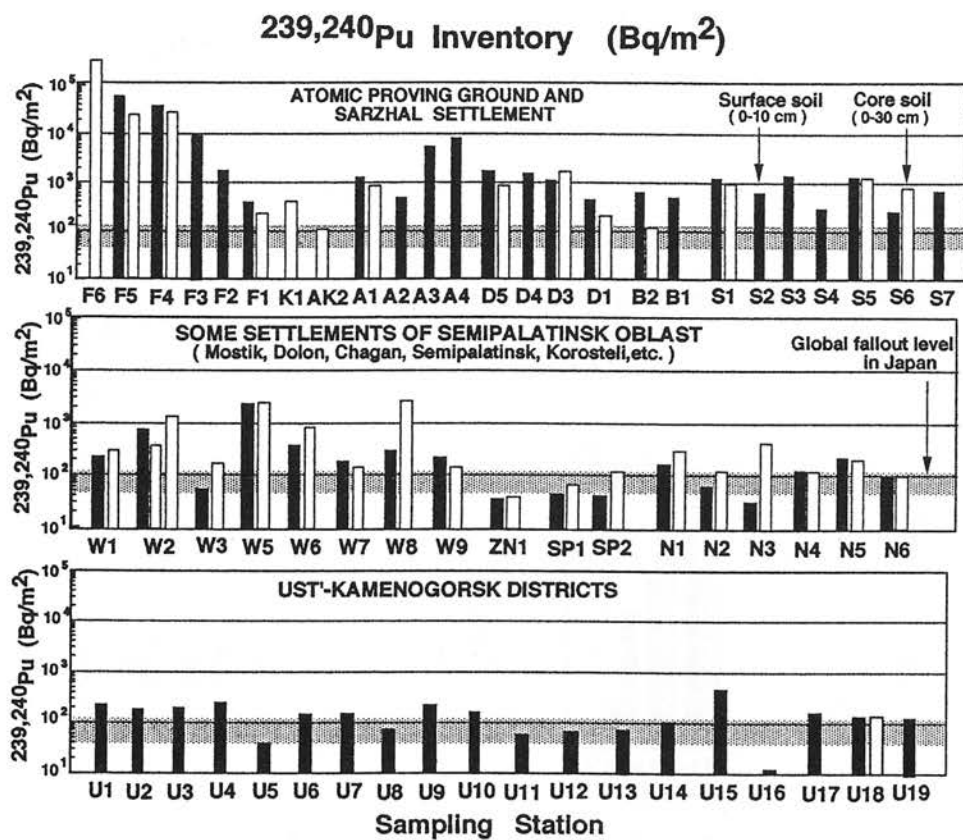


Fig. 6 Comparison of $^{239,240}\text{Pu}$ inventories (Bq/m^2) in soil from areas within and outside the SNTS territory.

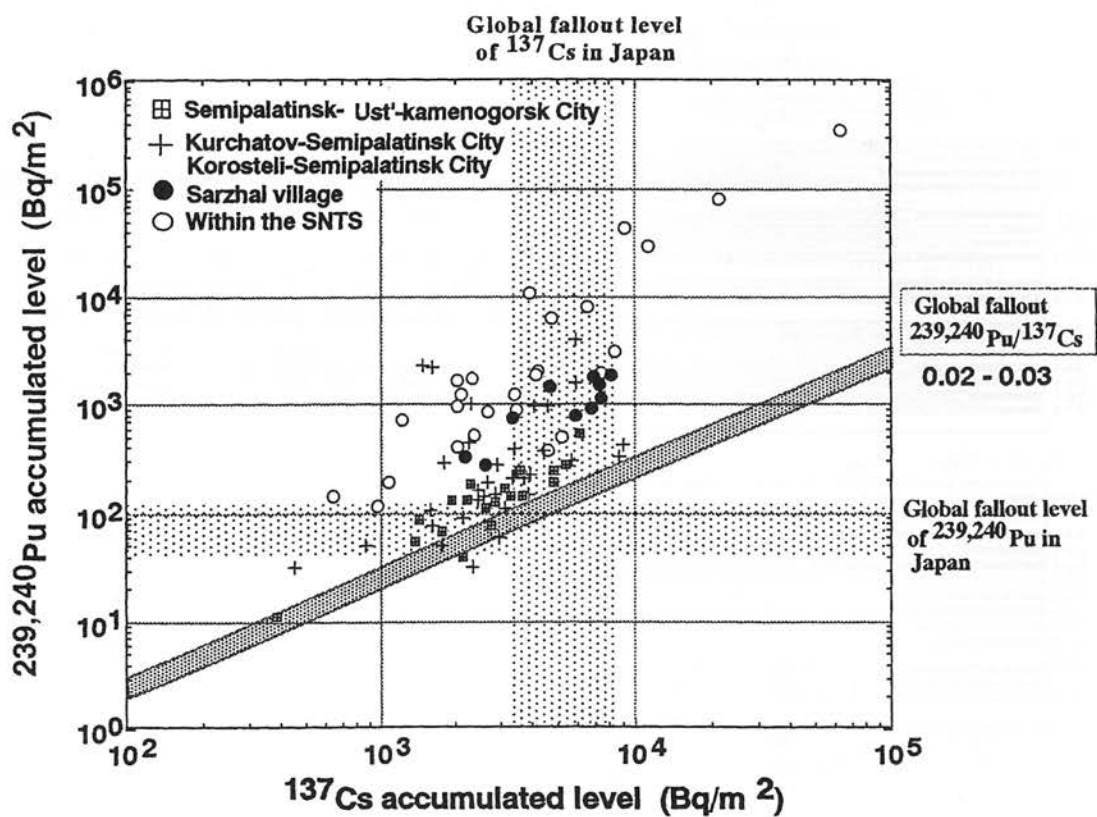


Fig. 7 Plot of $\text{Pu-}^{239,240}$ inventories vs. Cs-^{137} inventories for soil samples. The slope line is the activity ratio of $\text{Pu-}^{239,240}/\text{Cs-}^{137}$ found for global fallout.

