

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 2005.4～2006.3



COE 観測拠点 舢倉島（石川県輪島市）

低レベル放射能実験施設

研究概要・年次報告

2005. 4～2006. 3



デザイン：自然計測応用研究センター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

1. 構成員	2
2. 活動報告	
2-1. 研究概況	3
2-2. 研究業績	6
2-3. 研究費	12
2-4. 研究指導	13
2-5. その他	13
3. 研究報告	
^{108}mAg を用いる新しい原爆中性子評価法	15
金の中性子自己吸収の評価と中性子束測定への適用	17
物質中の環境中性子分布-MCNP との比較-	19
日本海側（石川県辰口）における過去 15 年間の 放射性核種 ^{40}K と ^{137}Cs 降下量の変動	21
日本海沿岸海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動	23
天然放射性元素ウラン・トリウム湖底堆積物情報-バイカル湖-： 同位体比を活用する環境変動解析・堆積年代測定	25
雨水中の短寿命宇宙線誘導核種の測定	27
4. 記録	
平成 17 年度見学来訪・出張の記録	29

1. 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
- ・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 2 年 阿部琢也 (abetaku@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・博士後期課程 2 年 坂口綾 (eatingubu@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・博士後期課程 2 年 [社会人選抜] 及川真司
- ・博士後期課程 2 年 [社会人選抜] 大塚良仁
- ・博士後期課程 2 年 [社会人選抜] 安池賀英子
- ・博士前期課程 2 年 桑原雄宇 (yu.k@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・博士前期課程 2 年 渡部諭 (satoru@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・博士前期課程 1 年 田中究 (kiwamu@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
- ・博士前期課程 1 年 富田純平 (jun.16@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)

2. 活動報告

2-1. 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日本海沿岸海水の同位体情報から、日本海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。当実験施設のある石川県辰口町で一月毎に採取している 10 数年継続の降下物試料を用いて放射性核種、①成層圏起源の ^7Be 、②主に大陸起源の ^{210}Pb 、③土壌起源の ^{40}K および ^{137}Cs 降下量の長期観測を実施している。これらの放射性核種は、大気エアロゾル、鉱物粒子(黄砂も含めて)の大陸から日本への輸送過程を解明する有用なトレーサーでありデーター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・化学的測定に加えて、新規に堆積物中の天然放射性元素ウラン(トリウム)同位体を指標にする。特に堆積物中のウランは、河川から流入する岩石・土壌に由来する成分と、湖内で溶存する成分が沈降堆積したものを含み、両者の含有割合が気候変動などによって大きく変動することが期待できる。数年前から陸域環境で気候変動に最も鋭敏なユーラシア東部を中心に、バイカル湖およびフズグル湖で採取した long- 堆積物 core コアを用いてウラン(トリウム)同位体組成変動からの環境変動解析を検討している。また併せて堆積年代への応用も試みる。

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}Ra ($t_{1/2} = 1.6 \text{ ky}$) に比べ、半減期が短い ^{228}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。一方、日本海沿岸海域は、豊富な漁場を多くかかえている一方で、原子力発電所事故やタンカー座礁事故など人為的な汚染物質の流入の懸念に加え、最近ではエチゼンクラゲの被害など、新たな問題にも直面している。沿岸汚染事故などに対処するにおいて、沿岸域の海水循環に関する情報は不可欠である。

日本海能登半島を中心とした沿岸海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を測定した結果、夏期に最小 ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra} = 0.7$)、冬期に最大 ($^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra} = 1.7\text{--}2$) を示す季節変動が明らかになった。これは能登半島を取り囲む海水循環が季節的に変化することを示す。現在、日本海沿岸を中心に海水採取地点を増やし (8 地点)、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の比較をおこなっている。日本海沿岸各地点での $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動のズレから沿岸支流の流速を、また沿岸支流北上にともなう $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の特徴の変化から異なる $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比をもつ他の水塊との混合の情報を引き出す。

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いわれている。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バックグラウンド計数の低減

