

金沢大学自然計測応用研究センター

低レベル放射能実験施設 研究概要・年次報告 2004.4～2005.3



尾小屋地下測定室（石川県小松市）

Annual Report of Low Level Radioactivity Laboratory
Institute of Nature and Environmental Technology, Kanazawa University

低レベル放射能実験施設

研究概要・年次報告

2004. 4～2005. 3



デザイン：エコテクノロジー研究部門 小林史尚 助手

兼六園のことじ灯籠は「金沢（大学）」，背景の白山は「自然」，兼六園の日本最古といわれる噴水は「計測」を表している。

目 次

構 成 員	2
-------------	---

活 動 報 告

研 究 概 況	3
研 究 業 績	6
研 究 費	11
研 究 指 導	12

研究報告

近畿大学原子炉を用いた金の中性子自己吸収の実験的評価	14
バイカル湖の海底堆積物中ウラン・トリウム同位体	16
大気中放射性核種の高解像度同時観測	18
白山周辺における温鉱泉の同位体地球化学的研究	20
日本海海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比および ^{137}Cs 濃度の鉛直分布	22
平成 16 年度尾小屋地下測定室共同利用の記録	24

【構成員】

・ 職員

- ・教授 (施設長) 小村和久 (komura@yu.incl.ne.jp)
理学博士 専攻 放射線計測・環境放射能・地球化学
- ・教授 山本政儀 (pluto@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
理学博士 専攻 核地球化学・環境放射能
- ・助手 浜島靖典 (hama@cacheibm.s.kanazawa-u.ac.jp)
理学修士 専攻 核放射化学・放射線計測
- ・助手 井上睦夫 (mutsuo@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
博士 (理学) 専攻 同位体地球化学
- ・COE, PD フェロー 村田祥全 (murata@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
博士 (理学) 専攻 環境放射能
- ・COE, PD フェロー N. Muguntha Manikandan
- ・事務補佐員 中本美智代 (nakamoto@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・産学官連携研究員 西川方敏 (nisi@p2242.nsk.ne.jp)

・ 学生

- ・ 博士後期課程 3 年 [社会人選抜] 山口芳香
- ・ 博士後期課程 3 年 [社会人選抜] 太郎田融
- ・ 博士後期課程 1 年 阿部琢也 (abetaku@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・ 博士後期課程 1 年 坂口綾 (eatingubu@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・ 博士後期課程 1 年 [社会人選抜] 及川真司
- ・ 博士後期課程 1 年 [社会人選抜] 大塚良仁
- ・ 博士後期課程 1 年 [社会人選抜] 安池賀英子
- ・ 博士前期課程 1 年 桑原雄宇 (yu.k@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・ 博士前期課程 1 年 渡部諭 (satoru@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・ 4 年生 田中究 (kiwamu@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・ 4 年生 富田純平 (jun.16@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)

【研究概況】

当施設 2 分野の研究概況

同位体地球科学分野

本研究分野は、放射性及び安定同位体を精密に測定し、物質の時間的・空間的分布や移行挙動の地球科学的解析を行うほか、放射性同位体をトレーサーとする研究領域の開拓を目指すことを目的としている。本年度は放射性核種をトレーサーとする地球化学研究に焦点を当て、①環日本海域に於ける自然及び人為起源物質の大陸からの輸送過程、②湖沼堆積物中のウラン、トリウム同位体組成変動からの流域環境変動解析、さらに③能登半島の沿岸海水の同位体情報から、能登半島を取り巻く海水循環の調査を行った。また、従来からの④旧ソ連核実験場セミパラチンスク周辺の放射線影響研究、さらに今年度から新たに白山周辺における温鉱泉の同位体地球化学的研究も実施した。

1) 大陸からの汚染物質の長距離輸送(21 世紀 COE プロジェクト)

我が国は、極東アジアの中緯度に位置するため、ジェット気流に伴う偏西風が卓越し、風上側のアジア大陸から日本海を経由して多量の自然・人為起源物質が日本列島さらに太平洋に輸送される。これらの輸送の実態把握と将来予測は気候変動の面からのみならず、黄砂を初めとする鉱物エアロゾルについては海洋への一次生産への影響評価の面からも重要視されている。昨年度より、石垣～稚内を含む全国 11 地点、さらに韓国のソウルで採取した降下物(気象研及び KINS との共同研究)について、成層圏起源の Be-7、主に大陸起源の Pb-210、土壌起源の K-40 等の放射性核種の降下量の長期・広域観測を継続実施した。これらの核種は、大気エアロゾル、鉱物粒子の輸送過程を解明する有用なトレーサーでありデータの蓄積を図っている。

2) 湖底堆積物から環境変動解析(21 世紀 COE プロジェクト)

自然-人間系の相互作用の結果としての環境変動変遷史の記録計として、地域の集水域を含む湖沼系を取り上げ、その湖底堆積物コアから過去数百年の自然変動と人間活動による環境変動を解読する時計を提示しその有効性を検証することを目的としている。湖底堆積物は、過去における流域の変動や湖内で生息した生物などの気候変動に絡む物理、化学、生物的变化をそれぞれの化石として記録している。化学成分は堆積後、続成作用の影響を受けるものがあり、堆積当時を保存しているとは限らない。しかし基礎的な研究・検討を通じての適当な手法を用いれば、化学成分からも堆積環境変動解析が可能である。具体的には、従来の堆積物の物理・化学的測定の知見に加えて、新規に堆積物中のウラン(トリウム)同位体組成を指標にする。富士五湖の河口湖でこの仮説を試みた。コア堆積物中のウランについて、河川等を通じて湖内に流入する土壌粒子そのものに含まれているウランと湖内で吸着した成分のウランを識別した結果、土壌粒子そのものに含まれているウラン“実際には $^{238}\text{U}/^{232}\text{Th}$ 比“の変動が降水量との変動と調和的であることが見いだされ、その有効性が示唆された。今年度から、琵琶湖およびバイカル湖の堆積物を用いて更なる検討を実施している。

3) 日本海沿岸海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の研究(21 世紀 COE プロジェクト)

ラジウム同位体のうち、 $^{226}\text{Ra}(t_{1/2} = 1.6 \text{ ky})$ に比べ、半減期が短い $^{228}\text{Ra}(t_{1/2} = 5.75 \text{ y})$ は、海洋環境においては、ラジウムの供給源(沿岸堆積物、大陸棚、陸水)から離れるにつれ、濃度が減少していく。よって

海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は、水平、鉛直方向の海水循環に、多くの情報をもたらしてきた。

日本海沿岸海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を測定した結果、水平方向(表層海水)、鉛直方向ともに規則性を示す顕著な変動が明らかになった。これらを解析することにより、日本海を巡る海水の水平および鉛直循環を解明を試みる。

4) 旧ソ連核実験場セミパラチンスク周辺の放射能汚染と住民への被曝線量評価

21 世紀の環境科学に課せられた最大の課題は、世界中に創りあげてきた環境問題、すなわち負の遺産の複雑現象を科学的に学び、将来に向けた新たな解決策を提示することである。こうした中、核被災や 10 年前から始まる劣化ウラン被災の住民、環境は最たるものである。旧ソ連の核実験場セミパラチンスクでは、450 回以上の核実験が行われ、それによって数十万とも言われる周辺の住民が外部および内部からの長期の低線量率被曝を受けてきた。1994 年以来、住民への放射線影響の基礎となる被曝線量評価、特に放射能汚染状況の把握と外部被曝および内部被曝線量評価を重点的に行っている。

5) 白山周辺における温鉱泉の同位体地球化学的研究

白山は石川県と岐阜県の県境に位置する第四紀の活火山である。白山はその火山活動に 450 年の周期(活動期 100~150 年、休止期 300 年)があり、最後の噴火からすでに 340 年以上経過していることから白山が次の周期に移行しつつある可能性がある」と指摘している。最近、白山下海拔-10~14 km にマグマの存在が示唆され、白山の微小地震の多発に伴って、将来懸念される噴火とも関連してその火山活動についての基礎研究の重要が高まっている。白山周辺には多数の温鉱泉が点在しているが、溶存成分からの地球化学的考察がなされているのみで、起源・成因についての同位体地球化学的な研究報告例はない。本研究では、白山周辺における温鉱泉について、溶存成分に加えて水素・炭素・酸素・硫黄同位体比、およびウラン・ラジウム同位体比を測定し、同位体地球化学的な視点から白山周辺における温鉱泉の水の起源と成因、火山活動と関係する温泉の有無を明らかにすることのみならず、将来懸念される白山の火山活動に備え、現時点での白山周辺における温泉水の基礎データを蓄積することを目的に研究を進めている。

極低レベル放射能計測システム開発分野

1) 極低バックグラウンド検出器の新規購入と遮蔽の改良

気象研究所受託研究によって 2002 年度末に相対効率 51.5% の井戸型 Ge 検出器(Z)及び 28cm²x2cm の平板型 Ge 検出器(L)が、2003 年 12 月末に相対効率 36% の井戸型 Ge 検出器(V)が尾小屋地下測定室に設置された。これにより、極低バックグラウンド Ge 検出器は 11 台となり、11 試料の同時計測が可能となった。台数において世界一(2 番はベルギー IMRR の 5 台)の地下測定室となった。遮蔽の改良を重ねた結果、新規購入検出器のバックグラウンド計数は Z が期待値より 1.5 倍高く改良の余地があるものの L、V はほぼ所期の値まで低減できた。さらに 2001 年度に基盤研究 A(2)で購入した相対効率 73.5% 井戸型(X)と 70.5% の井戸型検出器(Y)の上面の遮蔽強化により、バックグラウンド計数を約 20% 低減させることに成功した。

バックグラウンド計数のさらなる低減を計るために、プラスチック検出器による逆同時計数実験を地上測定(辰口)で行い、研究成果を 10 月にモナコで開催された IAEA 主催の国際会議(International Conference on Isotopes in Environmental Studies – Aquatic Forum 2004 Monaco, 25– 29 October 2004

Monaco)及びヨーロッパの地下測定室研究グループのミーティング CELLAR で発表した。

2) 金をターゲットとする極低レベル環境中性子測定

内浦町小木にある臨海実験施設において海水中の中性子計測実験を3回実施した。およその傾向としては、実験を行った 200 g cm^{-2} までは指数関数的に減少した。深さ約 10 cm 付近に以前報告した熱中性子フラックスのピークは見られない結果もあった。深さ 4 m の池で実施した同様の実験結果もほぼ指数関数的に減少を示した。正確な中性子輸送モデルによる計算を行う必要がある。特殊環境への応用として鉛、及び鉄金属中の中性子フラックスの測定を試みた。0 から 20 g cm^{-2} までは減少し、それより深いところではほぼ一定となることが分かった。