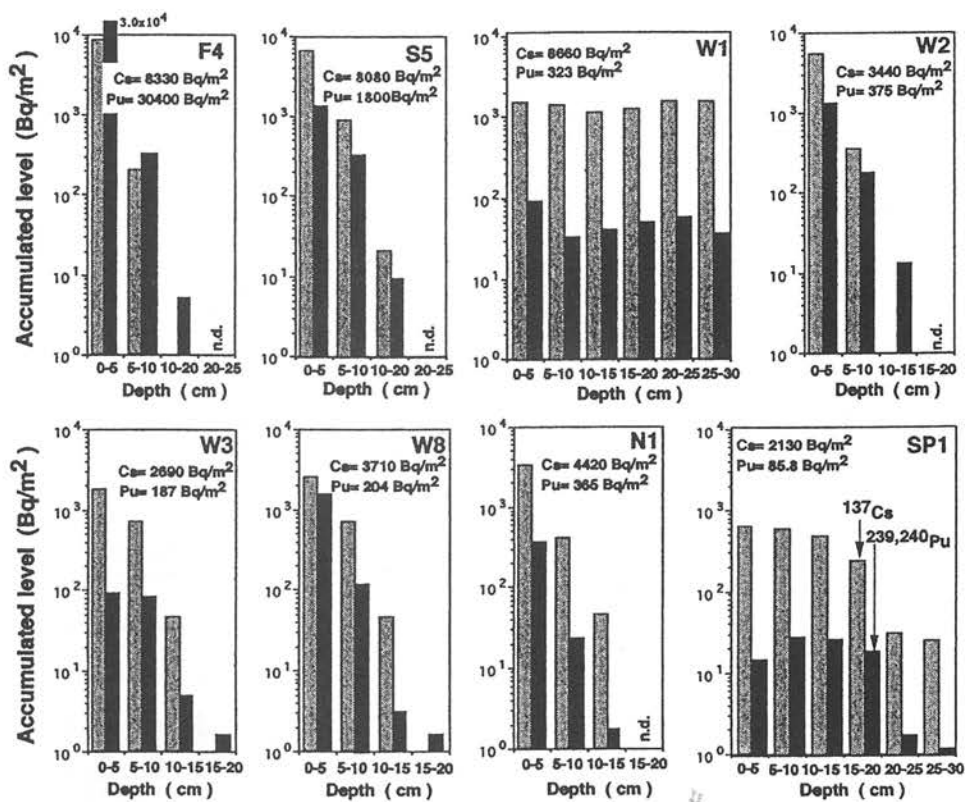


Fig. 8 Typical depth profiles of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs concentrations (Bq/m²) for core soil samples from the several areas within and outside the SNTS territory.

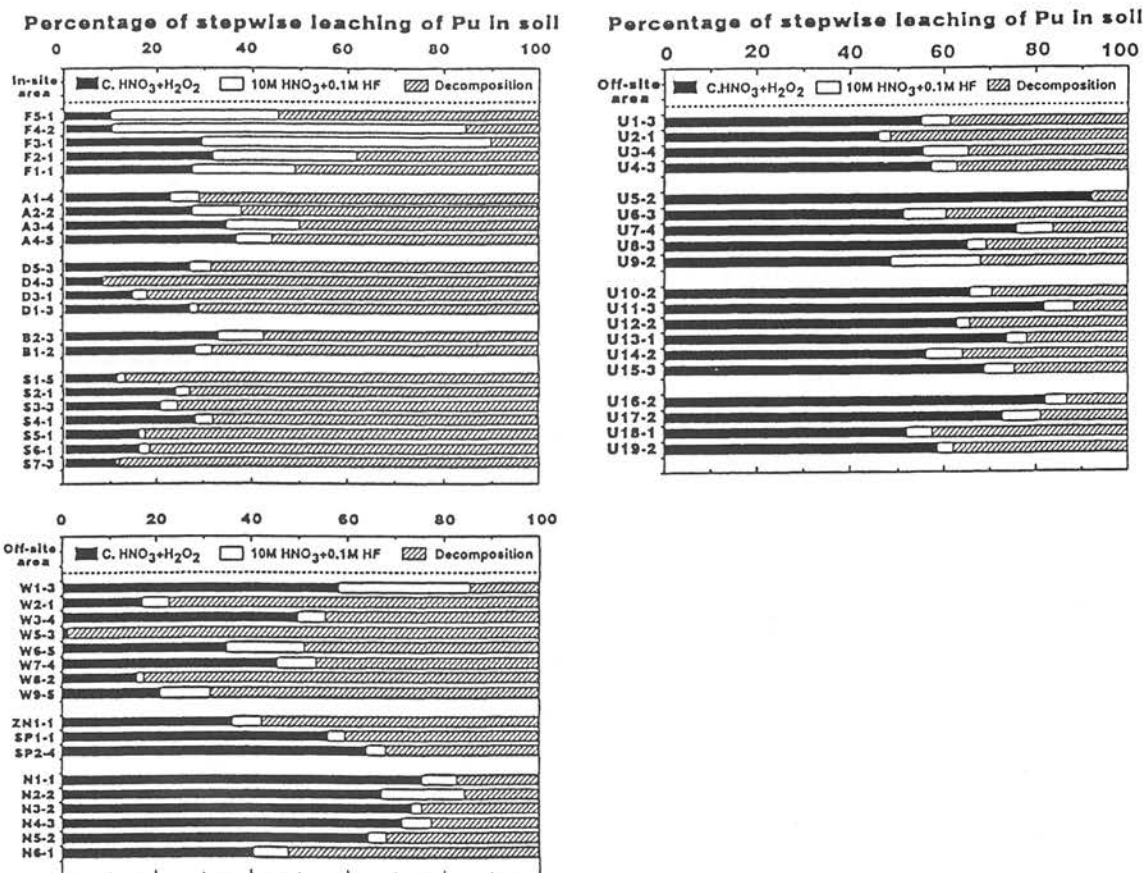


Fig. 9 Results of stepwise leaching of $^{239,240}\text{Pu}$ in soil samples from areas within and outside the SNTS territory.

Table 1
Comparison of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratios in environmental samples from various plutonium sources

Sample	Atomic ratio $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	Remarks
1st exp. site (this work)	0.036 ± 0.001	Surface soil sampled near the hypocenter of the first Soviet nuclear explosion on August 29, 1949.
Balapan (this work)	0.067 ± 0.001	Surface soil sampled around the top of the bank of crater (Shagan River site) which was formed by the underground nuclear explosion on January 15, 1965.
Nevada Test Site soil	$0.054\text{--}0.063$ (ave. 0.05)	USA: nuclear test site ^a
Rocky Flat Plant	0.051	Weapons-grade Pu fabricated at the Rocky Flat Plant ^b
Bikini soil	0.338 ± 0.051	Bikini Atoll: thermonuclear atomic bomb (Bravo: March 1, 1954) ^c
Bontenchiku	0.318 ± 0.023	Hemp-palm leaves: fishing gear used by the Fifth Fukuryo-Maru (Lucky Dragon: March 1, 1954) ^c
Nagasaki soil	0.042 ± 0.014	Nishiyama area in Nagasaki: Pu atomic bomb (August 9, 1945) ^c
Thule sediment	0.058 ± 0.008	Greenland: weapons-grade Pu due to accidental crash (January 1968) of a B-52 bomber ^c
Irish Sea sediment	$0.19\text{--}0.22$ (ave. 0.20)	Surface sediment from 24 intertidal sites around Irish Sea: release of Pu into the Irish Sea from the Sellafield nuclear fuel reprocessing plant, UK ^d
M. Kanmuri soil	0.18 ± 0.03	Surface soil (May 1978): global fallout Pu ^c

^aHardy, 1976; ^bKrey & Hardy, 1970; ^cKomura et al., 1984; ^dKim, 1990.

Table 2
Plutonium isotopic composition in soil from the 1st exp site and Balapan

Isotope	Activity (Bq/g)	Activity relative to $^{239,240}\text{Pu}$	Atom relative to ^{239}Pu
1st exp site			
^{238}Pu	0.404 ± 0.028	0.0145 ± 0.001	$(5.91 \pm 0.44) \times 10^{-5}$
^{239}Pu	24.6 ± 0.8	0.88 ± 0.03	1.0
^{240}Pu	3.35 ± 0.27	0.12 ± 0.01	0.036 ± 0.001
$^{239,240}\text{Pu}$	27.9 ± 0.4	1.0	
^{241}Pu	4.83 ± 0.14	0.173 ± 0.005	$(1.16 \pm 0.05) \times 10^{-4}$
^{242}Pu	$(7.5 \pm 0.6) \times 10^{-5}$	$(2.7 \pm 0.2) \times 10^{-6}$	$(4.8 \pm 0.4) \times 10^{-5}$
Balapan			
^{238}Pu	3.96 ± 0.08	0.447 ± 0.006	$(2.01 \pm 0.04) \times 10^{-3}$
^{239}Pu	7.08 ± 0.13	0.80 ± 0.01	1.0
^{240}Pu	1.77 ± 0.05	0.20 ± 0.01	0.067 ± 0.001
$^{239,240}\text{Pu}$	8.85 ± 0.12	1.0	
^{241}Pu	10.8 ± 0.3	1.22 ± 0.03	$(8.99 \pm 0.26) \times 10^{-4}$
^{242}Pu	$(1.3 \pm 0.2) \times 10^{-4}$	$(1.5 \pm 0.3) \times 10^{-5}$	$(2.9 \pm 0.5) \times 10^{-4}$

All are as of the date of sampling (October 7, 1994 for the 1st exp site soil and October 8, 1994 for the Balapan soil).

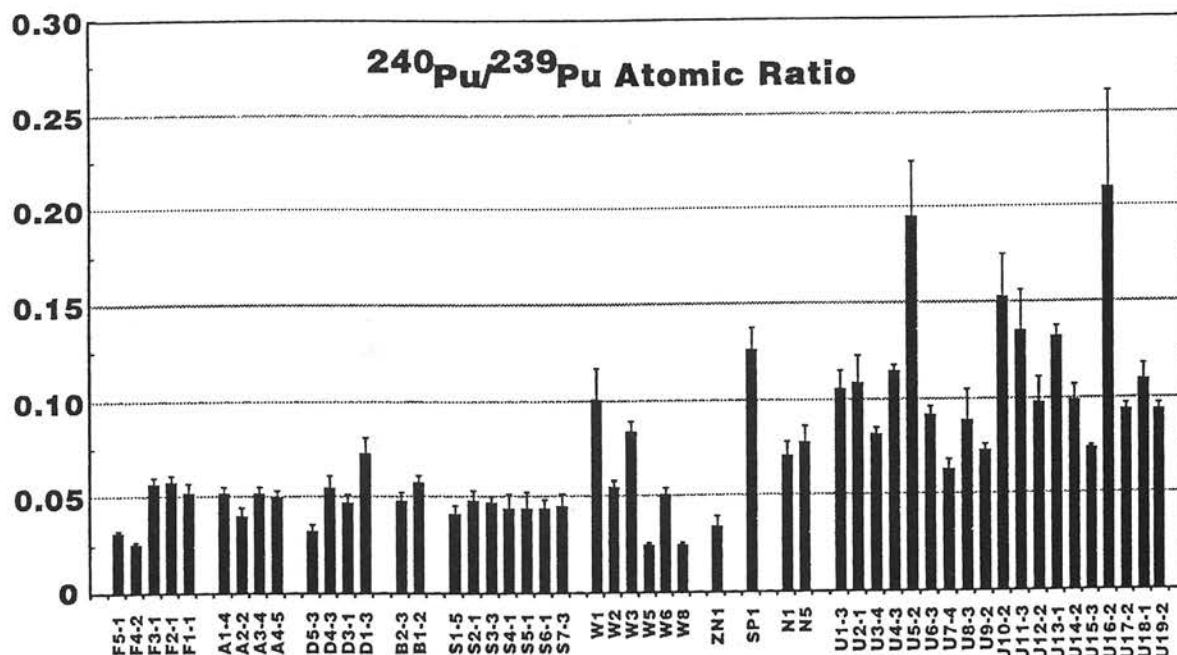


Fig. 10 Atomic ratios of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ in soil samples within and outside the SNTS territory

Table 3 Discrimination of global and SNTS local fallout Pu and ^{137}Cs based on the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratio method

Sample	Inventory		Cs (%)	Pu (%)	Atomic ratio		Ave. atomic ratio	Y	$^{239,240}\text{Pu}$			^{137}Cs		
	Cs ^a (Bq/m ²)	Pu ^b (Bq/m ²)			Pu-240/Pu-239	Pu-240/Pu-239			(Pu)G (Bq/m ²)	(Pu)W (Bq/m ²)	(Pu)W total (%)	(Cs)G (Bq/m ²)	(Cs)W (Bq/m ²)	(Cs)W total (%)
U1-3	4883	215.4	S	91.4	53.3	0.145 ± 0.004 ^c	0.0971	1.05	105.0	110.4	51.2	3571	1311	26.9
			R	8.6	46.7	0.042 ± 0.002								
U2-1	3162	150.0	S	91.9	51.3	0.137 ± 0.009	0.0906	1.26	66.2	83.8	55.8	2252	909	28.8
			R	8.1	48.7	0.042 ± 0.002								
U7-4	2851	164.3	S	95.0	55.5	0.096 ± 0.009	0.0719	2.51	46.9	117.5	71.5	1594	1258	44.1
			R	5.0	44.5	0.042 ± 0.003								
U9-2	3611	225.2	S	94.0	61.5	0.091 ± 0.009	0.0738	2.65	61.8	163.4	72.6	2100	1511	41.9
			R	6.0	38.5	0.046 ± 0.002								
U15-3	6124	436.5	S	90.5	52.3	0.090 ± 0.002	0.0658	2.96	110.2	326.3	74.8	3747	2378	38.8
			R	9.5	47.7	0.039 ± 0.002								
U18-1	3653	194.1	S	93.8	58.4	0.093 ± 0.002	0.0669	2.09	62.9	131.2	67.6	2138	1515	41.5
			R	6.2	41.6	0.031 ± 0.004								

S and R mean the soluble and insoluble fractions by leaching from soil with HNO_3 and H_2O_2 , respectively.

a. ^{137}Cs , b. $^{239,240}\text{Pu}$.

^cOne standard deviation of replicate measurements ($n = 4$) in final solution taken from one sample.

本研究は、国際学術研究 (1)京都大学 塚谷 恒雄教授 (1994-1995年), (2)広島大学 星 正治教授 (1995-2000年)の共同研究者(分担者) として参加することになったきっかけで始めた研究である。時間のかかる地味な根気の必要の研究であるが、広島、長崎、ビキニ被災事件そして原発問題に繋がる日本の一連の環境放射能研究をさらに発展させていくために、Scienceで真の国際貢献が出きる好運を与えてくれた多くの方々のご好意に感謝します。研究成果は、Health Phys., Radiochim. Acta, J. Radioanal. Nucl. Chem., J. Radiation Research 等に掲載、

湖水の滞留時間評価への宇宙線生成核種 ^{22}Na の導入

Estimation for residence time of lake water using the cosmic-ray product, Sodium-22

[緒言]

空気中の Ar と宇宙線との衝突(核破砕反応)で生成される宇宙線生成核種の一つである ^{22}Na ($T_{1/2}=2.60\text{ y}$, β^+)は、降水などにより地上へともたらされる。1957 年に Perkins and Nielsen(1965)に降水中によって見いだされて以来、大気中で定常的に生成されていると考えられるため、気象学の分野では有用なトレーサーとして利用されてきた。 ^{22}Na は降水等により湖面へ直接供給される以外に、集水域から河川や地下水経由で湖沼内へと運ばれる。湖沼系内では完全に溶解し、保存性物質として存在していると予想されることから、 ^{22}Na を保存性物質のトレーサーとして用いることが可能である。さらにナトリウム同位体が水に完全に溶解する性質から、 ^{22}Na の挙動は湖水のそれに近く、そのため湖水の滞留時間評価に用いることが出来ると考えられる。しかしながら、地表水中の ^{22}Na 濃度が極めて低く、測定が困難であるために現在に至るまで湖沼系における地球化学的な利用は皆無である。

本研究では ^{22}Na を湖沼学におけるトレーサー利用の導入として、湖水中の ^{22}Na 測定法の確立とこの核種を利用した湖水の滞留時間算定を試みた。湖水の滞留時間は“よどみ”の指標でもあり、湖内環境の将来を占う上で重要なファクターであるが、湖沼系の水収支は湖面や集水域からの水の蒸発散や風等の気象要因が複雑に作用しているため、計算が困難な面があり、また長期間の観測が不可欠である。本研究で試みた方法は、比較的短期間の観測で滞留時間が評価できるため、上記の問題を解消することも可能である。

[実験方法]

^{22}Na の供給量を把握するために、Fig. 1 に示す地点で河川水の採取を行った。採水は Fig. 2 に示すシステムを用いた。水中ポンプにより汲み上げた河川水を、ポリプロピレン製ワイドカートリッジフィルター(ADVANTEC 製 TCW-05-PPS)により懸濁物を濾過した後、直接接続したイオン交換筒(オルガノ製 Amberlite 系樹脂; 強酸性陽イオン交換樹脂 IR-120B と強塩基性陰イオン交換樹脂 IRA-410 の 2:1 混合品)に溶存イオンを吸着させた。湖水中の ^{22}Na 濃度を測定するために、琵琶湖研究所所有の実験調査船“はっけん号”に乗船し、河川水採取で用いたシステムを用いて採水を行った。持ち帰った試料(イオン交換樹脂)は、樹脂の 3 倍容の 4 規定・塩酸で抽出した。抽出液を蒸発濃縮したものを乾燥させ、定型に成形したものを線源とした。河川水及び湖水の採水量は、イオン交換筒の後部に取り付けた積算流量計でモニターし、最終的な流通水量は一試料当たり 300~500 リットルであった。大気からの供給量は滋賀県大津市の滋賀県琵琶湖研究所屋上(Fig. 1)で、有効面積 0.2 m² の水盤を設置し、一定期間大気降水物を採取した。大気降水物試料は、Powdex[®]樹脂(オルガノ製)にすべてのイオンを吸着させた後、450℃で 8 時間強熱し、減容したものを線源とした。 ^{22}Na の測定には、当実験施設の尾小屋地下測定室(270 m.w.e.)に設置した高純度 Ge 半導体検出器を用い、 ^{22}Na が放出する γ 線(1275keV, 99.9%)のサム・ピーク(1786 keV)を用いて定量した。河川水及び湖水のナトリウムの回収率は、湖水の Na 濃度と樹脂に回収された Na 量から計算により見積もった(測定には ICP-AES ; VARIAN 製 Liberty を使用)。

[結果と考察]

大気降水物による湖面への ^{22}Na 直接供給量は、観測期間に於いて 0.20 mBq/m² d であった。この値は隣接県である福井県での観測値(Tokuyama and Igarashi, 1996)に近い。琵琶湖への全供給量はこの値に湖面の面積(616 km²)を乗じた 120 GBq と見積もられた。河川水中の ^{22}Na 濃度は安曇川で 43 mBq/m³ であった。これらの値と琵琶湖への年間流入水量 37 億 m³(琵琶湖研究所, 1990)を乗じた値 159 GBq を河川経由の ^{22}Na 供給量とした。地下水由来の

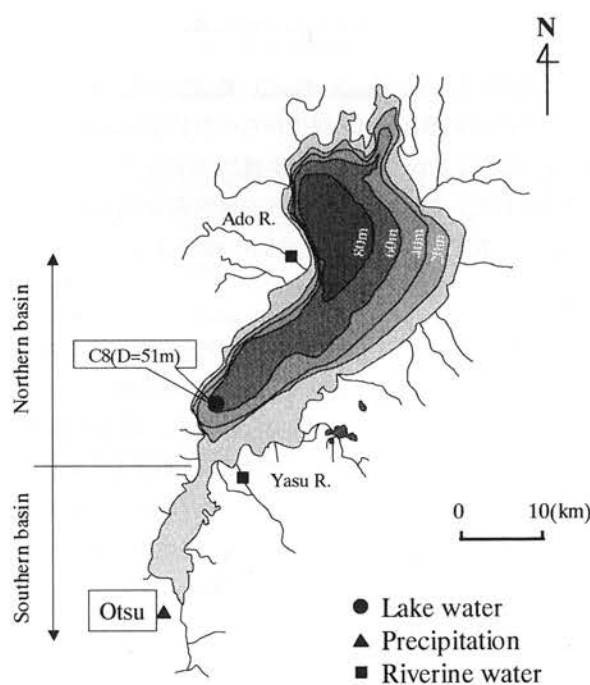


Fig. 1 Study area

水の供給量として 10%程度であり、地下水に溶存している ^{22}Na が地中を移行する間に ^{22}Na が自身の放射壊変により減衰する事を考え合わせると、地下水経由の ^{22}Na 供給は事実上無視しうると考えられる。以上のことから、琵琶湖への ^{22}Na 供給量の割合は、大気が 43 %、河川経由が 57 %である。

湖水中の ^{22}Na 濃度は、23~42 mBq/m³ の範囲であり、平均は 32 mBq/m³ であった。濃度の鉛直分布は表層から底層までほぼ一定であり、温度躍層上下での顕著な濃度差はみられなかった。これは、琵琶湖のように年一回成層する湖では、成層期に温度躍層上下での水の交換が少ないとと、これを観測するには ^{22}Na の半減期が幾分長いことに起因すると思われる。これらの結果から湖全体での ^{22}Na のインベントリは 880 GBq と見積もられた。

湖からの ^{22}Na の Output は、河川からの流失と自身の放射壊変による減衰のみが考えられる。河川からの ^{22}Na 年間流失分は湖水中の平均濃度(32 mBq/m³)に流出河川(琵琶湖疏水と瀬田川)の流出量 54 億 m³ を掛け合わせた 173 GBq と見積もった。

湖水の滞留時間を算出するために、まず ^{22}Na 物質収支モデルを構築した。 ^{22}Na は“水”とともに供給されるが、蒸発散の際には“水”しか蒸発しないので、滞留時間としては ^{22}Na の方が多少短く

与えられる。) Fig. 3 の様な収支モデルを構築し、調査で得られた各ファクターを入れ、以下のような計算により、 ^{22}Na 滞留時間を得た。

$$\frac{\Delta I}{\Delta t} = F_{\text{Atmosphere}} + F_{\text{Inflow}} - F_{\text{Outflow}} - I \cdot e^{-(\lambda+k)t} \quad \text{Eq. 1}$$

$$\tau = \frac{1}{k} \quad \text{Eq. 2}$$

ここで、 I 、 Δt 、 $F_{\text{Atmosphere}}$ 、 F_{Inflow} 、 F_{Outflow} 、 λ 、 k 、及び τ は、それぞれ湖全体の ^{22}Na 存在量(Bq)、観測期間(y)、大気からの供給量(Bq/y)、河川からの供給量(Bq/y)、河川(瀬田川及び京都疎水)からの流出量(Bq/y)、 ^{22}Na の壊変定数(y⁻¹)、除去定数(y⁻¹)及び滞留半減期(day)を示す。 $\Delta I/\Delta t = 0$ を仮定して計算すると、 ^{22}Na の滞留半減期は約 23 年と算出された。約 17 年と言われる琵琶湖湖水の滞留時間(琵琶湖研究所, 1988)の 135%であり、蒸発散時の“水”と ^{22}Na の分配を考慮すると、今回の結果は説明できると思われる。

[結言]

揚水ポンプとイオン交換樹脂カラムを直結したシステムを構築し、極低バックグラウンド地下放射線測定室において測定した結果、300 リットル程度の湖水から ^{22}Na が定量できる手法を開発した。雨水、河川水及び湖水の ^{22}Na 濃度から物質収支を算出した結果、滞留半減期が 23 年であることが明らかとなった。この値は湖水の滞留時間と大きく異ならず、保存性物質の地球化学的トレーサーとして、 ^{22}Na が利用できる可能性が示唆された。湖水の滞留時間算定には、供給源として大きな位置を占める河川水より詳細な解析が必要であることが分かった。

その他の研究として、ナトリウム同位体が水中で完全に溶存する事を利用した保存性物質の挙動解明や地下水の研究に利用できるものと思われる。

[この研究は平成 11 年度笹川科学研究助成を受け、主に大学院生 大塚良仁が滋賀県琵琶湖研究所 横田喜一郎博士と共同で行った。]

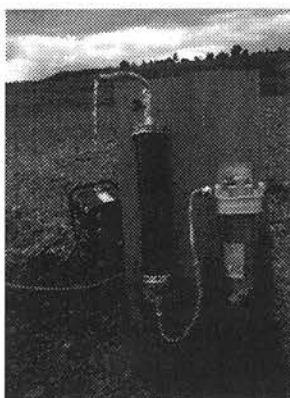


Fig. 2 Sampling system

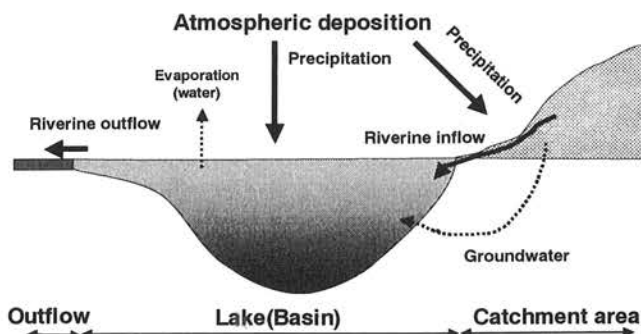


Fig. 3 Key map of water (^{22}Na) mass balance in Lake BIWA

平成11年度 運営人事関係, 設備備品等, 研究報告 記録

《施設職員》		《運営委員》	
施設長(併)	小村和久	(任期 平成11年5月～平成13年5月)	
(教授)		理学部	坂本 浩 大村 明雄
教授	小村和久	医学部	荻野景規 利波紀久
客員教授	鈴木 款(静岡大学理学部教授)	薬学部	正宗行人 松永 司
客員教授	今村峯雄(国立歴史民俗博物館教授)	工学部	上田一正 大角富康
助教授	山本政儀	教育学部	上田穰一
助手	井上睦夫		
講師(研究機関研究員)	佐々木圭一	《購入備品》 校費と科研費により購入	
講師(研究機関研究員)	川端良子	ウェル型ゲルマニウム検出器 米国キャンベラ社製	
事務補佐員	中本美智代	GMサーベイメータ アロカ(株) TGS-121 β 線測定 (1台)	
技能補佐員	中村晶子	GCW3522 ULB-GW 7915-30 (1式)	
		スペクトロサーベメータ アロカ(株) C-3475 γ 線測定 (1式)	
		ハイボリウムエアサンプラー SIBATA HVC-1000A (1台)	
		超純水製造装置 ヤマト科学(株) WQ-501 (1台)	
		純水製造装置 ヤマト科学(株) WG-221 (1台)	
		自動乳鉢装置 ドイツ フリッチュ社製 Pulverisette2(1台)	
		デジタルマルチプレクサ 米国オックスフォード社 DMR-2 (1台)	
		パーソナルコンピューター 東芝サテライト 4030X CDTA (1台)	
		パーソナルコンピューター Macintosh Power Mac G4-350 (1台)	
		レーザープリンター エプソン LP-9300 (1台)	
《消耗品》			
液体窒素	10,340ℓ		
A重油	5,000ℓ		
電気	173,217 KWH		
水道	1,208m ³		

研究論文

- Y. Igarashi, M. Aoyama, T. Miyao, K. Hirose, K. Komura and M. Yamamoto: Air concentration of radiocaesium Tsukauba, Japan following the release from the Tokai Waste Treatment Plant: Comparisons of observations with predictions. *Applied Radioation and Isotopes* 50, 1063-1073 (1999).
- J. Kuwabara, M. Yamamoto, S. Oikawa, K. Komura and D.J. Assinder: Measurements of Tc-991, Cs-137, Np-237, Pu Isotopes and Am-241 in sediment cores from intertidal coastal and estuarine regions in the Irish Sea. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 240 (2), 593-601 (1999).
- M. Yamamoto, M. Hoshi, J. Takada, A. Kh, Sekerbaev and B.I. Gusev: Pu Isotopes and Cs-137 in the Surrounding areas of the Former Soviet Union's Semipalatinsk Nuclear Test Site. *Journal of radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 242 (1), 63-74 (1999).
- M. Mukai, T. Yamaguchi, K. Komura, M. Furumoto and T. Nagao: Measurement of radioactive heat generation in rocks by means of gamma ray spectrometry. *Proc. Japan Acad.*, 75 Ser. B, 181-185 (1999).
- K. Shiraishi, T. Buannai, Y. Muramatsu and M. Yamamoto: Comparison of stable cesium and radiocesium on dietary intakes by Japanese subjects using 18 food categories. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 242 (3), 687-692 (1999).
- T. Muroyama, A. Shinohara, T. Saito and A. Yokoyama, et al.: Negative pion transfer process in a hydrogen-containing gas mixture, *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 239 (1), 159-163 (1999).

- Y. Kawabata, H. Nakahara and Y. Katayama.: Diatoms of the Aral Sea Sediments. 14th Diatom Symposium 1996, Mayama, Idei and Koizumi (eds), Koeltz Scientific Books, Koenigstein.1999., 419-425 (1999)
- Y. Kawabata, T. Tsukanani and Y. Katayama.: A demineralization mechanism for Lake Balkhash. International Journal of Salt Lake Research 8, 99-112 (1999).
- 小藤久毅, 山本政儀: ミネラルウォーター中のウラン濃度, RADIOISOTOPES, 48, 263-265 (1999).
- 小村和久: ウラン系列年代測定: 月刊地球, 56-62 (1999).
- 青山道夫, 大原利真, 小村 和久: 動燃東海事故による放射性セシウムの関東平野への広がり, 科学, 69 16-21 (1999).
- 中原紘之, 石田紀郎, 辻村茂男, 川端良子: 乾燥地における大規模灌漑と河川・湖沼の水質・生態系—中央アジアの河川・湖沼の水質・生物相の特徴と変化—水文・水資源学会誌 第12巻2号, シリーズ「乾燥地の灌漑農業と水環境」, 177-189 (1999).

研究報告

- 山本政儀: 旧ソ連核実験場セミパラチンスク周辺の環境放射能問題, 平成9年度～10年度科学研究費補助金基盤研究(C)(2)研究成果報告書(課題番号09680518) 全131p. (1999.3).
- 山本政儀, 星正治, 高田純, 塚谷恒雄, A.Kh.Sekerbaev, B.I.Busev: 旧ソ連セミパラチンスク核実験場及びその周辺地域におけるPu同位体とCs-137の分布, クロスオーバー研究シンポジウム「放射性物質の環境移行研究の新たな展開」報告集, 1988.11.26-27, 理化学研究所, 日本原子力研究所 松本史朗 他編, JAERI-Conf 9, 59-80 (1999),
- 小村和久, A. M. ヨセフ: 環境放射能の動態研究への提言—極低バックグラウンド放射能測定技術の応用—「保健物理と放射能動態」及び「環境における水素同位体の化学形転換と動態モデル」合同専門研究会報告書 KURRI-KR-30, 61-72 (1999).
- 河村日佐男, 白石久二雄, 阿部道子, 黒瀧克己, 今井靖子, 渡利一夫, 西牟田守, 小村和久: 食品等からの摂取と体内移行に関する研究, 放射線医学総合研究所特別研究「環境における放射性物質の動態と被ばく線量算定に関する調査研究」(平成5年度～平成9年度)最終報告書 NIRS-R-36, 121-128 (1999).

平成11年度見学来訪・調査出張・会合の記録

- 平成11.4.12, 5.31, 6.16 北陸大学放射薬品学助教授 山田芳宗氏 測定のため来所
 4.15-16, 8.10-11 [琵琶湖にて湖水, 湖底堆積物サンプリング]
 4.22-23, 5.17 理学部附属臨海実験所にて海中の中性子束測定
 5.12 核燃料サイクル開発機構 東海事業所環境 保全研究開発センター 川口浩一氏 研究
 打ち合わせ
 5.17. 9.9 金沢大学名誉教授 阪上正信氏 研究打ち合わせ
 5.18 核燃料サイクル開発機構 浜 克宏氏 研究打ち合わせ
 5.25 中国科学院地球化学研究所所長 Dr. Cong-Qiang Liu,
 富山大学理学部生物圏環境科学科 Dr. Zhang Jing 研究打ち合わせ
 5.28 福井県原子力環境監視センター 長嶋純一氏, 林正樹氏 研究打ち合わせ
 6.4 ◎平成11年度運営委員会 (於 理学部)
 国立歴史民俗博物館教授 (客員教授) 今村峯雄氏 講演 (於 理学部)
 三菱マテリアル 小日向正好氏 研究打ち合わせ
 6.11 滋賀県立大学 村瀬 潤氏 研究打ち合わせ
 6.12-13 [東京大学宇宙線研究所共同研究]
 7.28-30 ◎「環境放射能・放射線」研究会開催 (各大学・研究機関より56名参加)
 7.29 農業環境技術研究所 津村昭人氏, 駒村美佐子氏 研究打ち合わせ
 9.3-4 アシュート大学 (エジプト) Dr. A. H. El-Kamel 研究打ち合わせ
 10.4-6 小村教授「東アジアにおける大気汚染物質の挙動解明を目的とした自然放射能ラドンの
 の同時測定」(国際学術研究 代表: 名古屋大学 飯田孝夫教授) のため大韓民国へ出張
 10.3-21 山本助教授「セミパラチンスク核実験場近郊住民の被曝線量推定方法の確立と健康影響
 研究」(基盤研究(A)(2)代表: 広島大学原爆放射能医学研究所 星正治教授) のためカザ
 フスタン共和国へ出張
 10.17 九州大学理学部 前田米蔵氏 研究打ち合わせ
 10.23-27, 11.20-21, 11.26-27, 12.1.21-23, 2.10-12, 2.17-18
 [茨城県東海村にて臨界事故の環境影響に関する学術調査の現地調査] (科学研究費・特
 別研究促進費(1))
 10.26 [近畿大学原子炉共同利用研究]
 11.1-3 山本助教授「セミパラチンスク核実験場近郊住民の放射線影響国際シンポジウム」(於 広
 島) 出席
 11.3-4, 12.11-12 ◎科学研究費・特別研究促進費(1)「臨界事故の環境影響に関する学術調査研究」
 研究討 論会開催 (各大学・研究機関より11.3-4(東京)13名参加, 12.11-12(辰口)50名
 参加)
 11.9-12 山本助教授「2nd International symposium on plutonium in the environment」(於 大阪) 出席
 11.11 理学部化学科3年生43名見学
 11.18 Reprocessing ラジウム研究所 (ロシア) Prof. Yuri V. Kuznetsov 研究打ち合わせ
 12.10-11, 12.2.24-25 (財) 環境科学技術研究所 大塚良仁氏 研究打ち合わせ
 平成12.2.2-4 [立教大学原子炉共同利用研究]
 3.5 新潟大学工学部 今泉 洋氏研究打ち合わせ
 3.22 琉球大学機器分析センター 棚原 朗氏 研究打ち合わせ

平成12年度 運営人事関係, 設備備品等, 研究報告 記録

《施設職員》

施設長(併)(教授) 小村和久

教 授 小村和久

客員教授 今村峯雄(国立歴史民俗博物館教授)

客員教授 飯田孝夫(名古屋大学大学院工学研究科教授)

助 教 授 山本政儀

助 手 井上睦夫

講師(研究期間研究員) 佐々木圭一

講師(研究期間研究員) 川端良子(平成12年11月30日まで)

事務補佐員 中本美智代

《運営委員》

(任期 平成11年5月～平成13年5月)

理学部 中西孝 大村明雄

医学部 荻野景規 利波紀久

薬学部 正宗行人 松永 司

工学部 上田一正 大角富康

教育学部 上田穰一

《消耗品》

液体窒素 14,320 ㍑

A重油 3,000 ㍑

電気 144,902 KWH

水道 1,061m³

《購入備品》 校費と科研費により購入

サーベイメータ アロカ(株)

TCS-171 エネルギー補償形γ線用 (1台)

パーソナルコンピュータ Macintosh iMac 400DVSE (1台)

無停電電源装置 Panasonic DE-U142GXA (1台)

カラーレーザープリンター エプソン LP-3000C (1台)

ハイポリウムエアサンプラー柴田科学 HVC-1000N (1台)

マルチ水質モニタリングシステム京都サイエンス U-22 (1台)

研究論文

K. Komura, M. Yamamoto, T. Muroyama, Y. Murata, T. Nakanishi and M. Hoshi, et al.: The JCO criticality accident at Tokai-mura, Japan : an Overview of the sampling campaign and preliminary results. Journal of Environmental Radioactivity 50, 3-14 (2000).

H. Kofuji, K. Komura, Y. Yamada and M. Yamamoto: An estimation of fast neutron flux by ³⁵Cl(n, α)³²P reaction. 同上, 49-54 (2000).

T. Muroyama, Y. Murata, H. Kofuji, M. Yamamoto and K. Komura: Neutron activation of chemical reagents exposed to the neutrons released by the JCO criticality accident. 同上, 55-59 (2000).

Y. Murata, T. Muroyama, H. Kofuji, M. Yamamoto and K. Komura: Neutron-induced radionuclides in soil from the JCO campus by non-destructive γ-ray spectrometry, 同上, 69-76 (2000).

K. Komura, A. M. Yosef, Y. Murata, T. Mitsugashira, R. Seki and T. Imanaka: Activation of gold by the neutrons from the JCO Accident. 同上, 77-82 (2000).

T. Nakanishi, R. Hosotani, K. Komura, T. Muroyama, H. Kofuji and Y. Murata, et al.: Residual neutron-induced radionuclides in a soil sample collected in the vicinity of the criticality accident site in Tokai-mura, Japan : A Progress Report, 同上, 61-68 (2000).

K. Shiraishi, S. Kimura, H. Yonehara, J. Takada, M. Ishikawa, Y. Igarashi, M. Aoyama, K. Komura and T. Nakajima: Survey of external dose ground the JCO facility using sugar samples and ESR method. Adv.ESR Appl. 16, 9-14 (2000).

