

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 I)

Annual Progress Reports of
Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

巻頭言・提言

尾小屋地下測定室への道のり（施設長・教授・小村和久）	2
日本海に目を向けて ―放射能動態と地球環境保全― （平成6～8年度客員教授・池谷元伺）	3
定年退職に際して（前施設長・上野馨）	4

測定法の確立

極低バックグラウンド β 線検出器による環境中 ^{32}Si 測定	5
降水中の ^{35}S 分析法の改良	6
表面電離型質量分析計（VG-354）の立ち上げ（途中経過報告：そのI）	7

尾小屋地下測定室を利用して

放射能測定の限界に挑む（1）―旧尾小屋鉱山地下測定室の建設―	8
放射能測定の限界に挑む（2）―地下測定室を利用して―	10
低バックグラウンド γ 線測定による根上隕石（L6）の宇宙線生成核種	12
つくば隕石（H5-6）の複数の破片における宇宙線生成核種濃度	14
Evaluation of Environmental Neutron Flux by Activation of Gold	16

琵琶湖の物質循環

琵琶湖水中におけるウラン濃度の季節変化	18
琵琶湖水中の天然放射性核種 ^{210}Pb 及び ^{210}Po の動態	22

放射性核種による年代測定

縄文期獣骨のウラン系列核種	26
石筍を利用した古環境解明の試み	28

その他の研究

アイリッシュ海沿岸堆積物中の ^{99}Tc とその移行挙動	30
市販ミネラルウォーター中のウラン濃度	32
兵庫県南部地震前後の神戸地下水におけるU濃度の経時変動 ―Sr濃度および同位体比との比較―	33

平成6～10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	35
---	----

尾小屋地下測定室への道のり

施設長 小村 和久

当施設に赴任した当初（1976 年）から、「低レベル放射能実験施設」にふさわしい極低レベル放射能測定用地下測定室の建設は不可欠と考えていた。当時の概算要求には地下 25m の地下測定室の構想が記されており、施設建設に先だって塩化ビニル製のパイプでケーシングした直径 5cm、深さ 25m のボーリング孔が掘られていることを知る者はほとんどいない。地下測定室へはエレベータを使うほか、非常時に備えて東側の道路側から水平トンネルを計画していた。測定室の遮蔽は蜂の巣状の遮蔽体を組むことで材量を節約し、ここに 5-6 台の Ge 検出器と β 線検出器を配列する予定であった。

施設開設時は可搬型の Ge 検出器を用いて全国の線量調査が研究の中心であったが、この機会を利用して地下測定室建設の基礎データの収集につとめた。これまでに調査した洞窟は山口県の景清洞（ ~ 130 mwe）、岐阜県の御母衣地下発電所（ ~ 600 mwe）、手取川ダム堰堤内（ ~ 200 mwe）、小松市里川の石切り場（ ~ 60 mwe）など多数にのぼる。

1980 年代には科研費補助を受け、御母衣地下発電所の回廊を間借りして地下測定室を作った。ここでは液体シンチレーションカウンター NaI(Tl) 検出器および Si 検出器による基礎研究を 5 年ほど続けてきたが、片道 3 時間の遠隔地のために液体窒素が必要な Ge 検出器の設置には踏み切れなかった。

1989 年 7 月、地元の北國新聞に「尾小屋鉱山資料館のマインロード整備」なる記事を見つけたのが尾小屋に地下測定室を建設する切っ掛けとなった。当初はマインロードの展示トンネルを利用する予定であったが、ここは展示のための空間として使うためにすぐ近くにある延長 546m、土被り 135m のトンネルを紹介された。最初の 5 年はトンネルの整備と宇宙線に対する遮蔽効果の測定のほか、ラドン濃度、温度、風速などの基礎データの蓄積に費やした。1995 年 2 月に近くの根上町に隕石が落下（根上隕石、総重量 420g）したのを機に大型 Ge 検出器を移設し記念すべき最初の測定を行った。2000 年 8 月現在、ここには極低バックグラウンド仕様の 4 台の Ge 検出器と Si- β 線検出器がフル稼働している。地下の深度は水深に換算してわずか 270m に過ぎないが、金沢城内にあった建屋の解体時に廃棄された江戸時代の鉛を使った遮蔽材を使うことによって世界屈指の低バックグラウンドを実現することが出来た。辰口の研究所からわずか 20km しかない、世界一アクセスが容易な地下測定室となった。

根上隕石、つくば隕石（1996 年 1 月落下）、神戸隕石（1999 年 9 月落下）など「宇宙からの手紙」を解読とするという幸運に恵まれたほか、1998 年には環境中性子による誘導放射性核種 ^{152}Eu , ^{154}Eu , ^{155}Eu , ^{60}Co , ^{198}Au の発見などが相次いだ。JCO の臨界事故では重要な測定が多くが尾小屋でなされることになり、オリジナリティーのある研究を展開する機会が巡ってきたところである。

地下測定室の建設では尾小屋鉱山資料館の元館長の道端清氏、現小松市助役の山崎昭氏、地元出身の小松市議会議員橋本康容氏には多大な援助を頂いた。また、5 年にわたる整備期間は当時大学院生の渡口輝、山崎誠二両君の献身的な協力がなければ今の尾小屋測定室がなかったことを記し感謝の意を表したい。

日本海に目を向けて - 放射能動態と地球環境保全 -

大阪大学理学部教授

当施設客員教授 池谷 元伺

金沢大学の「低レベル放射能実験施設」に客員として参加させて頂き、改めて研究内容が国際的に「高レベル」であることに感激する。私のほうが教えて頂くことのほうが、あまりにも多い。この研究所にはお世話になりっぱなしである。山口大学併設の夜間の工業短大部に在職した20年前に、地域の特色を出そうと秋芳洞鍾乳石の自然放射線効果を調べ、電子スピン共鳴 (ESR) 年代測定を手がけて発表した。その時も、秋吉台と秋芳洞の自然放射能の調査研究に参加していただき、その成果を基にして「第1回ESR年代測定国際シンポジウム」を10年前の1985年に山口大学と秋吉台博物館で開催した。気軽に開催してみて、山口県で初めての国際会議であると判り、国際化していない日本の現状の難しさを知った。

国際会議は都会のホテルや大きな国際会議場で開催するより、特色ある地方で開催する方が、ずっと有意義である。文部省の「国際研究集会経費」による山口大学での会議でも、小村・阪上の招待講演のレベルの高さは、出席者に感銘を与え、直ちに類似の追従実験がヨーロッパで行われたことを思い出す。しかし彼等は、その仕事をその後は引用しようとしないう。科学にも大きな国境があるように思える。

欧米人で日本（アジア）の仕事を利用する人達は、300年にわたるアジア支配の偏見のなせる業か数少ない。しかし、それでも、我々は良い仕事を発表し続け、我々はよい仕事を「公平」に引用し続けなければならない。日本人の論文を無視し、欧米人の論文しか引用しない精神的に植民地化されてしまった研究者が多いことを悲しむ。英語による論文というハンデを負ったアジアの研究を、我々はもっと正統に評価すべきである。それと同時に自らを主張しない日本の美德も改めるべきであろう。

金沢大学の低レベル放射能実験施設が中心になって進めるべき研究は、地元の日本海を中心とする環境保全と地球環境の研究である。外国による日本海への核廃棄物の投棄や事故の放射能汚染も予測される時、自然放射能の事前調査は重要である。日本海における放射性元素の動態こそ、解明しておけなければならないし、そのような研究を通して、過去と現在、そして未来の世界的な気候変動を明らかにし、地球環境の保全に寄与すべきであると考えている。

停年退職に際して

理学部附属低レベル放射能実験施設 上野 馨

日本原子力研究所（原研）から転職し金沢大学理学部に奉職することになり昭和62年7月1日に赴任しました。それから8年9ヶ月、辰口町の丘陵地に建てられている低レベル放射能実験施設（LLRL）に籍を置き、自然環境に存在する微量の天然・人工放射性核種の時間的空間的分布・挙動の研究および教育活動を続けさせて頂きました。高名な阪上正信名誉教授の築かれた研究・教育の信念を尊重してLLRLの運営・研究・教育を進め大過なく任務を遂行でき、さらにこれらの諸業務を後任の小村和久教授に引き継いで頂けることに安堵しています。

発足以来十余年を経過し、研究・教育の基盤が確立され活動期に入っていたLLRLでは、在任期間中に種々の研究が進展しました。なかでもイギリスの使用済み核燃料再処理工場から放出された超ウラン元素の海水および海底堆積物中の分布・挙動の研究および尾小屋銅鉱山トンネル内極低レベル放射能測定施設の設置の2例を特記事項として述べることができます。前者は我が国でも本格的に開始された核エネルギー平和利用に伴って発生する高レベル放射性廃棄物処理・処分の安全評価に常に問題になる長寿命のネプツニウム、プルトニウム、アメリシウムなどの環境における化学的状态、移行挙動などに係わる知見であり関連学会で高い評価を得ています。後者は平成7年2月と8年1月に落下した根上隕石、つくば隕石に含まれていて他の手法では測定できない極微量放射性核種の検出・定量にその能力を発揮し、世界的にも遜色の無い機能を持った地下測定室として宇宙科学の研究発展に貢献しています。

この期間に石川県内に志賀原子力発電所第1号機の建設が進み平成4年11月に試運転が、5年6月には営業運転が開始されました。県では発電所周辺における公衆の安全を確保し、生活環境の保全を図るための周辺環境放射線監視体制の整備と県および関係四町の原子力防災計画の作成が行われ、この作業に参加しました。又、大学連合と原研で昭和62年に開始したプロジェクト共同研究では、社会的要請が大きい核燃料サイクルの“バックエンド”の化学的研究を取り上げ、第Ⅰ期計画の5年間が経過した平成3年度からの第Ⅱ期計画を担当し予期以上の成果を残すことができました。なおこのプロジェクト共同研究は第Ⅲ期計画へ引き継がれることになっています。

上述しましたように、研究・教育につきまして一応所期の目的を達成できたものと思っていますが、これは偏にLLRLに所属されている小村和久教授、山本政儀助教授、加藤岩夫技官、中本美智代事務官の弛め努力と、理学部化学科の先生方のご助言、ご指導によるものと深く感謝しています。又、多くの優秀な学生に恵まれたことも非常な幸運でした。本校から遠く離れ日常生活にも不便な所で、勉学に励み研究に没頭し苦役にも献身的に協力してくれた学生の若き力がLLRLの研究業績を高めたものと思っています。

金沢大学を去るにあたりまして、いろいろお世話になりました教職員皆様方に厚くお礼申し上げますとともに、ご健康とご多幸を心からお祈りいたします。

極低バックグラウンドβ線検出器による環境中³²Si測定

Determination of ³²Si in environmental sample by low background β-ray spectrometer

宇宙線と大気中 Ar の核反応により生成する³²Si は、半減期が約 170 年と考えられることから海洋沿岸及び湖沼域の堆積物の研究において¹⁴C法と²¹⁰Pb法の狭間を埋める有用なトレーサと考えられている。環境中の³²Siの研究はLalら(1960)の報告以後いくつかのグループによって行われてきたが、³²Siが極めて低濃度(例えば雨水では0.1~4 dpm/m³)であることによる測定上の困難さから非常に少ない。これまでの報告はインド(降水)、ヨーロッパ(降水及び氷河)及び南極(氷河)のデータに限られており、今後³²Siを地球化学的トレーサとして広く利用していくためには、まず地表への³²Siの降下量及び蓄積量について世界各地で多くのデータを収集していく必要がある。それにあたり、我々は環境レベルの³²Si測定が可能なβ線検出器(検出限界<0.1 dpm)の構築、更に実試料の³²Si測定のための化学分離精製における問題点について検討してきた。今回で初めて我国の降水及び堆積物中の³²Siデータを得たので報告する。

【実験】

試料は当施設屋上で採取した降水(800 l)及び琵琶湖南湖堆積物(0~15cm, 400 g dry)を使用した。雨水中のSiはイオン交換樹脂で補集し、堆積物中のSiは4M NaOH溶液で抽出した。その後SiO₂を精製し、数ヶ月間放置して³²Siから成長した³²Pをミルキングした。最終的にMg₂P₂O₇とし、Si半導体検出器(PIPS)により³²Pのβ線(E_{β max} = 1.7 MeV)測定した。ミルキング操作におけるP回収率は、放射能測定後に線源を塩酸に溶解し、モリブデン青法により求めた。

【Si半導体検出器】

³²P測定に使用したPIPS検出器は古い鉛材で遮蔽を施した上に、井戸型NaI検出器により逆同時計数を行っている。この検出器を尾小屋地下測定室に設置し、更にRn除去のためにPIPS周辺へN₂ガスを導入することにより³²P測定のエネルギー領域(0.24~1.7MeV)において0.006±0.002cpmの低バックグラウンドを実現した。本検出器の0.24~1.7MeVにおける計数効率率は27%、検出器の感度の指標であるFigure of Merit (FOM=(検出効率)/(BG計数率)^{1/2})は3.5であり、現在世界で³²Si測定に利用されている検出器(FOM=2.2~2.5)と比較しても遜色ない。

【結果と考察】

降水中には³²Siに対して放射能で3桁高い³²P、³³Pが含まれている。雨水試料のPフラクションのPIPS検出器での測定結果をFig. 1に示す。241~1700keVのエネルギー領域のカウントは³²Pの半減期で減衰したが、この線源では0.8cpmのブランクが残った。これは化学分離でのPの精製の不足により、雨水中に多量に含まれる²¹⁰PbがP線源に混入し、娘核種の²¹⁰Bi(E_{β max} = 1.2MeV)のβ線によりバックグラウンドが押し上げられたと考えられる。

琵琶湖堆積物中の³²Siからミルキングした³²P線源の減衰曲線をFig. 2に示す。約40日間の測定により減衰が見出され、³²Pが回収・測定できたことが確認できた。雨水試料は2回のみでの測定であったが、ミルキング1週間後のカウントは後に測定したミルキング20日経過後のカウントよりも有意に高かった。

ミルキング操作におけるPの回収率は雨水試料では98%であったが堆積物試料では276%であった。この原因はSiO₂の精製が不十分で堆積物中に数100 ppm存在するPが一部SiO₂フラクションに混入したためと考えられる。現在のところ堆積物試料で回収率の不確かさは残るものの、³²Siの比放射能として雨水試料で(1.7±0.3)×10² dpm/kg SiO₂、堆積物で0.22±0.04 dpm/kg total-SiO₂(但し最大値として)という値を得た。これらは我国で初めての環境中³²Siのデータであり、これまで海外で報告されてきた値の範囲内であった。

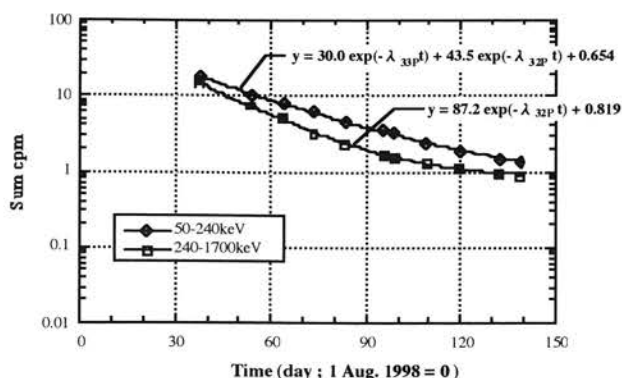


Fig. 1 Decay curve of ³²P and ³³P in rain water

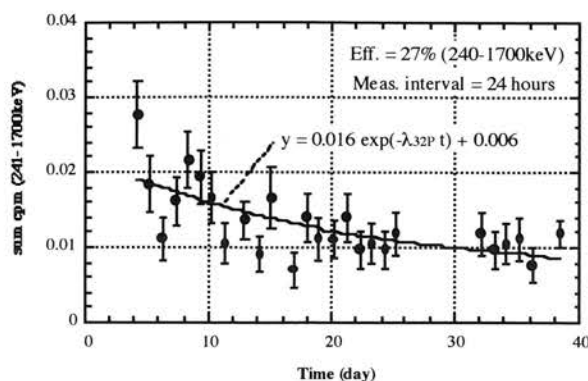


Fig. 2 Decay curve of ³²P milked from ³²Si in sediment at Lake Biwa.

[本研究は平成10年度笹川科学研究助成金により主として大学院生 小藤久毅が行った。成果は第43回放射化学討論会(於つくば市)で発表した。]

降水中の ^{35}S 分析法の改良

Improvement of ^{35}S analytical procedure of rain water

大気中の硫酸ミストは酸性雨の原因であるだけでなく地球温暖化を評価する上で問題となる太陽光入射量にも影響を与える。そのため、大気中における硫黄の挙動についての研究が近年重要性を増している。硫黄は質量数 32, 33, 34, 36 の安定同位体をもっており放出源及び放出される化合物により同位体比が異なることを利用して大気中の $\delta^{34}\text{S}$ 値から放出源の推定が試みられている。人的起源以外の大気への硫黄放出源としては、海洋 (SO_4^{2-} , H_2S , DMS, COS), 火山 (SO_2 , SO_4^{2-} , H_2S) 及び湿地 (H_2S , DMS, COS) 等が挙げられる。これらの放出量及び $\delta^{34}\text{S}$ 値及びについては未だ不明な点が多ため、安定同位体比のみから大気中の硫黄の起源、輸送経路及び酸化過程を知ることは困難である。硫黄の放射性同位体である ^{35}S ($T_{1/2} = 87.5 \text{ d}$) は宇宙線と大気中 Ar の核反応により生成する。大気へと定常的に供給される ^{35}S をトレーサとすることで、大気中の硫黄の挙動についてより詳細な情報が得られると考えられる。我々は降水中の ^{35}S 観測を行うための準備として迅速な ^{35}S 分析スキームを目指して過去に行われてきた手法の改良を試みた。

[試料及び測定法]

水試料中の ^{35}S 分析は Fig. 1 に示すスキームで行った。蒸留水 1 l に Na_2SO_4 及び ^{35}S (SO_4^{2-}) を添加し $^{35}\text{S}/\text{S}$ 比放射能の異なる 4 種類の試料を用意した。試料溶液から溶存イオンをイオン交換樹脂で濃縮した後 NaCl 溶液で溶離した。これを酸性にして F^{3+} キャリアを加えた後中和して $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 沈殿とともに PO_4^{3-} を除去した。再び酸性とした後 Ba^{2+} キャリアを加え BaSO_4 として S を回収した。 BaSO_4 を炭酸塩溶融して BaCO_3 とともに Ra を除去し、ろ液は HCl で中和した。蒸発乾固した後蒸留水で定容としこれを試料溶液とした。スキームの A 及び B のステップで硫黄の回収率を測定し、どの段階で硫黄のロス及び汚染が生じるかを検討した。ステップ A での回収率は BaSO_4 沈殿重量法、ステップ B では BaSO_4 沈殿重量法、クロム酸バリウム比色法及び液体シンチレーション法により測定した。シンチレーターカクテル剤は PACKARD 社製ハイオニックフローを使用した。このカクテル剤は高塩濃度でも試料が保持できる特性があり本実験で使用した、カクテル剤：10% NaCl 溶液=4：1 の混合比でも 2 相分離は生じなかった。

[結果と考察]

各ステップでの硫黄回収率を Table 1 に示す。ステップ B での硫黄の回収率は測定法により異なった。得られた回収率は全ての試料で BaSO_4 沈殿重量法 > クロム酸バリウム比色法 > 液体シンチレーション法の順になっていた。重量法で 100% を超える回収率となったのは、 Ba^{2+} キャリアとして $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 溶液を使用したこと及び強熱して恒量にしなかったためと考えられる。クロム酸バリウム比色法で得た SO_4^{2-} 回収率と液体シンチレーション法で得た ^{35}S 回収率が異なったのは、分析操作で SO_4^{2-} の汚染が生じたためと考えられる。両回収率の差から算出した本実験スキームで生じた汚染は 7.6–9.9 mg S であった。降水試料の SO_4^{2-} 濃度は数 mg/l 程度であるので、本分析スキームを降水試料に適用する場合は実験ブランクに注意する必要がある。 ^{35}S の回収率、汚染ブランクともに安定しており本分析スキームが降水中の ^{35}S 分析に有効であることが確認できた。

Table 1 Chemical yield of SO_4^{2-} by several procedures

Sample Name	SO_4^{2-} spike (mg)	^{35}S spike (dpm)	Yield (%)			
			A	B	C	D
S-1	93.0	-	98.9	111.5	98.5	-
S-2	46.5	2500	102.3	105.3	101.5	80.3
S-3	93.0	2500	97.8	107.5	95.5	87.3
S-4	139.5	2500	92.1	105.0	90.5	84.7

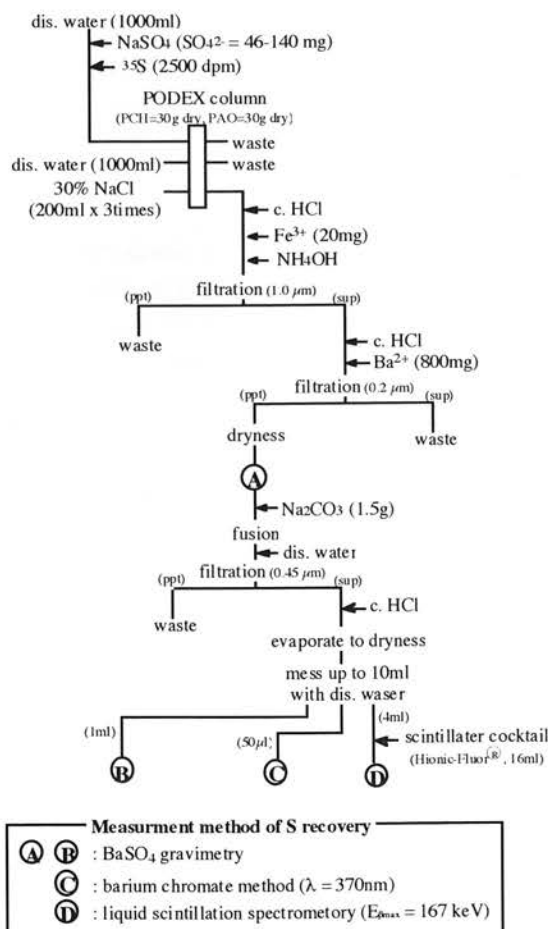


Fig. 1 Chemical separation procedure of SO_4^{2-}

[本研究は主として大学院生小藤久毅及び舟津優が行った。]

表面電離型質量分析計 (VG-354) の立ち上げ (途中経過報告: そのI)

Set up of thermal ionization mass spectrometer in LLRL (part I)

〔質量分析計の導入〕

質量分析計の進歩に伴い、元素同位体組成の測定は地球化学において重要な位置を占めるようになった。これは安定同位体のみならず放射性同位体においても同様であるが、わが国の質量分析計によるウランおよびプルトニウム同位体組成の精密分析法は、様々な法的規制のためアメリカなどと比較し、著しく遅れている。それゆえ現在ウランをはじめとする放射性元素の同位体比測定は、測定誤差が大きい、また測定時間がかかるなどの欠点が指摘されながらも、 α 線法に頼らざるを得ないのが実状である。

そのような状況の中、幸運にも東京大・宇宙線研究所より当施設に表面電離型質量分析計 (VG-354) が移管されることとなった。98年度は以下で述べる手順で質量分析計の立ち上げをおこなった。

i) 質量分析計の搬入および組立

98年3月末に宇宙線研より当施設に表面電離型質量分析計が移管された。この際には付属機器や関連部品などを公用車により持ち帰り、本体については業者(丸文株式会社)に分解・運搬および組立を依頼した。当施設における組立の後、引き続き質量分析計内を高真空にするための焼きだしをおこなった。その後丸文(株)と連絡をとりつつ、不調部分の修理、パーツ交換など本体(および本体をコントロールする各構成ユニット)の調整をおこなった。この際には本体真空系よりむしろ構成ユニットの電子部品に不調がみられた。現時点ではこれらの修理および調整がなされた部分についても、順調に作動している。

ii) 脱ガス装置のセットアップ

本体と共に移管した試料塗布用フィラメントの脱ガス装置のセットアップも並行しておこなった。これについても配線などの変更および故障部分の修理が必要であった。

iii) 実験室の環境整備

質量分析計設置に際しては荷物保管室として使用していた当施設一階の機械工作準備室をあてた。これにエアコン設置および電源工事を施し、試料塗布用クリーンベンチなどを設置することにより、当面は同位体比精密測定室とし運用することとした。