5年計画「極低レベル放射能測定による新研究領域開発と全国共同利用微弱放射能測定拠点の形成」に対し文科省特別教育研究経費 1010 万円と学長特別研究経費が 2000 万円の尾小屋地下測定室の整備が開始された。初年度購入の大型設備として極低バックグラウンド仕様の 2 台の井戸型ゲルマニウム検出器と 1 台の平板型ゲルマニウム検出器を購入した。2005 年 12 月に納入されたが、12 月中旬に予期せぬ多量の降雪があり、年度内の尾小屋への移設を次年度に延期することにして、地上（辰口）での測定に供した。遮蔽により地上での値としては、十分なバックグラウンド性能を達成し、舩倉島、獅子吼高原、辰口の 3 地点で同時観測している大気中放射性核種の測定に活用した。宇宙線寄与のバックグラウンド計数低減を目的に 3mm 厚の超薄型プラスチックシンチレータを用いる反同時計数法に関する基礎実験を行い、尾小屋地下測定室への適用が可能なことを確認した。

2) 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 ^{210}Pb (半減期 22.3 年), ^{210}Po (138 日), ^7Be (53.3 日) の 3 地点での季節変動とその特長を明らかにしたほか、短時間の気象変動にともなう ^{212}Pb (10.6 時間) の濃度変化について多くの新しい知見を得た。(ニース国際会議で発表)

雨水中に存在する短寿命宇宙線誘導核種 ^{18}F (109.7 分), ^{24}Na (14.96 時間), ^{28}Mg (20.9 時間), ^{38}Cl (38 分), ^{39}Cl (56 分) と比較的半減期の長い ^7Be , ^{22}Na (2.60 年) の同時検出に世界で初めて成功した。これまでに 30 回を超える測定を行った。(リオデジャネイロおよびニース国際会議で成果を発表)

3) 残留放射能測定の新展開

原爆被爆資料の極低バックグラウンド放射能測定により、中性子誘導核種 $^{108\text{m}}\text{Ag}$ (418 年) の生成と残留を発見し、 ^{152}Eu による従来の方法より 3 桁以上高い感度で原爆中性子を評価できることを明らかにした。また 2001-2002 年にかけて尾小屋地下測定室で実施した測定によって 20 年以上にわたる未解決問題に決着をつけた成果が 2006 年 2 月新しい原爆線量評価法「DS02」として発表された。

4) その他のプロジェクト

海水中に存在する極微量の人工放射性核種 ^{137}Cs (30.5 年) の海水循環の研究(気象研からの受託研究として共同で推進)で水深 6000 m まで ^{137}Cs の深度分布の測定に成功した(ニース及びハワイで連名で発表)。日本アイソトープ協会理工学部会常任委員として「超低レベル放射能測定専門委員会」の委員長をつとめ、全国のゲルマニウム半導体検出器による測定の実態、バックグラウンド性能等アンケート調査を実施した。また、当該分野の指針となるように、「RADIOISOTOPES」誌に 2006 年 4 月号から 12 月号にかけて 9 回の連載講座「超低レベル放射能測定の現状と展望」を行うことになった。