一般環境への応用として 2001 年より青森県六ヶ所村での環境中性子のモニタリングを継続しているほか、海拔 640 m の獅子吼高原と辰口 (30 m) との同時測定を実施している。

3) 大気中放射性核種の同時・高時間分解能測定 (21 世紀 COE プロジェクト)

大気中放射性核種の濃度変化は大気や大気浮遊塵の輸送・混合等を評価する極めて有効な指標となる。これらは気象変動に伴ない数分程度の短時間で起こっているものと推定されるが、放射線検出感度のバックグラウンドが高いため比較的濃度の高い ^{222}Rn 及び ^{220}Rn とこれらの短半減期娘核種を除いて、数時間間隔での測定は殆ど行われていない。極低バックグラウンド Ge 検出器を使えば、 ^{210}Pb (半減期 22 年) や ^7Be (半減期 53 日) 等を ^{222}Rn 並みの時間間隔で測定することが可能である。

21 世紀 COE プロジェクトの一環として 2002 年 11 月より辰口で、2003 年 4 月より輪島沖 50 km に位置する舢倉島で、9 月より海拔 640 m の獅子吼高原で ^{210}Pb (半減期 22 年) 及び ^7Be の観測を開始した。定常的なサンプリングは辰口と獅子吼では 1-2 日間隔、舢倉島では 1 週間間隔で行っているが、台風接近、前線通過、降雪のように短時間で大きな変動が予想される場合は、1-2 時間間隔でサンプリングを行った。2 地点 (辰口-舢倉島、辰口-獅子吼高原) での同時観測による、陸と海、海拔高度による濃度および変動パターンの比較測定も行った。数日-1 週間サンプリングおよび舢倉島の雨水については、 ^{137}Cs 及び ^{22}Na も測定した。3 地点とも ^{222}Rn 濃度 (1 時間間隔) と風速および風向 (辰口と獅子吼高原は 10 分間隔、舢倉島は当初 1 時間間隔、2003 年 11 月より 2 分間隔) データを入手し解析の助けとした。

これらの観測で大気中放射性核種の変動に関する多くの新しい知見を得ることができた。

4) その他のプロジェクト

極低バックグラウンド Ge 検出器による放射能測定に関して、気象研究所から受託した「海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究」で、太平洋で採取した海水中の ^{137}Cs の深度分布の精密測定を、三菱総合研究所との共同研究「放射化箔の放射能測定に関する研究」では宇宙飛行士の中性子被曝を評価するための基礎研究実施したほか、日本原子力研究所陸域環境研究グループ依頼による「極低レベル ^{137}Cs の測定」等を実施した。

尾小屋トンネル内の極低線量空間を利用した 2 年にわたる長期実験としてコニカミノルタと共同研究「写真用カラーペーパーの自然放射線に起因した経時カブリに関する研究」、環境科学技術研究所との共同研究「TLD およびガラス線量計の自己照射の評価」が進行している。

【研究業績】

学術論文

- (1) Hamajima Y. and Komura K.: Background components of Ge detectors in Ogoya underground laboratory, *Applied Radiation and Isotopes*, 61, 179-183 (2004)
- (2) Hamajima Y. and Komura K.: Depth Profiles of Environmental Neutron Flux in Water, *J. Environ. Radioactivity*, (2005) in press
- (3) Hoshi, M., Yamamoto, M., Takada, J., Sakaguchi, A., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Radioactive contamination on land and external radiation dose in residual areas around the former Soviet Union's Semipalatinsk nuclear test site: A review of our studies since 1995, *Indian J. Rad. Res.*, 1, 1-20 (2004)
- (4) 井上睦夫・小藤久毅・小村和久: 海藻試料への極低バックグラウンド γ 線測定の実用---微量人工放射性核種に対する検出限界改善の試み---. *RADIOISOTOPES* 53, 601-609 (2004)
- (5) Inoue, M., Kofuji, H., Yamamoto, M. and Komura, K.: Seasonal variation of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio in seaweed: implications for water circulation patterns in coastal areas of the Noto Peninsula, Japan. *J. Environ. Radioactivity* 80, 341-355 (2005)
- (6) Kawabata, Y., Yamamoto, M., Shiraishi, K., Ko, S. and Katayama, Y.: Uranium pollution in the Republic of Uzbekistan, *J. Arid Land Studies*, 13(4), 227-233 (2004)
- (7) Komura K. and Hamajima Y.: Ogoya underground laboratory for the measurement of extremely low levels of environmental radioactivity: review of recent projects carried out at OUL, *Applied Radiation and Isotopes*, 61, 185-189 (2004)
- (8) Ohtsuka, Y., Takaku, Y., Kakiuchi, H., Hisamatsu, S., Inaba, J. and Yamamoto, M.: Molecular size distribution of ^{210}Pb and ^{210}Po in an oligotrophic lake, *ibid.*, p.354-359 (2004)
- (9) Sakaguchi A., Ohtsuka Y., Yokota K., Sasaki K., Komura K. and Yamamoto M.: Cosmogenic radionuclide ^{22}Na in the Lake Biwa system (Japan): Residence Time, transport and application to the hydrology, *Earth and Planetary Science Letters*, 231, 307-316 (2005)
- (10) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Hoshi, M., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Plutonium isotopes and ^{137}Cs in Dolon settlement near the Semipalatinsk nuclear test site: About 50 years after the first nuclear weapon testing, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 260, 543-555 (2004)
- (11) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Shimizu, T. and Koshimizu, S.: Geochemical record of U and Th isotopes in bottom sediments of Lake Kawaguchi at the foot of Mt. Fuji, Central Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 262, 617-628 (2004)
- (12) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Ishikawa, K., Kashiwaya, K., Ohtsuka, Y. and Yokota, K.: Information from U and Th isotopes recorded in lake bottom sediment-attempt to evaluate environmental changes, *Proc. of the International Symposium on Radioecological and Environmental Dosimetry*, Rokkasho, Aomori, Japan, October 22-24, 2003, (Eds. Inaba, J., Tsukada, H. & Takeda), Institute for Environmental Sciences, Japan, p.348-353 (2004)
- (13) Sarai, A., Kuruta, N., Kobota, N., Takei, Y., Nanto, H., Kobayashi, I., Komori, H. and Komura, K.: Detection of self-dose from an OSL dosimeter and a DIS dosimeter for environmental radiation monitoring. *J. Nucl. Sci. and Technol. Suppl.* 4, 474-477 (2004)
- (14) Tarohda, T., Yamamoto, M. and Amono, R.: Regional distribution of manganese, iron, copper and zinc in

the rat brain during development, *Anal. Bioanal. Chem.*, 380, 240-246 (2004)

- (15) Tazaki, K., Wakimoto, R., Minami, Y., Yamamoto, M., Miyata, K., Sato, K., Saji, I., Chaerun, K., Zhou, G., Morishima, T., Asada, R., Segawa, H., Imanishi, H., Kato, R., Otani, Y. and Watanabe, T.: Transport of carbon-bearing dusts from Iraq to Japan during Iraq's War, *Atmospheric Environ.* 38, 2091-2109 (2004)
- (16) Yamada, Y., Yasuike, K., Itoh, M., Kiriya, N. and Komura, K.: Temporal variation of tritium concentration in tree-ring cellulose. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261, 9-17 (2004)
- (17) Yamada, Y., Yasuike, K. and Komura, K.: Temporal variation of tritium concentration in tree-ring cellulose, over the past 50 years. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 262, 679-683 (2004)
- (18) Yamamoto, M., Hoshi, M., Takada, J., Sakaguchi, A., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Distributions of Pu isotopes and ^{137}Cs in soil from Semipalatinsk Nuclear Test Site detonations through southern districts, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261, 19-36 (2004)
- (19) Yamamoto, M., Hoshi, M., Takada, J., Sakaguchi, A., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Distribution of Pu isotopes and Cs-137 in soil from Semipalatinsk Nuclear Test Site detonations throughout southern district. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261 29-36 (2004)
- (20) Yamamoto, M., Hoshi, M., Takada, J., Sakaguchi, A., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Current levels and distribution of ^{137}Cs and Pu isotopes in soil on the Kazakhstan territory of the Kazakhstan-Chinese border: Semipalatinsk and Lob Nor nuclear test site detonation, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261, 533-543 (2004)
- (21) Yamamoto, M., Hoshi, M., Takada, J., Sakaguchi, A., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Plutonium, ^{137}Cs and U in some pond and lake sediments from areas surrounding the Semipalatinsk nuclear test site: With emphasis on anomalously high U accumulation, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 262, 607-616 (2004)
- (22) Yamamoto, M., Hoshi, M., Takada, J., Sakaguchi, A., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Distribution of Pu isotopes and ^{137}Cs in soil from Semipalatinsk nuclear test site detonation throughout southern districts, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 261, 19-36 (2004)
- (23) 山西弘城, 三宅均, 山崎直, 小村和久: トンネルを利用した TLD とガラス線量計の宇宙線硬成分に対する感度の評価, *保健物理* 39 (2), 108-112 (2004)

総説・資料・報告書

- (1) 阿部 琢也: 第6回「環境放射能・放射線夏の学校」を終えて, *ISOTOPE NEWS*, 610, 28-29 (2005)
- (2) 浜島靖典, 小村和久: プラスチックシンチレータによる宇宙線成分の除去. *Proc. 5th Workshop on Environmental Radioactivity. KEK, KEK Proceedings 2004-8*, 331-335 (2004)
- (3) 星正治, 遠藤暁, 石川正純, 小村和久, 長島泰夫, 福嶋浩人, 今中哲二: Eu-152 と Cl-36 の相互比較測定。「広島・長崎原爆放射線量新評価システム DS02 に関する専門研究会」報告書, July 29-30, 2004, 京都大学原子炉実験所, KURRI-KR-114, 42-48 (2004)
- (4) 井上睦夫, 小藤久毅, 小村和久: 微弱人工放射性核種の検出限界低減の試み *Proc. 5th Workshop on Environmental Radioactivity. KEK, Tsukuba, Japan, KEK Proceedings 2004-8*, 331-335 (2004)
- (5) Komura, K., Yamaguchi, Y., Manikandan, M., Murata, Y., Inoue, M., Iida, T.: High resolution analyses of temporal variations of airborne radionuclides: *Proc. 1st Joint Workshop between Hanyang University and Natoya University. Inst. Biomedical Sci. Inst of Environment and Industrial Mediation, Hanyang University, Seoul, Korea* (2004)
- (6) 小村和久: ヨーロッパの極低レベル放射能測定—尾小屋地下測定室と対比しつつ—*Proc. 5th*