〔ストロンチウム標準試料の測定〕

$^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 同位体比の精密分析法の確立: 今回の質量分析計移管の最終的な目的は、ウランおよびプルトニウム同位体比の精密測定法の確立にある。それに向けての第一段階として、同位体比測定における基本元素であるストロンチウムの標準試料 (SRM-987) を用い、本体の性能チェックを試みている段階である。

宇宙線研でここ数年停止した状態で放置されていたことから、一部に再起動に対する不安の声が聞かれたが、以上のように実試料測定に向けての体制が徐々に整いつつある。今後は早急な測定値の信頼性、および測定精度の確認が望まれる。

〔実試料の測定に向けて〕

現在本体のセットアップと並行し、実試料の測定に向け、陽イオン交換樹脂によるSrの化学分離の準備をおこなっている。これら測定および分離法の成果は、当施設で研究が進んでいる石筍・化石骨など時間軸(α 線法によるU/Th年代)が定められた試料に対し、その形成環境の議論に利用される。

今後予定している実試料の測定には、試料調製および化学分離過程におけるブランクの影響を調べ、低減する必要がある。それに対し当施設ではこれまで放射能的手法を用いた研究を主としてきたため、化学的純度を追求する設備は整っていない。今後実験室の環境整備および分析試料の作製過程における汚染防止が重要な課題となるであろう。

〔質量分析計の移管に関しては東京水産大・大橋英雄助教授にお世話になった。神戸大・中村昇教授には有効な助言を頂いた。本研究の一部は笹川科学研究助成によってなされた。〕

放射能測定の限界に挑む (1)

--- 旧尾小屋鉱山地下測定室の建設 ---

Challenge to detection limit of environmental radioactivity (part I)

--- Construction of the extremely low background counting system
in the tunnel of Ogoya copper mine ---

[はじめに]

極低レベル放射能測定の精度はバックグラウンド計数に大きく依存する。最近核爆発実験などによるフォールアウト放射性核種の濃度が極めて低くなっており、比較的検出しやすい ^{137}Cs でさえ大気中の濃度を測定するには1~2日では検出困難なレベルに低下している。また多くの短寿命宇宙線生成核種を含む隕石試料では壊変する前に測定する必要があるので、特に低バックグラウンド計数をもつ検出効率の高い検出器を使った迅速測定が不可欠である。さらに広島・長崎の原爆中性子束評価のため被爆試料に生成した低レベルの ^{152}Eu や ^{60}Co は爆心から1 kmを超える地点では検出困難になっており、早期に解決しなければならない。

低レベル放射能測定のFigure of Merit (FOM) は、信号をS、ノイズをBとすれば、 $\text{FOM} = S^2/B$ で表すことができる。高いFOMを得るにはSを大きく、Bを小さくすればよい。Sは試料の濃縮(灰化、化学分離など)や加圧成型による測定線源の小型化、また検出効率の高い大型検出器や 4π 測定が可能な井戸型検出器を使用することで大きくできる。一方Bを小さくするにはバックグラウンド計数を可能な限り低くすることが必要である。これには鉛や鉄による遮蔽、検出器周りのラドンガスの排除が効果的である。地上でいくら厚い遮蔽をしても低減できない宇宙線成分のミュオンなどは、逆同時計数や波高分別による能動的な遮蔽をおこなうか、トンネルなどを利用した地下測定をおこなう必要がある。

現在世界の地下測定室の大多数は物理観測用に設置されたものであり、放射能測定を主目的とする地下測定室は数少ないのが実状である。

[地下測定室設置場所としての旧尾小屋鉱山跡トンネル]

尾小屋鉱山は小松市南東に位置する江戸時代初期に発見された古い銅鉱山で、辰口の当施設から約20 km、車で25分の距離にある。最初の仕事は長年放置されていたトンネル(延長546 m、土被り135 m)の整備であり、これが一段落した1992年よりNAI (TI) 検出器を用いてトンネル内での宇宙線強度やラドン濃度、風速、風温などの測定を開始した。

Fig. 1は宇宙線のミュオン成分の強度を土被りの厚さの関数として示したもので、地上での値を1としてある。トンネル内の岩石の実測の密度2.0を使うと、入り口から300 m地点の地下深度は水深換算で270 mwe (meters water equivalent)となる。ここでのミュオン強度は地上の約1/200である。この値は2700 mweの神岡鉱山測定室より2桁以上高いが、岩石中のウラン濃度が低い、トンネルが短く自然換気率が高い、などの理由でバックグラウンドに大きく寄与するラドン濃度は逆に2桁低く、これは地下測定室建設にとって極めて好都合である。

[検出器のバックグラウンド特性]

地下測定のためのGe検出器として、フランスEurisys社の低バックグラウンド仕様の93.5%同軸型検出器および有効面積28 cm²の平板型Ge検出器(Ge-LEPS)を購入した。遮蔽は約20 cmの通常の鉛の内側に ^{210}Pb を含まない5 cm厚の古い鉛を組み込んだ。Fig. 2に相対効率93.5%の同軸型Ge検出器の遮蔽なし、地上および尾小屋地下測定室で遮蔽した時のバックグラウンドスペクトルを示す。Ge検出器を移設して以来、バックグラウンド計数は低下しており、100-2800 keV領域の全計数は1995年6月時点の1.41 cpmから1997年12月時点の1.25 cpmまで下がっている。これは地上で宇宙線にさらされていた間にGe検出器の構成材と宇宙線との反応で生成した誘導核種の減衰によるものと考えられる。1.25 cpmという値はイタリアGran Sassoトンネル(4400 mwe)内の相対効率96%のGe検出器で得た1.4 cpmよりも低く、神岡で相対効率約40%のGe検出器で得た値の数分の1であるが、2重 β 壊変の観測を主目的とするHeidelberg-Moscowグループの ^{76}Ge 濃縮同位体を使った検出器より1桁高い。しかし尾小屋のGe検出器を4400 mwe地点に設置すれば

0.2 cpmまで低減できるので限界値ということが出来よう。一方Ge-LEPSにおいても ^{210}Pb の46.5 keV γ が0.005 cpmと高いことを除けば、バックグラウンドが極めて低い。

尾小屋地下測定室に設置したGe検出器のバックグラウンドが極めて低いのは、検出器構成材がきれいなこと、内部遮蔽の ^{210}Pb をほとんど含まない古い鉛の使用、エアバック利用による自由空間の排除、窒素ガス導入などの相乗効果によるものと考えている。本装置で100 gの試料を1週間測定した場合の検出限界は、ウランが0.5 ppb、トリウムが1.8 ppbであり、非破壊測定の高感度としては最高のレベルといえる。

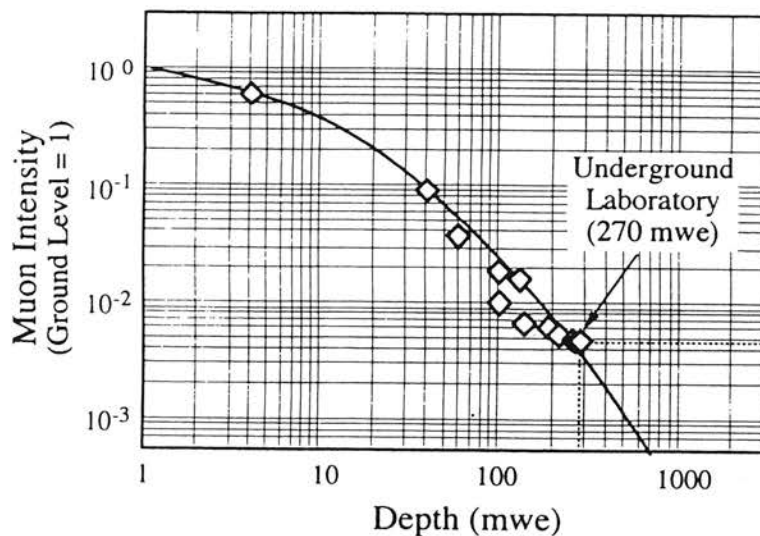


Fig. 1 Cross sectional view of Ogoya tunnel and attenuation of cosmic ray.

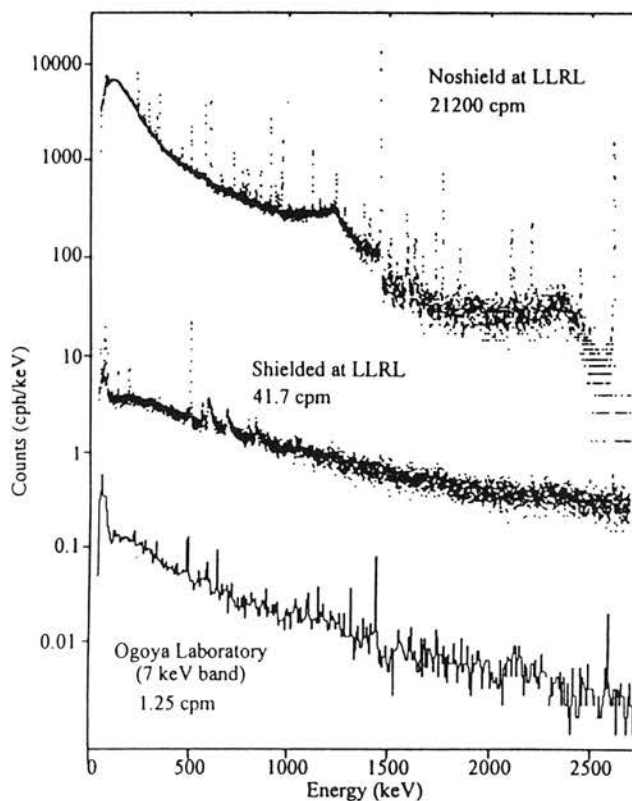


Fig. 2 Background spectra of 93.5% coaxial Ge detector in various conditions.

[本研究の遂行には小松市、尾小屋町、尾小屋鉱山資料館、北陸鉱山などの支援および協力を頂いた。]

放射能測定の限界に挑む(2)

--- 地下測定室を利用して ---

Challenge to detection limit of environmental radioactivity (part II)

--- Examples of low level measurements ---

ここでは先に述べた尾小屋地下測定室の極低バックグラウンドを利用して、これまでに起こった測定例の一部を紹介する。

a) 隕石中の宇宙線生成核種

[詳細については本報告書12～15ページに掲載]

b) 沖縄産石筍の非破壊年代測定

[詳細については本報告書28, 29ページに掲載]

c) 大気中の宇宙線生成核種, ^7Be

^7Be は大気の主成分である窒素や酸素原子核と宇宙線との反応で生成する半減期54日の宇宙線生成核種の一つである。通常 ^7Be の検出には 1000 m^3 以上の空気のろ過が必要である。Fig. 1は気象研究所の五十嵐らが富士山頂でろ過した 200 m^3 の空気の大気浮遊塵試料における γ 線スペクトルである。 ^7Be と大気中のラドンの娘核種 ^{210}Pb が検出されている。測定時点の ^7Be 濃度は採取時点より約1桁低くなっており、この核種の検出限界は空気量に換算して約 10 m^3 に相当する。したがって大気中の ^7Be 濃度を10分というきわめて短時間サンプリングで研究できるので、時間分解能の高い大気挙動の解析が可能となる。

[本研究は気象研究所との共同研究としておこなわれた。]

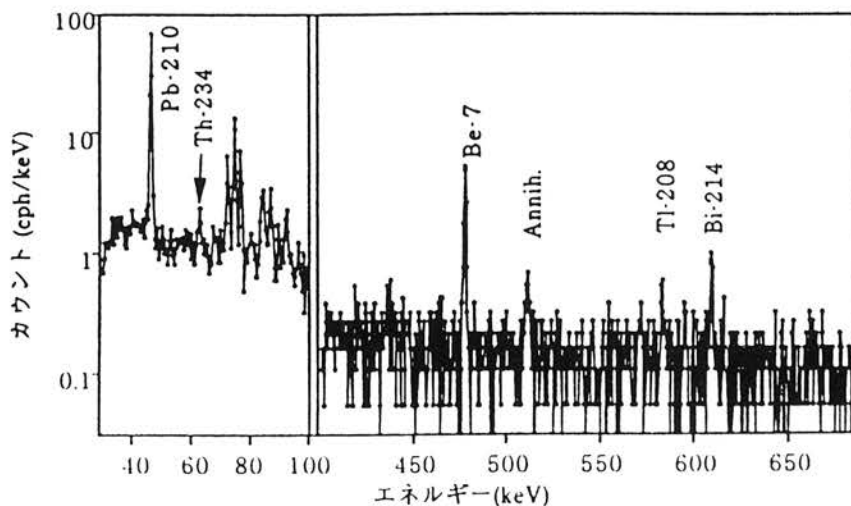


Fig. 1 Detection of natural ^{210}Pb and cosmogenic ^7Be in surface air. Sampling volume of this sample is equivalent to about 30 m^3 for ^7Be due to radioactive decay before measurement (10 months).

d) 原爆被爆試料の中性子誘導, ^{152}Eu

爆心から1 km以上離れた場所での ^{152}Eu 濃度の測定が広島・長崎原爆爆発時の中性子線束において大きな問題となっている。Fig. 2に広島原爆に被爆した瓦から分離したランタノイドフラクションのスペクトル例を示す。 ^{152}Eu の存在は122 keVと344 keVのピークで確認できる。 ^{152}Eu 検出感度が1桁以上向上したことで、今後の研究が大いに進むものと期待される。スペクトルにはまた天然の ^{176}Lu と ^{138}La のピークが検出された。59 keVのピークは人工核種 ^{241}Am であり、瓦の上に蓄積したフォールアウト成分が化学分離の際に濃縮したものである。

[本研究は理学部・中西孝助教授との共同研究としておこなわれた。]

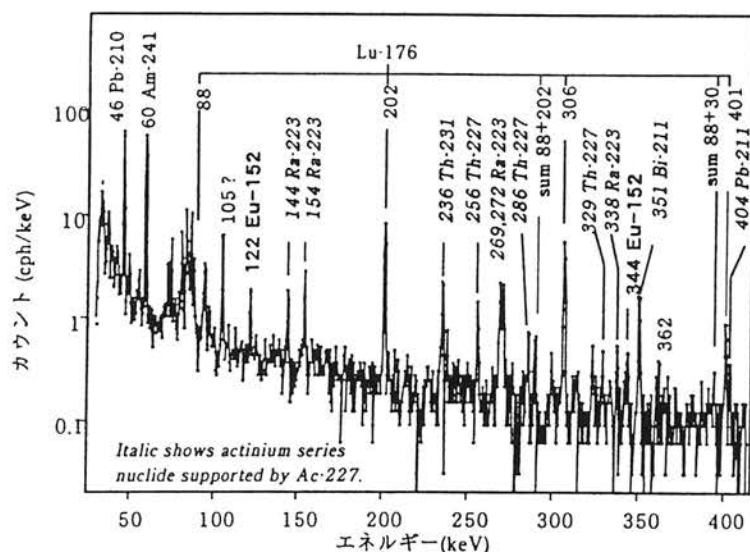


Fig. 2 Ge-LEPS spectrum of REE fraction separated from the roof tile exposed to Hiroshima A-bomb.

e) 動燃事故による ^{137}Cs , ^{134}Cs の測定

1997年3月11日に起こった動燃のアスファルト固化施設の爆発事故で環境に放出された放射能の広がりを知る目的でつくば市の気象研究所 (60 km) で採取した大気浮遊塵のスペクトルをFig. 3に示す。 ^{137}Cs の他, ^{134}Cs が検出されており,中でも ^{134}Cs の検出は動燃事故由来の明瞭な証拠である。 ^{137}Cs 濃度は平常時(10^{-6} Bq/m^3)より2桁上昇したが,幸い環境への影響は小さく,天然放射能 ^{210}Pb や ^7Be より1~2桁低い。また120 km離れた千葉でも動燃事故由来の ^{137}Cs の検出に成功した。

[本研究は気象研, 放医研との共同研究としておこなわれた。]

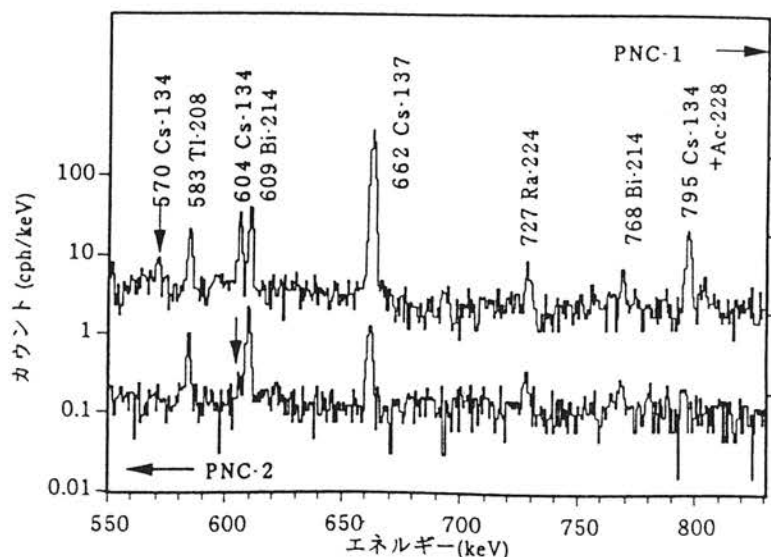


Fig. 3 Detection of ^{137}Cs and ^{134}Cs derived from PNC accident on Mar. 1997.

PNC-1 and PNC-2 samples were collected on Mar. 10-12 and 12-13 at Tsukuba.

f) その他の試料

上記測定その他,被爆線量評価用のやガラス線量計の自己汚染の評価,高純度ランタン中の放射性不純物の評価,鉛材中の ^{210}Pb の測定がおこなわれた。

低バックグラウンド γ 線測定による根上隕石(L6)の宇宙線生成核種

Cosmogenic nuclides in the Neagari (L6) meteorite

obtained by extremely low background γ -ray method

〔はじめに〕

隕石には、母天体から離れて地球に落下するまで数十万年から数千万年にわたって、宇宙線にさらされることにより生成した種々の宇宙線生成核種が存在する。これら核種は隕石の宇宙線照射年代や隕石サイズ、および隕石があびていた宇宙線強度などの情報を含んでいることから、これまで多くの研究がなされてきた。近年当施設においては、石川県小松市の旧尾小屋鉱山のトンネル内に設置した極低バックグラウンド γ 線測定用地下測定室の実用化に力を注いできた。ここで放射能バックグラウンドの低い条件で隕石試料を測定すれば、地上では検出できなかったいくつかの放射性核種の検出が可能である。

〔試料と実験〕

根上(L6)隕石は、1995年2月18日23時55分石川県能美郡根上町において、駐車中の車両のトランクに落下した。回収された隕石破片は全部で420gであり、本研究では325gの最大片と40gの小片を試料として用いた。40gの破片については当施設内において1995年2月21日より8日間および3月5日より10日間の2回、測定をおこなった。325gの破片については当施設内において1995年4月6日より12日間、その後尾小屋地下測定室において6月11日より12日間の測定をおこなった(いずれの場合も検出器として相対効率93.5%のGe検出器を使用)。特に尾小屋における本検出器の100~2800 keV領域のバックグラウンド計数は極めて低く、ピーク計数率として0.002cpm程度の放射線の検出が可能であった。一方で隕石試料核種濃度(dpm/kg)を求めるため、陶土と酸化銅をある割合で混合した模擬試料の測定もおこなった。

〔結果と考察〕

今回根上隕石において検出された宇宙線生成核種は半減期順に列挙すると、 ^{48}Sc , $^{44\text{m}}\text{Sc}$, ^{52}Mn , ^{48}V , ^{51}Cr , ^7Be , ^{58}Co , ^{56}Co , ^{46}Sc , ^{57}Co , ^{54}Mn , ^{22}Na , ^{60}Co , ^{44}Ti および ^{26}Al の15核種であった。Fig. 1に325gの最大片において、当施設内(1995年4月6~17日;落下後50~60日)および尾小屋測定室(1995年6月11~22日;落下後110~120日)で測定したスペクトルを比較した。尾小屋においては2か月遅れて測定したにもかかわらず、その低バックグラウンドの効果もあり、検出が困難とされる様々な核種のピークがみられた。

宇宙線生成核種濃度(dpm/kg)をTable 1に示した。根上隕石においては、 ^{22}Na など短寿命核種が比較的低濃度の傾向を示し、このことは同タイプの隕石($^{22}\text{Na}/^{26}\text{Al} = 1.2 \sim 1.7$)に比べ著しく低い $^{22}\text{Na}/^{26}\text{Al}$ 放射能比($= 0.99$)であることにもみてとれる(Fig. 2)。隕石の $^{22}\text{Na}/^{26}\text{Al}$ 比に関しては宇宙線フラックス、すなわち太陽活動や軌道の他にも、深度に対する生成速度変動の違いから遮蔽効果を探るうえでの指標として利用されてきた。根上隕石にはその落下時期(1995年2月)から落下前の強いGCRの照射が推測され、この低い核種濃度が直接太陽活動の周期を反映しているとは考えにくい。これまでMbale(L5-6)隕石などにみられた核種濃度の低い破片は、破壊前の隕石における遮蔽効果で説明された。

また中性子誘導核種、 ^{60}Co ($t_{1/2} = 5.26 \text{ y}$) は、落下前の隕石サイズおよび破壊前の位置関係を探るうえで有効で、一般的なサイズ($r < \sim 75 \text{ cm}$)の石質隕石においては、中心部に近いほど、また落下前のサイズが大きいほど濃度が高いとされている。根上隕石においては、この低い ^{60}Co 濃度($\sim 1 \text{ dpm/kg}$)からも、例えば隕石表面といった破壊前の位置による核種生成条件の違いを反映している可能性が挙げられる。

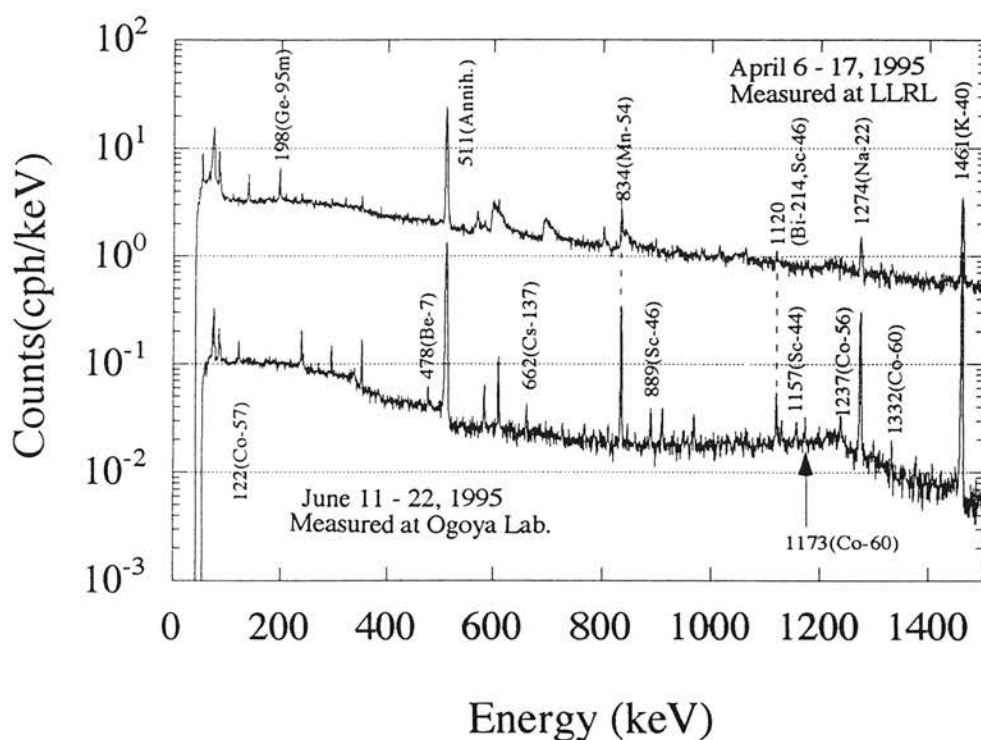


Fig. 1 γ -ray spectra of the 325g fragment of the Neagari meteorite.