M. Yamamoto, S. Oikawa, W. Schimmack and K. Bunzl: Fallout Pb-210 as tools for studying distribution and transport of man-made long-lived radionuclides in terrestrial environment. Proceedings of the International Workshop on Distribution and Speciation of Radionuclides in the Environment, Rokkasho, Aomori, Japan, October 11-13, 2000., 45-57 (2000).

T. Iida, K. Yamada, Y. Hashiguchi, J. Morizumi, I. Nagao, K. Komura, K. Yoshioka, Y. Nin and Y. Shin: Measurements of atmospheric radon concentrations at various locations in East ASIA, 同上, 123-132 (2000).

K. Komura and A. M. Yosef: Natural Radionuclides induced by Environmental Neutrons, 同上, 210-217 (2000).

Y. Ohtsuka, M. Yamamoto, H. Kofuji, K. Yokota and K. Komura: Behavior on naturally occurring radionuclides

- Pb-210 and Po-210 in the water of Lake BIWA, Japan. 同上, 270-277 (2000).
- 井上睦夫, 杉本幸司, 中村昇, 小村和久: 1995年兵庫県南部地震前後における神戸地下水の Sr同位体比および親石元素組成の変化, 地球化学 34, 91-101 (2000).
- 小村和久: JCO臨界事故に関する学術 調査概要, Proceedings of the First Workshop on Environmental Radioactivity, KEK, Tsukuba, Japan, March 30-31, 2000, 115-128 (2000).
- 中西孝, 細谷利沙, 小村和久: 東海村臨界事故に伴って放出された中性子のフルエンス: 土壌などの放射化率測定に基づく評価, 同上, 142-146 (2000).
- 小村和久, A. M. Yousef, 村田祥全, 三頭聡明, 関李紀, 今中哲二, 星正治: 金の放射化からみた中性子の影響範囲, 同上, 147-154 (2000).
- 村田祥全, 室山俊浩, 小藤久毅, 川端良子, 山本政 儀, 小村和久: JCO敷地内土壌中の中性子誘導放射性核種, 同上, 165-169 (2000).
- 室山俊浩, 村田祥全, 小藤久毅, 山本政儀, 小村和 久: JCO敷地内試薬の放射化による中性フルエンスの見積もり, 同上, 170-173 (2000).
- 小村和久: 極低レベルγ線計測による縄紋期獣骨の年代測定, 平成10年度~11年度科学研究費補助金基盤研究 (B) (2) 研究成果報告書 (課題番号10480025) 全100p. (2000.3)
- 小村和久: 極低レベル放射能測定の実環境放射能研究への応用——金を利用する環境中性子測定, Isotope News, 2000年5月号, 6-10 (2000).
- 総説**
- 小村 和久: 極低レベル放射能測定最前線, 放射線 26 (3), 41-57 (2000).
- 小村 和久: 極低レベル放射能測定, ふんせき 12, 730-735 (2000).
- 小村 和久: 極低レベル放射能測定 鋸山から尾小屋へ, 原子核研究 45 (1), 99-113 (2000) .
- 小村 和久: JCO事故で被曝した金中のAu-198の測定, 放射化学ニュース (2), 6-7 (2000).
- 小村 和久: JCO事故からえた教訓, 金沢大学環境保全センター広報, 12-14 (2000).
- 小村 和久: JCO臨界事故における文部省研究班の活動, 日本科学者会議石川支部ニュース, 5-9 (2000).
- 川端 良子: 第2回環境放射能・放射線 夏の学校に参加して, 保健物理 35 (4) p.516-517 (2000).

平成 12 年度 見学来訪・出張の記録

- 平成12. 5. 10 山梨県環境科学研究所 奥水達司氏 研究打ち合わせ
5. 13 京都大学原子炉実験所 柴田誠一教授, 他 5 名 尾小屋地下測定室で共同研究
5. 16 北陸財務局監察官 中塚恒一氏, 池田外志幸氏, 岡本宏司氏, 大谷征治氏 査察
5. 19-20 小村教授「国際放射線防護会議 (IRPA10 サテライトミーティング)」(於 広島) 出席
5. 30 会計検査院 総括副長 福武孝元氏 来所
6. 24-6. 30 小村教授「サウスバレー大学 ヨセフ教授博士論文打ち合わせ」のためエジプトへ渡航
7. 21-23 ◎「環境放射能・放射線」研究会開催 (各大学・研究機関より 58 名参加)
7. 31-8. 15 山本助教授「土壌中の (Pu, Sr) 測定のための試料収集」のためカザフスタン共和国へ出張
9. 8 名古屋大学工学研究科 井口哲夫教授 研究打ち合わせ
10. 1-2 神戸大学理学部 中村 昇教授, 学生 8 名 研究打ち合わせ
10. 1 Bharathiar University (INDIA) Dr. Selva Sekara Pandian 見学
10. 2-3 [近畿大学原子炉共同利用研究]
10. 11-13 小村教授・山本助教授「環境中における放射性核種の分布と存在形態に関する国際ワークショップ」(於 青森) 出席
10. 15-20 小村教授, 山本助教授「アクチニドおよび長寿命核種の低レベル測定国際会議」(於 茨城) 出席
10. 23 北陸大学放射薬品学助教授 山田芳宗氏 測定のため来所
10. 23-24 気象研究所 五十嵐康人氏 研究打ち合わせ
10. 30 前広島市長 平岡 敬氏 研究打ち合わせ
11. 2 ◎平成 12 年度運営委員会 (於 理学部)
- 国立歴史民俗博物館教授 (客員教授) 今村峯雄氏 研究打ち合わせ
11. 4-13 小村教授「BSAT - II 国際会議」のためエジプトへ出張
11. 22 科学技術庁原子力安全局核燃料規制課 栗崎 博氏, 塚部暢之氏 来所
12. 17 科学研究費・特別研究促進費(1)「臨界事故の環境影響に関する学術調査研究」研究会 (於 千葉)
- 平成13. 2. 8-9 理学部化学科 3 年生 40 名実習, 尾小屋地下測定室見学
2. 6 青森県 NPO 柏谷弘陽氏 研究打ち合わせ
2. 22 日本鋼管 鈴木俊介氏 研究打ち合わせ
2. 26-3. 10 名古屋大学原子核工学専攻原子核計測学講座 橋本孝治氏, 山村直史氏 尾小屋地下測定室で共同研究
3. 21-23 小村教授「日米合同線量ワークショップ」(於 広島) 出席

金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設

〒923-1224 石川県能美郡辰口町和気

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

尾小屋測定室 TEL, FAX (0761) 67 - 1740

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Wake, Tatsunokuchi, Ishikawa 923-1224, JAPAN