- Workshop on Environmental Radioactivity, KEK, Tsukuba, Japan, *KEK Proceedings* 2004-8, 336-341 (2004).
- (7) 小村和久:金沢で開催された第6回環境放射能・放射線夏の学校。保健物理, 39 (4), 312-313 (2004).
 - (8) 小村和久:金沢大学における環境中性子誘導核種 Eu-152 の測定(II)。「広島・長崎原爆放射線量新評価システム DS02 に関する専門研究会」報告書, July 29-30, 2004, 京都大学原子炉実験所, KURRI-KR-114, 21-30 (2004).
 - (9) 小村和久, 村田祥全, 坂口綾:金の放射化時における中性子自己吸収の実験的評価, 平成15年度近畿大学原子炉等利用共同利用研究経過報告書, pp. 51-53 (2004).
 - (10) 桑原雄宇, 浜島靖典, 村田祥全, 小村和久:中性子放射化法による環境中性子の変動測定, *Proc. 5th Workshop on Environmental Radioactivity*. KEK, Tsukuba, Japan, *KEK Proceedings* 2004-8, 240-244 (2004).
 - (11) 佐々木圭一, 山本政儀, 坂口綾, 濱 克宏:南西諸島喜界島における湧水中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比および ^{14}C 濃度, 金沢学院大学紀要, 第2号, p.99-103 (2004)
 - (12) 山口芳香, 小村和久, 村田祥全, M. Manikandan N., 飯田孝夫, 森泉純, 平尾茂一:辰口, 獅子吼高原, 舳倉島における大気中の Rn-222, Pb-210, Po-210, Pb-214, Be-7 変動の高解像度同時観測. *Proc. 5th Workshop on Environmental Radioactivity*. KEK, Tsukuba, Japan, *KEK Proceedings* 2004-8, 137-144 (2004)
 - (13) 山本政儀:核被災地域住民の被曝線量評価:旧ソ連核実験場周辺住民の内部被曝線量の構築。平成14年度～平成15年度科学研究費補助金(基盤研究(B)(1))研究成果報告書, 全137p (2004)
 - (14) 山本政儀:先人の偉業-ビキニの降下灰中の放射能測定に思う, 都立第五福竜丸展示館ニュース, ”福竜丸だより”, 2004/6/1, No. 309, p.3 (2004)
 - (15) 山本政儀:ビキニ原爆被災事件から50年—先人の偉業-ビキニの降下灰中の放射能測定に思う, 第21回放射性同位元素研究連絡会要録, 2004/4/3, 金沢大学放射性同位元素委員会, p.1-6(2004).
 - (16) 山本政儀:ビキニ原爆被災事件から50年—降下灰中の放射能測定, 日本分析センター, 第2四半期報, ISSN 1346-8197, October 2004, No.14, p.2-3 (2004)

学術発表

- (1) 阿部 琢也, 山口 芳香, ムグンタ マニカンダン N., 小村 和久:大気中放射性核種の高解像度同時観測, 第3回金沢大学21世紀 COE シンポジウム, 金沢(2004.2)
- (2) 阿部 琢也, 山口 芳香, ムグンタ マニカンダン N., 小村 和久:大気中放射性核種の高解像度同時観測, 第6回「環境放射能」研究会, つくば(2005.3).
- (3) Hamajima Y. and Komura K.: Depth profiles of Environmental Neutron Flux in Water, *International Conference on Isotopes in Environmental Studies – Aquatic Forum*, Monte-Carlo, Monaco (2004, 10)
- (4) 浜島靖典, 小村和久:水中の環境中性子深度分布, 2004日本放射化学会年会・第48回放射化学討論会, 東京大学, 東京 (2004, 10)
- (5) 井上睦夫, 中村昇, 小林俊則, 大谷恵子, 杉本幸司, 高久雄一, 中島剛, 小村和久:大規模地震前後における地下水流動系の変化—兵庫県南部地震および鳥取県西部地震を例に—, 日本地球化学会, 静岡大学(2004.9)
- (6) 井上睦夫, 小村和久:低バックグラウンドγ線測定の火山地下水への適用, 日本水文科学会学術大会, 立命館大学(2004.10)
- (7) Kashiwaya, K., Yamamoto, M., Sato, T., Hasebe, N., Wang, X., Tamamura, S., Sakaguchi, A., Ota, Y.,

- Matsuoka, T., Yang, D. T., Kim, J. K. and Nahm, W. H.: Preliminary results of comparative study on lake-catchment system in Japan and Korea, The 1st International Symposium on Earth Surface Environmental Changes-Present Earth Surface Processes and Historical Environmental Changes in the far East Asia, KIGAM, Daejeon, Korea, October 5-7, 2004
- (8) Kim, K. C., Yang, J. Y., Lee, D. Y., Cho, T. S., Yum, J. K. and Yamamoto, M.: The variations of Late Pleistocene Paleoclimates in the cave entrance deposits of Gunang cave in Danyang, Chungbuk, Korea, *ibid.*
 - (9) Komura, K., Yamaguchi, Y., Muguntha Manikandan N., Murata, Y., Iida, T. and Moriizumi, J.: High Resolution Analysis of Temporal Variation of Airborne Radionuclides Low-Level Measurements of Radionuclides in the Environment (2004 年 4 月, Guilin)
 - (10) Komura, K., Yamaguchi, Y., Muguntha Manikandan N., Murata, Y., Inoue, M. and Iida, T.: High Resolution Analysis of Temporal Variation of Airborne Radionuclides. 6th International Conference on High Levels of Natural Radiation and Radon Areas. 第 6 回高自然放射線とラドン国際会議 (2004 年 9 月, 東大阪市)
 - (11) 桑原雄宇, 田中究, 村田祥全, 井上睦夫, 小村和久: 降水中の短寿命宇宙線誘導核種検出の試み, 第 48 回放射化学討論会, 東京 (2004.10)
 - (12) 村田祥全, 小村和久, 古賀妙子, 森嶋彌重: 近畿大学原子炉を利用した金の中性子自己吸収の実験の評価, 第 48 回放射化学討論会, 東京 (2004.10)
 - (13) 村田祥全, Ahmed M. Yousef, 小村和久: 金の放射化を利用した環境中性子束の測定, 第 3 回 COE 国際シンポジウム, 金沢 (2005.3)
 - (14) 坂口 綾, 富田 純平, 山本 政儀, 柏谷 健二, 河合 崇欣, バイカル湖の湖底堆積物中ウラントリウム同位体, 放射化学討論会, 東京大学(2004.10)
 - (15) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Hoshi, M., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Current situation of radioactivity contaminants in the surrounding areas of SNTS: Dolon, Mostik, Cheryomushiki and Budene settlements., The 9th Hiroshima International Symposium, Hiroshima, Japan, 10 March, 2004
 - (16) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Kashiwaya, K., Tsukamoto, T., Sato, T., Hasebe, N., Kawai, T.: Uranium and Th Isotopes in Lake Bottom Sediment -Lake Baikal-, Present earth surface processes and historical environmental changes in the far east, Taejon, Korea, Oct. 4-7, 2004
 - (17) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Hoshi, M., Apsalikov, K. N. and B. I. Gusev, Radiological Situation in the Vicinity of Semipalatinsk Nuclear Test Site:Dolon, Mostik, Cheremshki and Budene Settlement, 10th Hiroshima International Symposium, Hiroshima, Japan, March, 9-11, 2005
 - (18) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Shimizu, T. and Koshimizu S.: Geochemical record of U and Th isotopes in bottom sediments of lake Kwaguchi at the foot of Mt. Fuji, Central Japan, International Conference on Low-level Measurement of radionuclides in the Environment Guilin (桂林), China, April 19-23, 2004.
 - (19) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Kashiwaya, K., Tsukamoto, T., Sato, T., Hasebe, N. and Kawai, T.: Uranium and thorium isotopes in lake bottom sediments-Lake Baikal, *ibid.*
 - (20) 田中 究, 井上睦夫, 小村和久:²²⁸Ra/²²⁶Ra 比と ¹³⁷Cs 濃度からみた日本海海水循環, 日本海洋学会春季大会, 東京海洋大学(2005.3)
 - (21) Tamamura, S., Oha, Y., Sakaguchi, A., Matsuoka, T., Wang, X., Sato, T., Hasebe, N., Yamamoto, M., Kashiwaya, K., Yang, D., Kim, J. and Nahm, W.: Records of human activities derived from lacustrine

sediments in Korea and Japan, ibid.

- (22) 渡部諭, 井上睦夫, 小藤久毅, 山本政儀, 小村和久: 能登半島沿岸海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比, 放射化学討論会, 東京大学 (2004.10)
- (23) 山本政儀, 放射性核種と環境の物質循環研究, 平成 15 年度放射能分析確認調査技術検討会, 日本分析センター, March 16, 2004 東京国際フォーラム, 東京
- (24) 山本政儀, 坂口 綾, 星 正治, 今中 哲二, K. N. Apsalikov, B. I. Gusev, : セミパラチンスク核実験場周辺の放射能汚染: ドロン, モスティク, チェリウムシキ, ボデネ集落, The Ninth Hiroshima International Symposium on Radiation Exposure in Semipalatinsk and Research of Its Effect (第 9 回広島国際シンポジウム: セミパラチンスクにおける被曝とその影響研究), 2004/3/10, 広島大学
- (25) 山本政儀, 坂口 綾, 星 正治, 高田 純, B. I. Gusev: 異常に高いウラン濃集の湖底堆積物-セミパラチンスク核実験場周辺の幾つかの湖沼, 日本放射化学会, 東京 (2004.9)
- (26) Yamamoto, M., Hoshi, M., Takada, J., Sakaguchi, A., Apssarikov, K. N. and B. I. Gusev, Plutonium, Cs-137 and U in some pond and lake sediments from areas surrounding the Semipalatinsk Nuclear Test Site: wit emphasis on anomalously high U accumulation, International Conference on Low-level Measurement of radionuclides in the Environment Guillin (桂林), China, April 19-23, 2004

4) 研究交流 (共同研究)

・共同研究

- (1) 小村和久, 個人線量計による環境放射線レベルの評価の基礎研究, 金沢工業大学南都研究室, 2002-現在.
- (2) 小村和久, 井戸型 Ge 検出器のバックグラウンド特性に関する研究, 島根大学教育学部野村律夫教授, 2002-現在.
- (3) 小村和久, 人工衛星搭載石英中に生成した Be-7 及び Na-22 の測定, K. Nishiizumi (Space Science Center, California Univ.)
- (4) 山本政儀, 旧ソ連核実験場セミパラチンスクの環境放射能汚染と住民の被曝線量評価, 星 正治, 広島大学原爆医学放射線研究所, 1995-現在.
- (5) 山本政儀, 石灰岩洞窟のウラン-トリウム年代測定, Ju. Yong. Kim, Korean Institute of Geosciences and Mineral Resources (KIGAM), Korea, 2003-現在.
- (6) 山本政儀, 放射性核種をトレーサーとする海洋での物質循環研究, 鈴木 款, 静岡大学, 2000-現在.

・海外渡航

- (1) 浜島靖典, モナコ・モンテカルロ, International Conference on Isotopes in Environmental Studies - Aquatic Forum 発表 (2004, 10)
- (2) 山本政儀: International Conference on Low-level Measurement of radionuclides in the Environment Guillin (桂林), China, April 19-23, 2004.
- (3) 山本政儀: The 1st International Symposium on Earth Surface Environmental Changes-Present Earth

Surface Processes and Historical Environmental Changes in the far East Asia, KIGAM, Daejeon, Korea, October 5-7, 2004.

- (4) 山本政儀: 旧ソ連セミパラチンスク核実験場周辺地域の放射能汚染状況と住民の内部被曝線量(科学研究費), カザフスタン, 11月8-17日.

5) 各種活動 (学会・社会)

・学会活動

小村和久: 日本放射線影響学会幹事, 日本原子力学会評議員, 近畿大学原子炉共同利用委員会委員

山本政儀: 日本放射線影響学会常任幹事, 兼 J. Radiat. Res. の編集委員, 日本原子力学会中部支部幹事, 日本放射化学会の J. Nucl. Radiochem. Sci. の編集委員

・社会活動

小村和久: 石川県環境放射線測定技術委員会委員, 放医研宇宙放射線被ばく防護体系検討委員会委員長, 環境科学技術研究所放射線・放射能調査検討委員会委員, 核燃料サイクル開発機構大学との研究協力実施委員会委員, 辰口町国際交流協会副会長, 辰口町文化財保護審議会委員, 国連科学委員会 UNSCEAR 報告書国内委員

山本政儀: 福井県原子力専門委員, 福井県美浜町原子力環境安全監視委員, 福井県客員研究員, 石川県環境試料測定法調査検討委員, 国連科学委員会 UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: 国連放射線影響科学委員会) 報告書国内対応委員, 財団法人日本分析センター放射能測定法マニュアル等専門委員会, 財団法人日本分析センター環境放射能測定調査委員会, CAI (Computer Assisted Instruction: コンピュータ支援教育システム) ソフト作成専門委員, 財団法人日本分析センター環境放射能分析研修委員会

6) その他

新聞報道 小村和久 世界一の放射能研究拠点: 検出器など拡充 (2004.12.21)

【研究費】

1) 科学研究費

- (1) 小村和久(代表)基盤(A)(2), 放射化法による極低レベル中性子計測法と種々環境における中性子評価, 3,500 千円
- (2) 山本政儀: 基盤(B)(1), 旧ソ連セミパラチンスク核実験場周辺地域の放射能汚染状況と住民の内部被曝線量, 6,700 千円 (平成16年度-平成17年度)
- (3) 山本政儀(代表)基盤(C)(2), 湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体変動と古環境解析の基礎研究, 2,800 千円 (平成16年度-平成17年度)

2) 受託研究費

- (1) 小村和久(代表), 石川県, 極低レベル放射能の検出方法の開発と実証に関する研究, 2,000 千円

- (2) 小村和久（代表），気象研，海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究，8,157 千円

3) 共同研究費

- (1) 小村和久（代表），三菱総合研究所，放射化箔の放射能測定に関する研究，210 千円

【研究指導】

卒業研究

- (1) 田中究，日本海における ^{228}Ra と ^{226}Ra の鉛直分布（小村和久），理学部化学科，学士（理学）
(2) 富田純平，白山周辺における温泉の地球化学的研究（山本政儀），理学部化学科，学士（理学）

研究報告

近畿大学原子炉を用いた金の中性子自己吸収の実験的評価

村田祥全・小村和久

〒923-1224 能美市和気町オ 24 金沢大学自然計測応用研究センター・低レベル放射能実験施設

Yoshimasa Murata and Kazuhisa Komura: Experimental evaluation of neutron self-absorption on gold using UTR-KINKI

[はじめに]

金の安定同位体である ^{197}Au の中性子捕獲反応 ($^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$) を利用する中性子検出器は、電気およびメンテナンスが不要であり、コストパフォーマンスや携帯性に優れ、あらゆる場所に設置可能であるという大きな利点がある。金沢大学低レベル放射能実験施設が保有する、尾小屋地下測定室に導入した極低バックグラウンド高純度ゲルマニウム半導体検出器を利用することにより、環境中の中性子束レベル (約 $10^{-2} \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) の照射でも、生成する ^{198}Au を測定することが可能になった。しかし、 ^{197}Au の反応断面積の大きさゆえに、中性子の自己吸収があり、 ^{198}Au 生成量から中性子束を計算する際に、過小評価するという問題が生じるため、 ^{198}Au を中性子検出器として実際に利用する際には、中性子の自己吸収の程度をあらかじめ把握し、これを補正する必要がある。

中性子自己吸収の評価には、MCNP などのモンテカルロ法を用いた計算による方法と実際に金を中性子照射する実験による方法がある。報告者らは、金板を用いた後者による方法を試み、近畿大学原子炉周辺および環境中で実験を行ってきた。しかし、金板を用いた場合、後方からの中性子の影響を無視できず、金板の厚さが増加しても ^{198}Au 放射能が指数関数的な減少を示さないことも多かった。

そこで、本研究では、近畿大学原子炉を用いて粒径の異なる金粒および後方をカドミウムで覆った金板の中性子放射化を行った。生成する ^{198}Au の金 1 g あたりの放射能を比較することにより、金の厚みによる自己吸収の影響について評価した。

[実験方法]

直径 0.8~3.4 mm、重量 6~400 mg の粒径の異なる 7 個の純金粒を選び、近畿大学原子炉内の中央ストリンガー付近 (熱中性子束: $1 \times 10^7 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) で約 5 分間中性子照射を行った。また、 $42 \times 200 \times 0.15 \text{ mm}$ の純金板 1 枚 (重量 25 g) と約 $39 \times 150 \times 0.12 \text{ mm}$ (重量約 13 g) の純金板 4 枚を重ねたものを原子炉外生体遮蔽外壁 (熱中性子束: $10 \text{ n} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$) に鉛直方向と平行になるように設置し、後方からの中性子の照射を避けるために Cd 板で覆い、生体遮蔽外壁から漏洩する中性子による照射を 6 時間行った。

照射後、尾小屋地下測定室に設置した 3 台の高純度井戸型 Ge 検出器を用いて、金粒は 10 分間、金板は 3 日間 ^{198}Au の放射能をそれぞれ測定した。壊変補正を行い、金 1 g あたりの相対的な放射能を計算した。

[実験結果]

金粒を用いた実験結果を図 1 に示す。最も粒径の小さい 0.86 mm の金粒の ^{198}Au 放射能を 1 としたときの相対放射能の値を粒径に対してプロットしている。粒径の増加とともに、中性子の自己吸収により ^{198}Au の生成量がほぼ指数関数的に減少しているという結果を得た。直径 3.4 mm の金粒は、直径 0.86 mm の金粒の約半分の生成量であった。グラフにプロットした点を結ぶ直線の傾きから、金の粒径が 1 mm 増加すると ^{198}Au の生成量が約 25 % 減少することがわかった。一方、金板を用いた実験結果を図 2 に示す。生体遮蔽外壁に最も近い No.1 の ^{198}Au 放射能を 1 (厚み: 0.15 mm) とし、以降は No.1 および 2 を併せた放射能 (0.15+0.12 mm)、No.1~3 を併せた放射能 (0.15+0.12+0.12 mm) として厚みに対してプロットした。今回得た金粒と金板の結果を過去のデータと比較するため、過去に行った近畿大学原子炉および環境中で行った中性子自己吸収評価の結果をまとめて図 3 に示す。それぞれ照射した中性子束が異なるため、各実験の最小の厚みの試料の放射能を 1 としてある。今回の金粒試料は、最小の粒径が 0.86 mm と他の金板で行っ

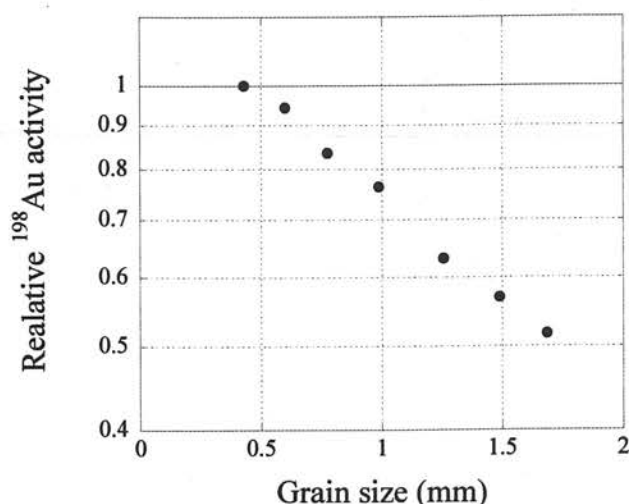


図1 金粒を原子炉内で中性子放射化した場合の、粒径に対する ^{198}Au 相対放射能

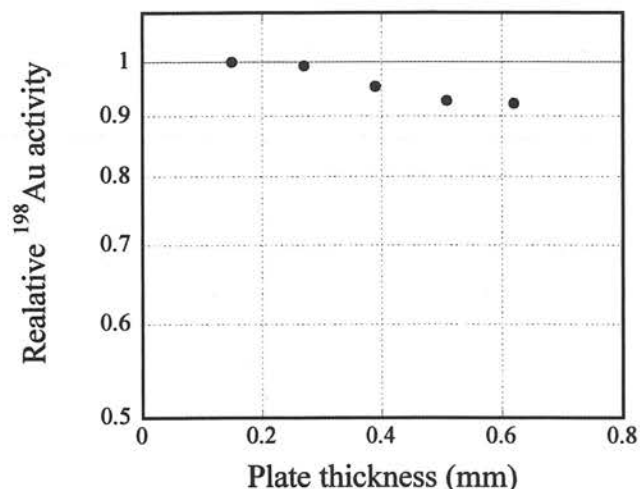


図2 金板を原子炉外生体遮蔽外壁で中性子放射化した場合の、金板の厚さに対する ^{198}Au 相対放射能

た実験の厚みに比べて大きいと、プロットから得た直線を外挿し、0.11 mm に相当する値を 1 とした。金粒および金板のデータともに、過去の実験データと比較的によく一致していることがわかる。近畿大学実験の ^{198}Au 放射能の値が、環境中性子実験の値と比べて高いのは、中性子のエネルギースペクトルが異なっているためであろう。過去の近畿大学実験はすべて金板試料を用いたが、そのデータおよび今回の金板試料のデータを見ると、試料の厚さが増すにつれて ^{198}Au 放射能の減少の程度が小さくなり、指数関数的な減少にはなっていない。これは、先述したように中性子の後方からの回り込みが原因ではないかと考えられ、今回はカドミウム板を用いてそれを防ごうとしたが、有効でなかったと思われる。一方金粒試料は、球形をしている上に個別に厚みを持っているため、どのような方向から中性子が来ても、通過する金の厚さは粒径に比例する。したがって粒径の増加とともに、ほぼ指数関数的に ^{198}Au 放射能が減少していると考えられる。以上のことから、今回の金粒を用いた実験により、中性子自己吸収の評価に有益な情報を得たと言えよう。今後は、MCNP を用いた計算によるシミュレーションと比較し、金を中性子束測定器として用いる際の自己吸収の評価を決定したい。

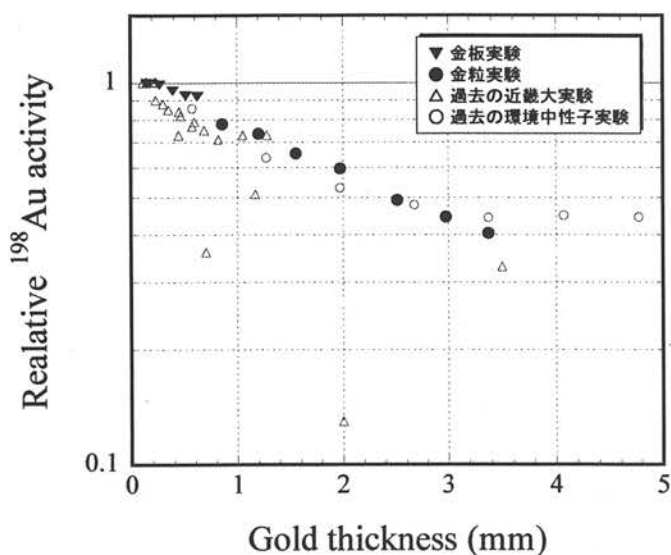


図3 金の厚さ（粒径）に対する ^{198}Au 相対放射能の今回の実験および過去の実験で得た全データ

謝辞

本研究は、「平成 16 年度近畿大学原子炉等利用共同研究」として行われ、実験の際には近畿大学原子炉研究所・森嶋彌重 所長ならびに古賀妙子 教授にご協力をいただいた。

バイカル湖の湖底堆積物中ウラン・トリウム同位体

坂口 綾¹、富田純平¹、柏谷健二²、河合崇欣³、山本政儀¹

¹〒923-1224 石川県能美市和気町金沢大学自然計測応用研究センター低レベル放射能実験施設

²〒923-1192 石川県金沢市角間町金沢大学自然計測応用研究センター

³〒464-8601 名古屋市千種区不老町名古屋大学 大学院環境学研究科

A. Sakaguchi, J. Tomita, K. Kashiwaya, T. Kawai and M. Yamamoto: Uranium and thorium isotopes in lake bottom sediment -Lake Baikal-

＜緒言＞ ウラン(U)・トリウム(Th)は地球上に広く分布すること、数種の同位体を有し、系列・物理的半減期・起源の違いなどによりその挙動が異なることから、これらの事象を十分に把握することで有用な地球化学的プロキシになると考えられる。特に湖沼堆積物中の化学化石の一つである放射性的ウラン・トリウムは、自生性成分(溶存成分が吸着・沈降した成分)と外来性成分(岩石・土壌由来成分)を有するため、陸域環境変動復元という観点からも、湖沼系におけるこれら元素の堆積挙動解明は重要な意味を持つ。今回は、湖底堆積物中ウランの外来性と自生性成分の識別、逐次抽出法、有機物やBi-SiO₂など他成分との比較から、湖沼におけるウラン・トリウム堆積挙動に関する知見を得ることを試みた。

研究フィールドは、ウラン濃度・²³⁴U/²³⁸U放射能比が高く、物理・生物データも蓄積しており、基礎検討を行う上で最適であるバイカル湖とした。

＜方法＞ バイカル湖は3000万年の歴史を持つ世界最古・最大の湖(最大深度1741 m、容積23,000 km³；地球上淡水の約1/5)である。周りを陸地で囲まれており閉鎖性が強く、ユーラシア大陸北東域の世界で最も典型的な内陸性気候を示すという地理的条件から、堆積物を用いて短期・長期的気候変動解析が日・米・ロなどでの共同研究プロジェクトにより進められている。

2003年8月バイカル湖セレンガデルタ沖(南盆北部 52°12.035' N, 105°59.045' E, 水深116 m)で、グラビティーコアラを用いて直径5.2 cm、長さ62 cmの湖底堆積物コアを採取した(Fig. 1)。さらに数地点で湖水(表層、堆積物直上水)採取のほか、陸上表層土壌(直径5.0 cm 長さ30 cm)採取も併せて行った。

堆積物コアは、表層から1 cm間隔に現場船上で切断し、各試料を乾燥・均一化後に堆積年代解析のためのγ線測定(²¹⁰Pb・¹³⁷Cs法)を行った。各堆積層の試料についてU・Th同位体および物理・化学的情報を得るために、有機物含有量、炭酸塩含有量、生物起源シリカ(以下Bi-SiO₂)含有量測定、粒径解析(全岩および鉱物)、全分解・逐次抽出後(炭酸塩、Fe-Mn 酸化物、有機物、Bi-SiO₂、土壌フラクション)U・Th同位体の化学分離・α線測定、AESによる安定元素の測定を行った。水試料については化学分離精製後にU同位体測定、表層土壌試料はU・Th同位体測定(全分解、逐次抽出後試料)および²¹⁰Pb・¹³⁷Cs蓄積量評価を行った。

＜結果・考察＞ 湖水中溶存²³⁸U濃度は、試料採取地点や深度にかかわらず約6mBq/l、²³⁴U/²³⁸U放射能比は約2.0でほぼ一定であった。

表層堆積物中、過剰²¹⁰Pb年代解析の結果から堆積速度は約24.2mg/cm²/yであり、このコアは近年約2000年をカバーしていることが明らかになった。この堆積速度は、コア採取地点周辺の堆積物に関して先に報告されて

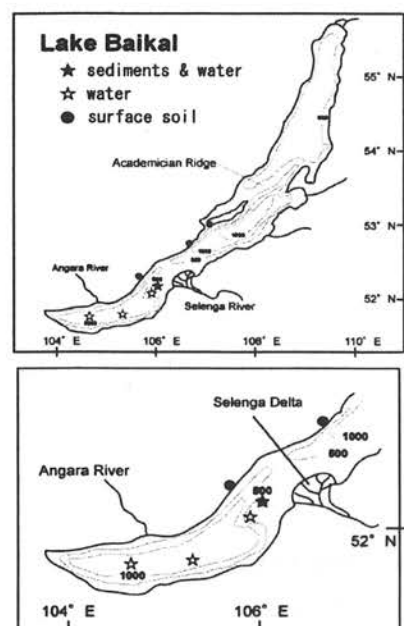


Fig. 1 Map showing sampling station on Lake Baikal.

いる22-34 mg/cm²/yの範囲内にあり、バイカル湖のアカデミッシェンリッジ（北湖盆と中央湖盆の間にある峰）で得られている値(3 mg/cm²/y)よりも非常に早い堆積速度であることがわかった。一般に堆積速度の速い堆積物コアで、1963年付近の堆積層に観察される¹³⁷Csのピークは見いだされなかった。これは、バイカル湖内におけるCs元素の滞留時間が長いためであると説明できる。また、陸上表層土壌試料分析から得た²¹⁰Pb・¹³⁷Cs蓄積量との比較から、過剰²¹⁰Pbの観察される表層コアではタービダイトのようなものではなく一様に堆積していることが示唆された。

成分分析の結果、このコアは75-85wt%が鉱物粒子であり、間氷期にアカデミッシェンリッジの堆積物組成で約60wt%を占めるBi-SiO₂成分は10%以下であった。平均中央粒径は、7.8-5.5φであり粘土粒子が少なく、シルトが比較的多かった。このように今回のコア採取地点は、セレンガ河からの影響（集水域の影響）が多い地点であるということが推定できる。各深度における²³⁸U、²³²Th濃度はそれぞれ70-123 mBq/g (5.7-10 ppm)、36-56 mBq/g (9.5-14.3 ppm)であり、Th濃度の変化に比べU濃度の変化が顕著であった。これらの²³²Th/²³⁸U濃度比(ppm/ppm)は1.2-2.0の範囲にあり、大陸地殻平均(3-4)や集水域表層土壌のそれ

(5-12)に比べて低い値が見いだされた。堆積物中²³⁴U/²³⁸U放射能比は1.53-1.84(平均1.71±0.07)であり、自生性U(溶存U起源;²³⁴U/²³⁸U=2)の存在が示唆された。湖内ウラン²³⁴U/²³⁸U放射能比が過去2ky一定であったと仮定すると、堆積物中bulk Uは外来性U(土壌起源;²³⁴U/²³⁸U=1)と自生性U(溶存U起源;²³⁴U/²³⁸U=2)に識別することができる(Fig. 2)。識別後のU深度分布から、この堆積物のU濃度変化は自生性Uの変化に支えられていることがわかった。溶存Uの堆積物への移行モデルには様々なメカニズムが提唱されているが、bulk U深度分布や溶存U濃度などから、このコア中自生性Uは外来性粒子に溶存Uが何らかのメカニズムで吸着・付着し、沈降したと考えられる。Fig. 3に堆積物の逐次抽出分析の結果を示す。炭酸塩、Fe-Mn 酸化物、有機物フラクションに抽出されたUは、それぞれ堆積物全Uの27-53、17-38、6.2-14%であった。バイカル湖水柱U除去にはBi-SiO₂の主成分である珪藻の関与を示唆する報告がある。しかしBi-SiO₂フラクションに抽出されたUは全体の5%以下であり、珪藻殻へのU濃縮は見いだされなかった。この結果から、U除去には炭酸塩やFe-Mn 酸化物の関与が示唆される。しかし、バイカル湖の溶存炭酸濃度は不飽和状態であり、カルサイトを析出する環境ではないということや、化学的風化作用に抵抗性のある²³²Thと粒子中央径とにより相関があること、試料採取場所での堆積物は鉱物が主成分であるということなどから、この堆積物の自生性Uはすでに河川で吸着されていた可能性がある。現在、データの集約、電子顕微鏡の分析結果などを用いて解析中である。

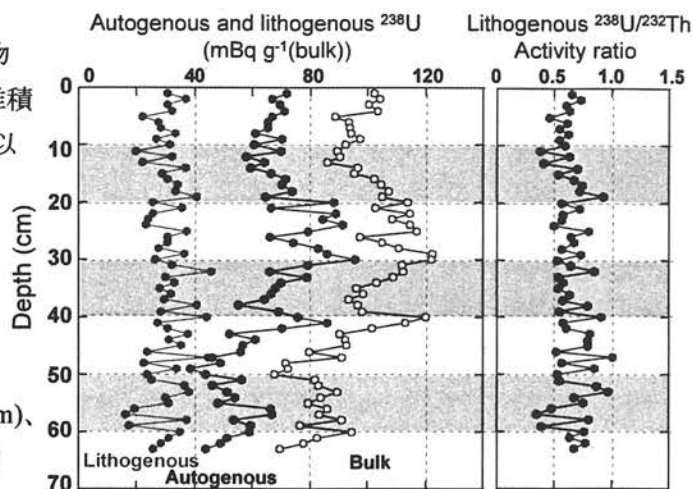


Fig. 2 Results of depth profiles of autogenous, lithogenous and bulk (total) ²³⁸U fractions, and lithogenous ²³⁸U/²³²Th activity ratio in sediment core.

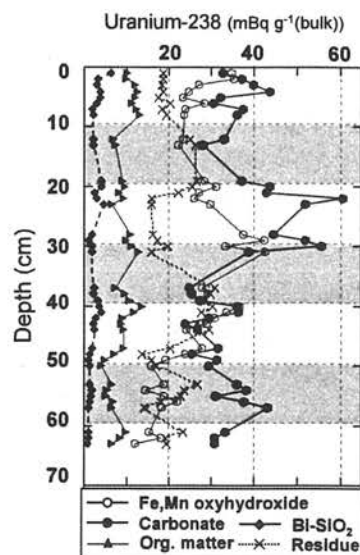


Fig. 3 Variation of ²³⁸U in each fraction obtained from sequential leaching for some layers of sediment core.

大気中放射性核種の高解像度同時観測

阿部 琢也・山口 芳香・ムグンタ マニカンダン N・小村 和久

〒923-1224 能美市和気町 金沢大学自然計測応用研究センター・低レベル放射能実験施設

Takuya Abe, Yoshiko Yamaguchi, Muguntha Manikandan N. and Kazuhisa Komura: High resolution and simultaneous monitoring of airborne radionuclides

はじめに

大気中に存在する放射性核種は、大気の移動やその中に含まれる汚染物質の挙動・滞留時間・除去過程等を知る上での非常に有用なトレーサーとなりうる。そのため、放射性降下物が含まれる降雨・大気浮遊塵試料を用いて大気の高距離輸送の研究が多く行なわれてきた。このような形態で放射性核種を用いる場合は、注目したい現象の時間・空間スケールに対して適切な半減期を持つ核種の選定を行うことや、適度な試料採集時間において観測を行うことが非常に有用である。すなわち、気象変動に伴う鋭敏な大気の状態についての情報を知るためには、短寿命（数時間程度の半減期）の放射性核種を用いて数時間間隔の（高解像度な）試料採集で観測を行なうことが望まれる。さらに、大気の移動に関する情報を得るためには、空間的に距離をおいた複数地点で同時に試料採集を行なうことも有力な手法である。しかしながら、極低濃度の長寿命核種の測定、試料の輸送時間に伴う短寿命核種の減衰、採集時間短縮による試料数の増加等、測定上の困難性が物理的な制約となり、高解像度かつ同時観測は行なわれていなかった。

本研究では、尾小屋地下測定施設（OUL）に設置した11台の極低バックグラウンド γ 線検出器を用いて非破壊 γ 線測定を行なうことにより上記の制約を克服し、 ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3\text{ y}$)、 ^7Be ($T_{1/2}=53.3\text{ d}$) に加えて ^{212}Pb ($T_{1/2}=10.6\text{ h}$) について従来よりも1桁高い時間解像度で同時観測を試みた。

実験

観測拠点として地理的環境の異なる3点、すなわち①金沢大学低レベル放射能実験施設（LLRL）、②高度分布の観測地点として獅子吼高原（標高640 m、石川県白山市）、③大陸及び本土からの影響評価のため能登半島輪島沖50 km北方に位置する舩倉島（石川県輪島市）を選んだ（Fig. 1）。

大気浮遊塵はハイボリュームエアサンプラー（SIBATA HV-1000F）で石英繊維ろ紙上に採集した。流入速度は700-900

L/minとし、試料採集の時間間隔は3時間とした。採集後のろ紙は、測定における幾何学的形状を一定にするために油圧式プレス機を用いて直径35 mm・厚さ3 mmのディスク状に形成を行い、ポリ袋中に密封し測定試料とした。短寿命核種 ^{214}Pb （①のみ）及び ^{212}Pb の測定のため、①の試料は採集直後にLLRLにおいて、②及び③の試料はある程度試料数が蓄積してからOULにおいて γ 線測定を4-12時間行なった。全ての試料について測定を終えた後に、再度OULにおいて ^{210}Pb 及び ^7Be の測定を2-3日間行なった。

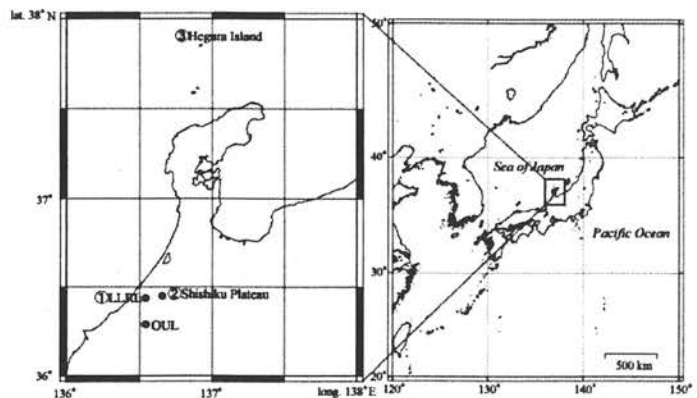


Fig. 1. Location map of monitoring points and OUL.

結果

2004年9月18日から9月23日にかけて、前述の三地点で同時観測を行なった。獅子吼高原及び舩倉島の試料は、試料運搬の関係上、採集終了から測定開始まで数時間から数日経過してしまうので、半減期が26.8分の ^{214}Pb は壊変して測定不可能であった。一方、今回の観測では舩倉島の試料が採集終了から測定開始まで最長で約80時間（ ^{212}Pb の半減期の約7.5倍）が経過していたが、OULにおける極低バックグラウンド測定により ^{212}Pb の定量に成功した。この期間の大気の状態は、観測期間前半は比較的平穏であったに対して、後半の9月21日には寒冷前線の通過に伴って午前中から強風が吹き荒れ始めた。

長寿命核種 ^{210}Pb 及び ^7Be について、三地点での濃度変動をFig. 2に示す。 ^{210}Pb 及び ^7Be の濃度は、三地点でそれぞれ同程度であり地理的環境に起因する相違は確認されなかった。平穏な大気状態であった観測期間前半はそれぞれの核種濃度に大きな変動は見られなかったが、寒冷前線通過時には三地点で同時に濃度の低下が見られた。天気図を参照してみると、前線のスケールに比べて三地点間の距離のスケールの方が小さいことから、これらの核種の濃度低下が同時に起こったと考えられる。

Fig. 3に ^{212}Pb の濃度変動を示す。 ^{212}Pb の濃度は獅子吼高原と舩倉島が同程度で、それらはLLRLの1/5程度であった。獅子吼高原及び舩倉島において低濃度である理由は、これらの地点の特異的な地理的環境により現地付近で発生する ^{212}Pb が極端に少ないこと、及び ^{212}Pb が発生した地点から到達するまでの時間経過によって減衰したこと等が考えられる。特筆すべきことは、この濃度変動に、観測地点同士の空間的距離に依存すると考えられる時間的なずれ（位相差）が観測されたことである。これは前述した長寿命核種における濃度低下の同時性とは一見矛盾しているようにも見えるが、 ^{212}Pb はローカルな、長寿命核種はより広域な大気の状態と関係しているからであろう。これら三地点では ^{222}Rn （ $T_{1/2}=3.8\text{ d}$ ）の濃度計測も行っており、風向や風速等の気象データを参照することで大気の移動に関する情報を取得し、濃度変動との関係について詳細な定量的議論を展開していく予定である。

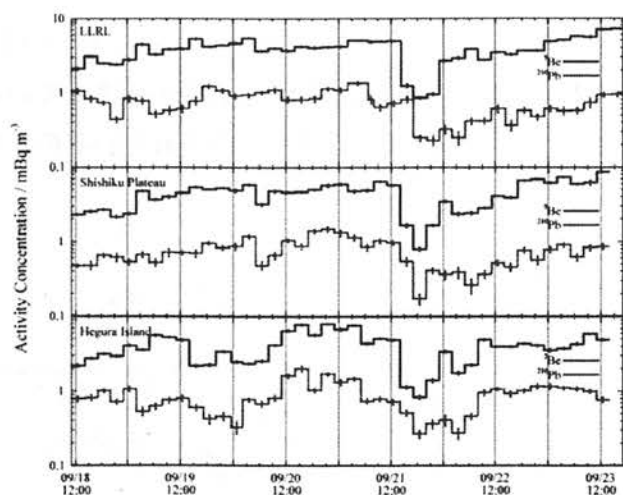


Fig. 2. Variations of concentration of long-lived ^{210}Pb and ^7Be at three monitoring points.

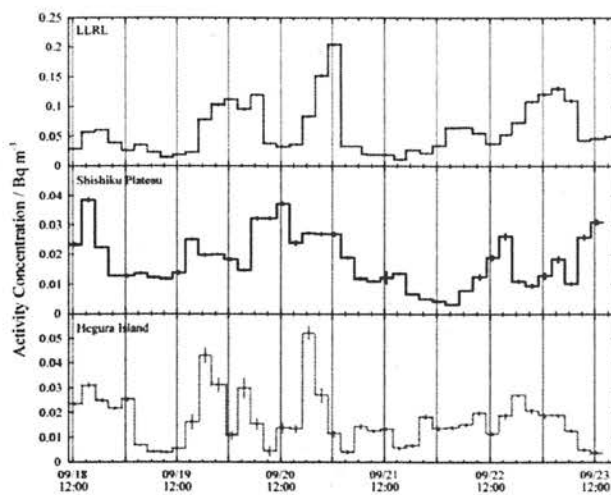


Fig. 3. Variations of concentration of ^{212}Pb at three monitoring points.

白山周辺における温鉱泉の同位体地球化学的研究

富田純平¹、坂口 綾¹、佐竹 洋²、中村俊夫³、山本政儀¹

¹〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学自然計測応用研究センター・低レベル放射能実験施設、
²〒930-8555 富山県富山市 富山大学理学部生物圏環境科学科、³〒464-8602 愛知県名古屋市 名古屋大
学年代測定総合研究センター

J.Tomita¹, A.Sakaguchi¹, H.Satake², T.Nakamura³ and M.Yamamoto¹: Isotopic-geochemical Study
of Hot and Mineral Springs around Hakusan Volcano

はじめに 日本は環太平洋造山帯に位置する火山国であり、数多くの温泉が存在する。温鉱泉は地下において、さまざまな生成機構で地下水がマグマまたは地温勾配により熱の供給を受け、さらに通路の岩石などから温度・圧力に対応して物質を供給され、化学的・物理的変化を続けながら地表に出てきた泉である。地表に現れた温鉱泉水の分析結果からどのような過程を経てその水質を持つに至ったかを正確に解釈できれば地下の様子を垣間見ることができる。同位体研究から温泉の水起源は天水、海水、化石海水、マグマ水で、日本の温泉は、主として火山性型、グリーンタフ型、海岸型、有馬型の4つに分類される。火山性型の温泉には硫酸酸性泉と中性の食塩泉の2種類が存在し、その生成機構についても多数の研究がなされている。また温鉱泉水の成因及び流動プロセスについては、安定同位体に加えて放射性同位体、希土類元素を用いた研究も行われている。一方で、火山噴火の予知との関連で温泉水の水位、泉温、溶存成分の長期観測を用いた研究が行われている。

白山は石川県と岐阜県の県境に位置する第四紀の活火山である。白山はその火山活動に450年の周期(活動期100~150年、休止期300年)があり、最後の噴火からすでに340年以上経過していることから白山が次の周期に移行しつつある可能性があると言われている。また、近年の白山の微小地震の多発などから将来懸念される噴火とも関連してその火山活動についての基礎研究の重要性が高まっている。白山周辺には多数の温鉱泉が点在しているが、溶存成分からの地球化学的考察がなされているのみで、起源・成因についての同位体地球化学的な研究報告例は少ない。

本研究では、白山周辺に点在する温鉱泉について、現時点での温鉱泉水の基礎データを蓄積することを目的に、溶存成分に加えて水素・炭素・酸素・硫黄同位体、およびウラン・ラジウム同位体を測定し、同位体地球化学的な視点から白山周辺における温鉱泉の水および溶存成分の起源とその成因、及び火山活動と関係する温鉱泉の有無を明らかにすることを試みた。

実験方法 白山20km圏内を中心に、さらにその周辺地域も含めた計30地点で試料の採取を行った(Fig.1)。比較のために天水(河川水、沢水)を4地点で採取した。採取後直ちにpH、泉

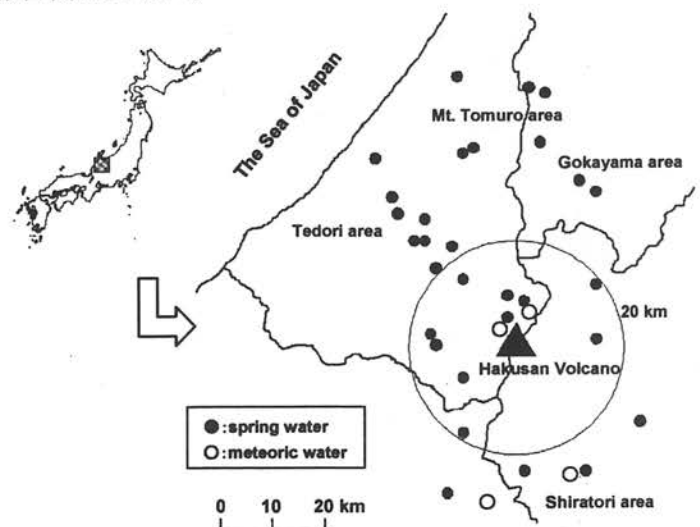


Fig.1 Sampling sights of hot and mineral spring waters around Hakusan Volcano

温、酸化還元電位、電気伝導度を測定した。 δD 、 $\delta^{18}O$ 、 $\delta^{34}S$ 、 $\delta^{13}C$ 及び ^{14}C 濃度、主要溶存成分濃度、DIC 濃度測定には、同位体比用質量分析計、タンデム型加速器質量分析計、イオンクロマトグラフ、TOC 測定器をそれぞれ用いた。U 及び Ra 同位体は鉄・硫酸バリウム共沈後、 α 線及び γ 線スペクトロメトリーでそれぞれ定量した。

結果 Fig.2 に主要溶存成分によるキーダイアグラムを示す。例外はあるものの全体として地域的に特徴的な化学組成を示した。白山 20 km 圏内の温鉱泉では主に $Na\text{-}Cl\text{-}HCO_3$ 型であり、その周辺の温鉱泉については、手取川周辺の温鉱泉は主に $Na\text{-}Ca\text{-}SO_4$ 型、戸室山周辺は主に

$Na\text{-}Cl\text{-}SO_4$ 型、五箇山周辺は $Na\text{-}Ca\text{-}SO_4$ 型、白鳥周辺は主に $Na\text{-}HCO_3$ 型であった。Fig.3 に δD と $\delta^{18}O$ の関係を示す。ほとんどの温鉱泉水は、Craig の天水線($\delta D = 8 \delta^{18}O + 10$)と日本海側の冬季降水線($\delta D = 8 \delta^{18}O + 26$)の間にプロットされ、天水起源であることが明らかである。天水線から外れる 6 地点の温鉱泉水についても、 $\delta^{18}O$ のプラス側へのずれは天水が高温の岩体と反応して酸素同位体交換を起こした結果と考えられ、これらの温鉱泉も天水起源であると考えられる。白山近傍には主として食塩泉が存在した。食塩泉の成因は、マグマの分化、海水または化石海水の混入、堆積層中の海塩の溶出が考えられる。これらの食塩泉の Br/Cl 比($Br/Cl \times 1000$ 、重量比)は 2.39–3.73 であり、ひとつの温泉を除き海水の Br/Cl 比よりも小さい値であった。この原因は海水起源の Br がグリーンタフなどの海成堆積層に取り込まれたため、化石海水を起源とする食塩泉によく見られる。しかし、 δD と $\delta^{18}O$ の関係から海水または化石海水の混入は顕著に認められない。よって、これらの食塩泉の Br 、 Cl の起源は海成

起源の海塩であると考えられる。また、 $Li/Na - K/Na$ の関係からも白山近傍の食塩泉は熱水性塩水の付近に分布した。以上のことから、白山近傍に存在する食塩泉は地下に浸透した天水が海成堆積層中の海塩を溶出してできた温泉であると推論できる。白山近傍の食塩泉の $\delta^{13}C$ 及び ^{14}C 濃度はそれぞれ $-6 \sim -2 \text{ ‰}$ 、 0.24 以下 (検出限界以下)– 6.77 pmC であった。 $\delta^{13}C$ の結果から、これらの食塩泉は海成炭酸塩を溶解していると推論でき、その結果温鉱泉水中の ^{14}C 濃度は $^{14}C\text{-free}$ の炭素により希釈されたと考えられる。 $\delta^{13}C$ 混合モデルを用いて ^{14}C 年代を試算すると、白山近傍の食塩泉の ^{14}C 年代は $12,000 \sim 30,000$ 年となる。 ^{238}U 濃度は、 $0.006 \sim 14.4 \text{ mBq/kg}$ の広い範囲で見出され、 $^{234}U/^{238}U$ 放射能比は $0.89 \sim 38.4$ であった。一方、 ^{226}Ra 濃度は $0.42 \sim 242 \text{ mBq/kg}$ 、 $^{228}Ra/^{226}Ra$ 放射能比は $0.39 \sim 9.7$ であった。硫黄同位体も含めて火山活動と関係する温鉱泉の有無の検討を進めている。

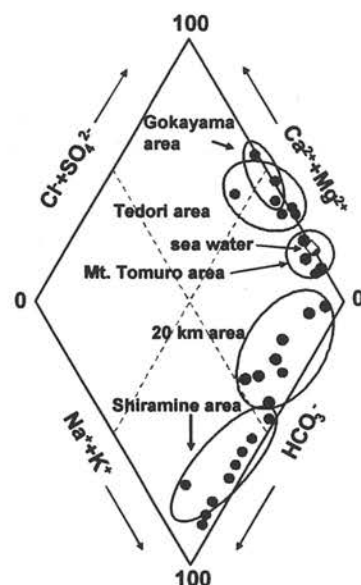


Fig.2 Key diagram for major dissolved components of hot and mineral spring waters around Hakusan Volcano

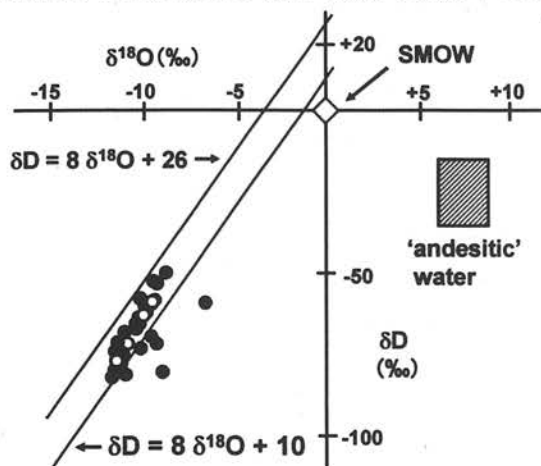


Fig.3 δD vs. $\delta^{18}O$ plots of spring waters and meteoric waters (●: spring water, ○: meteoric water)

日本海海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比 および ^{137}Cs 濃度の鉛直分布

田中 究・井上 睦夫・小村 和久

〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学自然計測応用研究センター 低レベル放射能実験施設 ;
Kiwamu TANAKA, Mutsuo INOUE, Kazuhisa KOMURA: Vertical distribution of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio and ^{137}Cs
concentration in the Sea of Japan

1. はじめに

日本海は平均深度 1350 m (最大深度 3796 m) で、隣接した海域をつなぐ海峡はいずれも 150 m 以浅であることから、周りの海から孤立した環境にある。このような海域なので、タンカーや潜水艦、あるいは沿岸の原発や工場からの廃水などの人為的起源による化学物質や放射能汚染にはきわめて弱い。この日本海で海水循環を調査することは、汚染物質の拡散予測や水産資源の動態予測に重要である。それ故、水温や塩分濃度、溶存酸素、放射性核種を使って、多くの研究が行われてきた。特に、 ^{228}Ra は半減期が短く、海水循環の短期間 (数年～十数年) の時間軸の評価に有効と考えられる。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比 (^{226}Ra , $t_{1/2} = 1600 \text{ y}$; ^{228}Ra , 5.75 y) は時間軸を含む海水循環の地球化学的トレーサーとして、これまで多く利用されてきた。しかし、鉛直方向において、深層水は表層水と比べて ^{228}Ra 濃度が著しく低く測定が困難である。当施設では、化学処理法の改良および尾小屋地下測定室を利用した極低バックグラウンド γ 線測定により、水深 1000 m 以深において少量 (20 L) の海水試料で $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を高い精度で測定することが可能となった。

本研究では、この手法を日本海海水に適用し、大和堆付近の水深 3500 m 地点および人々の生活に重要な位置を占める沿岸域の表層海水と海底直上水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比および ^{137}Cs 濃度の鉛直分布を測定し、鉛直循環を議論する。

2. 試料および実験

海水試料は、第 12 海工丸で 2004 年 5 月から 6 月にかけて Fig. 1 に示す地点でサンプリングした。沿岸試料は北海道 (HK)、新潟 (NI)、石川 (IS)、福井 (FK) および島根 (SM) において表層海水および海底直上水を大型大量採水器 (離合社製) を用いてそれぞれ 1-2 地点で採取した。さらに沖合試料は大和堆 (YR) 付近の 2 地点で、深度別に各 8 試料を同様に採取した。

海水試料 (20 L) に対して、Cs はリンモリブデン酸アンモニウム (AMP) を使用し、AMP/Cs の混合物として回収した。Ra は Ra 汚染の少ない Ba キャリア (^{226}Ra ; 15 mBq/g-Ba) を BaSO_4 沈殿として共沈回収して、乾燥させたものを γ 線測定用試料とした。極低バックグラウンド γ 線測定が可能な尾小屋地下測定室に設置した高検出効率の井戸型 Ge 検出器を用いて、試料中の ^{137}Cs 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 同位体比を測定した。

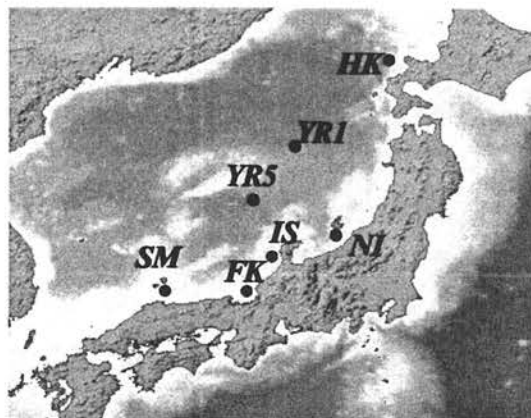


Fig. 1 Sampling sites in the Sea of Japan

3. 結果および考察

3.1. 大和堆付近

大和堆で測定された $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と ^{137}Cs の鉛直分布を Fig. 2 に示す。層の分類は本試料の水温を反映させた。 ^{226}Ra 濃度はほぼ一定の値であることから、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の変動は主に ^{228}Ra 濃度の変動を反映している。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比は表層 (～250m 以浅) から深層 (250-1000 m) にかけて急激に減少し、その後、底層 (1000 m 以深) ではほぼ一定の値を示している。一方、 ^{137}Cs 濃度も $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と同様に表層から深層にかけて減少がみられ、底層ではほぼ一定の値になっている。この結果は、各層ごとに固有の循環様式があることを示す。また、底層で $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と ^{137}Cs 濃度が減少せず一定の値になったのは、日本海の底層水がきわめて活発に海水の上下混合していることを示している。

3.2. 沿岸付近

本研究で使用した沿岸表層海水においては、 ^{228}Ra (0.49-1.47 mBq/L; 平均 0.92 mBq/L)、 ^{226}Ra 濃度 (0.53-1.71 mBq/L; 平均 1.21 mBq/L) に大きなばらつきがみられた。各地点の鉛直循環を比較するため、表層海水で規格化した $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比および ^{137}Cs の鉛直分布を Fig. 3 にまとめた。200 m 以浅において $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比と ^{137}Cs 濃度はともに、ほぼ 1 の値を示したのに対し、それ以深では、規則的に減少している。200 m 以浅はほぼ 1 の値を示したことから、その深度までの表層海水と海底直上水がよく混合していることがわかる。これに対し、200 m 以深の減少は水温が低く混合しにくい深層水が入り込んでいるためと考えられる。北海道 (HK) は、この傾向からずれるが、この地点では 100 m 付近から水温が急激に減少していることから、深層水が他の地点より浅いところまできていることが推測される。また、福井 1-4 (FK1-4) の海底直上水 (255 m) において著しく高い ^{226}Ra 濃度がみられた。 ^{238}U 濃度も同様の傾向が見られ、塩分濃度が急激な減少が確認されている。この要因として、沿岸海底からの U を多く含む地下水の湧出、または海底堆積物の寄与が考えられる。

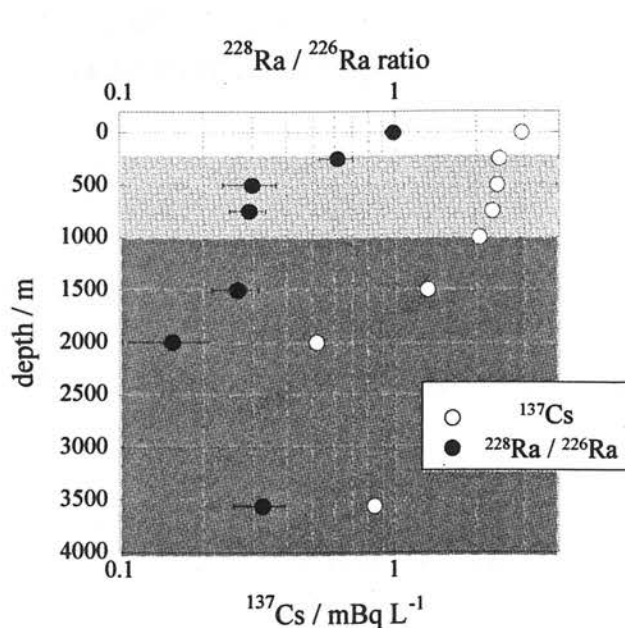


Fig. 2 Vertical profile of ^{226}Ra and ^{228}Ra activities at YR/ site

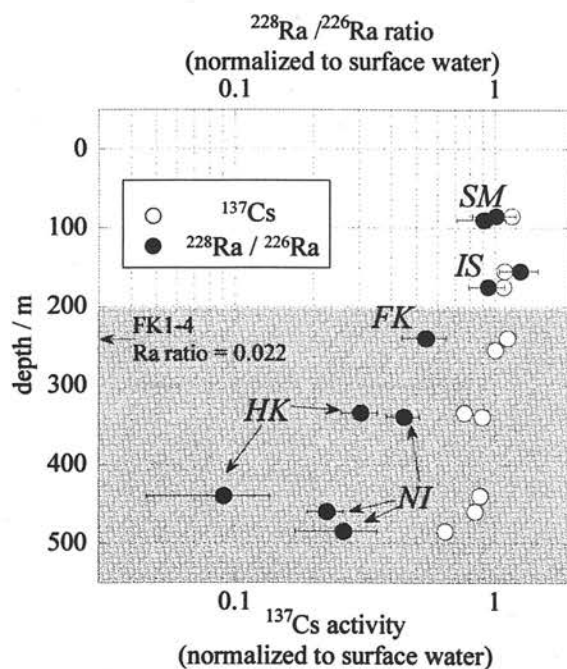


Fig. 3 Vertical profile of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio and ^{137}Cs activity in coastal water

平成16年度見学来訪・出張の記録

- 平成 16. 4.15 福井県衛生環境研究センター 大西 勝基 氏 研究打ち合わせ
 4.18~25 山本教授「低レベル環境放射能測定国際会議」出席のため中国へ出張
 4.18-4.30 小村教授 同上 および 低レベル環境放射能測定研究打ち合わせのため
 中国原子能科学研究所、中国疾病予防センター、中国輻射防護研究所（中国）へ出張
 5.17~18 [近畿大学原子炉共同利用研究]
 5.17-18, 6.5-6, 6.17-18, 7.19-20, 9.1-2, 9.21-22, 10.18-19, 11.23-24, 12.21-22,
 平成 17.2.17-18, 3.21-22
 [琵琶湖にて湖水、湖底堆積物サンプリング]
 4.19, 5.5, 6.5-6, 9.17-22, 11.7, 平成 17.3.17
 輪島市舳倉島周辺環境放射試料採取
 4.6, 7.30, 8.27, 11.26, 12.17
 金沢工業大学 倉田 順弘 氏、太田 大地 氏、深谷 直貴 氏 測定のため来所
 5.20 岡山理科大学助教授 豊田 新 氏 研究打ち合わせ
 6.8 カリフォルニア大学 西泉 邦彦 氏 研究打ち合わせ
 6.26-27 松江健康福祉センター 吉岡 勝廣 氏 ラドン研究打ち合わせ
 7.30~8.11 山本教授 アラル海調査のためウズベキスタンへ出張
 9.2, 平成 17.3.14, 3.29 北陸大学放射薬品学助教授 山田 芳宗氏 測定のため来所
 9.10 静岡県環境放射線監視センター 鈴木 敦雄 氏 研究打ち合わせ
 9.13 Prof. S.Selvasekara Pandian, Dr. K. S. Lakshmi, Miss.Malathi, Mr. Khanna,
 Mr.G.M.Brahmanandham (Solid State & Radiation physics Laboratory
 Bharathiar University、INDIA) 研究打ち合わせ
 10.3-15 山本教授「東アジアの表層風化プロセスと歴史的環境変化に関する国際ワーク
 ショップ」出席のため韓国地質学研究所、環境放射能研究打ち合わせのため
 中国福射防護研究所 へ出張
 10.15 蘭州大学(中国) 杜 金科 氏 研究打ち合わせ
 10.23-31 小村教授、浜島助手「同位体を用いた環境研究国際会議—水フォーラム2004」
 研究発表のため モナコへ出張
 11.8-17 山本教授「放射能汚染状況と住民の内部被曝線量評価の研究」の土壌試料収集のため
 カザフスタン共和国へ出張
 11.22-24 小村教授「大気中放射能の環境動態に関する研究打ち合わせ」のため漢陽大学校
 環境産業医学研究所（韓国）へ出張
 11.29 (財) 環境科学技術研究所 五代儀 貴氏 研究打ち合わせ
 12.1 国際基督教大学理学科 教授 久保 謙哉 氏、石垣 美歩 氏 研究打ち合わせ
 12.9~10 理学部化学科3年生 45名 実習、尾小屋地下測定室見学
 12.10 国際基督教大学理学科 教授 Dr.Greenfield Maik, 石垣 美歩 氏 研究打ち合わせ
 平成 17. 2.22 核燃料サイクル開発機構 鳥居 建男 氏 研究打ち合わせ
 3.3 文部科学省研究振興局 学術機関課共同利用係長 飯島 浩恭 氏、振興企画課
 推進係 小暮 光生 氏 尾小屋地下測定室見学



金沢大学
自然計測応用研究センター

自然計測応用研究センター 低レベル放射能実験施設

〒923-1224 石川県能美市和気

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, Nomi, Ishikawa 923-1224, JAPAN