Table 1. Cosmogenic nuclides in the Neagari meteorite measured by non-destructive γ -ray spectrometry.

nuclide	half-life	40 g	325 g
^{44m}Sc	2.44 d	<i>n. d.</i>	4.2 ± 1.4
^{52}Mn	5.6 d	<i>n. d.</i>	15 ± 3
^{48}V	16 d	<i>n. d.</i>	13 ± 4
^{51}Cr	27.7 d	56 ± 8	41 ± 7
^7Be	53.3 d	63 ± 8	75 ± 7
^{58}Co	71 d	<i>n. d.</i>	0.5 ± 0.2
^{56}Co	77 d	13 ± 3	7.3 ± 0.6
^{46}Sc	84 d	5 ± 2	6.9 ± 0.6
^{57}Co	272 d	8 ± 2	6.6 ± 0.8
^{54}Mn	312 d	50 ± 3	42.0 ± 1.0
^{22}Na	2.60 y	51 ± 4	48.7 ± 1.3
^{60}Co	5.26 y	<i>n. d.</i>	1.0 ± 0.6
^{44}Ti	47.3 y	<i>n. d.</i>	0.9 ± 0.3
^{26}Al	0.71 My	50 ± 4	49.3 ± 1.5

"*n. d.*" denotes "*not detected*".

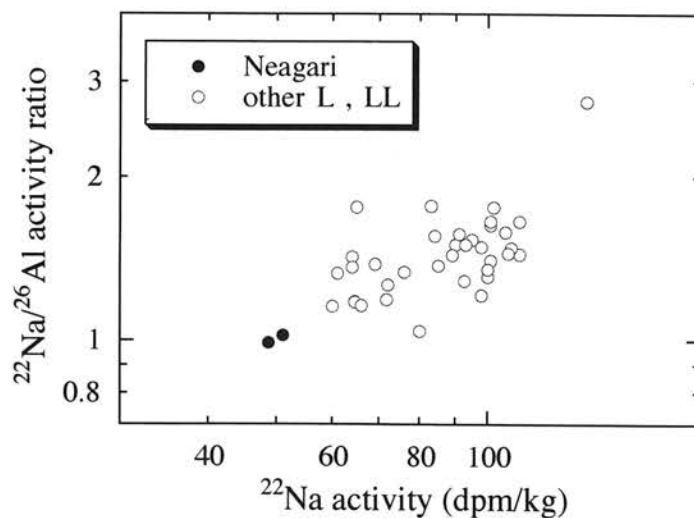


Fig. 3 $^{22}\text{Na}/^{26}\text{Al}$ vs. ^{26}Al in the Neagari and other L-, LL-chondrites.

[本研究は、大学院生・山崎誠二の協力によりおこなわれ、その成果の一部は1995年南極隕石シンポジウム (於 極地研究所) において発表された。]

つくば隕石 (H5-6) の複数の 破片における宇宙線生成核種濃度

Cosmogenic nuclides of five fragments of the Tsukuba meteorite

【はじめに】

隕石にはU, Th, Kなどの放射性核種のほか、宇宙空間での宇宙線の照射によってできた様々な宇宙線生成核種が存在する。これら核種は隕石が地上への落下以前にたどった履歴に関する重要な情報を保存していることから、これまで多くの研究がなされてきており、また当施設においても1995年に落下した根上隕石の宇宙線生成核種の測定を尾小屋地下室にておこなった実績がある。本研究では96年1月に落下したつくば隕石の5個の破片を試料とし、それら核種濃度を測定、そして比較することにより、隕石中で各破片のおかれていた位置関係などについて議論する。

【試料と実験】

H5-6グループに分類されるつくば隕石は、1996年1月7日16時20分頃つくば市を中心とする半径10km以内の地域に落下した。回収され、隕石と確認された破片は最大177gから数gのものまで合計23個で、総重量は約800gに達した。

本研究ではNo.4, No.5, No.13, No.16, No.19の5個の破片(重量30g程度, No.13は例外的に177g)を用い、およそ2~3週間の測定をおこなった。なお測定順序はNo.5(落下後12日目~), No.19(52日目~), No.13(68日目~), No.4(168日目~), そしてNo.16(194日目~)となっている。またNo.5, No.13およびNo.19については、根上隕石同様、隕石破片の分析と並行して個々の破片のモックアップ試料を作成し、 γ 線計数率から濃度(dpm/kg)を求めた。なお全ての測定は尾小屋地下測定室においておこなわれた。

【結果と考察】

最も早期に測定された破片, No.5の γ 線スペクトル(100~1900 keV)をFig. 1に、最大片No.13のスペクトル(1100~1200 keV)をFig. 2に示す。No.5においては、これまでほとんど報告のなかった ^{44}mSc , ^{52}Mn が、またNo.13ではNo.5より2か月後で測ったが大きさが幸いし、絶対量の少ない ^{44}Ti や ^{60}Co がみられた。最終的には ^{44}mSc , ^{52}Mn , ^{48}V , ^{51}Cr , ^7Be , ^{58}Co , ^{56}Co , ^{46}Sc , ^{57}Co , ^{54}Mn , ^{22}Na , ^{60}Co , ^{44}Ti , ^{26}Al といった核種が検出された。本研究においては5つの試料で共通に検出された8種の宇宙線核種のうち、半減期が短く($t_{1/2}=53\text{d}$), 誤差が大きな ^7Be を除く7種(^{22}Na , ^{26}Al , ^{46}Sc , ^{54}Mn , ^{56}Co , ^{57}Co , ^{58}Co)の濃度を比較した。破片を核種濃度で比較する場合、検出効率の不確かさが生じることからcpmを用いるのには問題がある。本研究においては計数率が高く、また隕石中の濃度がほぼ均一である ^{40}K (1461keV)のピークに対する各核種のピーク(落下時の値に換算済み)の比を縦軸にとった(Fig. 3)。すなわち ^{40}K を個々の破片の検出効率の指標として、それぞれの宇宙線生成核種を規格化した。横軸はピーク比の変化がスムーズになるように破片の順番を決めてプロットしたが、隕石の大きさに由来するサム効果の補正の不確かさなどによる系統誤差のおそれがあることから、極端に大きなNo.13は除いてある。

破片における核種濃度の比較の結果、 ^{26}Al , ^{56}Co , ^{46}Sc は誤差の範囲内で破片による違いはみられなかったのに対し、 ^{57}Co と ^{58}Co では2~3倍に達する大きな違いが、 ^{54}Mn と ^{22}Na でも計数誤差以上の差が明らかになった。これら複数の破片の宇宙線生成核種濃度は、落下前の位置関係などそれぞれの破片のおかれていた宇宙線照射環境に対し重要な制約をもたらす。

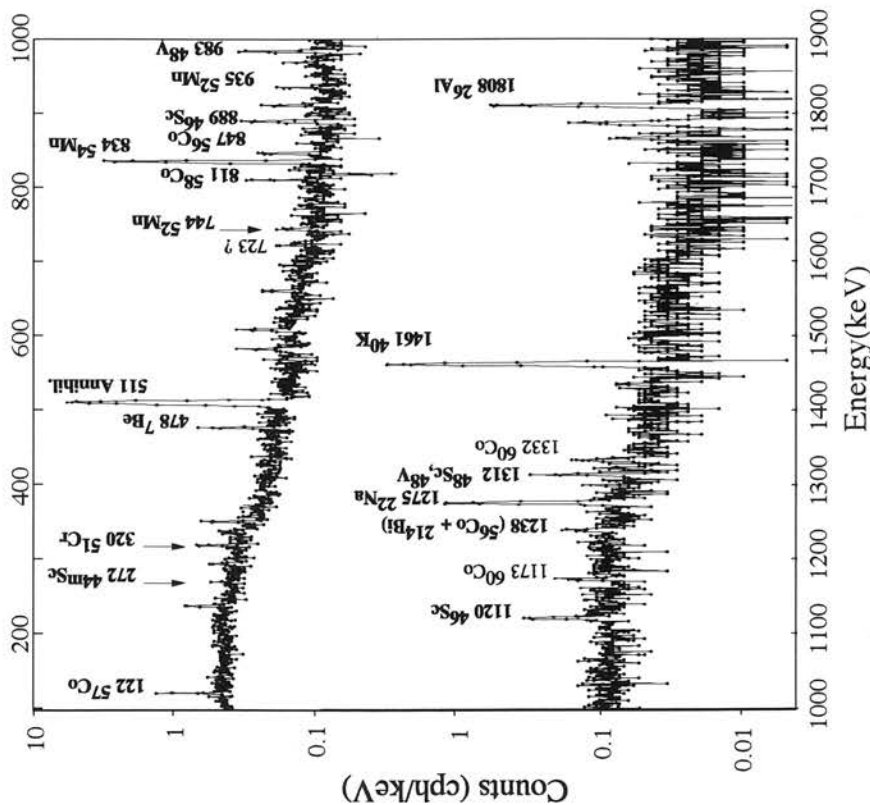


Fig. 1 γ -ray spectrum of No.5 fragment of the Tsukuba meteorite

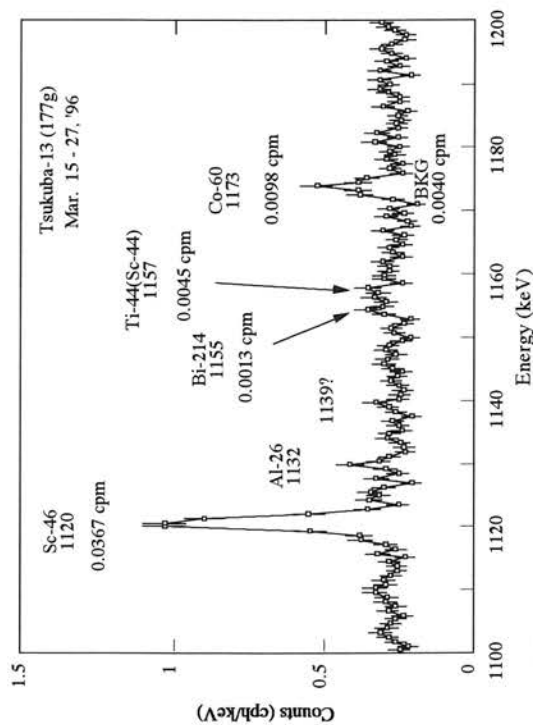


Fig. 2 A 1100-1200 keV region spectrum of No.13 fragment showing detection of Ti-44 and Co-60.

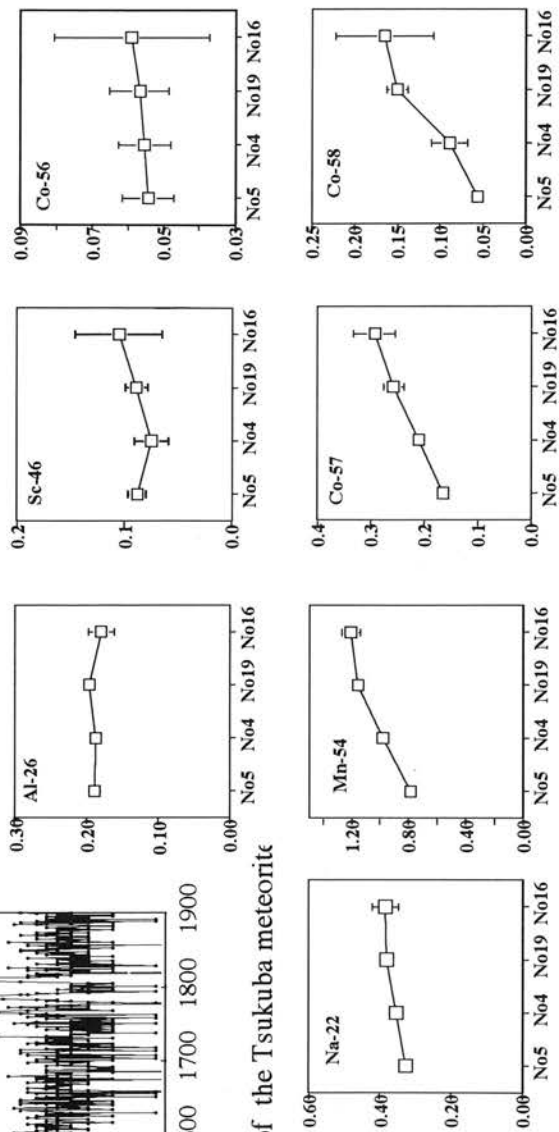


Fig. 3 Fragment dependence of cosmogenic nuclides (Normalized to 1461 keV peak of K-40).

[本研究は1996年南極隕石シンポジウム (於 極地研究所) および1996年放射化学討論会 (於 理化学研究所) において発表された。]

Evaluation of Environmental Neutron Flux by Activation of Gold

金の放射化による環境中性子束の評価

Introduction:

The aim of this work to find an easy and cheap method to measure the environmental neutron flux. This method depends on the neutron activation analysis, where a sample of some material can be exposed to a flux of neutrons for a period of time and then removed so that the induced radioactivity may be counted, using any of the conventional methods. The measured radiations can be used to deduce information about the number and / or energy distribuion of the neutrons in the original field. The materials used in this way are often called *activation detectors*.

According to some nuclear and physical properties, the reaction of $^{197}\text{Au}(n,\gamma)$ ^{198}Au was the best choice for this work.

Detection Conditions:

From the preliminary calculations it was found that the saturation activity of neutron activation products is very low (0.0024 dpm/g for ^{198}Au). The success of such measurements needs to very sensitive method represents in a very low background and no new production during the measurement. To achieve these conditions, the measurements had been made using an extremely low level gamma-ray counting system constructed in the tunnel of Ogoya Coper Mine (270 mwe depth).

Detection of ^{198}Au in gold ingot:

A preliminary experiment using 500 g gold ingot had been made to estimate the possibility of ^{198}Au detection under the condition of Ogoya underground laboratory detectors system. Fig. 1 shows obviously that ^{198}Au can surely be detected without special technique if few grams of pure gold is available.

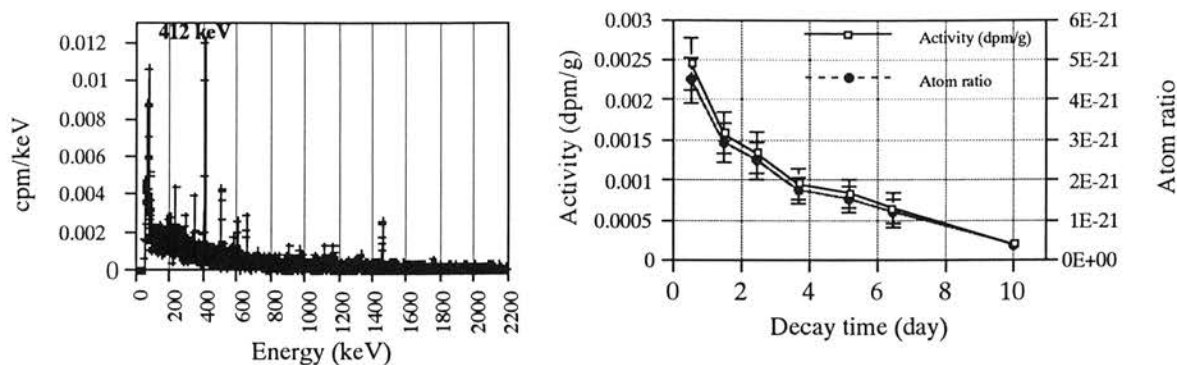


Fig. 1 : Spectra and disintegration curve of 500g gold Ingot measured for 9945 min. by Coaxial Ge detector 93.5 %.

Expeimental:

The experiments were made using known amounts of gold grains or gold plate (99.99 % gold) as a target materials. Initial ^{198}Au activity in each target was measured before use and the target materials were stored more than 3 weeks in Ogoya underground laboratory to decrease the ^{198}Au activity to negligible level. The gold targets were exposed at various altitude for 3 weeks to one month to make ^{198}Au activity nearly in saturation state. After neutron exposure, each sample was wrapped with cadmium sheet and brought back to laboratory as early as possible. The 412 keV gamma-ray was measured to determine ^{198}Au activity produced by neutron capture reaction. Also, the building shield effects on neutron flux were studied, by use 3 grain gold samples covered with paraffin at 1st and 2nd floor and the roof (free shield) of LLRL.

Results:

Neutron exposure were made in a room and at roof of the LLRL (20-30 m above sea level), Okura mountain-500m, Shishiku mountain- 650m, Sena mountain-1000m, and Sanpoiwa mountain-1450m above sea level. The $^{198}\text{Au}/^{197}\text{Au}$ atoms ratio in **Bare** gold samples at the roof of LLRL, 500m, 650m, 1000m, and 1450m were measured to be $(1.40\pm0.24, 2.36\pm0.38, 3.43\pm0.56, 5.34\pm0.65, \text{ and } 7.43\pm0.59) \times 10^{-20}$ respectively, which equal neutron flux of $(0.87\pm0.15, 1.47\pm0.23, 1.25\pm0.2, 1.94\pm0.24, \text{ and } 2.73\pm0.22) \times 10^{-3} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ respectively, the drop of neutron flux at 650m can be explained by the effect of concrete building which the target was inside. The $^{198}\text{Au}/^{197}\text{Au}$ atoms ratio in gold samples covered with **paraffin** balls at the same positions was $(2.26\pm0.28, 2.34\pm0.33, 4.78\pm0.98 \text{ and } 4.86\pm0.54) \times 10^{-20}$ which equal neutron flux of $(1.4\pm0.17, 1.12\pm0.16, 1.7\pm0.35 \text{ and } 1.77\pm0.2) \times 10^{-3} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ respectively, the evident decreasing of neutron flux at 500m, and 1000m may be due to the much amount of snow cover which absorb the neutrons. On the other hand, **cadmium ratio**, which gives information on the ratio of thermal neutrons and fast neutrons, were measured to be about 5.

To study the shielding effect of concrete building, three gold targets covered with paraffin were exposed to environmental neutrons flux at 1st and 2nd floor and the roof of LLRL, the results were $(0.425\pm0.109, 1.169\pm0.215 \text{ and } 1.539\pm0.213) \times 10^{-3} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ respectively, which means that the building material are an effective shield to the neutron flux and this can explain the disturbance of some of our results as so as the absorption effect by snow can explain the others. Figs. 1 - 4 show these results.

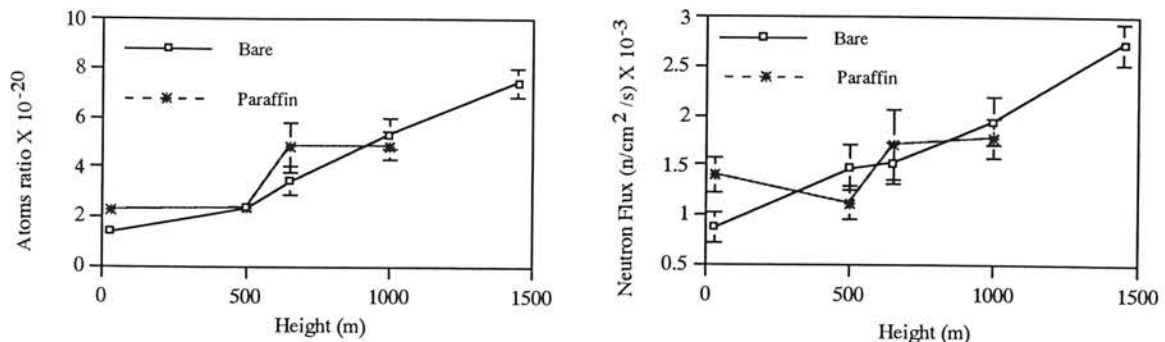


Fig. 2 : Au-198/Au-197 Atoms ratio and neutron flux at different Altitude

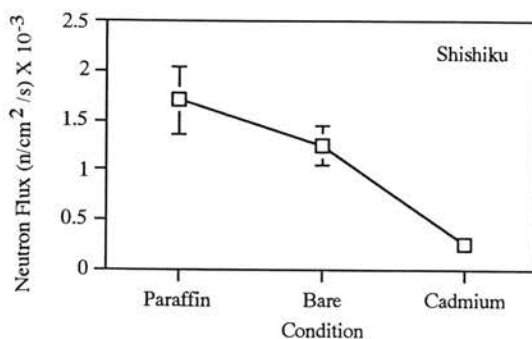


Fig. 3 : Neutron Flux at Shishiku (650 m) under different conditions.

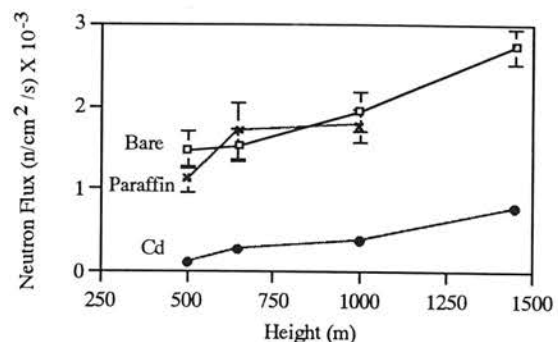


Fig. 4 : Effect of 0.5 mm Cadmium as a thermal neutrons shielding.

Others:

Other experiments had been done to measure the environmental neutron flux in different environments; at aviation high altitude, fresh water, and around reactor area.

[本研究は主として留学生 Ahmed M. M. Yousef によりおこなわれ、その一部は1998年放射線影響学会 (於 長崎), 1999年放射線影響学会 (於 広島) および放射化学討論会 (於 つくば) において発表された。]

琵琶湖水中におけるウラン濃度の季節変化

Seasonal variation of uranium concentration in the water of Lake BIWA

環境中のウランは酸素に富んだ水中ではU(VI)の酸化状態をとり、例えば海水中では炭酸ウラニル陰イオンを形成し安定に溶存すると言われている。そのため、外洋水のウラン濃度は濃度変化が少なくsalinityを35‰で規格化すると 3.3 ± 0.2 mg/lの範囲にある。海水中でのウランの滞留時間は $(2 \sim 5) \times 10^5$ 年と非常に長くウランは保存成分と見なされている。その一方、還元的な環境下ではウランは安定な溶存形を持たないU(IV)に還元されるため、水中から除かれやすい状態となる。海洋におけるこのような環境としては有機物に富んだ沿岸堆積物、塩分成層により深部が貧酸素状態となった内海、あるいは海底の熱水域等が挙げられる。さらに、淡水と海水が混じり合う河口域では、水中から堆積物へとウランが除去されている地域と逆に堆積物から海水へと溶出している地域がある。このようにウランの挙動は水域の環境条件により大きく異なる。湖沼は海洋と比較して規模が小さいため、その水質は湖内での物理的、化学的及び生物学的な諸過程に加え、河川からの物質供給、堆積物との相互作用、更には人為的作用といった周辺環境の影響を大きく受ける。湖沼水は農業、工業更に飲料水源として多くの人間に利用されているにも関わらず、そこでのウランの循環のメカニズムについての研究は世界的に見ても限られている。ウランは環境への放射能汚染と人体への放射線影響に加え、腎毒性の観点から海外では飲料水でのモニタリングが行われており、我国でも1998年6月にウランが水道水質の監視項目に加えられた。このように地球化学的見地からのみならず、環境中の毒性物質の挙動という観点からも湖沼におけるウラン濃度形成とその変化のメカニズムを明らかにすることが重要である。我々は近畿地方1400万人に水源として利用されている琵琶湖を対象とし、湖水中のウランについて研究してきた。その結果見出した鉛直濃度分布の季節変化について報告する。更に、河川水、漏出地下水及び堆積物間隙水のデータと併せて季節変化形成のメカニズムについて考察する。

【試料及び実験】

湖水及び懸濁物試料 本研究に供した湖水及び堆積物間隙水試料の採取には「はっけん号」（滋賀県琵琶湖研究所）を利用した。1993年11月以後、年数回、季節毎に採取した。採水に先立ち、Fine Scale Profilerにより水温、濁度、電気伝動度及びクロロフィルa濃度等の鉛直分布を測定した。ロゼット式採水器により深度毎に採取した各約20 lの湖水は、船上において $0.45 \mu\text{m}$ 孔径フィルターで速やか加圧ろ過した。ろ液及び使用済みフィルターをそれぞれ溶存成分及び懸濁成分とし、化学分離精製後 α 線スペクトロメトリーによりそれぞれのフラクションの $^{234,238}\text{U}$ 濃度を測定した。但し、1996年以後の試料についてはICP-MSにより ^{238}U 濃度を定量した。

更に、懸濁物のうちの外来性成分の寄与についての情報を得る目的で、ろ過前の湖水1 lを分取し $0.45 \mu\text{m}$ 孔径フィルターでろ過し、乾燥後のフィルター上のAl濃度を中性子放射化分析（立教大原子炉）により定量した。

湖底漏出水試料 湖底への漏出地下水は1997年6月、8月、10月及び1998年3月に琵琶湖岸の水深約1m地点においてピエゾメーターを用いて湖底面下50 cmから採取した。このようにして採取した後3ヶ月から1年間冷蔵保存されていた試料を $0.45 \mu\text{m}$ 孔径フィルターでろ過し、ろ液を1M HNO_3 溶液とした後、ICP-MSにより ^{238}U 濃度を測定した。

間隙水試料 間隙水試料は1996年7月以後、年数回、季節ごとに採取した。内径5cmのアクリルパイプによる重力式採泥器により堆積物コアを採取し、パイプ下方から押し出しながら1~2 cm間隔で切断した。これを直ちに遠沈管に移し窒素ガスで封入し遠心分離を行った。

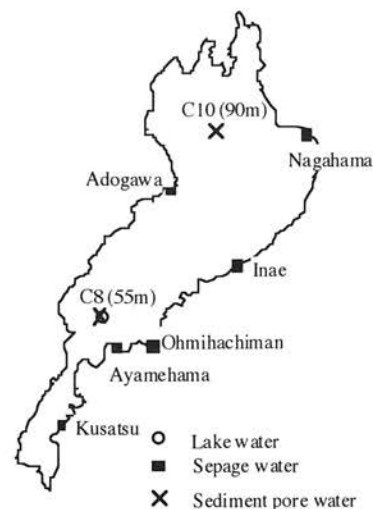


Fig. 1 Sampling point in Lake BIWA

上清が外気に触れないよう注射筒に接続した0.45 μ m孔径のメンブランフィルターにより吸引ろ過した。このろ液を間隙水試料とし、1M HNO₃に調製した後ICP-MSにより²³⁸U濃度を測定した。外気の酸素による影響を最小限にするため一連の操作は迅速に行い、堆積物切断から間隙水採取まで最大でも20分で終了した。

【結果と考察】

C8地点においてこれまでに得られた溶存²³⁸U濃度は0.09~0.38 mBq/lの範囲であり、亀谷ら(1991) (平均0.27 mBq/l) 及び津村ら(1992, 1992) (平均0.35 mBq/l) が測定した日本の河川水の²³⁸U濃度と同レベルであった。全期間を通しての平均濃度は0.17mBq/lであり、湖水中には約4.6 GBq (370 kg) の²³⁸Uが溶存している計算となる。1994年のC8地点における溶存成分及び懸濁成分中の²³⁸U濃度をFig. 2に示す。溶存²³⁸U濃度は循環期である2月には上層から下層まで約1.5 mBq/lと一定の濃度を示したが、5月から8月と水温躍層が形成されると上層の溶存²³⁸U濃度が上昇した。更に11月表層水と深層水の混合が始まると上層の溶存²³⁸U濃度は低下し、かつ²³⁸U濃度が低下する深度は8月よりも下方へと移動していた。深層のウラン濃度は上層に比べ変化が少ないが、11月には40 m及び50 mで若干濃度が低下していた。1994年から1998年の同地点の0 mと40 mにおける溶存²³⁸U濃度の季節変化を1年に重ねてFig. 3に示す。5月から8月にかけ表層の²³⁸U濃度が上昇し以後2月まで低下する傾向が認められる。一方、深層では表層ほど顕著な変化を示さないが5月から12月にかけてゆっくりと²³⁸U濃度が低下している。これらの結果は琵琶湖の溶存ウラン濃度が季節により周期的に変化することを示唆している。このような季節変化は、1) 春から夏にかけての表層水中へのウランの供給、及び2) 春から秋にかけての深層水中からのゆっくりとしたウランの除去があることを示している。

表層水へのウラン供給経路としては、降水、河川水、湖底への漏出地下水及び沿岸域堆積物からの溶出が考えられる。琵琶湖へ流入する河川水中の溶存²³⁸U濃度はKofujiら(1998)の研究により平均0.27 mBq/lと見積もられている。この平均濃度は混合期(2月)の湖水よりも高いため、河川水が表層のみに停滞する成層期に表層と深層でウラン濃度の差を形成する一因となっていると考えられる。

湖底への漏出水中の²³⁸U濃度をTable 1に示す。漏出地下水中の²³⁸U濃度は6, 8月には最大25 mBq/lと湖水と比較して極めて高い濃度を示した。漏出地下水量及びその化学組成は狭い範囲でも大きく変化するため平均濃度及び総漏出量を見積もることは極めて困難である。しかしながら6, 8月に高いウラン濃度が得られることは、漏出地下水が成層

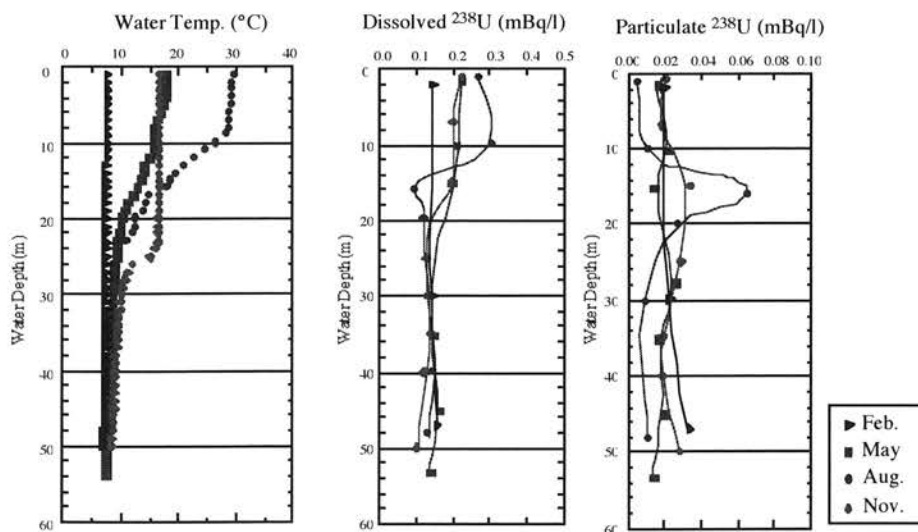


Fig. 2 Vertical profiles of water temperature, dissolved and particulate ²³⁸U concentration at C8 in Lake BIWA

期における表層水のウラン濃度上昇に大きく寄与している可能性を示している。

深層水からのウランの除去過程であるが、琵琶湖は一部の水域を除いて無酸素状態にはならないため、水中でのU(VI)からU(IV)への還元は熱力学的に起こりえない。また海水では間隙水を通して有機物に富んだ堆積物中へとウランが拡散し還元され固定されているが、琵琶湖の場合は間隙水のウラン分布は堆積物下方ほど濃度が高くなっており (Fig. 4) 堆積物-湖水境界面においてはウランは堆積物から溶出していることを示している。従って、琵琶湖深層でのウラン濃度の低下は、溶存ウランがU(VI)のまま水中から沈降粒子へと除かれ湖底に堆積した後、その一部が湖水中へと再放出されていると考えられる。Anderson (1982) は海洋表層において有機物と関連したスカベンジにより溶存ウランが沈降粒子へと除かれていることを示しており、琵琶湖においても同様の過程で溶存ウランが堆積物へと除去されていると推測される。

懸濁²³⁸U濃度は概して溶存²³⁸U濃度よりも一桁低いレベルであるが、1994年8月の温度躍層付近で異常な高濃度を示した。Fig. 4に1995及び1998年の同月と比較して示す。1994年の躍層及びその直下の層の懸濁物中のU/Al濃度比は地殻中の値 0.22×10^{-4} g/gよりも一桁高く、明らかにこの年が異常であったことを示している。1994年夏は記録的な渇水であり、河川からの物質供給がほとんど断たれていた。そのため、このU/Al比異常は湖内部でのU及びAlの移行により生じたと考えられる。更に1994年の水深16 mにおける²³⁸U濃度(溶存+懸濁)は 0.16 ± 0.1 mBq/lであり直上及び直下の濃度と比較すると中間に位置しており、このことも16 m層へのUの大きな流入がなかったことを支持する。Nakanishiら(1999)は1994年9月に、平年は表層水中に形成されるクロロフィル極大層が1994年夏は温度躍層内に形成され、かつ平年よりもピコプランクトンが優先していたことを報告している。渇水による河川からの土壌起源物質の流入の停止、拡散混合が生じにくい温度躍層内にクロロフィル極大層が形成されたことによる表層とのウラン交換の沈滞、更には平年とのプランクトン種の違いが1994年の特異な懸濁²³⁸U濃度及びU/Al比を形成した可能

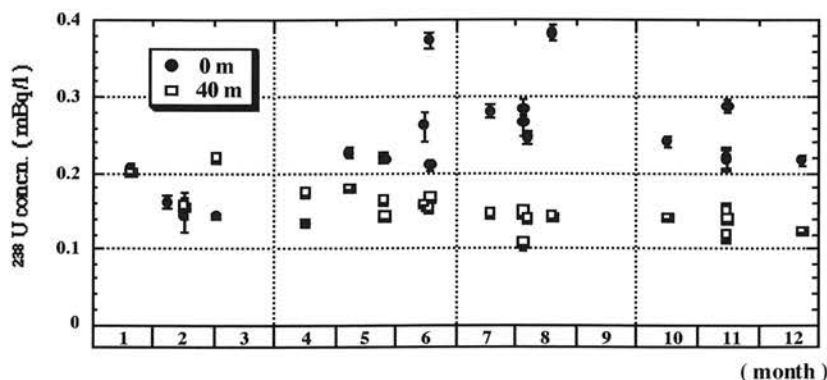


Fig. 3 Seasonal variation of dissolved²³⁸U concentration in surface(0 m) and deep(40 m) water at C8 during the period from 1994 to 1998

Table 1 Uranium concentrations in seepage water in shore of Lake BIWA (unit : mBq/l)

	Adogawa	Nagahama	Inae	Ohmihachiman	Ayamehama	kusatsu
May. 1997	0.22 ± 0.01					
Jun. 1997			11.1 ± 0.1	0.38 ± 0.02	24.7 ± 0.2	
Aug. 1997	0.12 ± 0.01	10.2 ± 0.1	1.2 ± 0.1	0.47 ± 0.02	0.71 ± 0.03	6.4 ± 0.2
Oct. 1997	0.027 ± 0.002	0.14 ± 0.01	0.40 ± 0.01	0.60 ± 0.02	0.11 ± 0.03	0.04 ± 0.01
Mar. 1998	0.06 ± 0.01	0.30 ± 0.01	0.12 ± 0.01	0.12 ± 0.01	0.15 ± 0.01	0.26 ± 0.02

性がある。Horikoshi ら（1981）及び Mann ら（1984）はある種の藻類及び菌類によるウランの濃縮を報告しており McKee ら（1993）はそれらが水中のウラン分布をコントロールする可能性を指摘している。生物活動が琵琶湖のウラン分布に与える影響については更なる研究が必要である。

〔まとめ〕

本研究により琵琶湖水中のウランについて以下のことが明らかになった。

- 1) 琵琶湖水中のウラン濃度は日本の河川水の平均値と同レベルである。
- 2) 温度躍層の成層期における表層へのウラン供給及び深層からのウラン除去により、湖水中のウラン濃度の鉛直分布は季節的に変化している。
- 3) 深層水全体としては水中のウランは堆積物へと除去されているが、堆積物-湖水境界面では間隙水を通して水中へとウランが溶出している。
- 4) 湖水中のウランの循環過程において、渇水等の気象現象が湖水中ウランの挙動に大きな影響を与える。

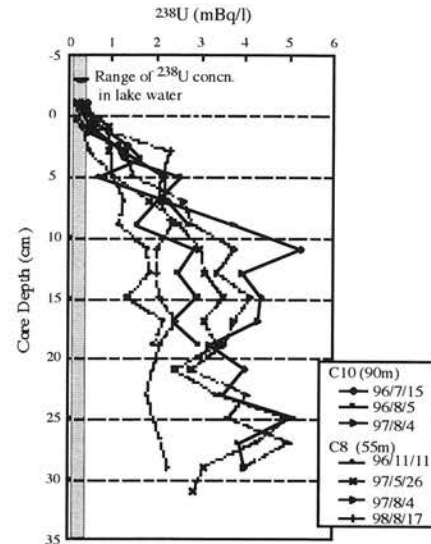


Fig. 4 Vertical profiles of ^{238}U concentration in sediment pore water from Lake BIWA

〔謝辞〕

湖水及び間隙水試料採取にあたり琵琶湖研究所はっけん号乗組員の方々に多大な協力を頂いた。奈良教育大谷口助教授には貴重な湖底漏出地下水試料を頂いた。記して感謝致します。

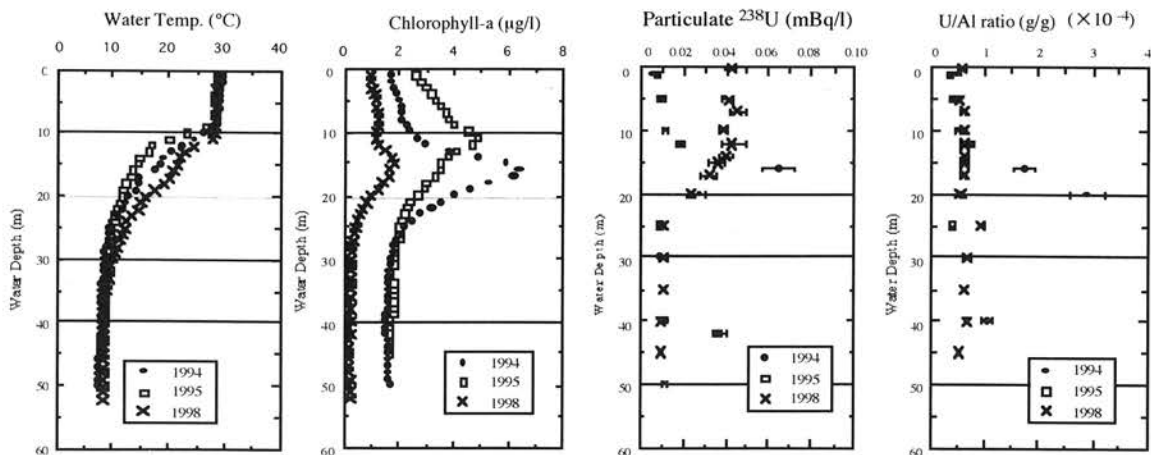


Fig. 5 Vertical profiles of water temperature, chlorophyll-a concentration, particulate ^{238}U concentration and U/AI ratio at C8 in Lake BIWA

〔本研究は滋賀県琵琶湖研究所横田喜一郎博士との共同研究として主として大学院生小藤久毅が行った。成果は "International Workshop on Comparative Evaluation on Health Effects of Environmental Toxicants Derived from Advanced Technologies"（於 千葉）及び日本放射線影響学会第 41 回大会（於 長崎）で発表した。〕

琵琶湖水中の天然放射性核種 ^{210}Pb 及び ^{210}Po の動態

Behavior on Naturally Occurring Radionuclides ^{210}Pb and ^{210}Po in Lake BIWA

[はじめに]

ウラン放射壊変系列に属する天然放射性核種 ^{210}Pb 及び ^{210}Po は、水中で固相を形成し、粒子との反応性が高いことから、海洋学の分野では、沈降粒子や難溶性物質のトレーサーとして用いられてきた。湖沼の一部でも、これらの性質を利用した物質循環研究が進められてきたが、大雨などの突発的な気象条件、湖岸縁辺や流入河川による影響を受けやすいなど、一般的な定常状態が仮定しにくいと、その応用は広く行われていない。本研究では、湖水中の ^{210}Pb と ^{210}Po の琵琶湖による応用にむけて、これら核種の深度分布とその季節変化を1ヶ月間隔で追跡し、同時に調査したこれら核種の供給量を見積もった。さらに、供給量の値を用いて琵琶湖における ^{210}Pb 及び ^{210}Po の約1ヶ月毎の物質収支計算を行った。

[実験方法]

湖水の採取は滋賀県琵琶湖研究所の“はっけん号”に乗船し、Fig. 1に示す地点(水深51m)において、97年4月から98年7月まで約1ヶ月間隔で行った。ロゼット型採水器を用い、深度毎に、4～6層(各20L)採水し、直ちに $0.45\mu\text{m}$ 径のフィルターで加圧ろ過した。河川水については琵琶湖への主な流入河川(14 河川)で、採水し、湖水と同様の方法で処理した。 ^{210}Po は化学分離後、 α 線スペクトロメトリーにより定量した。 ^{210}Pb は、 ^{210}Po 成長法により間接的に定量した。 ^{210}Pb の親核種である ^{226}Ra は、93年3月に採取した湖水(C8)から、化学分離し、 α 線スペクトロメトリーにより定量した。大気降下物による湖面へのこれら核種の直接供給を評価するために、滋賀県大津市と彦根市で湖水採取と同期させるように降下物を採取し、 γ 線スペクトロメトリーにより ^{210}Pb 降下量を見積もった。湖水採取地点の堆積物を採取し、過剰 ^{210}Pb 量を γ 線スペクトロメトリーにより測定することで、湖水からの ^{210}Pb 除去量を見積もった。

[結果と考察]

琵琶湖湖岸の大津市及び彦根市の ^{210}Pb 降下量の変化は、 $0.32\sim 1.48 \text{ Bq/m}^2\cdot\text{d}$ ($0.70\sim 3.24 \text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$), $0.26\sim 1.50 \text{ Bq/m}^2\cdot\text{d}$ ($0.57\sim 2.29 \text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$) で、両地点とも冬季に高く夏季に低い明瞭な季節変動を示した (Fig. 2)。琵琶湖全体での ^{210}Pb 降下量は、両地点の降下量の平均値に湖の表面積を乗じて 177 GBq/y と

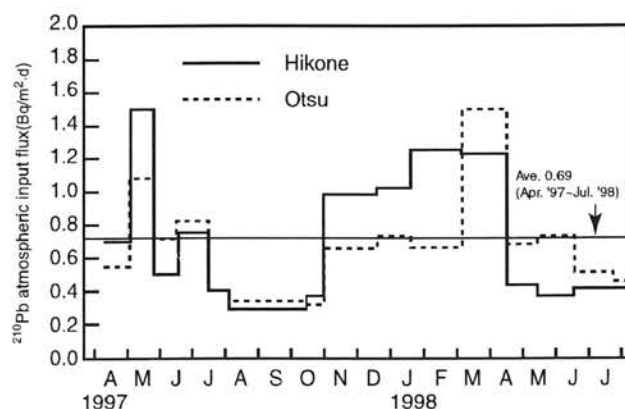


Fig. 2 Time series of atmospheric deposition of ^{210}Pb at Otsu and Hikone-cities, Shiga prefecture

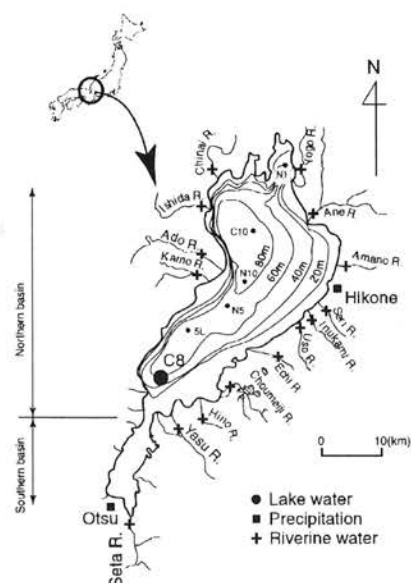


Fig. 1 Sampling sites

算出した。なお、 ^{210}Po 降下量は、大気及び降水で $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比が 0.1 前後と観測されていることから、 ^{210}Po の降下量は 18 GBq/y と推算した。

主な14流入河川及び流出河川の瀬田川について測定した溶存態 ^{210}Pb , ^{210}Po 濃度は、それぞれ $0.18\sim 0.61 \text{ mBq/l}$, $0.21\sim 0.49 \text{ mBq/l}$ で、懸濁態 ^{210}Pb , ^{210}Po 濃度は、それぞれ $0.44\sim 0.61 \text{ mBq/l}$, $0.31\sim 3.47 \text{ mBq/l}$ であった。これらの結果に基づいて、河川経路による琵琶湖への ^{210}Pb 及び ^{210}Po 供給量を試算した結果を Fig. 3 に示す。 ^{210}Pb 及び ^{210}Po は、湖内に溶存態及び懸濁態成分として供給されるので、ここでは両成分の和として取り扱った。河川水中の懸濁物量は、地域や気象条件によって大きく変動することが予想できるので、単純平均値ではなく

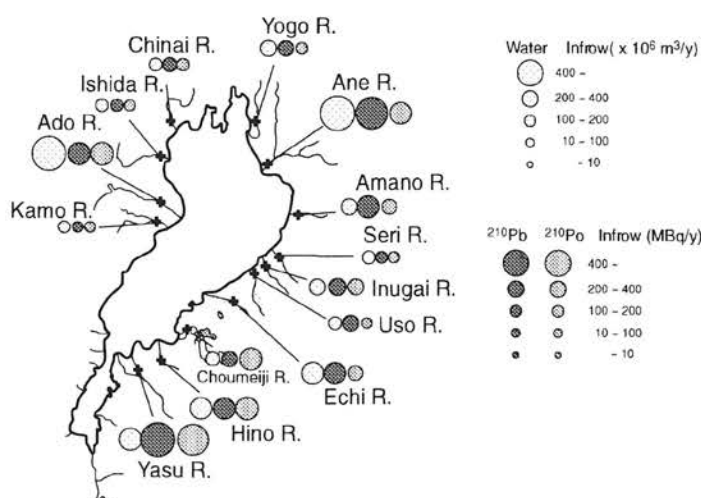


Fig. 3 Annual inputs of inflow and ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po from major 14 inflowing river to Lake Biwa

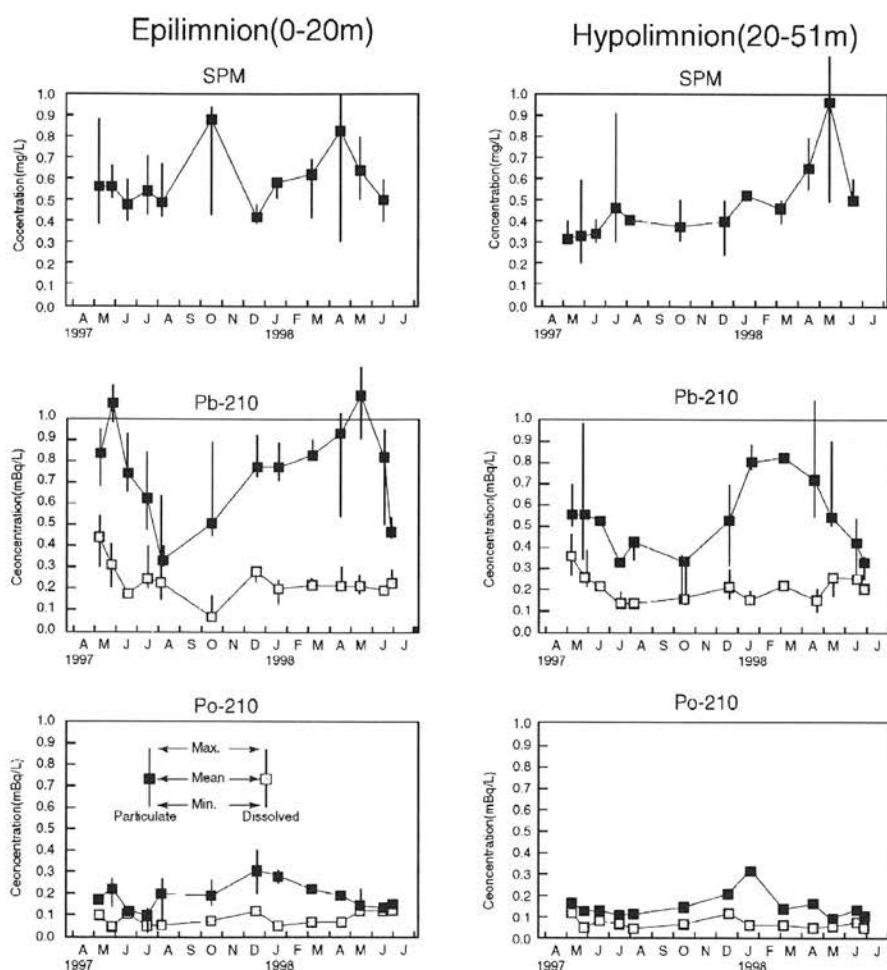


Fig. 4 Mean dissolved and particulate concentrations of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in surface(0-20m) and deep (20-51m) water shown as a function of time in Lake Biwa. SPM time series trends are presented in the upper part.

て、測定した河川の年間流入水量による荷重平均として扱い、²¹⁰Pb 及び ²¹⁰Po 平均濃度を、それぞれ 1.3 mBq/l、1.0 mBq/l と見積った。河川の年間全流入量は 37 億トン(滋賀県琵琶湖研究所, 1988)であるので、河川経路の ²¹⁰Pb 及び ²¹⁰Po の流入量は、それぞれ約 4.2 GBq/y、約 3.4 GBq/y と見積もった。

97 年 4 月～98 年 6 月にかけて C8 地点で測定した湖水の ²¹⁰Pb 及び ²¹⁰Po 濃度を、水温躍層ができる平均水深 20 m を基準に上下 2 層(以後、上層を表層、下層を深層と呼ぶ)に分けて検討した。²¹⁰Pb、²¹⁰Po 濃度及び SPM 濃度の変動幅(最低値、最高値)とそれぞれの平均濃度の経時変化を Fig. 4 に示した。

表層の溶存態及び懸濁態 ²¹⁰Pb 濃度は、それぞれ 0.10～0.46 mBq/l、0.33～1.15 mBq/l の範囲を変動し、測定期間での平均濃度は 0.20 mBq/l 及び 0.79 mBq/l であった。表層水中 ²¹⁰Pb の平均 78% (59～88%) が懸濁態として存在している。一方、深層での溶存態 ²¹⁰Pb 濃度は 0.13～0.34 mBq/l (平均 0.18 mBq/l)、懸濁態 ²¹⁰Pb 濃度は 0.29～0.96 mBq/l (平均 0.55 mBq/l) の範囲を変動し、深層水中 ²¹⁰Pb も表層水中 ²¹⁰Pb とほぼ同割合の平均 73% (61～85%) が懸濁態として存在している。深層での溶存態及び懸濁態 ²¹⁰Pb 濃度は、いずれも表層より低い傾向にある。

表層の溶存態及び懸濁態 ²¹⁰Po 濃度は、それぞれ 0.04～0.13 mBq/l、0.10～0.36 mBq/l の範囲で、平均濃度は 0.08 mBq/l 及び 0.20 mBq/l であった。深層での溶存態 ²¹⁰Po 濃度は 0.03～0.13 mBq/l (平均 0.07 mBq/l)、懸濁態 ²¹⁰Po 濃度は 0.08～0.30 mBq/l (平均 0.16 mBq/l) の範囲を変動した。表層、深層共に ²¹⁰Po の約 70% が懸濁態として

存在している。懸濁態 ^{210}Po 濃度は ^{210}Pb のその変動パターンと幾分異なり、初冬のターンオーバー期後にピークをもつような変動を示し、両元素の挙動の違いを示唆している。

湖水中の ^{210}Pb は、外部から供給される成分と親核種である ^{226}Ra から成長してくる成分を含む。湖水中の溶存態 ^{226}Ra 濃度は、循環期の北湖で平均 $0.06 \pm 0.03 \text{ mBq/l}$ であった。この濃度は ^{210}Pb 濃度よりも一桁低いことから、湖水中の ^{210}Pb 濃度に対する ^{226}Ra の寄与は非常に少ないと考えられる。

湖水中の SPM 濃度は、表層及び深層で、それぞれ $0.40 \sim 1.09 \text{ mg/l}$, $0.25 \sim 1.20 \text{ mg/l}$ の間を変動し、平均値では深層 (0.49 mg/l) の方が上層 (0.60 mg/l) の方がより幾分低く、深層における浮遊懸濁物質中の有機物起源粒子の消費・分解を反映しているものと考えられる。

湖水での ^{210}Pb 及び ^{210}Po の動態

湖内での ^{210}Pb 及び ^{210}Po の挙動は、外的要因や湖内の物理、化学、生物的要因によって常に化する。特に、成層する湖では表層と深層で生物活性や物理・化学的な条件(水温、溶存酸素など)だけでなく存在する浮遊懸濁物あるいは沈降粒子の質・量も異なる。このため、本研究では水温躍層で2分した2-Boxモデルで水柱の ^{210}Pb 及び ^{210}Po の収支解析を試み (Fig. 5)、その結果を Fig. 6 に示す。

^{210}Pb 各期間の表層における溶存態 ^{210}Pb から懸濁態 ^{210}Pb へのスカベンジング・フラックスは、 $0.37 \sim 1.74 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ の範囲で変動し、平均 $0.78 \pm 0.04 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ であった。この値は、大気からの ^{210}Pb 供給フラックスの季節変化と極めて

よく似た変化パターンを示すことから、大気由来の ^{210}Pb が一端は溶存態になり、その ^{210}Pb 濃度に比例して速やかに沈降粒子も含む懸濁粒子にスカベンジングされることを意味している。事実、表層の溶存態 ^{210}Pb の平均滞留時間は平均 6.5 日であり、溶存態 ^{210}Pb の速やかな懸濁粒子への移行を伺わせている。懸濁態 ^{210}Pb の表層から深層へのセディメンテーション・フラックスは、 $0.33 \sim 1.84 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ の範囲で変動し、循環期から春先に向かって高く、成層期後半(8～12月)に低くなる傾向が見られる。懸濁態 ^{210}Pb の平均滞留時間は、平均 26.9 日で溶存態のそれと比べて2～3倍長い。

深層でのセディメンテーションは表層からの移行量の季節変動と類似しており、その吸着母体は沈降の過程で分解を受けるが、表層で除去された ^{210}Pb とほぼ同量が深層から湖底に移行していることが示唆される。深層での懸濁態 ^{210}Pb の滞留時間は平均 22 日となり、深層においても水柱からの ^{210}Pb の急速な除去が示唆される。観測期間中の ^{210}Pb の水中から湖底への年間の移行フラックスは約 $250 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ となり、この値は湖水採取地点の湖底土に含まれる過剰 ^{210}Pb インベントリから予想される湖底への年間 ^{210}Pb フラックス量 $220 \sim 230 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ にほぼ等しく、このモデルの妥当性を裏付けている。

^{210}Po 各期間の表層における溶存態 ^{210}Po から懸濁態 ^{210}Po へのスカベンジング・フラックスは、 $0.01 \sim 0.25 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ の範囲で変動し、採取期間での平均は $0.09 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ であった。この変動幅は ^{210}Pb のそれと比較して約5倍大きく、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比で 0.55 ± 0.05 である溶存態 ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度の違いを考慮しても、溶存態 ^{210}Pb のスカベンジング・フラックスの変動幅よりも2倍以上大きい。この違いは、この2つの元素の持つ、異なった循環サイクルを反映しており、 ^{210}Po はどちらかと言えばスカベンジングしにくい、再生(回帰)しやすい傾向を持っていると言える。懸濁態 ^{210}Po の表層から深層へのセディメンテーション・フラックスは、平均 $0.06 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ で、 $-0.01 \sim 0.30 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ の範囲を変化した。表層の懸濁態 ^{210}Po の平均滞留時間は、平均 95 日で懸濁態 ^{210}Pb の平均 26.9 日より長い。

深層から湖底へのセディメンテーションは $0.02 \sim 0.48 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ の範囲で変動し、観測期間での平均フラックスは $0.13 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ であった。深層の懸濁態 ^{210}Po の滞留時間は、平均 32 日であった。懸濁態 ^{210}Pb の

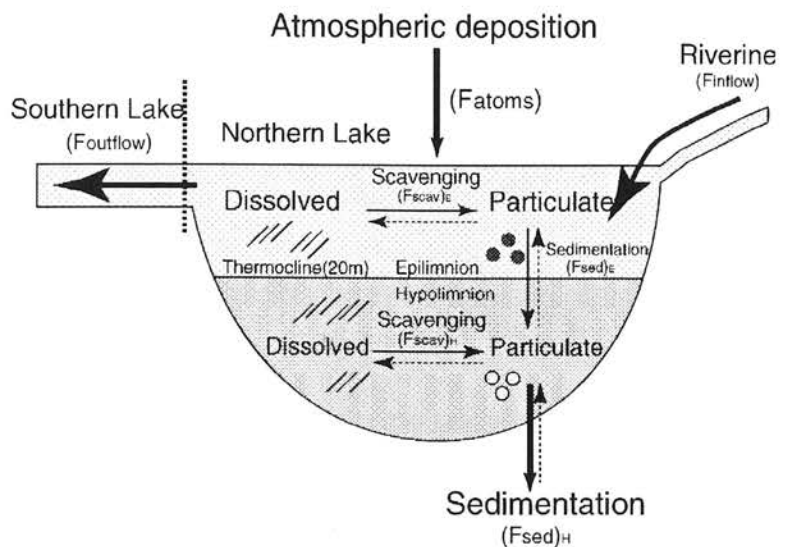


Fig. 5 2-Box mass balance model

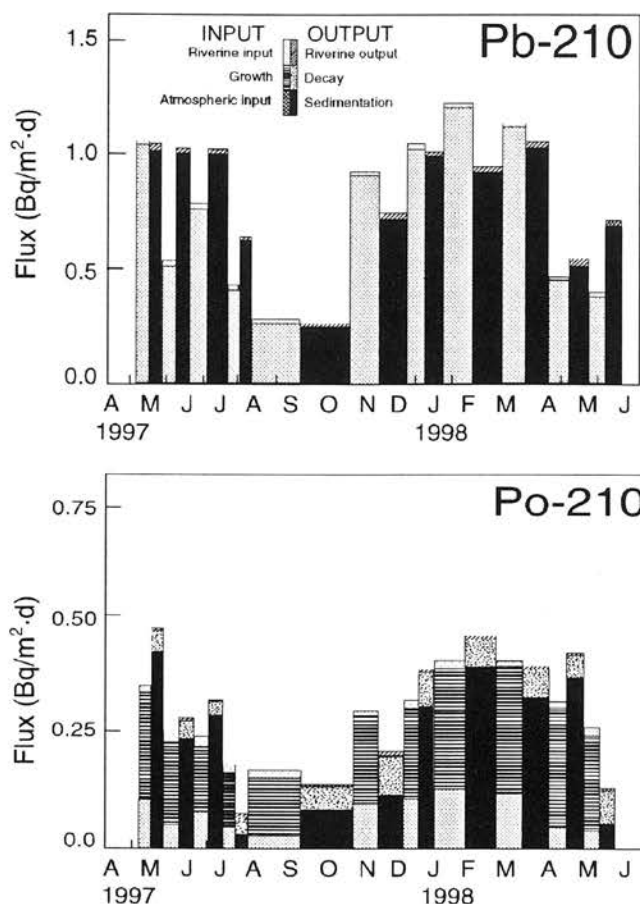


Fig. 6 Mass balance of ^{210}Pb and ^{210}Po in Lake Biwa

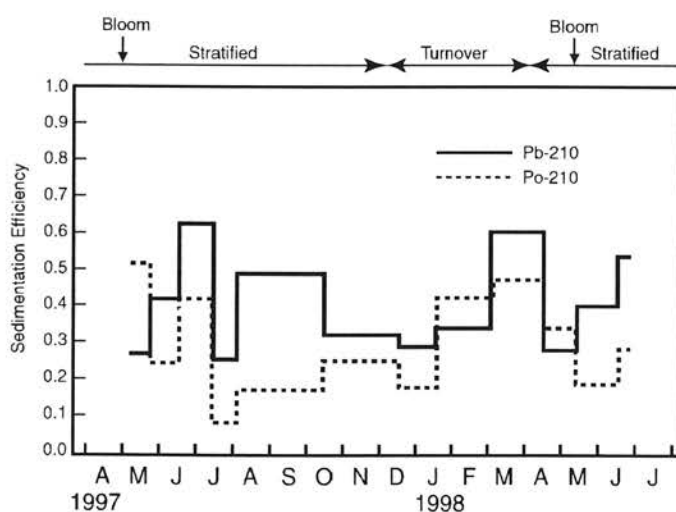


Fig. 7 Seasonal variation in the removal efficiency of ^{210}Pb and ^{210}Po from lake water

平均滞留時間と比べると、表層 ^{210}Po のそれは3～4倍長く、深層 ^{210}Po との差はそれほど顕著ではない。これらの結果は、表層の ^{210}Po は有光層で分解を受けやすい生物起源粒子が優先的な吸着母体となっているのに対して、そのような粒子が減少している深層では逆に ^{210}Pb と ^{210}Po の親和性の差が少ない非生物のデトリタス(岩屑)が吸着母体になっていること示唆している。

除去効率 上記したように琵琶湖の ^{210}Pb および ^{210}Po の濃度あるいは水柱インベントリーは、年間を通じて一定ではなく、供給量に依存して絶えず変化している。従って、どの時期に効率よく湖水から湖底に両核種が除去されているかなどの情報は、 $(F_{\text{sed}})_H$ の単なる比較からでは得ることができない。そこで、その目安を下記の除去率(Eff)を用いて検討した。除去率は、ある観測日 t_1 での溶存態と懸濁態成分合わせての全インベントリー(I_{t_1})にその次の測定日 t_2 までの期間中($\Delta t = t_2 - t_1$)の供給量を加えた合計量に対するその観測期間の除去量の割合として定義し、下記式で与えた。

$$\text{Eff} = \{ (F_{\text{sed}})_H \Delta t \} /$$

$$\{ I_{t_1} + ((F_{\text{atom}}) + (F_{\text{inflow}}) + (F_{\text{prod}})) \cdot \Delta t \}$$

このようにして得た結果をFig. 7に示す。除去率が1.0の場合は、観測期間中に湖水中に存在する ^{210}Pb および ^{210}Po が全て湖底に除去されたことを意味する。

^{210}Pb の除去率は0.26～0.62の約2.5倍の範囲で変動し、観測期間中の平均は0.40であった。成層期前半になる97年6月と98年4月及び6月には効率が相対的に高く、プランクトンブルーム期に ^{210}Pb が最も効率良く除去されていることが分かる。一方、 ^{210}Po の除去率は0.08～0.51(平均0.29)で ^{210}Pb より低く、除去されにくいことが分かる。その季節変動パターンはプランクトンブルーム期に効率良く除去される点では ^{210}Pb と類似しているが、ブルーム期直後(6月)での違いが顕著である。

[謝辞]

湖水及び堆積物採取にあたり琵琶湖研究所“はっけん号”の乗組員の方々には多大な協力を頂いたことを記して感謝します。雨水採取にあたり多大な協力を頂いた滋賀県立大学環境科学部伏見碩二教授に感謝致します。静岡大学理学部鈴木款教授及び金沢大学理学部上野 馨(元)教授には示唆に富んだアドバイスを頂いた。記して感謝致します。

[この研究は主に大学院生 小藤久毅と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。成果の一部は、第42回放射化学討論会(仙台大会)において発表した。]

縄文期獣骨のウラン系列核種

Uranium series nuclides in the excavated animal bones of the Jomon period

生物の死後、骨表面に微生物が進入し、微生物によるコラーゲン続成作用により有機物は分解され、骨内部で還元状態が形成される。これにともない、地下水により供給されたウランが濃縮蓄積されていく。地下水によるウランの取り込みは骨が埋没していた期間に比べ、短期間のうちに起こるといわれている。これを利用して数万年以上の古い化石骨については、我々のグループや Ivanovich(1986)により非破壊 γ 線測定および α 線測定によるウラン系列核種の平衡状態が研究されている。

骨の中のウラン系列核種の平衡状態、分布について、これまでの研究ではあまり知られてはいない。本研究では、縄文期という若い試料に対してウラン系列核種の平衡状態の測定およびそれらの放射非平衡を利用した年代測定の可能性について検討している。以下にこれまで明らかになったことについて述べる。

[試料]

本研究では測定試料として、国立歴史民俗博物館所蔵の北海道戸井貝塚(2試料)、千葉県殿台貝塚(2試料)、福井県鳥浜貝塚遺跡(6試料)で発掘されたシカおよびイノシシの縄文期獣骨を用いた。

[非破壊 γ 線測定]

測定試料として汚染の少ない部分を選び、切断し、除染後、粉碎して各試料約10gをとり直径3.5cm、高さ6mmの円盤状の線源を作成し、尾小屋地下測定室の極低バックグラウンドGe検出器を用いて γ 線測定を行った。標準線源としてU、Th標準試料(NBL)を用い核種濃度を求めた。

Fig. 1に鳥浜貝塚のイノシシ(上腕骨)のGe-LEPSスペクトルを示す。 γ 線測定の結果、ウラン含有量は殿台貝塚では3~8ppmと高く、戸井貝塚では~1ppm程度、また鳥浜貝塚において0.1~0.4ppmと極めて低く、埋没環境による違いが明瞭に現れた。さらには埋没環境の違いが $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比に表れており、鳥浜貝塚では $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比が放射平衡量以上になった。これは鳥浜貝塚が海拔0~3mの低湿地性貝塚であり、汽水起源の初期のRa同位体の取り込みが多かったためと考えられる。初生の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比=1.14、 $^{230}\text{Th}=0$ 、 $^{226}\text{Ra}=0(\text{dpm})$ として見掛けの年代を求めると、戸井貝塚では1万年程度、殿台貝塚では3000年程度となった。 γ 線測定による年代測定が適用できるのは、殿台貝塚のみであった(Table 1)。以上のことから、このようにウラン含有量が低く、若い試料では非破壊 γ 線のみによる年代測定は困難なことが分かった。

[EPMA 分析]

骨の死後変化は自己融解および腸内細菌によって惹起される腐敗による組織崩壊などの内因的要素、および微生物などの侵襲による外因的要素により生ずるといわれている。そしてこれは放置場所(地上、地中、水中)、気候条件(気温、湿度、降雨量)、土壌の性状(湿潤あるいは乾燥状態、酸性度、石灰質含量)、微生物などによる侵襲など様々な要因の影響を受ける。

本研究では元素の分布に関する情報(死後の形態的变化に伴う元素分布の変化)を得るために、化石および新鮮骨に対し、スライドガラスに入る適当な大きさに切断し、除染後、片面を研磨して厚片を作成し、走査型顕微鏡による組織観察およびEPMA分析をおこなった。

その結果、緻密質には2つの管系統、ハバース管(骨の長軸に平衡の長い無数の血管)およびフォルクマン管(ハバース管と垂直の方向)が発達し、ハバース管を芯にして骨質のハバース層板が同心状に取り巻き骨単位(オステオン)を形成していること、およびオステオンに挟まれてハバース管を持たない介在層板からなることが認められた(Fig. 2a)。さらには土中に埋没した骨(化石骨)では表面の骨緻密質に骨組織の空胞化による迷路ないし蜂の巣様の崩壊が認められた(Fig. 2b)。

定性分析の結果、本研究で用いた化石骨においてはハバース管がハバース層板、介在層板に比べP、Ca濃度が低く、一方Mn、Fe濃度が高くなっていることが分かった。もともと骨には微量しか含まれていないMn、Feが高濃度である要因として、おそらく微生物が関与し、鉍物ゲル(青鉄、Ca、Mn、炭酸塩)等がハバース管内に侵入し、二次的な石灰化が生じたことが考えられる。

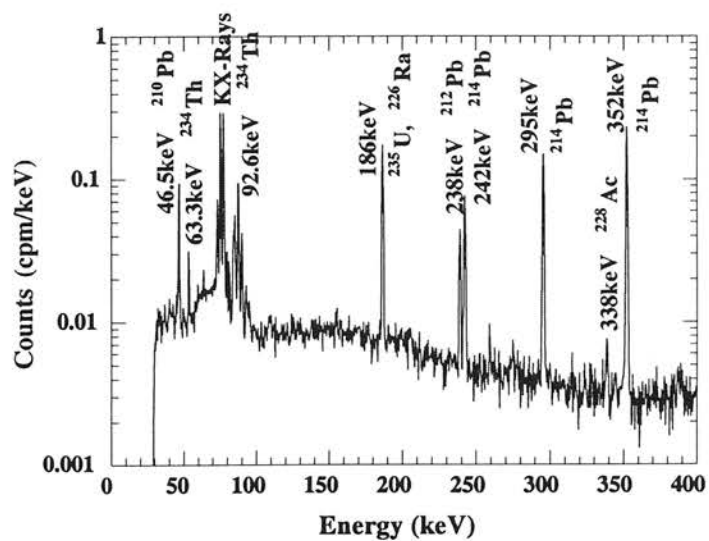


Fig. 1 Ge-LEPS spectrum of the fossil bone from Torihama
(mesurement time : 17108min)

Table1. Results of non-destructive $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ dating.

site	^{238}U (ppm)	$^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$	major origin of Ra	estimated age ($\times 10^3\text{y}$)
Toi	~ 1	~ 0.1	^{238}U and streaming hollow	11~12
Tonodai	3 ~ 8	~ 0.01	^{238}U	2.7~3.4
Torihama	0.1 ~ 0.4	> 1	brackish water	—

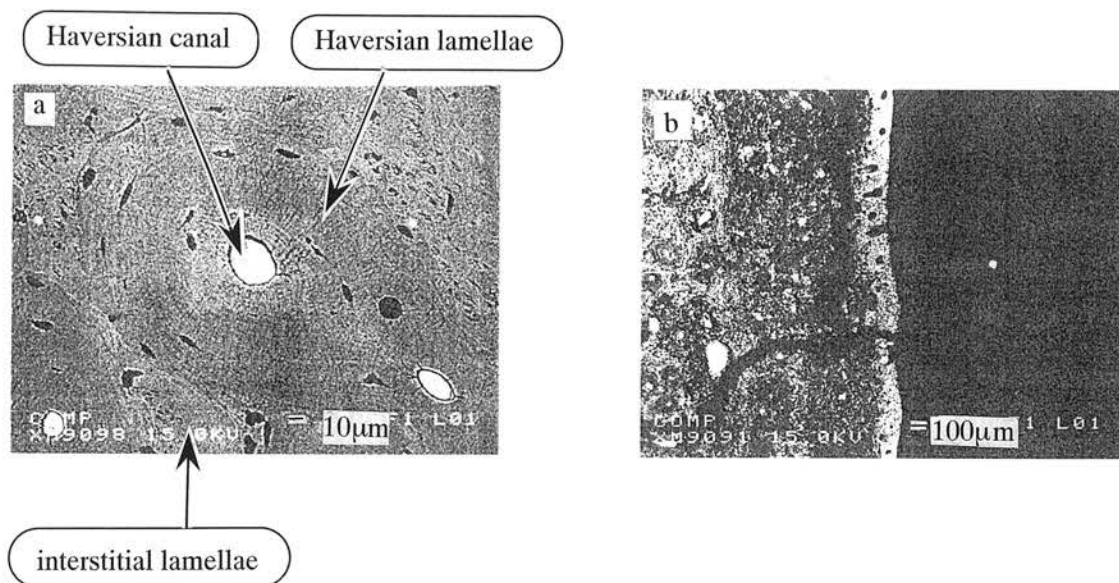


Fig. 2 Scanning electron micrographs of (a) bone structure
and (b) outer surface of the fossil bone from Torihama .