2-2. 研究業績

1) 学術論文

- (1) 阿部琢也, 山口芳香, Muguntha Manikandan N., 小村和久: 大気中放射性核種の高解像度同時観測, Proc. of 6th Workshop on Environmental Radioactivity 100-105 (2005)
- (2) Abe, T., Muguntha Manikandan N., Yamaguchi, Y., Tanaka, K., Murata, Y., Kuwahara, Y., Watanabe, S., Sakaguchi, A., Tomita, J., Hamajima, Y. and Komura, K.: High resolution simultaneous measurements of airborne radionuclides at sub-regional sampling points by ultra low background gamma spectrometry, Proc. 2nd International Conference on Radioactivity in the Environmental Radioactivity, Oct. 2-6, 2005, Nice, 175-178 (2005)
- (3) Aoyama, M., Hirose, K. and K. Komura, K.: Full depth ^{137}Cs distribution and inventory in the subtropical gyre in the South Pacific: Preliminary results of SHOTS-Project. Proc. 2nd International Conference on Environmental Radioactivity, Oct. 2-6, 2005, Nice, 606-609 (2005)
- (4) Aoyama, M., Fukasawa, M., Hirose, K., Kim, C. S., Komura, K., Mantoura, R. F. C., Povinec, P. P. and Sanchez-Cabeza, J. A.: Southern Hemisphere Ocean Tracer Study (SHOTS) - First project results. Proc. 2nd International Conference on Environmental Radioactivity Oct. 2-6, 2005, Nice, 444-447 (2005)
- (5) Aoyama, M., Fukasawa, M., Hirose, K., Mantoura, R. F., Povinec, P., Kim, C. S. and Komura, K.: Southern Hemisphere Ocean Tracer Study (SHOTS). An overview and preliminary results. Proc. International Congress on Isotopes in Environmental Studies, Oct. 25-29, Monaco, 53-66 (2006)
- (6) Endo, S., Tanaka, K., Ishikawa, M., Komura, K., Shizuma, K. and Hoshi, M.: Neutron background *in situ* measurements. Reassessment of the Atomic Bombs Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki: Dosimetry System 2002, RERF (2), 722-726 (2005)
- (7) Hamajima, Y. and Komura, K.: Depth profiles of environmental neutron flux in solids and liquid. Proc. 2nd International Conference on Environmental Radioactivity, Oct. 2-6, 2005, Nice, 244-247 (2005)
- (8) Hamajima Y. and Komura K.: Depth Profiles of Environmental Neutron Flux in Water, Radioactivity in the environment, International Conference on Isotopes and Environmental Studies (8) 511-519 (2006)
- (9) Komura, K., Muguntha Manikandan, N., Yamaguchi, Y., Inoue, M., Abe, T. and Murata, Y.: Levels of airborne radionuclides at Hegura Island, Japan. International Conference on Isotopes and Environmental Studies (8) 511-519 (2006)
- (10) Hirose, K., Aoyama, M., Igarashi, Y. and Komura, K.: Extremely low background measurements of ^{137}Cs in seawater. J. Environ. Radioactivity 80, 341-355 (2005)
- (11) Hoshi, M., Endo, S., Tanaka, K., Ishikawa, M., Straume, T., Komura, K., Rueme, W., Nolte, E., Huber, T., Nagashima, Y., Fukushima, H. and Imanaka, T.: ^{152}Eu and ^{36}Cl Intercomparison study Reassessment of the Atomic Bombs Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki: Dosimetry System 2002, RERF (2) 578-587 (2005)
- (12) Imanaka, T., Fukutani, S., Yamamoto, M., Sakaguchi, A. and Hoshi, M.: Width and center-axis location of the

- radioactive plume that passed over Dolon and nearby villages of the first USSR atomic bomb test in 1949, J. Radiat. Res. 46, 395-399 (2005)
- (13) 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)
 - (14) Kerr, G. D., Shizuma, K., Maruama, T., Currings, H. M., Komura, K., Okumura, Y., Eggbert, S. D. and Endo, S.: Cobalt (^{60}Co) Activation. Reassessment of the Atomic Bombs Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki: Dosimetry System 2002, RERF (2) 456-481 (2005)
 - (15) Komura, K., Yamaguchi, Y., Muguntha Manikandan, N., Murata, Y., Inoue, M. and Iida, T.: High resolution analyses of temporal variations of airborne radionuclides. "Radiation Dose and Health Effects", International Conference Series 1276, 227-230 (2005)
 - (16) Komura, K., Kuwahara, Y., Abe, T., Tanaka, K. and Inoue, M.: Application of short-lived cosmogenic radionuclides in hydrology. Proc. 2nd International Conference on Radioactivity in the Environmental Radioactivity, Oct. 2-6, 2005, Nice, 475-478 (2005)
 - (17) Komura, K., Muguntha Manikandan, N., Yamaguchi, Y., Inoue, M., Abe, T. and Murata, Y.: Levels of airborne radionuclides at Hegura Island, Japan. Proc. International Congress on Isotopes and Environmental Studies, Oct., 25-29, 2004, Monaco., 554-561 (2006)
 - (18) Komura, K., Hoshi, M., Endo, S., Imanaka, T. and Fukushima, H.: Ultra-Low-background measurements of ^{152}Eu in Hiroshima Samples. Reassessment of the Atomic Bombs Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki: