

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 2001.4～2002.3

Annual Progress Reports of
Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University

目 次

巻頭言

低レベル放射能実験施設の廃止と自然計測応用研究センターでの
新たな発展を期待して

(前理学部長・樋渡保秋) 3

研究報告

神戸(CK4)隕石の宇宙線生成核種 4

JCO 敷地内土壤中の誘導放射性核種による東海村臨界事故中性子フルエンスの評価 ... 6

土壤中の長寿命核種放射性の分布・移行研究へのフォールアウト ^{210}Pb への利用 10

琵琶湖水系における宇宙線生成核種 ^{22}Na の物質動態 12

事務記録

平成 13 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 14

低レベル放射能実験施設の廃止と自然計測応用研究センター での新たな発展を期待して

自然科学研究科（理学部）教授 樋渡保秋

金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設（以下では英名のLLRLを用いる）は平成14年3月末で廃止されました。同施設の研究は、同年4月から発足した新研究センタ「自然計測応用研究センタ」で引き続き行なわれます。新センターは理学部、工学部の出身教官により環境を主キーワードにして関連する基礎的および応用研究を行なうことになっておりますが、本センター新設に際して、文部科学省との折衝においても、牽引役を担ったのがLLRLであることは誰もが認めるところです。小生は理学部長（当時）として何度も本件に関して文部科学省に赴いたのでこのことは自信を持って証言できます。LLRLはその研究内容がユニークであり、且つ歴史もあり、世界一の研究が行なえる環境を自らが築いてきました。尾小屋（金沢から約30km、石川県小松市）の地下トンネル実験場はその一つであり、ここで行なわれる極低レベル放射能測定は世界のどこも真似できない程となっています。巨額の研究費をつぎ込んで行なう研究（所）ではなく、少額（とはいえども相応の予算が必要であることはいうまでもありませんが）の研究費で世界の研究レベルに達するには、人並み以上の努力と工夫が必須です。LLRLはそれを今日まで行なってきました。東海村の原子力事故調査で活躍されたことは有名ですし、それをまとめた報告がジャーナルの特別号として出版され、LLRLの名が世界中に知れ渡りました。まことにタイムリーな研究成果と言えます。事故自体そもそもが大変恐ろしいものですが、LLRLの存在がなければ一体何処の誰があその事故の調査（科学的な決着）を成すことが出来たでしょうか。本事故に関する調査団代表者としてLLRL小村久和教授の深夜を問わずに活躍されたご尽力に改めて敬意を表したいと思います。このような本学が誇れる研究組織の一つが、今また新しい研究センターの中に入り、従来にも増して活躍されることと確信しております。少ない予算でもビッグサイエンスが可能であることを一つ一つ示せば多くの研究者に勇気と希望を与えること間違いなしでしょう。期待しております。

神戸 (CK4) 隕石の宇宙線生成核種

Cosmogenic Radionuclides in the recently fallen Kobe (CK4) Meteorite

[はじめに] 1999 年 9 月 26 日、兵庫県神戸市に落下した神戸 (CK4) 隕石は、始源的で非常に珍しいタイプの隕石であり、その落下直後から多くの分野にわたる研究がおこなわれた。当施設においては、これまで根上隕石、つくば隕石の γ 線測定をおこない、新たな核種の発見および落下前の隕石原型に重要な知見をもたらしてきた。本研究では、神戸隕石の最大破片 (fragment-A, ~ 65 g) を用い、宇宙線生成核種の検出を目的とした極低バックグラウンド γ 線測定を適用した。

以下にその結果および考察を述べる。

[γ 線測定] γ 線測定は、尾小屋地下測定室において落下 21 時間後からおよそ 92 時間にわたりおこなわれた。その結果、 ^{24}Na ($t_{1/2} = 15.0$ h), ^{28}Mg (20.9 h), ^{43}K (22.3 h), $^{44\text{m}}\text{Sc}$ (2.44 d), ^{47}Sc (3.35 d), ^{52}Mn (5.59 d), ^{56}Ni (5.9 d), ^{48}V (16.8 d), ^{51}Cr (27.8 d), ^7Be (53.3 d), ^{58}Co (70.8 d), ^{56}Co (77.3 d), ^{46}Sc (83.8 d), ^{57}Co (272 d), ^{54}Mn (312 d), ^{22}Na (2.60 y), ^{60}Co (5.26 y), ^{44}Ti (60.4 y) および ^{26}Al (7.2×10^5 y) の 19 種の宇宙線生成核種が検出された。

[新たな核種の検出] 落下直後より測定が開始されたことから、これまで隕石に報告のない核種の検出に注目された。Fig. 1 に測定開始からの γ 線スペクトル (1300 ~ 1400 keV) の移り変わりを示す。測定開始より 433 分後には ^{48}V (1312 keV, 97.5%) (+ ^{48}Sc , 100%) と ^{24}Na (1364 keV, 100%) のピークが明らかで、さらに 1433 分後には ^{60}Co (1332 keV, 100%), ^{28}Mg (1342 keV, 52.6%) および ^{57}Ni (1378 keV, 81.7 %) のピークが確認された。その短い半減期から、 ^{28}Mg , ^{24}Na , ^{57}Ni は飽和値に達していよう。 ^{24}Na , ^{28}Mg さらには ^{43}K (372 keV, 87%) のピークの伸びは計算値と一致した一方で (ばらつきの大きい場合があったが), ^{57}Ni に関しては、天然の ^{214}Bi (1378 keV, 3.9%) の寄与も考えられ、これが上限値とみなせよう。

[落下前の隕石の原型] 中性子捕獲反応生成核種、 ^{60}Co は落下前の隕石のサイズを探る指標核種として用いられてきた。神戸隕石の ^{60}Co (~ 1 dpm/kg) といった低い値は、地球への落下前のサイズが小さかったこと、または表面近くに位置していたことを反映する。 ^{54}Mn (64 dpm/kg), ^{22}Na (74 dpm/kg), ^{26}Al (38 dpm/kg) といった核破砕反応生成核種の濃度は、これまでに報告のあるコンドライト隕石に比較し、小さい値を示す。一般に宇宙空間での宇宙線照射年代が短いとこれら核種濃度が低いとされるが、神戸隕石の比較的長い照射年代 ($22 \sim 56 \times 10^6$ y) はこれを支持しない。 ^{60}Co 同様、地球への落下前のサイズが小さかったことを反映していると考えられる。

[太陽活動の影響] 神戸隕石とつくば隕石の核破砕反応生成核種濃度を、Fig. 2 に比較した。 ^{44}Ti を例外とし、その濃度比 (r) は半減期が短くなるほど小さい傾向がみられる ($r = 0.2 \sim 0.9$)。神戸隕石は太陽活動が最大期に、逆につくば隕石は最小期近く (1996. 1. 8) に落下していることから、 ^{48}V , ^{51}Cr , ^{58}Co , ^{56}Co , ^{46}Sc , ^{57}Co , ^{54}Mn ($(t_{1/2} < 1$ y ; $r < 0.7$) および ^{22}Na ($t_{1/2} = 15$ h ; $r = \sim 0.2$) にみられる低い濃度比は、それぞれ地球に落下する 0.01~1 年および 2~3 日前の太陽活動の情報を記録していよう。

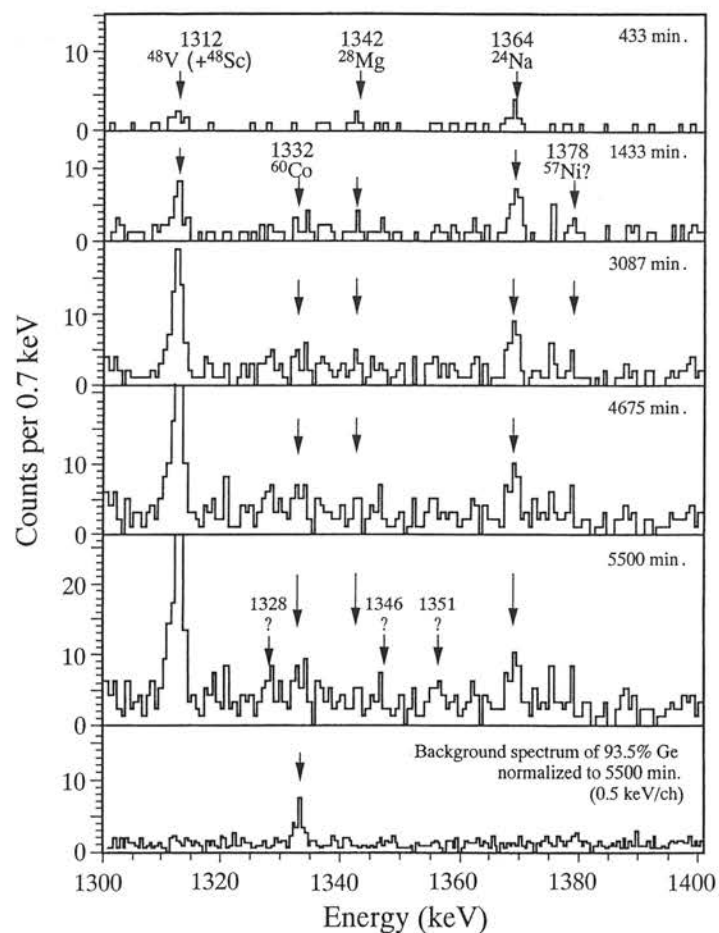


Fig. 1 Gamma-ray spectra of the 1300 ~ 1400 keV region and background spectrum of the Ge-detector used in this work.

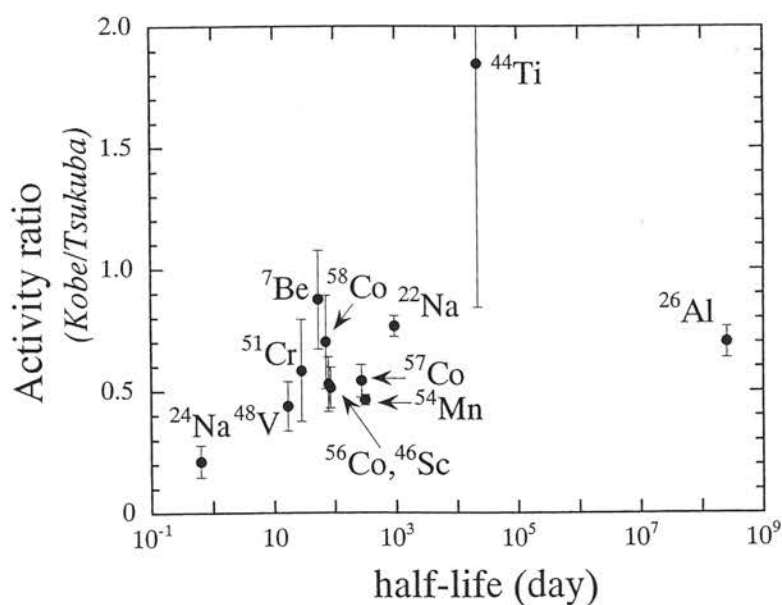


Fig. 2 Activity ratios (Kobe frag.-A/Tsukuba frag. No. 13) of 12 cosmogenic nuclides are plotted as a function of their half-lives (^{24}Na data of Tsukuba is from frag. No. 1).

[本研究内容は 2000 年南極隕石シンポジウムで一部発表, Geochim. J. (2002) 36, 333-340 に掲載された.]

JCO 敷地内土壌中の誘導放射性核種による東海村臨界事故中性子フルエンスの評価

Estimation of neutron fluence at Tokai-mura criticality accident by using induced radionuclides in soils collected 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である転換試験棟において、日本初となる臨界事故が発生した。物理的な破壊を伴わなかったため、 ^{235}U の核分裂生成物の漏出は少なく、主に中性子が漏洩したことが本事故の特徴である。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、日本における過去最悪の原子力事故となった。事故後、科学技術庁の臨界事故調査委員会が設置され、臨界事故の影響の調査が行われた。1999 年 12 月 24 日に事故調査委員会の最終報告が発表され、ホールボディカウンター、フィルムバッジ、モニタリングポストのデータなどを利用して JCO 社員ならびに住民の被曝線量評価がなされた。しかし、肝心の周辺住民の被曝線量評価は、十分な実測がなされないまま、JCO 敷地周辺のモニタリングポストのデータと経験式を用いて簡潔に評価したにすぎない。また評価法の違いにより、後の報告では被曝線量値が半減したこともあり、行政側の線量評価に対する信頼性を疑問視している周辺住民も多い。事故調査委員会の信頼性を確認するためにも、第三者的な立場からの線量評価が重要である。

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る。事故により漏洩した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測定することが、中性子の被曝線量推定の大きな手がかりとなる。得た実測値は、中性子輸送計算を行う際に有用な情報となる。広島・長崎原爆から 50 年以上が経過しているにもかかわらず、中性子誘導放射性核種の実測値を得ようという試みが現在も行われている状況を考えると、本事故においても時間の経過と共に壊変消滅していく中性子誘導放射性核種の実測値を残すことは重要であると考えられる。

本研究では、非破壊 γ 線スペクトロメトリーにより、JCO 敷地内にある土壌、コンクリートおよび化学試薬試料から中性子誘導放射性核種の実測値を得た。広島・長崎原爆と同様に、速中性子によって誘導される放射性核種の実測値は、今後の事故による中性子被曝線量再評価の際に、貴重なデータとなる。そこで、測定の妨害となる核種の除去のため目的元素について化学分離・精製を行い、低バックグラウンド井戸型 HP-Ge 検出器を用いて、できる限り多数のデータを得ることを試みた。また、MCNP を用いた中性子輸送計算を行い、計算値と実測値との比較を行った。

[試料採取と γ 線スペクトロメトリー]

土壌試料の採取地点を図 1 および図 2 に示す。第 1 次調査では、 $50\text{mm} \times 5\text{cm}$ 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 ($T_{1/2}=14.96\text{h}$) や ^{140}La ($T_{1/2}=40.27\text{h}$) の存在を考慮して、試料採取後、未処理のまま $60\text{mm} \times 37\text{mm}$ 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、 2mm のふるいにかけて、乳鉢を用いて均質化した。 $60\text{mm} \times 22\text{mm}$ 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 ($T_{1/2}=83.82\text{d}$) や ^{59}Fe ($T_{1/2}=44.50\text{d}$) などの比較的寿命が長い核種の定量を行った。第 2 次調査では、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、 $47\text{mm} \times 10\text{cm}$ 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 $47\text{mm} \times 30\text{cm}$ 採

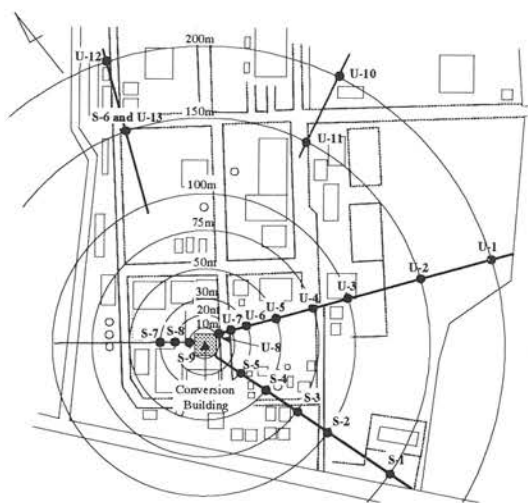


図1 第一次 JCO 敷地内調査時の土壌
試料採取地点

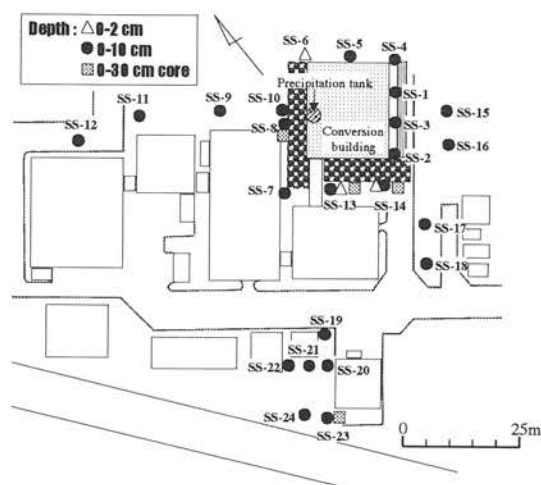


図2 第二次 JCO 敷地内調査時の土壌
試料採取地点

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 のふるいをを用いて篩別した。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 半導体検出器を用いて、各誘導放射性核種の濃度を 2 日間ずつ測定した。沈殿槽から 2.2 m の地点からコンクリートブロックを採取した。コンクリートブロックは 12 試料に分割し、砕いて均質化し、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。沈殿槽から南東約 65 m に位置する湿式試験棟内から化学試薬 21 試料を採取した。試薬は処理を行わず、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。立教大学原子炉にて中性子放射化分析を行うことにより、各試料の安定元素を定量した。

[中性子誘導放射性核種の濃度とフルエンス評価]

γ 線スペクトロメトリーにより得た中性子誘導放射性核種比放射能の結果の一部を表 1 に示す。土壌、コンクリート、試薬試料から、熱中性子誘導放射性核種を 19 核種 (^{24}Na , ^{46}Sc , ^{51}Cr , ^{59}Fe , ^{60}Co , ^{65}Zn , ^{82}Br , ^{85}Rb , ^{85}Sr , ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{103}Ru , $^{110\text{m}}\text{Ag}$, ^{122}Sb , ^{134}Cs , ^{140}La , ^{141}Ce , ^{152}Eu , および ^{154}Eu)、速中性子誘導核種を 2 核種 (^{54}Mn , ^{58}Co) を検出し、定量した。原子炉中性子および核分裂スペクトルの反応断面積を用いて、比放射能から暫定的に熱中性子、熱外中性子および速中性子フルエンスを見積もった。沈殿槽からの距離に対して中性子フルエンスをプロットしたものを図 3 に示す。これらの、約 28 個の比放射能実測値および暫定的に評価した中性子フルエンスは、中性子輸送計算に有用な情報を与えると考える。

表 1 土壌試料中の誘導放射性核種の比放射能

Sampling points	Specific activities (Bq/g element)			
	$^{46}\text{Sc}/\text{Sc}$	$^{59}\text{Fe}/\text{Fe}$	$^{60}\text{Co}/\text{Co}$	$^{54}\text{Mn}/\text{Fe}$
SS-1	290 $\pm$ 20	0.055 $\pm$ 0.009	23 $\pm$ 5	No detection
SS-2	450 $\pm$ 20	0.12 $\pm$ 0.01	42 $\pm$ 7	No detection
SS-3	460 $\pm$ 20	0.11 $\pm$ 0.01	31 $\pm$ 5	No detection
SS-4	230 $\pm$ 20	0.077 $\pm$ 0.010	18 $\pm$ 6	No detection
SS-5	540 $\pm$ 20	0.14 $\pm$ 0.01	42 $\pm$ 5	No detection
SS-6	880 $\pm$ 40	0.23 $\pm$ 0.01	57 $\pm$ 8	No detection
SS-7	2420 $\pm$ 50	0.56 $\pm$ 0.02	122 $\pm$ 7	0.0073 $\pm$ 0.0018
SS-8	3990 $\pm$ 70	1.01 $\pm$ 0.03	197 $\pm$ 10	0.028 $\pm$ 0.004
SS-9	1920 $\pm$ 50	0.48 $\pm$ 0.02	121 $\pm$ 11	No detection
SS-10	5480 $\pm$ 10	1.49 $\pm$ 0.04	309 $\pm$ 14	0.039 $\pm$ 0.005

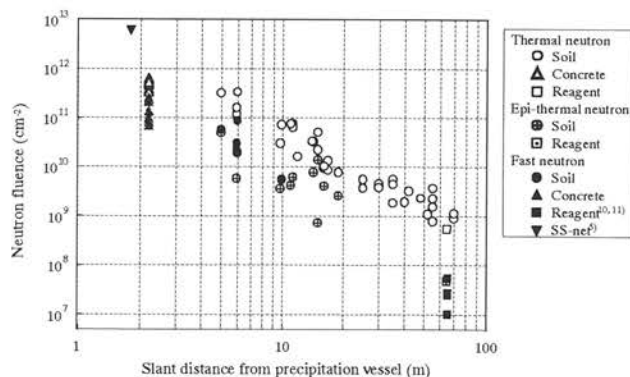


図3 誘導放射性核種の比放射能から評価した
中性子フルエンス

[土壌中の低レベル ^{54}Mn の定量]

非破壊 γ 線スペクトロメトリーでは、検出した速中性子誘導放射性核種の種類が少ない (^{54}Mn , ^{58}Co) うえに、検出した試料の数も少ない。速中性子のほうが熱中性子よりも被曝線量に大きく寄与するため、速中性子により生成する核種のデータは重要である。本研究では、沈殿槽から 10 m 以内の 4 地点の土壌試料および 2.2 m のコンクリート試料でのみ検出した ^{54}Mn に注目し、土壌中の妨害元素を除去することでより多くの地点における検出を試みた。

^{835}Mn の放出する 834.8 keV の γ 線とほぼ同じエネルギーを持ち、 ^{835}Mn 検出の最大の妨害となる、 ^{228}Ac の親核種である ^{228}Ra や、コンプトン散乱により妨害となる ^{60}Co や ^{40}K などを除去し、Mn を単離するための化学分離法をトレーサー実験により構築した。図 4 にその分析スキームを示す。開発した化学分離法と、尾小屋地下測定室の低バックグラウンド井戸型 Ge 検出器を組み合わせることにより、沈殿槽から 20 m 以内の 9 試料で ^{54}Mn を検出することができた。SS-14 試料の化学分離前の非破壊 γ 線測定および化学分離後の γ 線測定のスペクトルを図 5 に示す。非破壊測定では、 ^{228}Ac に妨害されて ^{54}Mn を検出できなかったが、化学分離後は明瞭な ^{54}Mn のピークを得ることができた。得た ^{54}Mn の比放射能を表 2 に示す。

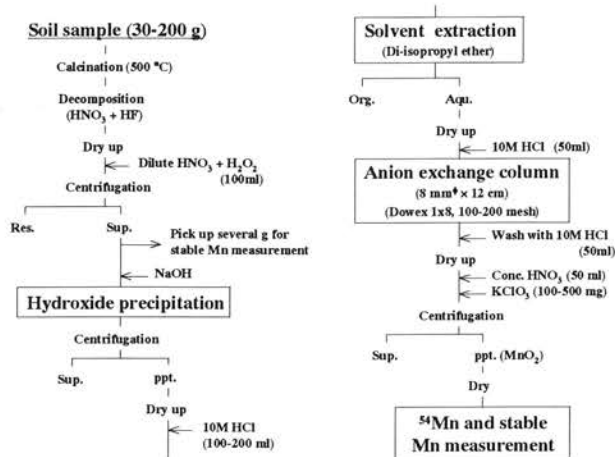


図 4 土壌中の低レベル ^{54}Mn 測定のための分離スキーム

表 2 化学分離法と低バックグラウンド Ge 検出器を用いて測定した JCO 土壌中の ^{54}Mn 濃度

Sampling points	$^{54}\text{Mn}/\text{Fe}$ specific activity (mBq/g-Fe)	
	Radiochemical	Non-destructive
SS-1	0.47 ± 0.07	No detection
SS-2	1.19 ± 0.13	No detection
SS-3	2.6 ± 0.8	No detection
SS-4	0.26 ± 0.05	No detection
SS-5	1.01 ± 0.15	No detection
SS-6	3.33 ± 0.43	No detection
SS-7	No measurement	7.3 ± 1.8
SS-8	30.6 ± 2.5	28.1 ± 4.1
SS-9	6.52 ± 0.61	No detection
SS-10	38.2 ± 2.7	38.9 ± 5.3
SS-13	8.1 ± 0.9	No detection
SS-14	5.91 ± 0.53	No detection
S-9	No measurement	75.4 ± 4.6

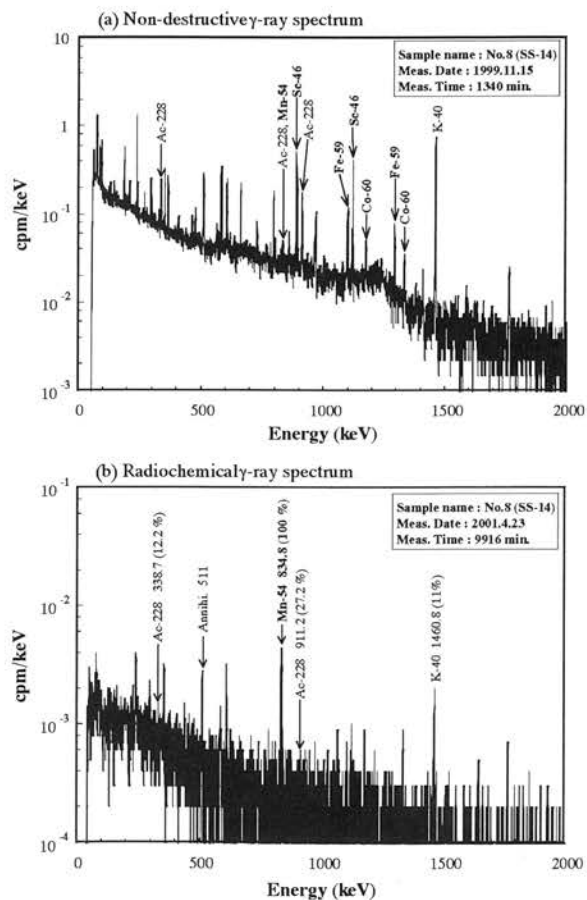


図 5 非破壊 γ 線スペクトルと化学分離後の γ 線スペクトルの比較

【MCNP を用いた中性子輸送計算】

MCNP を用いて、中性子輸送計算を行った。転換試験棟および周辺の建物の構造および化学成分を実際に近い形で計算に組み入れ、沈殿槽から中性子を発生させた。発生させる中性子は 1×10^9 個とした。各土壌試料採取地点に $50 \text{ cm}^{\Phi} \times 5 \text{ cm}$ の大きさで検出部を配置し、モンテカルロ計算により入射する中性子の数とエネルギーを記録した。記録した中性子数とエネルギーから、熱中性子、熱外中性子、中速中性子、速中性子および全中性子のフルエンスを計算し、実測値から得た値と比較した。比放射能実測値と中性子輸送計算から得た各地点の中性子フルエンスを表 3 に示す。熱中性子、熱外中性子、速中性子とも計算と実測値は 3~4 倍の範囲内でよく一致しているといえる。

中性子フルエンスの方向依存性を調べるために、建物は転換試験棟のみを考慮し、沈殿槽から 16 方位にある 18 m の位置に $50 \text{ cm}^{\Phi} \times 5 \text{ cm}$ の大きさで検出部を置き、中性子輸送計算を行った。熱中性子、熱外中性子、中速中性子、速中性子および全中性子の方向分布を図 6 に示す。最も方向依存性がある速中性子でも、最大と最小の差は 4 倍程度であり、転換試験棟周辺の明確な方向依存性を認めることはできなかった。

表 3 MCNP を用いて評価した中性子フルエンス

Sampling points	Neutron fluence (cm^2)				
	Thermal neutron	Epithermal neutron	Intermediate neutron	Fast neutron	Total neutron
SS-1	$(1.11 \pm 0.08) \times 10^{10}$	$(1.55 \pm 0.08) \times 10^9$	$(7.6 \pm 0.5) \times 10^8$	$(4.8 \pm 0.5) \times 10^8$	$(1.39 \pm 0.08) \times 10^{10}$
SS-2	$(2.9 \pm 0.2) \times 10^{10}$	$(4.4 \pm 0.1) \times 10^9$	$(3.5 \pm 0.1) \times 10^9$	$(2.4 \pm 0.1) \times 10^9$	$(4.0 \pm 0.2) \times 10^{10}$
SS-3	$(2.1 \pm 0.1) \times 10^{10}$	$(3.0 \pm 0.1) \times 10^9$	$(2.07 \pm 0.09) \times 10^9$	$(1.54 \pm 0.09) \times 10^9$	$(2.8 \pm 0.1) \times 10^{10}$
SS-4	$(1.4 \pm 0.1) \times 10^{10}$	$(2.00 \pm 0.09) \times 10^9$	$(1.08 \pm 0.06) \times 10^9$	$(7.4 \pm 0.6) \times 10^8$	$(1.8 \pm 0.1) \times 10^{10}$
SS-5	$(3.7 \pm 0.2) \times 10^{10}$	$(5.1 \pm 0.1) \times 10^9$	$(3.5 \pm 0.1) \times 10^9$	$(2.6 \pm 0.1) \times 10^9$	$(4.8 \pm 0.2) \times 10^{10}$
SS-6	$(9.1 \pm 0.3) \times 10^{10}$	$(1.47 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(1.04 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(7.5 \pm 0.2) \times 10^9$	$(1.24 \pm 0.03) \times 10^{11}$
SS-7	$(1.13 \pm 0.04) \times 10^{11}$	$(1.93 \pm 0.03) \times 10^{10}$	$(1.54 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(1.32 \pm 0.03) \times 10^{10}$	$(1.61 \pm 0.04) \times 10^{11}$
SS-8	$(2.95 \pm 0.06) \times 10^{11}$	$(5.70 \pm 0.05) \times 10^{10}$	$(5.02 \pm 0.04) \times 10^{10}$	$(5.44 \pm 0.06) \times 10^{10}$	$(4.56 \pm 0.06) \times 10^{11}$
SS-9	$(4.6 \pm 0.2) \times 10^{10}$	$(6.8 \pm 0.2) \times 10^9$	$(4.4 \pm 0.1) \times 10^9$	$(2.17 \pm 0.01) \times 10^9$	$(5.9 \pm 0.2) \times 10^{10}$
SS-10	$(2.89 \pm 0.06) \times 10^{11}$	$(5.80 \pm 0.05) \times 10^{10}$	$(5.23 \pm 0.05) \times 10^{10}$	$(5.31 \pm 0.06) \times 10^{10}$	$(4.53 \pm 0.06) \times 10^{11}$
SS-13	$(9.8 \pm 0.3) \times 10^{11}$	$(1.47 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(1.02 \pm 0.02) \times 10^{10}$	$(6.6 \pm 0.2) \times 10^9$	$(1.29 \pm 0.03) \times 10^{11}$
SS-14	$(6.3 \pm 0.2) \times 10^{10}$	$(1.03 \pm 0.02) \times 10^9$	$(7.8 \pm 0.2) \times 10^8$	$(6.0 \pm 0.2) \times 10^8$	$(8.7 \pm 0.2) \times 10^{10}$
S-9	$(3.87 \pm 0.07) \times 10^{11}$	$(8.22 \pm 0.06) \times 10^{10}$	$(7.52 \pm 0.05) \times 10^{10}$	$(8.08 \pm 0.07) \times 10^{10}$	$(6.25 \pm 0.07) \times 10^{11}$

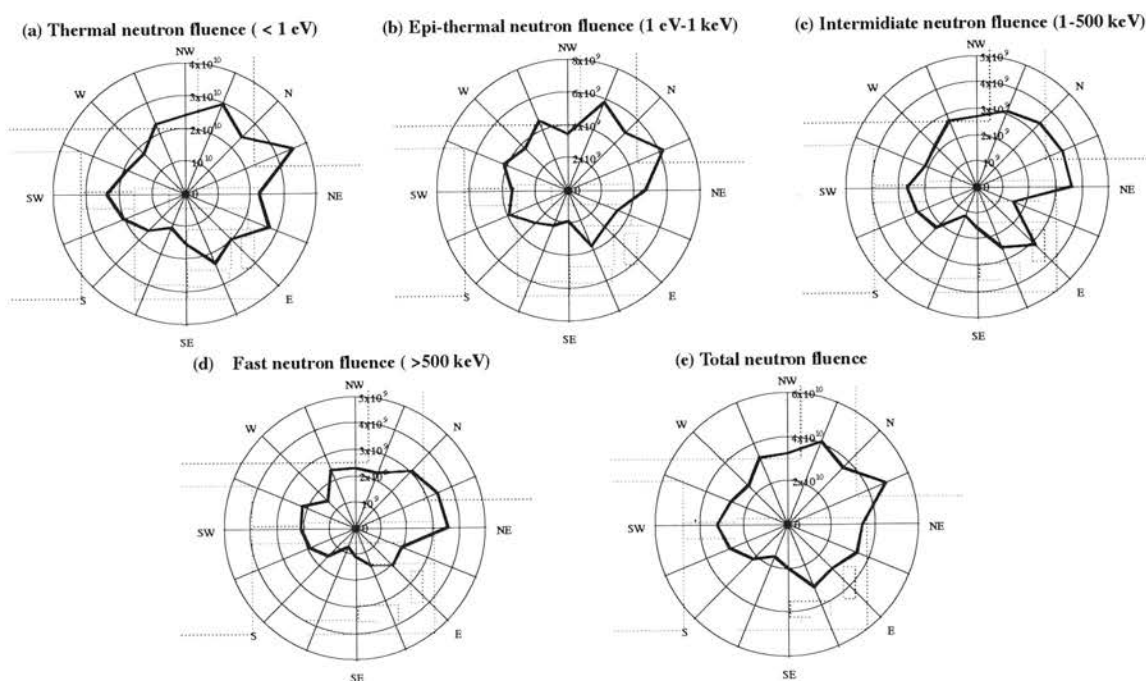


図 6 MCNP を用いて評価した転換試験棟周辺の中性子フルエンスの方向依存性

[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 44 回放射化学討論会において発表され、J. Radioanal. Nucl. Chem., **254** (2002) 249 ならびに J. Radioanal. Nucl. Chem., **255** (2002) 359 に掲載された。]

土壤中の長寿命核種放射性の分布・移行研究へのファールアウト ^{210}Pb 利用
Fallout ^{210}Pb as Tools for Studying Distribution and Transport of Man-made
Long-lived Radionuclides in Terrestrial Environment

陸上環境に限定すると、大地、すなわち土壤がファールアウト核種の最大のリザーバーであり、核種移行過程の重要な媒体となる。特に人工の長寿命放射性核種に対しては、長期間、食物、飲料水及び人体移行への汚染源となる。

ファールアウト核種には、人工放射性核種以外に地表より大気に拡散したラドン²²²の放射壊変により生成する半減期 (22.26 y) の長い ^{210}Pb があり、大気降下物として地表に降下蓄積している。この核種は、水中の粒子の鉛直・水平方向の輸送、生物地球化学的プロセス解明のトレーサー、及び堆積速度評価など主に水圏環境のトレーサーとして多様されてきた。しかし、陸上環境においては、長期観測データが蓄積されてはいるが、大気エアロゾルの滞留時間の評価などその利用は制限されている。我々は、これまでに数多くの土壤について、 ^{137}Cs や $^{239,240}\text{Pu}$ と共に excess- ^{210}Pb を測定し、全蓄積量の $^{137}\text{Cs}/\text{excess-}^{210}\text{Pb}$ 放射能比及び深度分布を検討してきた。本研究では、 ^{137}Cs や $^{239,240}\text{Pu}$ の蓄積量の空間的分布及び土壤中でのこれら核種の滞留時間に関して、excess- ^{210}Pb がこれら核種の分布や移行挙動にどのような制約をもたらすかを検討したので報告する。

[試料と実験]

石川県、滋賀県琵琶湖周辺、及び秋田県で、人為的攪拌がないと思われる森林や神社等で 25-30cm 深さの土壤を採取し、乾燥、粉碎、2mm 篩分け、均一化した。各試料 50-70g を一定容器に入れ、 γ 線スペクトロメトリーにより ^{210}Pb 、 ^{226}Ra (by ^{214}Bi) 及び ^{137}Cs を定量した。測定した ^{210}Pb から ^{226}Ra を差し引いた残りの成分を excess- ^{210}Pb (以後、単に ^{210}Pb) として評価した。滞留時間の評価には、降下歴が既知の秋田で採取した 45cm 深さのコアー土壤(森林)を用いて検討した。 $^{239,240}\text{Pu}$ は化学分離・精製後、 α 線スペクトロメトリーにより定量した。

[結果と考察]

石川県(8 地点+LLRL 周辺 5 地点、計 13)、琵琶湖周辺(12 地点、計 19)、及び秋田県(7 地点、計 7) で採取した土壤についての ^{137}Cs と ^{210}Pb 蓄積量の関係を Fig. 1 に、またそれらを纏めた結果を Fig.2 に示す。蓄積量は採取地点ごとに大きく変動するが、 ^{137}Cs と ^{210}Pb の蓄積量の間には強い相関が認められる。 ^{137}Cs と ^{210}Pb の発生源は異なるが、地表への降下量の空間的分布は良く似ていることを示唆する。降水量や地理的な違いなど更に検討すべき課題も残されているが、 ^{137}Cs などの核種の蓄積量の空間的分布の規格化に利用できるのではないと考えている。次に、深度分布の結果を Fig.3 に示すが、何れの核種も表層下 10cm までに大部分が蓄積されている。Bunzl 等が用いたコンパートメントモデル(Fig. 4)を適用して各層でのそれぞれの核種の滞留半減期を評価した結果を Fig.5 に示した。このモデルは、移行プロセスについての情報は提供しないが、定量的に核種間の移行速度の比較を可能にする。 ^{137}Cs 、 $^{239,240}\text{Pu}$ 、 ^{210}Pb 共に 10cm までは、35-80 年の長い滞留半減期を示すが、10cm のバリアーを超えると急に短い滞留半減期を示す。このような傾向は、ドイツの森林土壤でも見出されており、土壤との結合(吸着)以外に表層土壤中の有機物(錯形成)、菌糸類 への取り込みなどの関与が考えられる。いずれにしても、 ^{210}Pb の滞留半減期が ^{137}Cs や $^{239,240}\text{Pu}$ のそれと大差ないことから、性質の異なる環境土壤間の長期核種固定能力比較の指標として ^{210}Pb を使用できると考える。

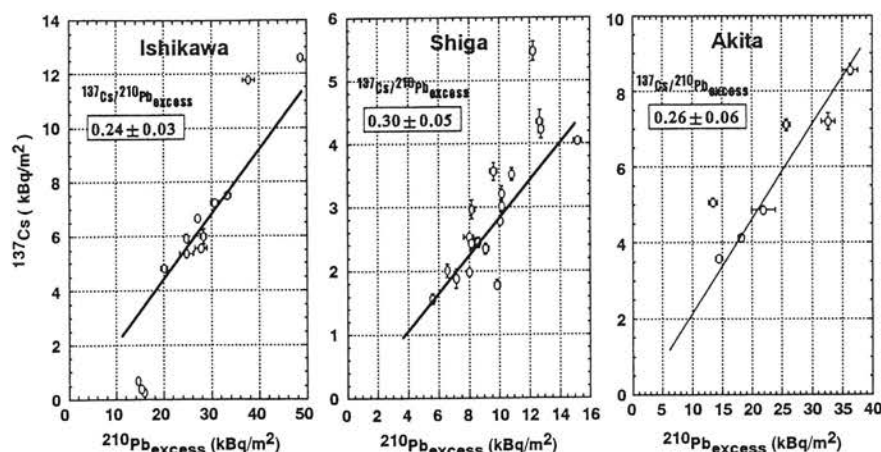


Fig. 1 Plots of Cs-137 versus excess-210Pb in soil from each area.

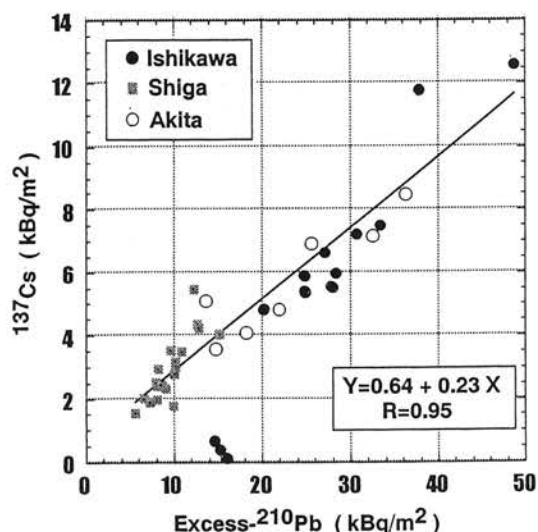


Fig. 2 Comparison of Cs-137 and excess-Pb-210 inventories in soil from all areas studied.

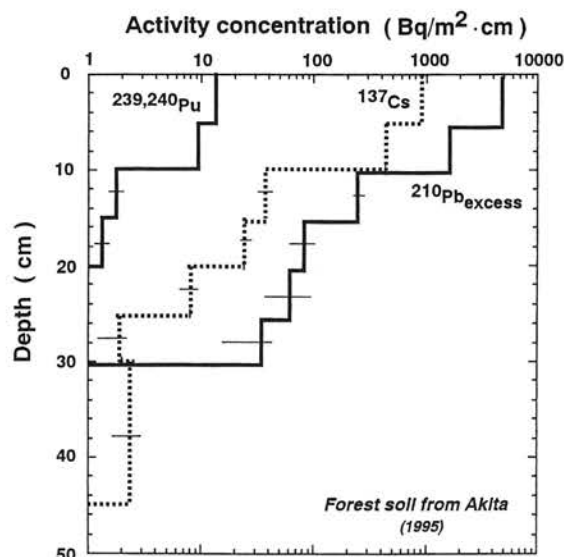


Fig. 3 Depth profile of each radionuclide in soil at a forest from Akita Pref.

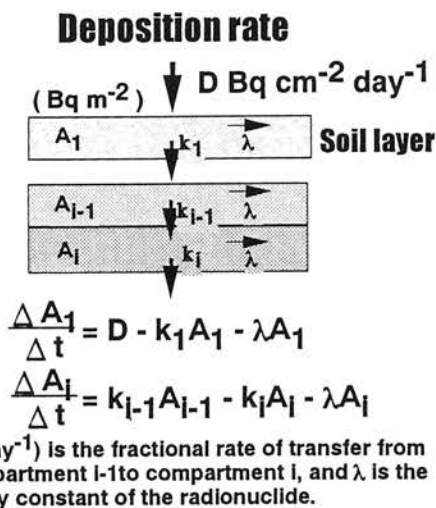


Fig. 4 Compartment model for evaluating the residence half-times of each radionuclide in soil

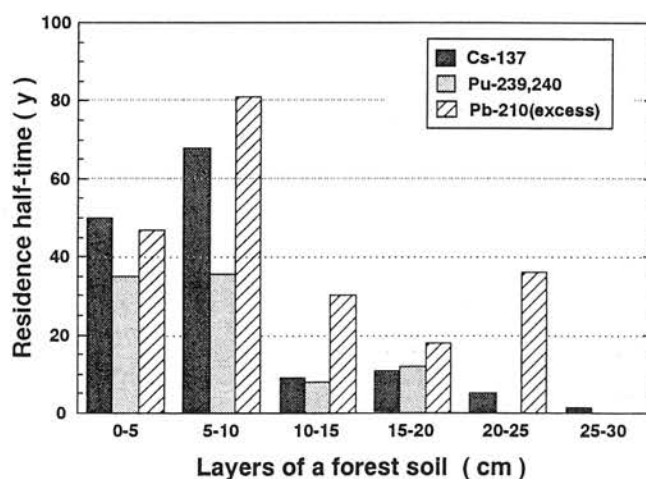


Fig. 5 Residence half-time of each nuclide in the various layers of a forest soil from Akita Pref.

本研究は、ドイツのGFS-Forschungszentrum für Umwelt und GesundheitのDr. K. Bunzl, Dr. W. Schimmack 及び日本分析センターの及川 真司 氏との共同研究として行われ、2000年10月、環境科学技術研究所で開催された国際学会で発表した。

琵琶湖水系における宇宙線生成核種 ^{22}Na の物質動態

Cosmogenic Radionuclide ^{22}Na as a Tracer of Pollutant Transport from Watershed Area to Fluvial System: Lake Biwa System in Japan

【はじめに】 ^{22}Na ($T_{1/2}=2.6$ y, β^+ , γ :1275 keV)は大気中の Ar と宇宙線との核破碎反応で生成する宇宙線生成核種である。この核種は、 ^7Be と共に成層圏-対流圏における空気塊の移行過程及び、エアロゾルのトレーサーとして用いられてきた。一方、水圏では測定困難であるために、他の地球化学分野への応用は殆どなされなかった。しかし、近年になって整備されてきた石川県小松市尾小屋町にある地下測定室(270 m.w.e)の極低バックグラウンド Ge 検出器を用いることで、500 L 以上の湖水・河川水から ^{22}Na の測定が可能になってきた。 ^{22}Na は主に降水により地上に供給され、水環境中においては安定な Na と同様、保存性物質として挙動すると考えられる。そこで降水、河川による ^{22}Na の湖への供給量と湖水中の ^{22}Na 溶存量を見積もり、 ^{22}Na の収支を明らかにすることで、湖水中における可溶性成分の平均滞留時間の評価や、河川集水域における可溶性降下物の移行挙動のトレーサーとしての利用など、水文学への展開が期待できる。

本研究では、淡水試料中の溶存主成分である Mg、Ca、Si の除去による線源の減容化、及び ^{40}K (γ :1461 keV)のコンプトン散乱に起因するバックグラウンドの低減化をめざした Na の化学分離・濃縮法を構築し、 ^{22}Na の γ 線測定精度を向上させた。さらに本化学分離法を用いて琵琶湖湖水及びその流入河川水を分析

し、得られた値から琵琶湖水系における ^{22}Na の平均滞留時間の算定を試みた。

【方法】 測定試料の減容化と ^{40}K 除去の化学分離法構築のために以下のトレーサー実験を行った。まず、琵琶湖湖水の主溶存陽イオン濃度を模した湖水 500 L 相当の Ca、Mg、Na、Si 及び K に既知量の ^{22}Na を添加した模擬試料を作成し、Ca と Mg を炭酸塩として、Si を酸化物として沈澱除去した。K は $\text{Na}[\text{B}(\text{C}_6\text{H}_5)_4]$ (通称カリボール)を用いて沈澱除去した。(Fig.1) 残りの溶液を蒸発乾固後、Ge 半導体検出器で ^{22}Na 、 ^{40}K 放射能を測定し、本スキームにおける ^{22}Na の回収率および K の除率を検討した。

実試料中の ^{22}Na 分析用に琵琶湖北湖南部地点(水深 51 m)において 10、20、30、40 m の各4層、流入河川である安曇川、野洲川(2 河川合わせた流入量は全流入量の 25 %)さらに唯一の流出河川である瀬田川においてポンプを用いて各々約 500 L 採水した。水中の $^{22}\text{Na}(\text{Na})$ イオンは、イオン交換樹脂カラム(Amberlite 系樹脂、カラム: 73

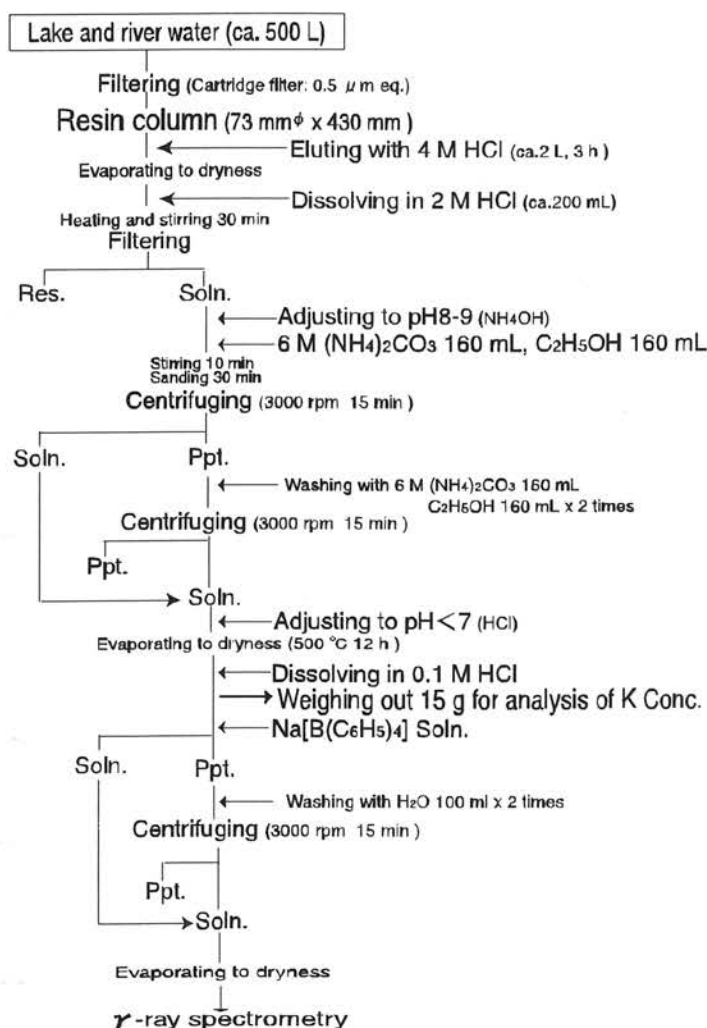


Fig.1 Chemical separation scheme

mm^φ×430 mm)を用いて捕集した。湖水の主要イオン濃度と採取水量、樹脂の交換容量及び安全裕度等を考慮して、1.8 L の樹脂を用いた。試料水は、糸巻きフィルター(0.5 μm 孔相当)を通して、カラムに約 2 L・min⁻¹ の流速で流した。同時に、Na の捕集効率を評価するために、カラム通過前後の水を採取した。樹脂に吸着させたNaをHClで溶離後、溶離液を蒸発乾固した。その残渣を平型 Ge 検出器でγ線測定した後、上記の分離法によりマトリックス及び大部分の⁴⁰K(K)を除去した。得た溶液を蒸発乾固し、尾小屋地下測定室内の同軸型極低バックグラウンド Ge 検出器で²²Naのγ線測定を実施した。

【結果】 分離スキームによる²²Na回収率は98±2 % (n = 5)であった。Kは95 %以上除去され、本分析法が湖水中の²²Na測定に十分適用可能であることを確認した。これまでに14試料(湖水:4層×3 seasons、河川水:3河川×3 seasons)の測定を行った。その結果、湖水中の²²Na濃度は20-32 mBq・m⁻³の範囲にあり、河川水では、湖水よりもやや高い27-40 mBq・m⁻³であった。これらの値と、併測した²²Na降下量から琵琶湖水系における²²Na収支を南湖、北湖、集水域に分けて以下の式 (Fig.2)のように構築した。

① Southern basin	$\Delta I_s / \Delta t = A_s + I_n \cdot k_n - I_s (\lambda + k_s)$	$\tau_s = 1 / k_s$
② Northern basin	$\Delta I_n / \Delta t = A_n + I_c \cdot k_c - I_n (\lambda + k_n)$	$\tau_n = 1 / k_n$
③ Watershed area	$\Delta I_c / \Delta t = A_c - I_c (\lambda + k_c)$	$\tau_c = 1 / k_c$

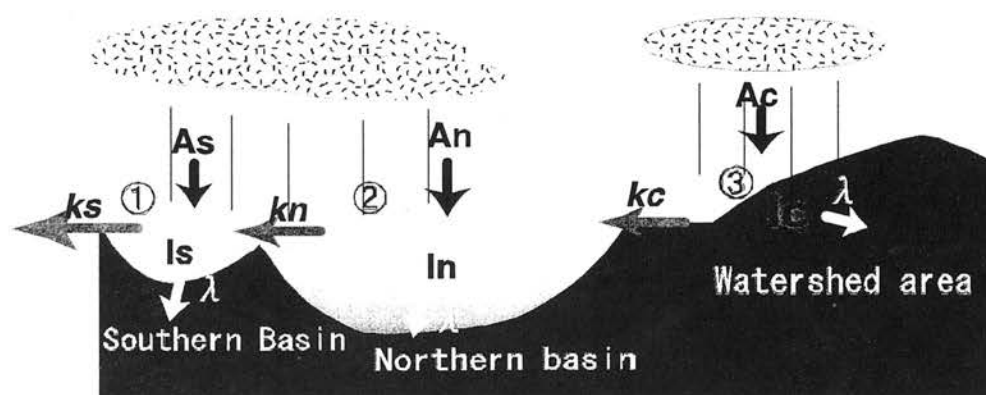


Fig.2 The mass balance of ²²Na in Lake Biwa system.

Aは大気からの年間降下量 (GBq/y)、Iは²²Naの総蓄積量(GBq)、λは²²Naの壊変定数 (1/y)、kは除去定数 (1/y)、τは²²Naの滞留時間を表す。定常状態を仮定し、南湖、北湖、における²²Na滞留時間を試算すると、それぞれ約18日、5.3年と見積もられ、得た滞留時間は、南湖、北湖について報告されている水の滞留時間14日、5-6年に非常に近いものとなった。また、集水域については9.4年と見積もられた。

謝辞

湖水及の採取に当たり、滋賀県琵琶湖研究所の実験調査船“はっけん号”の船員の方々には、多大な協力をいただいたことを記して感謝いたします。

[本研究は卒研 坂口綾が、環境研 大塚良仁研究員、琵琶湖研 横田喜一郎博士、金沢学院大 佐々木圭一博士と共同で行ったものである。]

平成13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 (研究機関研究員) 鈴木敦雄
事務補佐員 中本美智代

《消耗品》

液体窒素 13,825 ㍑ A重油 2,600 ㍑
電気 142,208KWH 水道 1,113m³

《運営委員》

(任期 平成13年5月～平成15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

《購入備品》 校費と科研費により購入

無停電源装置 三菱FW-VIO-30K (1台)
遠心機 コクサン H-38F (1台)
低温乾燥器 いすゞ ANS-115S (1台)
極低バックグラウンドγ線測定システム (一式)
フランス EURISYS MESURES社製 EGPC-292-P21 2台
フランス EURISYS MESURES社製 EGM3800-30型 2台
液晶プロジェクタ SHARP PG-C20XJ (1台)
中央実験台 ヤマト科学 TCA-305RZ (1台)

研
究
論
文

- M.Yamamoto, M.Hoshi, J.Takada, T.Tsukatani, S.Oikawa, I.Yoshikawa, T.Takatsuji, A.Kh.Sekerbaev and B.I.Gusev: Some aspects of plutonium in and around the former Soviet Union's Semipalatinsk nuclear test site. "Plutonium in the Environment", Proceedings of the Second Invited International Symposium November 9-12, 1999, Osaka, Japan. p.375-399 (2001).
- M.Yamamoto, M.Hoshi, J.Takada, T.Tsukatani, S.Oikawa, I.Yoshikawa, T.Takatsuji, A.Kh.Sekerbaev and B.I.Gusev. Present Situation of Radioactive Contamination in and around the Former Soviet Union's Semipalatinsk Nuclear Test Site. Proceeding of the Workshop on the Results of the Cooperative Research Between JAERI and Chescir Concerning the Study on Assessment and Analysis of Environmental Radiological Consequences and Verification of an Assessment System, November 16-17, 1999, Tokyo, JAERI-Conf 2000-016, p.172-200 (2001).
- K. Komura, Radiochemical Approach to the JCO Criticality Accident in Tokai-mura, 1999 --- An Overview of the Radiochemistry Group --- J.RADIAT.RES., 42: SUPPL., p. S17-S29 (2001).
- Y. Murata, T. Muromiya, Y. Kawabata, M. Yamamoto. Activation of Soil and Chemical Reagents Exposed to the Neutrons Released by the JCO Criticality Accident in Tokai-mura, J.RADIAT.RES., 42: SUPPL., p.S55-S74 (2001).
- S.Tolmachev, S.Ura, N.Momoshima, M.Yamamoto, Y.Maed, Determination of Cl-36 by liquid scintillation counting from soil collected at the Semipalatinsk Nuclear Test Site. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Vol.249 No.3, p.541-545 (2001).
- 井上睦夫, 小村和久, 最近の落下例を含む隕石における宇宙線生成放射性核種、地球化学 35、p.13-25 (2001).
- 大塚良仁、山本政儀、小藤久毅、横田喜一郎、小村和久、湖沼環境での物質循環に関する研究 ―琵琶湖における天然放射性核種 Pb-210 と Po-210 の挙動― 地球化学 35、p.85-106 (2001).
- 小村和久、原子炉・加速器によらない放射化、放射化分析 12 p.9-19 (2001).
- 小村和久、JCO臨界事故の環境影響に関する学術調査研究報告 環境影響班の活動を中心として、放医研環境セミナーシリーズNo. 28「ウラン加工工場臨界事故に対する環境測定・線量推定」藤元憲三 編 p.51-59 (2001).
- 小藤久毅、小村和久、山田芳宗、佐々木圭一、山本政儀、P-32生成量からの速中性子束の推定、放医研環境セミナーシリーズNo. 28「ウラン加工工場臨界事故に対する環境測定・線量推定」、藤元憲三 編、p.63-67 (2001).
- 小村和久、Ahmed Yousef、環境中性子による放射化 天然の放射性Eu及びCoの発見と広島・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寄与、Proceeding of the Second Workshop on Environmental Radioactivity, KEK Proceedings 2001-14, p.98-106 (2001).
- 小村和久、極低レベル放射能の測定と応用、RADIOISOTOPES, 50周年記念号、135S-138S (2001).
- 山西弘城、三宅 均、山崎 直、小村和久、尾小屋トンネルにおける宇宙線強度、RADIOISOTOPES, 50(9), p. 419-423 (2001).
- 田中義太郎、山本政儀、田崎和江、炭酸塩バイオマットの放射年代測定――山梨県増富鉱泉を例として――、地質学雑誌 第107巻 第11号 p.673-680 (2001).
- 小村和久：臨界事故の環境影響に関する学術調査研究、平成11年度～12年度科学研究費補助金(特別研究促進費)(1)研究成果報告書(課題番号11800013) 全205p. (2001.3).
- 山本政儀、環境プルトニウムの汚染源識別に関する研究、平成11年度～12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11680544) 全113p. (2001.3).

平成 13 年度 見学来訪・出張の記録

- 平成13. 5. 8 財日本分析センター 長岡和則氏, 西川菜穂氏, 研究打ち合わせ
 5.10~18 山本助教授「セミパラチンスク周辺に住む人々の放射線被ばく線量評価に関するワークショップ」発表のためフィンランドへ出張
 5.11 文部科学省研究振興局学術機関課、福元紘一事務官見学
 5.11 JICA 研修生 丁建清氏(中国), 石川県保健環境センター 榎田武史研究打ち合わせ
 5.24~25 日本原子力研究所環境科学研究部 長尾誠也氏研究打ち合わせ
 5.30~6.1, 神戸大学理学部 小林俊則氏研究打ち合わせ
 8.1 理化学研究所安全管理室 上蓑義明氏, (株)三菱総合研究所安全技術研究部 岩井 敏氏, 高木俊治氏, 降旗志おり氏見学
 6.1 福井大学教授 西川嗣雄氏, 学生3名見学
 6.21 琵琶湖にて湖水, 湖底す堆積物サンプリング
 6.21~23, ◎平成13年度運営委員会(於 理学部)
 14. 2.3~5 国立歴史民俗博物館(客員教授)今村峰雄氏研究打ち合わせ
 7.2 名古屋大学工学研究科教授(客員教授)飯田孝夫氏, 学生10名尾小屋共同研究
 7.3 三菱マテリアル富永弘美氏 α 分析のため来所
 7.10, 7.31 北陸大学放射薬品学助教授山田芳宗氏測定のため来所
 7.13 広島大学原爆放射能医学研究所教授 星 正治氏, 広島大学工学部教授, 静岡 清氏, 助教授 遠藤 暁氏研究打ち合わせ
 7.17~19 [近畿大学原子炉共同研究]
 8.13 気象研究所 五十嵐康人氏研究打ち合わせ
 8.14~15 財日本分析センター 長岡氏, 西川氏尾小屋共同研究
 9.17~10.2 山本助教授「土壌中の(Pu, Sr)測定の試料収集」のためカザフスタン共和国へ出張
 10.2~3, 財環境科学技術研究所 大塚良仁氏 α 核種分析研究打ち合わせ
 14. 2.5~6 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 大洗)出席
 10.16~20 小村教授「ラドン濃度測定装置の設置および将来計画打ち合わせ」のため中国へ出張
 11.19~24 名古屋大学大学院 吉迫公一氏尾小屋共同研究
 11.12~16 小村教授「原爆線量研究ワークショップ」(於 広島)出席
 11.13~15 大分医科大学医学部 久保 剛氏, 大分県看護科学大学 江藤美香子氏尾小屋共同研究
 11.15, 12.5 福井医科大学 吉田弘美氏, 和田真由美氏, 尾小屋共同研究
 12.5 大分医科大学 久保 剛氏尾小屋共同研究
 12.10~11 理学部化学科3年生40名実習, 尾小屋地下測定室見学
 12.14 東京大学農学部 RI センター 林 芳武氏尾小屋共同研究
 12.27 Environmental Measurement Laboratory (USA) Dr. His-Na Lee, 気象研究所 五十嵐康人氏研究打ち合わせ
 平成14. 2.4 名古屋大学工学部 森泉 純氏, 青島弘幸氏 Rn 観測研究打ち合わせ
 2.5~6 気象研究所 青山道夫氏, 中本能久氏, 大塚道子氏研究打ち合わせ
 2.5 京都大学原子炉実験所 藤川陽子氏, 宮地真弓氏, 宮原みゆき氏, 義本孝明氏研究打ち合わせ
 2.14~16 山本助教授第7回広島国際シンポジウム「セミパラチンクスにおける放射線影響研究とその展望」出席
 3.22 日本原子力研究所 柳瀬信之氏研究打ち合わせ, 名古屋大学 山外功太郎氏研究打ち合わせ

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