[本研究は主として大学院生寺内万里子が行い、内容の一部は1998年度放射化学討論会(2A04)で発表された。
なお EPMA 測定は地球学科田崎和江教授の協力による。]

石筍を利用した古環境解明の試み

Paleoenvironmental analysis from stalagmite

[はじめに]

今後の地球規模の気候変動を予測するためには、過去の気候変動のデータが大いに役立つ。深海堆積物中の有孔虫などの炭酸塩殻、化石サンゴ、アイスコアなどの酸素同位体比を測定し、その変動パターンから第四紀の気候変動を解明する試みがなされ、現在までに大きな成果をあげている。しかし、気候変動解明研究の多くが海洋由来の試料であったり、極地に限られていたりして、陸性試料からの気候変動の解明はほとんど行なわれていない。陸性の気候変動の指標として、Hendy & Wilson (1961)は鍾乳洞内で成長する石筍に注目し、 ^{14}C 法により見積もった成長年代とともに、酸素同位体比を利用して長期間の気候変動を推定した。石筍は陸上に広範囲に分布しているとともに、鍾乳洞という地形の風化侵食に対する安定性、そして長期間かけて成長するという点で陸上の気候変動解明する試料として非常に適している。その後、数多くの研究者たちによって石筍中の酸素同位体比は気候変動の指標として利用され、陸上の気候変動の解明に貢献している。しかし、日本においてはこのような研究は少なく、そのため陸上の気候変動のデータは乏しい。また、気候変動の指標の点から見ても、化石サンゴにおいては近年 Mg/Ca 比や Sr/Ca などの微量元素が利用されているのに対し、石筍の場合は酸素同位体比および炭素同位体比に限ったものが多く、多角的な気候変動の解明はなされていない。

本研究では、石筍を利用した古気候解明の研究に多様性を与え、より詳細な気候変動を解明することのできる可能性を与えることを目的とした。今まで一般的な石筍を利用した古環境解明の研究で利用してきた $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代測定法、酸素同位体比および炭素同位体比に加え、非破壊 γ 線スペクトロメトリーによる $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 年代、アルカリ土類金属濃度および Mg/Sr 原子比を測定し、これらが古気候の指標として利用可能かどうかを検討した。

[試料および分析法]

1966年に沖縄本島近くの伊計島の鍾乳洞から採取した石筍の一部を本研究の試料とした。底面の直径は約15cm、底面から頂点までの高さは約30cmである。はじめに、この石筍試料を Fig. 1 のように切断し、9つの横方向の副試料とした。尾小屋地下測定室の低バックグラウンド Ge-LEPS 検出器によって、副試料中の $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 比を測定し、年代を見積もった。 γ 線測定後、粉体化したものを塩酸に溶解し、U 同位体および Th 同位体について化学分離・精製し、ステンレス板上に電着した。Si 検出器を利用した α 線スペクトロメトリーによって、U 同位体および Th 同位体を定量し、 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代を見積もった。残りの石筍を Fig. 2 のようにドリルを使って削り出し、25個の縦方向の副試料とした。先の試料と同様の方法で U・Th 同位体を定量し、 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代を見積もった。また、縦方向の各副試料を真空中でリン酸と反応させ、発生する二酸化炭素を精製し、その安定酸素および炭素同位体比を気体質量分析器 (MICROMASS PRISM) により測定した。縦方向の各副試料を硝酸に溶解し、感度補正用の内部標準溶液を加えた後、誘導結合プラズマ質量分析装置 (横河 PMS-2000) により、Mg, Ca, Sr, Ba および U 濃度を定量した。

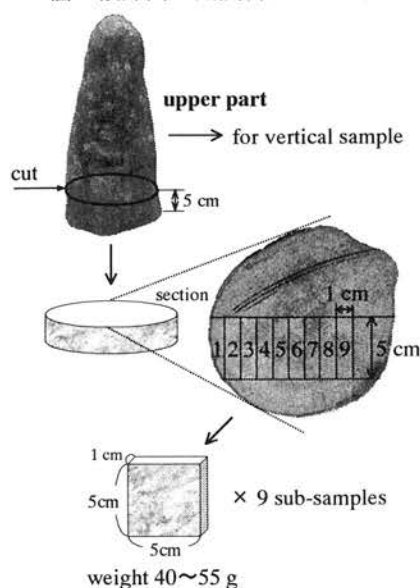


Fig. 1 Extraction of horizontal nine sub-samples

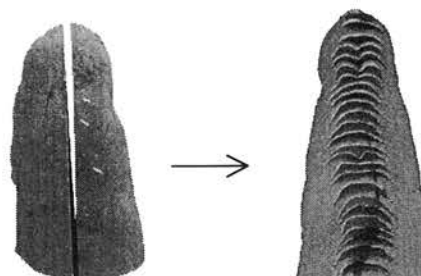


Fig. 2 Extraction of vertical twenty-five sub-samples

[結果と考察]

横方向副試料の $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ および $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代値を Fig. 3 に、縦方向副試料の $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代値を Fig. 4 に示す。 $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 年代の方が系統的に古い年代値を見積もっているが、初生時の ^{226}Ra に起因するのではないかと推測する。 γ 線スペクトロメトリーによる $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ 年代は、非破壊の分析が可能であるという利点を考慮すると、現段階では独立の年代測定法として利用するよりも、 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代測定を行う以前の予備測定としてのみ用いるのが適当であろう。横方向の $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ 年代値は中心ほど古い値が得られたが、縦方向では底部から頂部にかけて次第に若くなっていく傾向を見ることができなかった。また、横方向では 22.3ka という突出して古い年代を得たが、縦方向では 10.1ka を超える値は得られなかった。これらの原因として、この石筈が U および Th 同位体に関して閉鎖系を保っていなかったことが考えられ、現段階では信頼できる年代値を得たとは言えない。

Mg, Sr, Ba および U 濃度を Fig. 5 に示す。4 元素とも似たパターンを示しており、滴下水の塩分が変化していることが予想される。したがって、石筈の成長速度も一定ではなく、変化していたことが推測される。

酸素・炭素同位体比および Mg/Sr 原子比の変動パターンを Fig. 6 に示す。Mg/Sr 原子比は炭素同位体比と類似していることがわかる。酸素同位体比の主な変動原因は、鍾乳洞のある地域の気温変化、そして鍾乳洞内の気温変化の他に、熱帯海水の酸素同位体比、熱帯地域の気温変化という地球規模の気候変動にも依存している。それに対して炭素同位体比は土壌中の CO_2 の炭素同位体比（鍾乳洞の上部の植生変化を間接的に反映）、Mg/Sr 同位体比は鍾乳洞内の温度変化という局地的な気候変動のみに依存している。このように考えると、炭素同位体比と Mg/Sr 原子比が炭素同位体比と変動パターンが同じで、酸素同位体比が独立していることが説明できる。有効性を確認するにまで至っていないが、少なくとも Mg/Sr 原子比の古環境指標としての可能性を示すことができたとと思われる。

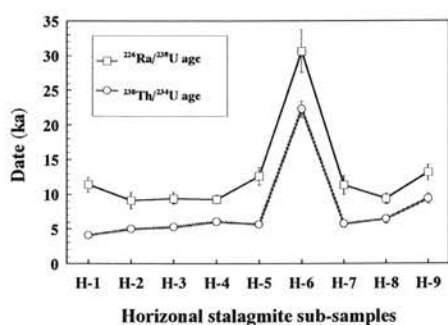


Fig. 3 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ and $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ dates of horizontal stalagmite sub-samples

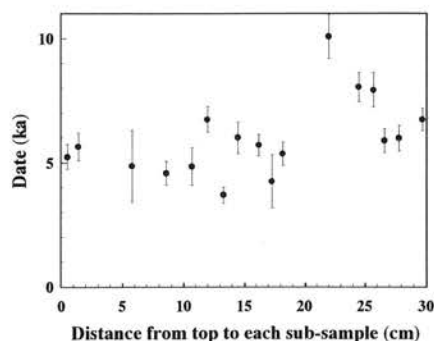


Fig. 4 $^{230}\text{Th}/^{234}\text{U}$ date of vertical stalagmite sub-samples

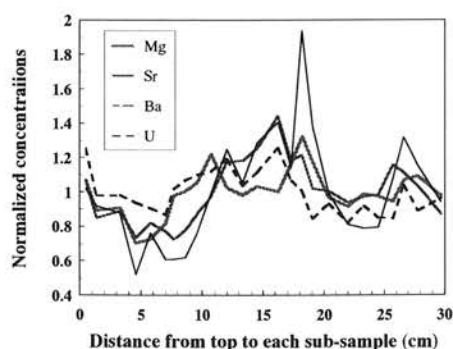


Fig. 5 Concentration of Mg, Sr, Ba and U which is normalized by each average value

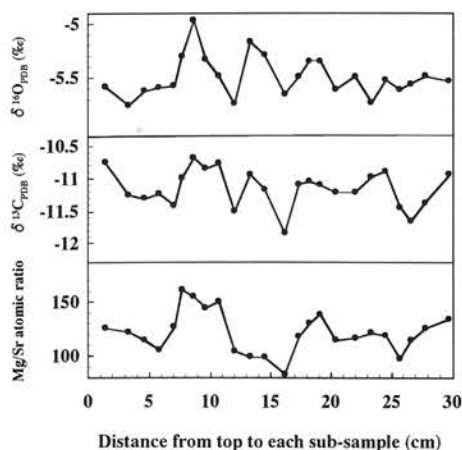


Fig. 6 Comparison between three paleo - environmental indicators

[本研究は、主として大学院生・村田祥全が行い、成果の一部は第 41 回放射化学討論会（於 熊本）および第 42 回放射化学討論会（於 仙台）において発表された。また、酸素・炭素同位体比分析には、富山大学理学部生物圏環境化学科教授・佐竹洋先生のご協力をいただいた。]

アイリッシュ海沿岸堆積物中の ^{99}Tc とその移行挙動

Technetium-99 in the coastal sediment of the Irish Sea and its sedimentally behavior.

1. はじめに

現在、一般環境中に存在する ^{99}Tc は、1945年以降に行われた大気圏核爆発実験からのフォールアウトに由来する。 ^{99}Tc は半減期($T_{1/2}=2.1\times 10^5\text{ y}$)が長く、しかも純 β 線放出体($\beta_{\text{max}}=292\text{ keV}$)であるので、環境レベルの ^{99}Tc を検出・測定することは容易でない。しかしながら、 ^{99}Tc はウラン、プルトニウムからの核分裂収率が約6.1%と高く、使用済み核燃料の再処理過程における移行挙動が注目されている。さらに、使用済み核燃料再処理の結果生じる ^{99}Tc の大部分が他の高レベル放射性廃棄物と共にガラス固化され地層処分が考えられている現在、一般環境中も含めた ^{99}Tc の挙動を十分に把握することが緊急の研究課題になっている。

イギリス・アイリッシュ海は南の St. Davids Head と北の Mull of Galloway を境界とする半閉鎖系の海(47,000km²)で、アイリッシュ海東部沿岸に位置する BNFL Sellafield 核燃料再処理工場から放出された放射性廃液により一般環境と比較し高濃度に汚染されている。従って、アイリッシュ海は放射性廃液中の超ウラン元素、そして ^{99}Tc などの放射性核種の挙動に関する研究フィールドとして格好の場所となっている。今回、このフィールドを利用して ^{99}Tc の沿岸海域での移行挙動に関する考察を行ったので報告する。

2. 試料および測定

1994年10月にアイリッシュ海東部沿岸海域の9地点から採取した長さ50~100 cm、直径3 cmの堆積物コア試料を風乾・粉碎・混合したものを分析対象試料とした(Fig. 1)。分析方法は未灰化の試料を用い先の報告[LLRL-AR-18, pp. 12, 1994]に準じた。すなわち、 $\text{HNO}_3+\text{H}_2\text{O}_2$ による還流抽出のあと、TOA/xylene (tri-n-octyl amine/xylene), MEK (Methyl ethyl ketone), シクロヘキサノンによる3段階の溶媒抽出後、陰イオン交換樹脂カラム法(Dowex 1-X8, 100-200 mesh)による精製を行った。 ^{99}Tc の測定には ^{103}Rh を内部標準とした二重収束型ICP質量分析計を用いた。化学収率の補正にはあらかじめ既知量添加した $^{95\text{m}}\text{Tc}$ ($E_\gamma=204.11\text{ keV}$) (米国・Du Pont 社製)の γ 線スペクトロメトリーにより行った。

3. 結果と考察

化学分析については、収率が80~35%であった。 $^{95\text{m}}\text{Tc}$ トレーサの使用、ICP-MS測定時の内部標準 ^{103}Rh の使用、そしてマススペクトルからの同重体(^{99}Ru)の補正を行い、分析測定値を算出した。マススペクトルの一例をFig. 2に示す。質量数99に妨害を与える同重体は ^{99}Ru (存在度12.7%)であり、同重体汚染があった場合、質量数101(^{101}Ru の存在度17%)のピークから補正を行った。また、 $^{95\text{m}}\text{Tc}$ トレーサ溶液中にも微量の ^{99}Tc の汚染が確認されたが、同様の方法で試料中の ^{99}Tc 定量値に補正を行った。

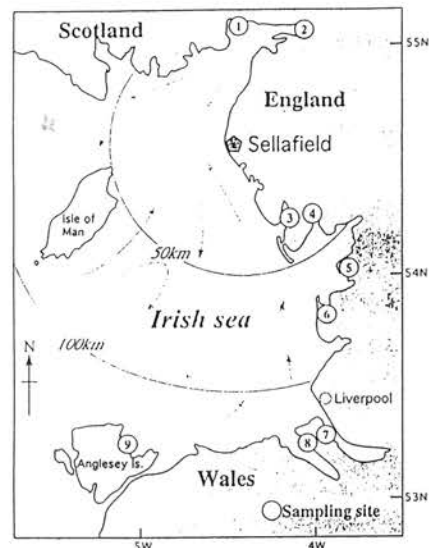


Fig. 1 Sampling locations of sediment core samples in the Irish Sea, UK.

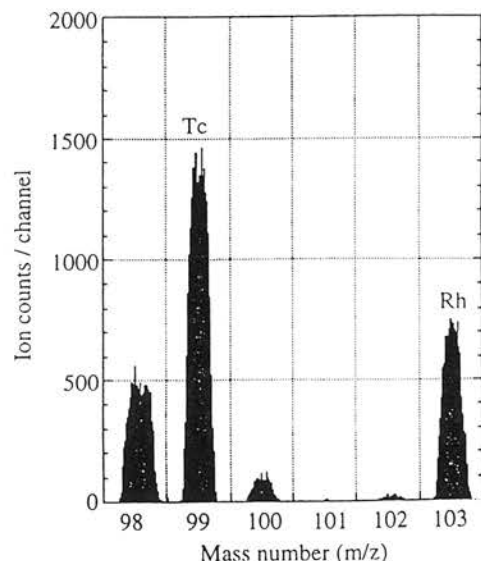


Fig. 2 An example of mass spectrum of final solution.

この分析方法における ^{99}Tc の検出下限値は一試料あたり 0.16mBq (0.24pg に相当) であった。Fig. 1 に示す試料採取地点の放出口 (Sellafield 核燃料再処理工場) からの距離と共にその地点の堆積物中の ^{99}Tc 濃度、および化学分析における収率をまとめて Table 1 に示した。 ^{99}Tc 濃度と放出口からの距離との間に相関は認められない。

Table 1 The results of chemical analysis.

Sampling location	Total weight (g)	Anal. weight (g)	Concentration (Bq/kg)	^{99}Tc	
				Inventory (Bq/cm ²)	Chemical yield (%)
1	298.28	50	1.96 ± 0.09	0.083 ± 0.004	82.3 ± 2.5
2	714.06	30	5.22 ± 0.26	0.528 ± 0.026	77.9 ± 2.3
3	430.40	50	2.77 ± 0.13	0.169 ± 0.008	62.5 ± 4.1
4	397.19	50	3.08 ± 0.15	0.173 ± 0.008	62.5 ± 2.5
5	710.90	50	6.88 ± 0.34	0.692 ± 0.034	49.5 ± 2.0
6	912.27	20	14.9 ± 0.7	1.924 ± 0.090	71.4 ± 4.0
7	549.97	100	0.95 ± 0.04	0.074 ± 0.003	41.6 ± 2.1
8	691.84	100	9.40 ± 0.47	0.920 ± 0.046	34.8 ± 1.1
9	454.89	100	2.93 ± 0.14	0.189 ± 0.009	54.6 ± 2.2

試料採取地点における $^{239+240}\text{Pu}$ との放射能比 ($^{99}\text{Tc}/^{239+240}\text{Pu}$) と放出口からの距離との関係を Fig. 3 にプロットした。もし、 ^{99}Tc が非保存性核種である $^{239+240}\text{Pu}$ と類似した移行挙動を示すならば、直線の傾きは水平に近くなることが予想できる。しかしながら、Fig. 3 ではこのような傾向は見られず、傾斜を持った直線関係が得られた。このことは、 ^{99}Tc が非保存性核種である $^{239+240}\text{Pu}$ に比較してより遠方まで輸送されることを示唆している。また、 ^{137}Cs , ^{241}Am , ^{237}Np などの放射性核種についても同様に $^{239+240}\text{Pu}$ との放射能比を比較したところ、 ^{99}Tc が輸送される傾向が一番高く、アルカリ金属に属するセシウムよりもその傾向が高いことがわかった。

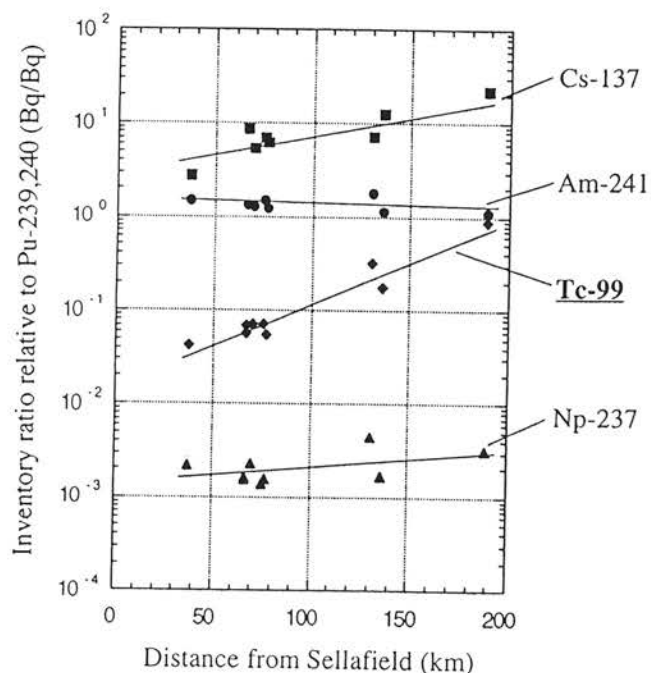


Fig. 3 Relationships between activity ratios relative to $^{239+240}\text{Pu}$ and distance from BNFL Sellafield nuclear reprocessing plant.

[本研究は主として大学院生 及川真司により行われ、その成果は第38回日本放射線影響学会 (於 千葉市) において報告された。]

市販ミネラルウォーター中のウラン濃度

Uranium Concentrations in Commercial Mineral Water

ウランの人体への影響としては、放射線による発癌リスクの他に化学的影響、特に腎機能への影響が挙げられる。WHO（世界保健機構）の飲料水水質ガイドラインに基づき、我国でも平成10年6月1日付厚生省通知により、ウランが水道水質の監視項目に加えられた。（指針値： $2 \mu\text{g}/\text{L}$ ）この通知に伴い、全国的に水道水およびその水源のウラン濃度のモニタリングが今後開始されると予想される。一方、飲料水としては、水道水以外にもミネラルウォーターが今日広く消費されている。日本の飲料水のウラン濃度レベル把握の一端として、近年著しく消費量が延びている市販ミネラルウォーター中のウラン濃度を測定した結果について報告する。（注：国内で販売されている「天然水」はミネラル分が乏しくミネラルウォーターとは異なるものも多いが、ここではまとめて扱う。）

【試料及び分析法】

試料としたミネラルウォーターは小売店で市販されているものを購入した。試料は1M HNO_3 溶液に調製し、感度変化補正の内部標準として ^{209}Bi を $2.5 \mu\text{g}/\text{L}$ となるよう添加した後、誘導結合プラズマ質量分析装置（横河 PMS-2000）によりウラン濃度を測定（積分時間 15sec/mass）した。

【結果及び考察】

測定結果を、比較のために入手できた海外産のものとあわせて Table 1 に示す。測定した 29 銘柄のうち指針値を超えたものは国内産の 2 銘柄、海外産 1 銘柄であった。今回の指針値はあくまでも水道水質に関するものであるが、本結果は市販されているミネラルウォーターの中には指針値をはるかに超えるウラン濃度のものが存在し、それらが広く市販されている現状を示している。今後日本人のウラン摂取量を評価する場合、これらの商品流通を通してのウラン摂取があることを念頭に置く必要がある。なお、Shiraishi ら（1996）によれば食品を通じての平均ウラン摂取量は $7.1 \times 10^2 \text{ ng}/\text{日}/\text{人}$ （8.8 mBq/日/人）となっている。

本報告はまた飲料水からのウラン摂取量評価における地下水調査の重要性を示している。我国の水道水源の3分の2を占める河川水のウラン濃度は、亀谷ら（1991）の調査では $4.8 \sim 61.8 \text{ ng}/\text{L}$ （平均 $22 \text{ ng}/\text{L}$ ）、津村ら（1991, 1992）の調査では $0.9 \sim 199 \text{ ng}/\text{L}$ （平均 $28 \text{ ng}/\text{L}$ ）であり、今回の数試料で見られたような高ウラン濃度は報告されていない。この原因としては我国の河川水は岩石との接触時間が短いことに加え、河川は比較的広域の水を集めるため濃度が平均化されているためではないかと推測される。これに対し地下水は水道水源として占める割合は小さいものの、岩石との接触時間が長いことから一般に地表水よりもウラン濃度が高く、数 $\mu\text{g}/\text{L}$ 以上の濃度もしばしば報告されている。更に、地下水は狭い地域においても濃度が大きく変動することが知られており、Table 1 の同一山系の試料（No.1, 2）及び同一市内の試料（No. 16~18）の間でこのことが顕著に見出せる。これら高ウラン濃度地下水の存在及び地域的多様性から、飲料水中のウラン濃度測定では地下水を水源として利用する地域で特に詳細な調査が必要といえる。

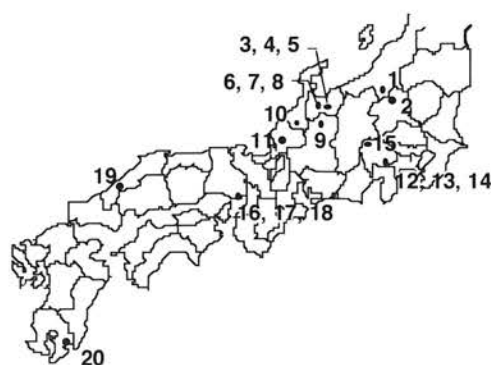


Fig. 1 Sampling locations of domestic mineral water

Table 1 Uranium concentrations in mineral water

Domestic water				Foreign water	
No.	U (ng/L)	No.	U (ng/L)	No.	Location U (ng/L)
1	1.8 ± 0.5	11	$(2.3 \pm 0.3) \times 10^1$	21	France $(1.5 \pm 0.01) \times 10^3$
2	$(1.2 \pm 0.02) \times 10^3$	12	$(1.4 \pm 0.3) \times 10^1$	22	" $(8.0 \pm 0.03) \times 10^2$
3	$(4.2 \pm 0.03) \times 10^1$	13	2.4 ± 0.1	23	" $(6.3 \pm 0.4) \times 10^2$
4	$(6.2 \pm 0.1) \times 10^1$	14	6.2 ± 0.3	24	Belgium $(1.0 \pm 0.04) \times 10^2$
5	$(1.1 \pm 0.1) \times 10^2$	15	$(1.2 \pm 0.1) \times 10^1$	25	Italy $(1.5 \pm 0.1) \times 10^2$
6	0.4 ± 0.1	16	5.6 ± 0.5	26	USA $(1.6 \pm 0.03) \times 10^4$
7	$(3.7 \pm 0.5) \times 10^1$	17	$(7.3 \pm 0.2) \times 10^3$	27	" $(1.5 \pm 0.1) \times 10^1$
8	4.3 ± 0.1	18	$(8.0 \pm 0.1) \times 10^3$	28	" $(3.4 \pm 0.1) \times 10^1$
9	$(5.1 \pm 0.2) \times 10^1$	19	$(2.1 \pm 0.01) \times 10^2$	29	Canada $(4.5 \pm 0.1) \times 10^2$
10	2.7 ± 0.4	20	$(2.2 \pm 0.1) \times 10^1$		

Error means standard deviation of 4 times measurements.

[本研究は主として大学院生小藤久毅が行い、ICP-MSでの測定には石川県保健環境センター職員の方々の協力を戴いた。成果は小藤、山本の連名で Radioisotopes のノートに掲載された。]

兵庫県南部地震前後の神戸地下水におけるU濃度の経時変動

--- Sr濃度および同位体比との比較 ---

Temporal variation of U concentration of groundwater before/after the 1995 Kobe earthquake;

Comparison with Sr concentration and isotopic ratio

[はじめに]

地震と地下水の化学組成の関係については、これまで多くの研究がなされてきた。地下水におけるRnなど揮発成分の濃度の異常と地震発生にはある程度相関があるとされ、兵庫県南部地震(1995.1.17; M7.2)においても、RnやCl濃度の異常が報告された。これら化学組成の異常の要因としては、地震により形成された岩石の亀裂表面と地下水との反応(クラックモデル)もしくは起源の異なる地下水の混入(2成分混合モデル)が考えられる。本研究では兵庫県南部地震前後の地下水中のSrの濃度および同位体組成に加え、六甲花崗岩地域で著しく高い値を示すU濃度の経時変動を調べ、地震時の地下水流動メカニズムを議論した。

[試料と実験]

1994年から1996年の3年間を中心に、新幹線・新神戸駅付近の2地点において採取された飲料用地下水(M-, S-シリーズ)を試料として用いた。M-シリーズは市販のミネラルウォーターで、全試料同一条件で飲料用加熱処理がなされている。その処理による各元素の濃度低下の程度(Mg, Ca, Sr, Ba, U; 0~25%)にかかわらず、(化学組成が比較的安定している)94年2月~95年4月間に採取された試料における経時変化に類似性がみられることから、地下水の組成変動の特徴は保持されていると考えられた。S-シリーズにおいては一般家庭の井戸水を直接測定に用いた。

地下水試料のSr同位体比は表面電離型質量分析計(TI-MS; Finnigan Mat-262)により、またU, Sr濃度はICP-MS(Yokogawa PMS-2000)により測定をおこなった。測定精度はそれぞれ~0.02%, 1~2%と、定点における地下水組成変動の議論に耐えうるものであった。

[結果と考察]

地震による地下水の主要溶存イオン濃度の変動については多くの研究がなされてきたのに対し、U濃度については旧ソ連・タシケントで異常がみられた以外にほとんど報告例がない。本研究の結果、M-, S-シリーズのU濃度(14 $\mu\text{g/l}$ および0.62 $\mu\text{g/l}$, それぞれシリーズ平均値)には、M-シリーズの加熱処理の影響を考慮しても、採取地点間で大きな差がみられ、M-シリーズにおいては国内最高水準値を示した。Uは酸化還元状態、pHおよび地下水組成により存在状態(化学種)、すなわち地下水に対する溶解度が異なることから、この濃度差は両採取地点での環境の違いを反映していると推測される。

兵庫県南部地震前後における神戸地下水のU, Sr濃度およびSr同位体比の経時変動は、季節変化に関係なく、以下のように2地点で独自の挙動を示した。

M-シリーズ

試料採取時期により、以下の2つのトレンドに分類できた。

第一段階(94年2月~95年4月): 地震のおよそ1年前の試料からU, Sr濃度の減少がはじまるが、U/Sr比およびSr同位体比においては、大きな変動は示さなかった(Fig. 1)。ここでは岩石からの溶出時に化学的挙動の異なるUとSrが共通した変動を示したことを説明するメカニズムの構築が必要となる。例えば地下での亀裂形成による地下水/岩石間の接触面積の変化、もしくは兵庫県南部地震による六甲地域の湧水量の異常は4月まで続いたとの報告もあることから、湧水量・流速の変化による希釈作用も矛盾がない。

第二段階(95年10月~): 95年5~9月分の試料は残念ながら入手できなかった。10月以降Uは減少、Srにおいては増加と、それぞれ急激な変動がみられた。このU/Sr分別に伴い、Sr同位体比も顕著に変動した。一つの可能性としては、岩石に生じた亀裂の進行に伴う、周囲

の帯水層からの地下水の混入 (多成分混合) があげられる。

しかし95年1月に突発的な組成変動はみられていないことから、以上の組成変動と兵庫県南部地震 (もしくはそれ以降の地震) との関係についてはより慎重な議論が要求されるであろう。

S-シリーズ

M-シリーズに比べ試料数は少ないが、地震3日前 (1995.1.14) の地下水には、明らかなSr濃度および同位体比の異常がみられた。それに対しU濃度は顕著な変動を示さなかった (Fig. 2)。地震直前の主要溶存イオン濃度に急激な異常が現れた報告例もあり、今回の結果も地震による可能性がある。Srの濃度および同位体比の急激な変動は、他の帯水層からの組成の異なる地下水の混入によることを示唆する。地震直前の $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比の小さいSrは、例えば斜長石成分の溶解が進んだ岩石を起源とする地下水の混入で説明できる。またUにおいては、地下水の2成分間であまり濃度に差がみられなかったであろう。

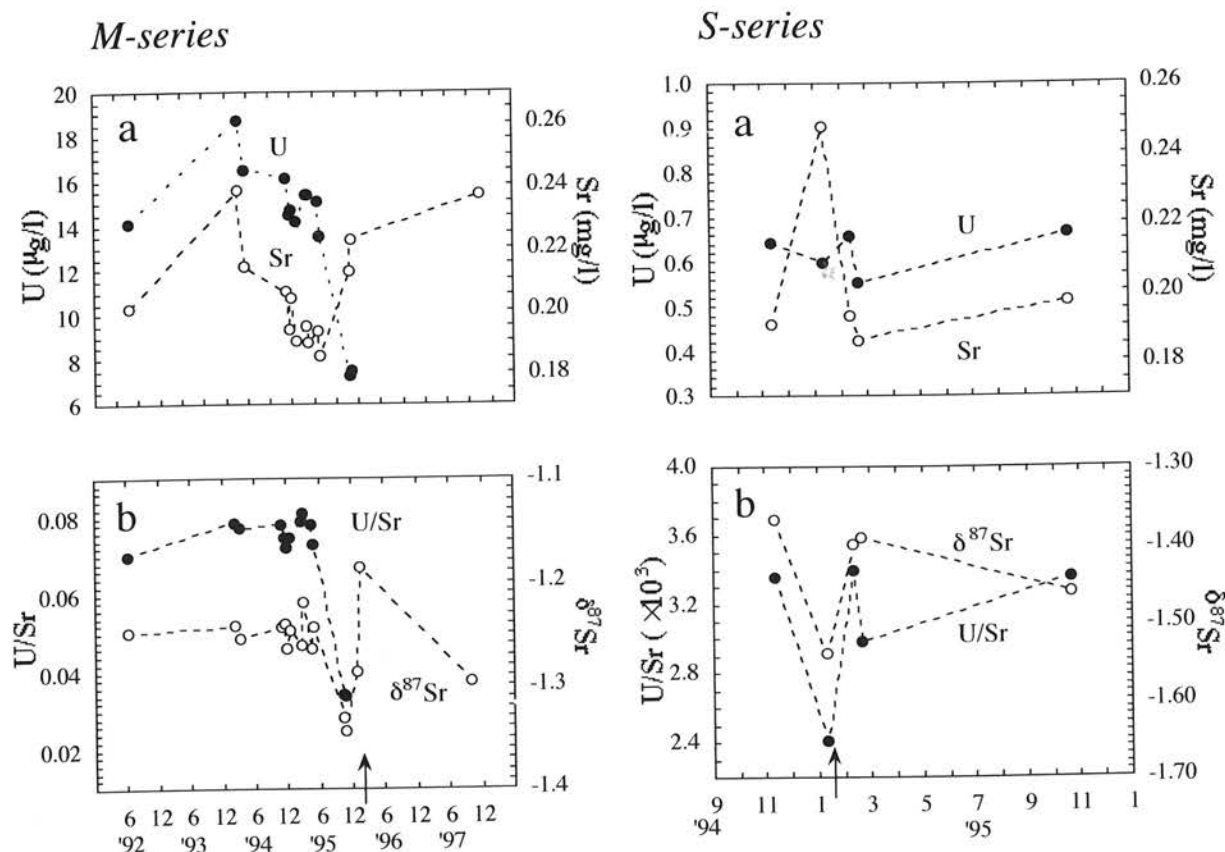


Fig. 1. (left) Long-term variations of a) U and Sr concentrations and b) $\delta^{87}\text{Sr}$ with U/Sr abundance ratio of M-series groundwater. Here, $\delta^{87}\text{Sr} = [(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{sample}} / (^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{STD}} - 1] \times 1000$ (‰), and $(^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr})_{\text{STD}}$ value is 0.70920.

The arrow indicates the date of the 1995 Kobe earthquake.

Fig. 2. (right) Temporal variations of a) U and Sr concentrations and b) $\delta^{87}\text{Sr}$ along with U/Sr ratio of S-series groundwater.

[ICP-MSでの測定には石川県保健環境センター職員の方々にお世話になった。本研究は神戸大・理学部の中村昇教授との共同研究としておこなわれ、1997年地球化学会年会 (於 都立大) において発表された。]

平成6年度

《施設職員》

施設長(併) 上野 馨
(教授)

人 教授 上野 馨
客員教授 巻出 義 紘(東大アイツ-ブ 総合センター教授)
客員教授 池谷 元 伺(大阪大学理学部教授)
事 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5年5月～平成7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 上田 一正 稲部 勝幸
教 育 学 部 泉 長 秀
教 養 部 千田 齊
医療技術短大 安東 醇

購 自動車 トヨタ タウンエースワゴン
入 アルファー線測定装置 仁木工芸(株) TC256
備 ICP500-100-19 2 台
品 ブリアンプ
米国キャンベラ社 2003BT型 2 台
マントルヒーター 大科電器(株)AFR-5 100V 250W
塩化ビニール流し台 双葉樹脂(株)FV-86-1

使 液体窒素 5.576ℓ
用 A 重油 2.042ℓ
量 電 気 148.350KWH
水 道 2.557m³

研 究 論 文

- S.Hisamatsu, T.Ohmura, Y.Takizawa, T.Katsumata, Y.Inoue, M.Itoh, K.Ueno and M.Sakanoue : Tritium Level in Japanese Diet and Human Tissue, J.Radioanal.Nucl.Chem.,Articles, 156, 89-102 (1992).
- K.Shiraishi, M.Yamamoto, K.Yohsimizu, Y.Igarashi and K.Ueno : Daily Intakes of Alkaline Earth Metals in Japanese Males, Health Physics, 66(1), 30-35 (1994).
- M.Yamamoto, T.Abe, J.Kuwabara, K.Komura, K.Ueno and Y.Takizawa : Polonium-210 and Lead-210 in Marine Organisms : Intake Levels for Japanese, J.Radioanal.Nucl.Chem., Articles, 178(1), 81-90 (1994).
- K.Komura, A.Toguchi and S.Yamazaki : Assessment of the Ogoya Tunnel as a Candidate of Underground Laboratory for Low Level Radioactivity Measurement, Work Shop on Nuclear and Particle Physics Studied by URANUS (Ultra RARE-process NUClear Spectroscopy), Kamioka, Gifu November 15-16, 1993, 203-207 (1994)
- M.Yamamoto, H.Kofuji, A.Tsumura, S.Yamasaki, K.Yuita, M.Komamura, K.Komura and K.Ueno : Temporal Feature of Global Fallout ²³⁷Np Deposition in Paddy Field through the Measurement of Low-level ²³⁷Np by High Resolution ICP-MS, Radiochimica Acta, 64, 217-224 (1994).
- M.Hoshi, M.Yamamoto, H.Kawamura, K.Shinohara, K.Shinohara, Y.Shibata, M.T.Kozlenko, T.Takatsuji, S.Yamashita, H.Namba, N.Yokoyama, M.Izumi, K.Fujimura, V.V.Danilyuk, S.Nagataki, A.Kuramoto, S.Okajima, K.Kiikuni and Shigematsu : Fallout Radioactivity in Soil and Food Samples in the UKRAINE : Measurements of Iodine, Plutonium Cesium, and Strontium Isotopes, Health Physics, 67(2), 187-191 (1994).
- M.Yamamoto, M.Hinoide, Y.Ohkubo and K.Ueno : Concentration of ²²⁶Ra in Human Teeth, Health Physics, 67(5), 535-540 (1994).
- K.Ninagawa, Y.Matsukuma, T. Fukuda, A.Sato, N.Hoshino, M.Nakagawa, I.Yamamoto, T.Wada, Y.Yamashita, K.Sekimoto and K.Komura : Thermoluminescence Dating of a Calcite Shell, Crassostrea Gigas (thunberg) in the Ostreidae Family, Quaternary Geochronology (Quaternary Science Reviews), 13, 589-593 (1994).
- M.Yamamoto, K.Shiraishi, K.Komura, K.Ueno : Measurement of Uranium in Total Diet Samples:Daily Intake for Japanese, J.Radioanal.Nucl.Chem.,Articles, 185(1) 183-192 (1994).
- K.Shiraishi, Y.Igarashi, M.Yamamoto, T.Nakajima, I.P.Los, A.V.Zelensky, M.Z.Buzinny : Concentrations of Thorium and Uranium in Freshwater Samples Collected in the Former USSR, J.Radioanal.Nucl.Chem., Articles, 185(1) 157-165 (1994).
- 小村和久, 山本政儀, 上野 馨, 内田賢吾, 阪上正信 : 火山噴出物ならびに温鉱泉中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po (その1) -火山噴気ガスおよびイオウ昇華物中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po-, 温泉科学, 44(1), 11-17 (1994).
- 山本政儀, 渡口 輝, 指物彦彦, 小村和久, 上野 馨, 阪上正信 : 火山噴出物ならびに温鉱泉中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po (その2) -温鉱泉中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po含量の測定-, 温泉科学, 44(1), 18-27 (1994).

報 告

- 山本政儀, 小村和久, 上野 馨 : 天然放射性核種を用いた環境中長寿命人工放射性核種の長期動態研究(Ⅲ), PNC-PJ1621, 受託研究成果報告書, 全111 (1994).
- 河村日左男, 白石久二雄, 五十嵐康人, 山本政儀, 田中義一郎 : 長半減期核種の食品-人体系における移行と体内分布並びに標準日本人の生理的特性, 放射線医学総合研究所特別研究「環境と食物連鎖に係わる公衆の被曝評価に関する調査研究」(昭和63年度～平成4年度)最終報告書, 平成6年3月, 41-49 (1994).
- 飯田孝夫, 池辺幸正, 下 道国, 上野 馨, 小村和久, 加藤岩夫 : 大気中ラドンの連続測定, 平成4年度文部省科学研究総合研究(A)「地球規模汚染の予測手法の確立-天然放射能の大気拡散シミュレーションによって-」研究成果報告書(課題番号02302088), 平成5年3月, 1-5 (1993).

総 説

- 小村和久 : 極低レベル放射能測定を目的とする「尾小屋計画」〈1〉, 放射線科学, 37(8) 281-286(1994).
- 小村和久 : 極低レベル放射能測定を目的とする「尾小屋計画」〈2〉, 放射線科学, 37(10) 361-366(1994).
- 小村和久 : 日本保健物理学会第29回研究発表会公開パネル討論会「放射線安全の疑問に答えて」印象記, 保健物理, 29, 340-341 (1994).

平成6年度 見学来訪・出張の記録

- 平成6. 4.20 北陸大学放射薬品学助教授 山田芳宗氏測定のため来所
 5.24, 6.13-14, 6.28, 8.23, 10.17, 7.2.24
 金沢大学名誉教授阪上正信氏研究打ち合わせ
 5.6-7 大阪大学理学部教授(客員教授) 池谷元伺氏 研究打ち合わせ
 5.7 東京大学アイソトープ総合センター教授 巻出義紘氏(客員教授) 研究打ち合わせ
 5.7 ◎平成6年度運営委員会(於 理学部)
 6.1, 6.22, 7.21 石川県保健環境センター 矢・満雄氏, 堀 秀明氏研究打ち合わせ
 6.14-18 小村助教授 大阪大学理学部にて集中講義
 6.21-23, 10.1-2 滋賀県琵琶湖研究所 横田喜一郎氏実験のため来所
 7.1 京都大学農学部西村和雄氏、京都大学放射性同位元素総合センター青木 達氏研究打ち合わせ
 7.9-16 山本助手「生物および環境試料中の長寿命放射性核種の低レベル測定に関する国際シンポジウム」
 (於 青森) 出席
 8.16 日本原子力研究所柳瀬信之氏研究打ち合わせ
 8.24-25 第47回日本温泉科学会大会参加者見学
 8.26 神奈川県温泉地学研究所大山正雄氏見学
 Intern.Environment Consulting(Germany) Prof.Dr.B.Sansoni 見学
 10.2-12 山本助手「中央アジア・カザフスタンの環境と経済の再生計画」に関する環境放射能予備調査
 (国際学術研究 代表:京大経済研究所 塚谷恒雄教授)のためカザフスタン共和国へ出張
 10.17-18 名古屋大学工学部飯田孝夫氏, 学生2名研究打ち合わせ
 10.28 日本分析センター内田滋夫氏, 田上恵子氏研究打ち合わせ
 11.11 医療技術短期大学学生43名見学
 平成7. 2.13-14 秋田大学医学部阿部 享氏測定のため来所
 2.17 理学部化学科3年生53名見学
 2.20 鹿児島県環境センター四反田昭二氏研究打ち合わせ
 2.21 東京大学原子力研究総合センター志田孝二氏, 杉浦紳之氏研究打ち合わせ
 2.21 国立科学博物館 島 正子氏研究打ち合わせ
 2.23-24 放射線医学総合研究所 阿部史郎氏研究打ち合わせ
 3.7 滋賀県琵琶湖研究所 副所長和田浩一氏, 前田広人氏, 横田喜一郎氏, 近畿大学農学部学生2名
 研究打ち合わせ
 3.23 ウクライナ放射線医学科学研究所 Iliya Segeda 氏, 放射線医学総合研究所 白石久二雄氏研究
 打ち合わせ

平成7年度

《施設職員》

施設長(併) 上野 馨

(教授)

人 事	教 授	上野 馨
	教 授	小村 和久
	客員教授	池谷 元 伺(大阪大学理学部教授)
	客員助教授	坂元 準 雄(鹿児島大学理学部助教授)
	助 教 授	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7年5月～平成9年5月)

理 学 部	坂 本 浩	大村 明雄
医 学 部	福 田 龍 二	利 波 紀 久
薬 学 部	正 宗 行 人	大 場 義 樹
工 学 部	上 田 一 正	稲 部 勝 幸
教 育 学 部	泉 長 秀	
教 養 部	千 田 齊	

購 入 備 品	低バックグラウンド型 NaI(Tl) 検出器
	日本バイクロン(株) 3MW3Q/3CL-X 型
	アルファ線測定装置 仁木工芸(株) TC256
	ICP500-100-19
	電子計算機装置
	マッキントッシュ Performa 588 (2台)
	水素イオン濃度測定装置
	(株)堀場 D-13

使 用 量	液体窒素	9.500 l
	A 重油	2.500 l
	電 気	144.040 KWH
	水 道	1.687 m

研 究 論 文

- K. Bunzl, H. Kofuji, W. Schimmack, A. Tsumura, K. Ueno and M. Yamamoto : Residence Times of Global Weapons Testing Fallout Np-237 in a Grassland Soil Compared to Pu-239+240, Am-241 and Cs-137, Health Physics, 68(1), 89-93 (1995).
- A. Ishiwatari, K. Sasatani, K. Tazaki, K. Sakamoto, T. Nakanishi, K. Komura, T. Tsujimori, Y. Oura, Y. Miyamoto, H. Akahane, M. Watanabe and K. Nunomura : A Preliminary Report on the Neagari Meteorite fall on February 18th, 1995, Antarctic Meteorites XX, Papers presented to the Twentieth Symposium on Antarctic Meteorites, June 6-8, 1995, 102-105 (1995).
- J. Kuwabara, M. Yamamoto, H. Nagai, K. Komura, K. Ueno, D. J. Assinder : Anomalous High Np-237 in Intertidal Sediments from the Ribble Estuary in the Irish Sea, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 197(2), 369-385 (1995).
- K. Shiraishi, M. Yamamoto : Dietary Th-232 and U-238 Intakes for Japanese as Obtained in a Market Basket Study and Contributions of Imported Foods to Internal Doses, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 196(1), 89-96 (1995).
- M. Yamamoto, SYARBAINI, K. Kofuji, A. Tsumura, K. Komura, K. Ueno, D. J. Assinder : Determination of Low-Level Tc-99 in Environmental Samples by High Resolution ICP-MS, J. Radioanal. Nucl. Chem., Articles, 197(1), 185-194 (1995).
- Y. Yamada, K. Yasuike, M. Itoh, N. Kiriya, K. Komura, K. Ueno : Neutron Activation Analysis of Li-6 Isotopic Abundance Using a Low Background Liquid Scintillation Counter, J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters, 201(5), 381-390 (1995).
- M. Yamamoto, K. Shiraishi, I. P. Los, I. Y. Kamarikov, M. G. Buzinny : Alpha-Emitting Radionuclide Contents in Food Samples as Related to the Chernobyl Accident, J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters, 201(6), 459-468 (1995).
- 石渡 明, 笹谷啓一, 田崎和江, 坂本 浩, 中西 孝, 小村和久, 辻森 樹, 大浦泰嗣, 宮本ユタカ, 赤羽久志, 渡辺 誠, 布村克志 : 1995 年 2 月 18 日落下「根上隕石」概報, 地球科学, 49, 71-76+179-182 (1995).
- 小村和久 : 火山から放出される放射性エアロゾル-桜島を中心として-, エアロゾル研究, 10(4), 276-282 (1995).
- 山本政儀, 小藤久毅, 津村昭人, 駒村美佐子, 結田康一, 山崎慎一, 上野 馨 : 水田土壌中の長半減期核種の挙動, クロスオーバー研究シンポジウム「汚染物質の環境挙動予測に関する局地規模詳細モデルならびにその移行パラメータ」, 246-263 (1995).
- Y. Yamada, M. Itoh, K. Yasuike, N. Kiriya, K. Komura, K. Ueno and M. Sakanoue : Determination of Low Level Lithium in Water Samples by Li-6(N, α)H-3 Reaction and Its Application to the Measurement of Isotope Composition of Lithium, Proceedings of the 4th Low Level Counting Conference Using Liquid Scintillation Analysis 26th-27th May 1994 Tokyo Japan, Packard Japan K.K, Packard Instrument Company (U.S.A.), 174-186 (1995).
- K. Terai, K. Komura : Long Term Variation on Characteristics of Germanium Detectors, Radiation Detectors and Their Uses, Proceedings of the 9th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses, 17th-19th Jan. 1995 KEK, Japan, 233-242 (1995).

報 告

山本政儀, 小村和久, 上野 馨 : テクネチウム-99 の環境移行に関する調査研究 (I), PNC-PJ1621, 受託研究成果報告書, 全112 (1995).

総 説

小村和久 : 根上隕石と放射能, いしかわ人は自然人, 9(2), 36-37 (1995).

山本政儀 : 第3章 環境試料中のプルトニウム, アメリシウム分析法, (財)日本分析センター発行「プルトニウム・アメリシウム逐次分析法解説」, 13-49 (1995).

山本政儀 : 環境中のフォールアウト超ウラン元素-表層土壌中での移動挙動-, 保健物理, 30, 163-165 (1995).

平成7年度 見学来訪・出張の記録

- 平成7. 5.16 ◎平成7年度運営委員会（於 理学部）
鹿児島大学理学部助教授（客員助教授）坂元隼雄氏研究打ち合わせ、
滋賀医科大学放射線基礎医学講座 米原英典氏、馬 吉増氏 測定のため来所
- 6.30 国立科学博物館 米田成一氏研究打ち合わせ
- 7.10, 7.31, 平成8.2.8, 北陸大学放射薬品学助教授 山田芳宗氏測定のため来所
- 7.26 日本分析センター 立川圓造氏、片山 洋氏 見学
- 8.2 東京水産大学 大橋英雄氏、学習院大学 福岡孝昭氏研究打ち合わせ
- 8.22-23 小村教授 福井大学教育学部にて集中講義
- 8.22 京都大学経済研究所教授 塚谷恒雄氏研究打ち合わせ
- 8.24-25 滋賀県琵琶湖研究所 横田喜一郎氏、上田 徹氏、近畿大学農学部 竹田 宇氏、寺村直美氏、
近畿大学理学部 寺田幸太郎氏、立命館大学理工学部助教授森崎久雄氏、奥西将之氏、日比野芳則氏、
龍谷大学理工学部 桧尾亮一氏 研究打ち合わせ
- 8.28-31 小村教授 新潟大学理学部にて集中講義
- 9.7 日本原子力研究所 中瀬吉昭氏、関 晋氏研究打ち合わせ
- 9.22-23 滋賀県琵琶湖研究所 横田喜一郎氏測定のため来所
- 9.26-27, 12.21 日本原子力研究所 長岡 鋭氏、他2名測定のため来所
- 9.29-10.10 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評価と疾病調査」（国際学術研究
代表：広大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
- 9.28-29 小村教授 富山大学理学部にて集中講義
- 10.6 フランス国立自然史博物館古人類学研究所 Dr.Ueronique MICHEL 見学
- 10.16-31 山本助教授「中央アジア・カザフスタンの環境と経済の再生計画に関する環境放射能調査（第2回）
（国際学術研究 代表：京大経済研究所 塚谷恒雄教授）のためカザフスタン共和国へ出張
- 10.27 放射線医学総合研究所環境放射生態学研究所 内田滋夫氏、田上恵子氏研究打ち合わせ
- 11.16 動力炉核燃料開発事業団 植頭康裕氏研究打ち合わせ
- 11.17 医療技術短期大学学生40名見学
- 11.20 大阪大学核物理研究センター 豊川秀訓氏研究打ち合わせ
- 12.5-8 [秋田市周辺水田土壌、森林土壌サンプリング]
- 12.20 理学部化学科3年生36名見学
- 平成8. 1.18 山梨県環境局 奥水達司氏測定のため来所
- 2.5-6 小村教授、山本助教授国際ワークショップ “International Workshop on Improvement of
Environmental Transfer Models and Parameters”（於 東京）出席
- 3.7 カナダ・チョークリバー研究所 Dr.Brown 見学
- 3.18 動力炉核燃料開発事業団 赤津康夫氏、植頭康裕氏研究打ち合わせ
- 3.27 静岡県立大学 五島康輔氏、伊吹裕子氏見学

平成8年度

《施設職員》

施設長(併)	小村和久
(教授)	
教授	小村和久
客員教授	池谷元伺(大阪大学理学部教授)
客員助教授	坂元隼雄(鹿児島大学理学部助教授)
助教授	山本政儀
助手	井上睦夫
技官	加藤岩夫
事務補佐員	中本美智代

《消耗品》

液体窒素	5,400 l
A重油	2,000 l
電気	156,649 KWH
水道	1,112 m ³

《運営委員》

(任期 平成7年5月～平成9年5月)

理学部	坂本浩	大村明雄
医学部	福田龍二	利波紀久
薬学部	正宗行人	大場義樹
工学部	上田一正	稲部勝幸
教育学部	泉長秀	

《購入備品》 科研費と受託研究費により購入

アルファ線スペクトロメーター	
TENNELEC TC256	(2台)
コンピュータ	
Macintosh Power 7600/200	(1台)
Macintosh Power Book 1400C/133	(1台)
卓上遠心機	
日立工機(株) CT5L 型	

研究論文

- M. Yamamoto, T. Tsukatani and Y. Katayama : Residual Radioactivity in the Soil of the Semipalatinsk Nuclear Test Site in the Former USSR, Health Physics, 71(2), 142-148 (1996).
- K. Shiraishi and M. Yamamoto : Internal Dose from Ingestion for Japanese Adult Males, Health Physics, 71(5), 700-704 (1996).
- M. Yamamoto, A. Tsumura, Y. Katayama and T. Tsukatani : Plutonium Isotopic Composition in Soil from the Former Semipalatinsk Nuclear Test Site, Radiochimica Acta, 72, 209-215 (1996).
- J. Kuwabara, M. Yamamoto, D. J. Assinder, K. Komura and K. Ueno : Sediment Profile of Np-237 in the Irish Sea : Estimation of the Total of Np-237 Discharged from Sellafield, Radiochimica Acta, 73-81 (1996).
- K. Komura and Y. Yamazaki : Ogoya Underground Laboratory for the Measurement of Extremely Low-Level Radioactivity, Abstracts Today International Symposium on Cosmochronology and Isotope Geoscience, January 17-20, University of Tokyo, 119-122 (1996).
- K. Komura, S. Yamazaki, T. Nakanishi, Y. Miyamoto and K. Sakamoto : Cosmogenic Nuclides in Neagari Meteorite : Proceedings of Kazuo Yamakoshi Memorial Symposium, Cosmic Dust and Related Topics, Tanashi, Tokyo : Japan:16 January, 1996, 71-83 (1996).
- M. Yamamoto, Lianmao Sha, H. Kofuji, A. Tsumura, M. Komamura, K. Yuita and S. Yamasaki : Distribution and Behavior of Transuranium Elements in Paddy Surface Soil, Nuclear Cross-Over Research International Workshop Proceedings, Improvement of Environmental Transfer Models and Parameters, February 5-6, 1996, Tokyo, Japan, 198-206 (1996).
- 橋本哲夫, 能登屋 信, 小村和久, 白井更知 : 高森遺跡関連火山灰・火砕流層からの石英粗粒子を用いた赤色熱ルミネッセンス(RTL)年代測定, 考古学と自然科学, 33, 1-15 (1996).

報告

- 山本政儀, 小村和久, 上野 馨 : テクネチウム-99の環境移行に関する調査研究(II), PNC-PJ1621 96-001, 動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書, 全80p. (1996).
- 山本政儀, 上野 馨, 天野 光 : 環境中超ウラン元素の分析法と水田土壌中の超ウラン元素移行挙動, JAERI-Review 95-024, 日本原子力研究所受託研究成果報告書, 全69p. (1996).
- 小村和久, 渡口 輝, 山崎誠二 : 旧尾小屋鉱山を利用した各種地球科学観測と辰口で観測されたラドン異常, 「天然水ラドン」専門研究会報告書, KURRI-KR-6, 47-56 (1997).

総説

- 山本政儀, 桑原 潤 : アイリッシュ海沿岸堆積物中の長半減期核種, 放医研環境セミナーシリーズNo.23, 鈴木 譲, 河村日佐男編, 「長半減期核種の環境動態と線量評価」, NIRS-M-113, 30-43 (1996).
- 小村和久 : 放射線測定におけるパソコン利用, Isotope News, 1996年3月号, 23-27 (1996).
- 小村和久 : 微弱放射能測定の重要性, 放射線医学物理, 48, 34-45 (1996).
- 谷 篤史, Jens Bartoll, 池谷元伺, 小村和久, 梶原 洋 : ESRによる石器の被熱評価と年代測定, 月刊「IONICS (アオニクス)」 22(6), 3-7 (1996).

平成 8 年 度 見 学 来 訪 ・ 出 張 の 記 録

- 平成 8. 4. 3 鹿児島大学教育学部 木下純正氏研究打ち合せ
- 4.21～22 日本原子力研究所 長岡 鋭氏, 坂本隆一氏測定のため来所
- 4.28, 5.30 金沢大学名誉教授 阪上正信氏研究打ち合せ
- 5.13, 5.20, 9.1.31 北陸大学放射薬品学助教授 山田芳宗氏測定のため来所
- 5.15 環境公害研究センター 丹羽源一氏, 中野 壽氏見学
- 6.18 ◎平成 8 年度運営委員会 (於 理学部)
鹿児島大学理学部助教授 (客員助教授) 坂元隼雄氏研究打ち合せ
- 6.17～19 大阪大学理学部教授 (客員教授) 池谷元伺氏, Jeus bartoll 氏 (ドイツ),
谷 篤史氏測定のため来所
- 6.27 琉球大学 N.P.Sukumaran 氏 (インド) 見学
- 6.28～7.8 小村教授「ロシア・日本テクネチウムセミナー」(ロシア科学アカデミー物理化学研究所) 出席
- 7.16 鹿児島大学水産学科 松本 悟氏測定のため来所
- 7.25, 9.17～18, 9.2.18～19
滋賀県琵琶湖研究所 横田喜一郎氏実験のため来所
- 7.22-25 山本助教授「放射線による長期低線量被曝の人体影響—セミパラチンスク核実験被災地区を
モデルとして—」広島国際シンポジウム (於 広島大学原爆放射能研究所) 出席
- 7.29-30, 9.3.25-26 [鋸山微弱放射能測定施設共同研究]
8. 2-3, 9.1.10～11 東京都立大学理学部教授 中原弘道氏測定のため来所
- 8.21～22 Mauuer Garcia LEON 氏 (Sevllia Univ.), 放射線医学総合研究所 田上恵子氏研究打ち合せ
- 9.10～11 島根県衛生公害研究所 吉岡勝廣氏研究打ち合せ
- 9.14～11.4 小村教授「極低レベル放射能測定に関する調査研究」(創造開発研究在外研究員) のため
欧州 6 ヶ 国へ出張
- 9.17～18 静岡大学教授 鈴木 款氏, 学生 2 名研究打ち合せ
- 9.21～10/1 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評価と疾病調査」(国際学術研究
代表: 広大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
- 10.13～14 動力炉核燃料開発事業団 清水武彦氏, Syarbaini 氏 (インドネシア) 研究打ち合せ
- 11.14 理学部化学科 3 年生 3 6 名見学
- 11.15 医学部保健学科学生 4 0 名見学
- 12.10 フィッシュントラック研究会参加者 8 名見学
- 平成 9. 1.10 中国科学院 Chai Chifoang 氏講演及び見学
- 1.11～18 小村教授 琉球大学にて集中講義
- 1.20～22 [立教大学原子炉共同利用研究]
- 3.13 愛媛県環境保全センター 安永章二氏, 二宮 久氏見学
- 3.14 琉球大学理学部 仲宗根洋子氏見学

平成9年度

《施設職員》

施設長(併)	小村 和久
(教 授)	
教 授	小村 和久
客員教授	坂元 隼雄(鹿児島大学理学部教授)
客員助教授	鈴木 款(静岡大学理学部教授)
助 教 授	山本 政儀
助 手	井上 睦夫
講師(研究機関研究員)	室山 俊浩
講師(研究機関研究員)	CHUTKE NITIN LAXMANRAO
技 官	加藤 岩夫
事務補佐員	中本 美智代
技能補佐員	中村 晶子

《消耗品》

液体窒素	11,730 ㍑
A 重油	3,000 ㍑
電 気	153,658 KWH
水 道	1,140 ㎡

《運営委員》

(任期 平成9年5月～平成11年5月)

理 学 部	坂本 浩	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	稲部 勝幸
教育学部	上田 穰一	

《購入備品》 校費と科研費により購入

アルファー線スペクトロメトリー	
TENNELEC TC256	(2台)
ラドン検出システム	(1式)
イビデン産業(株)RADON-AQCAP-CKU	
RADON-12AMP-CKU	
デュワー瓶 大阪酸素工業(株)CRIC-10	(2台)
物置 イナバ MBX-100H型	(1台)
ファクシミリ SANYO SFX-60CL(H)	(1台)
《移設備品》	
質量分析計 VG-354 東大宇宙研より1式移設	

研 究 論 文

- K. Komura : Measurement of Extremely Low-Level Radioactivity Using Ogoya Underground Laboratory. Proceedings of the 5th Low Level Counting Conference Using Liquid Scintillation Analysis. June 20-21, 1996. Pacakrd Japan K.K., 259-265(1996).
- Y. Tateda and M. Yamamoto : The Residence Time of Po-210 and Pb-210 Related to Plankton in Surface Waters off Misaki, Japan. Radioprotection - Colloques, 32 (C2) C2-163-C2-168(1997).
- J. Takada, M. Hoshi, S. Endo, M. Yamamoto, T. Nagatomo, B. I. Gusev, R. I. Rozenson, K. N. Apsalikov and J. Tchajjunusova : Thermoluminescence dosimetry of gamma rays from the fallout of the Semipalatinsk nuclear tests. Proceedings of Effects of Low-Level Radiation for Residents near Semipalatinsk Nuclear Test Site, the Second Hiroshima International Symposium, Hiroshima, July 23-25, 1996, 195-199(1997).
- M. Yamamoto and T. Tsukatani : Preliminary Results of Current Levels of Radioactive Fallout in Soil at the Semipalatinsk Nuclear Test Site. Proceedings of Effects of Low-Level Radiation for Residents near Semipalatinsk Nuclear Test Site, the Second Hiroshima International Symposium, Hiroshima, July 23-25, 1996, 201-224(1997).
- K. Shiraishi, K. Tagami, T. Ban-nai, M. Yamamoto, Y. Muramatsu, Ivan P. Los, Galina V. Phedosenko, Vitary N. Korzun, Nikolay Y. Tsigankov and Ilya I. Segeda : Daily Intakes of Cs-134, Cs-137, K-40, Th-232 and U-238 in Ukrainian Adult Males. Health Physics, 73(5) 814-819(1997).
- A. Tani, J. Bartoll, M. Ikeya, K. Komura, H. Kajiwarra, S. Fujimura, T. Kamada and Y. Yokoyama : ESR Study of Thermal History and Daiting of a Stone Tool. Appl. Magn. Reson., 13, 561-569(1997).
- S. Tonouchi, Y. Shinoda, H. Suzuki, K. Komura, Y. Takizawa : Radiation level in the Kashiwazaki Kariwa area. J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 226(1-2) 247-253(1997).

報 告

- 小村和久：金沢で行われた「放射能発見100周年記念講演会」, 保健物理, 32(1), 114(1997).
- 小村和久：ヨーロッパ6か国放射能研究事情見て歩き, 保健物理, 32(4) 415-420(1997).
- 山本政儀, 上野 馨, 天野 光：環境中の放射性核種の移行挙動に関する研究ー超ウラン元素を含む放射性核種植物等移行特性ー, JAERI受託研究報告書, 全80p. (1997).

平成9年度 見学来訪・出張の記録

平成9. 4.14-17 気象研究所 五十嵐康人氏研究打ち合せ

4.21, 5.28, 12.22 北陸大学放射薬品学助教授 山田芳宗氏測定のため来所

5.28-29, 7.30-31, 10.2.25-26, 3.18-20 三菱マテリアル 小日向氏, 富永氏 α 分析

6.9 鹿児島大学理学部教授(客員教授)坂元隼雄氏講義(於 理学部), 研究打ち合わせ

6.10 ◎平成9年度運営委員会(於 理学部)

6.10-11, 11.27 静岡大学理学部教授(客員教授)鈴木 款氏, 大野敦史氏, 大西由香氏研究打ち合わせ

6.10-11, 10.2.16-18 滋賀県琵琶湖研究所 横田喜一郎氏研究打ち合わせ

6.10 新日本気象海洋 松村 徹氏見学

7.10~12 小村教授 徳島大学にて集中講義

7.24-25, 9.19-22 [鋸山微弱放射能測定施設共同研究]

7.26 京都大学経済研究所教授 塚谷恒雄氏研究打ち合わせ

7.28 東海大学 長尾年添氏測定のため来所

8.3-6 [琵琶湖にて湖水, 湖底堆積物サンプリング]

8.7-9 関西大学工学部 荒川隆一氏他11名見学

9.28-10.11 山本助教授「旧ソ連核実験場セミバラチンスク近郊の被曝線量再構築と健康影響調査」

(国際学術研究 代表: 広大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

9.30 日本原子力研究所 柳瀬信之氏研究打ち合わせ

10.22-25 小村教授「'97ラドン国際シンポジウム」(於 福岡)出席

11.15 神戸大学理学部 森川徳敏氏見学

12.1 若狭湾エネルギー研究センター辻本 忠氏 他 電磁気調査会出席者7名見学

12.14-16 [立教大学原子炉共同利用研究]

平成10. 1.28-30 小村教授「先端技術に由来する有害物質の比較影響評価に関する国際ワークショップ」
(於 千葉)出席

2.20-21 核融合科学研究所 宇田達彦氏, 山西弘城氏, 中部電力 山崎直氏研究打ち合わせ, 見学

2.24 理学部化学科3年生39名見学

3.10 早稲田大学教授 黒沢龍平氏, 学生2名研究打ち合わせ

3.10 環境科学技術研究所 塚田祥文氏研究打ち合わせ

3.23 京都大学RIセンター 伊藤 直氏, 戸崎充男氏見学

平成10年度

《施設職員》

施設長(併)	小村和久
(教授)	
教授	小村和久
客員教授	鈴木 款(静岡大学理学部教授)
客員教授	今村 峯雄(国立歴史民俗博物館教授)
助教授	山本政儀
助手	井上睦夫
講師(研究機関研究員)	室山俊浩
講師(研究機関研究員)	佐々木圭一
技 官	加藤岩夫
事務補佐員	中本美智代
技能補佐員	中村 晶子

《消耗品》

液体窒素	12.625 ℓ
A 重油	3,000 ℓ
電 気	166.192 KWH
水 道	1,356 m ³

《運営委員》

(任期 平成9年5月～平成11年5月)

理 学 部	坂 本 浩	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	稲 部 勝幸
教育学部	上 田 穰一	

《購入備品》 校費と科研費により購入

極低バックグラウンド井戸型Ge検出器システム	
フランスEURISYS社製	
EGPC280P-15/SB99-30A-BB	(1式)
高精度台秤	
(株)エーアンドデイ HW-100KAI	(1台)
エアコン	
日立RAS-40 SJX2	(1式)

研 究 論 文

- M.Yamamoto, H.Kofuji, K.Shiraishi, Y.Igarashi : An attempt to evaluate dry deposition velocity of airborne Pb-210 in a forest ecosystem, J.Radioanal. Nucl. Chem., 227(1-2), 81-87 (1998).
- M.Yamamoto, A.Tsumura and T.Tsukatani : Current Levels of Pu Isotopes and Cs-137 at the Former Soviet Union's Semipalatinsk Nuclear Test Site, Radiochim. Acta, 81, 21-28 (1998).
- M.Yamamoto, J.Kuwabara and D.J.Assinder : Curium Isotopes and Americium-242m in Irish Sea Sediment, Radiochim. Acta, 83, 121-126 (1998).
- H.Kofuji, M.Yamamoto, K.Yokota and K.Komura : Behavior of Uranium in a Mesotrophic Lake : Lake Biwa in Japan, Proceedings of the International Workshop on Comparative Evaluation of Health Effects of Environmental Toxicants Derived from Advanced Technologies, Chiba, January 28-30, 1998, 3-13 (1998).
- K.Komura : Challenge to Detection Limit of Environmental Radioactivity, Proceedings of 1997 International Symposium on Environmental Radiation, October 20, 1997, Japan, 56-75 (1998).
- M.Yamamoto : Measurements of Long-lived Artificial Radionuclides in the Environment : Transuranium Elements ibid., 119-134 (1998).
- K.Komura, A.Toguchi and Seiji Yamazaki : Monitoring of radon activity in the tunnel and out-flow water from mining pit of former Ogoya Copper Mine and radon anomaly related to earthquake of September 10, 1996 at Komatsu area, Japan, Proceedings of the 7th Tohwa University International Symposium Radon and Thoron in the Human Environment, published by World Scientific Publishing Co.Pte.Ltd., 150-156 (1998).
- M.Yamamoto, K.Komura and M.Sakanoue : Long-Lived Radon Daughters, Pb-210 and Po-210, in Volcanic Products and Hot and Mineral Spring Waters, ibid., 485-502 (1998).
- Y.Yamada, K.Yasuike, M.Itoh, N.Kiriyama, K.Komura, K.Ueno : Carbon-14 dating of tree rings for tritium measurement, J.Radioanal. Nucl. Chem., 227(1-2), 37-41 (1998).
- 寺井邦雄, 小村和久, 山本政儀, 中沢正治, 浜田達二 : 環境中におけるCs-137の挙動—雲仙普賢岳火砕流でのCs-137の再浮遊—, 「環境中微量物質動態」専門研究会報告書, KURRI-KR-18, 129-138 (1998).

著 書

今泉 洋, 上田一生, 澤田 清, 田口 茂, 永長幸雄, 長谷川 淳, 本浄高治, 山田明文, 山本政儀 他7名 共著 : 基礎分析化学, (株)化学同人発行 (1998).

平成10年度 見学来訪・出張の記録

- 平成10. 4. 9 気象研究所 青山道夫氏 研究打ち合せ
 5.28, 6.10, 7.10, 11.20, 11.1.27, 2.8
 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, 5.25, 7.14-15, 9.18-19, 10.22-23, 11.12-13, 12.24-25
 三菱マテリアル 小日向正好氏, 富永弘美氏 α 分析のため来所
 4.21 名古屋大学太陽地球環境講座 増田公明氏 研究打ち合わせ
 5.14 大阪大学理学部 松岡健次氏 研究打ち合わせ
 5.21 動燃東濃地科学センター 浜 克宏氏, 元 放射線医学総合研究所 阿部史朗氏 研究打ち合わせ
 5.22 愛媛県立衛生環境研究所 二宮千秋氏 研究打ち合わせ
 日本原子力研究所 桑原 潤氏 研究打ち合わせ
 5.26-28 核融合科学研究所 山西弘城氏 測定のため来所
 5.28-29, 10.29-30
 日本分析センター 及川真司氏 研究打ち合わせ
 6.11-12, 7, 9
 滋賀県琵琶湖研究所 横田喜一郎 氏研究打ち合わせ
 6.23-24 Dr.A.N.GARG, University of Roorkee (INDIA) 研究打ち合わせ
 6.26 石川県保健環境センター 泉 善博氏, 内田賢吾氏 研究打ち合わせ
 6.29-30 小村教授 名古屋大学工学部にて集中講義
 7. 9 静岡大学理学部教授 (客員教授) 鈴木 款氏 講義 (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
 7. 9 ◎平成10年度運営委員会 (於 理学部)
 7.14 徳島大学 桑折範彦氏, Dr. Marzuki HJ.Ismail, University Putra (MALAYSIA) 研究打ち合わせ
 7.27-28 気象研究所 青山道夫氏, 五十嵐康人氏 研究打ち合せ
 7.31 東北大学サイクロトロラジオアイソトープセンター 中村尚司氏 研究打ち合わせ
 8. 3 放射線医学総合研究所 下 道国氏 研究打ち合わせ
 8. 5 静岡大学理学部 麻田拓矢氏, 学生3名 研究打ち合わせ
 8. 7 日本原子力研究所 Dr. R. Bros, 柳瀬信之氏 見学
 8.17-18 [琵琶湖にて湖水, 湖底堆積物サンプリング]
 8.31 小村教授 福井大学教育学部にて集中講義
 9.11-26 山本助教授「旧ソ連核実験場セミパラチンスク近郊の被曝線量再構築と健康影響調査」
 (国際学術研究 代表: 広大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
 9.24-26 Dr.Rafael Garcia-Tenorio, University of Seville (SPAIN) 研究打ち合わせ
 9.28-10. 3
 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
 10.14-15 専修大学文学部 太田陽子氏 研究打ち合わせ
 11.16 医学部保健学科学生 40 名見学
 11.27 コニカ 榛葉 悟氏 研究打ち合わせ
 12. 9 理学部化学科 3 年生 40 名見学
 平成11. 1.25 水産庁中央水産研究所 鈴木頼介氏 研究打ち合わせ
 2. 4 長崎大学環境科学部教授 吉川 勲氏, 高辻俊宏氏 研究打ち合わせ
 2.22 金沢大学名誉教授 阪上正信氏 研究打ち合わせ
 3.19-26 小村教授 バンドン工科大学で石灰岩洞窟試料年代測定研究打ち合わせのためインドネシアへ出張

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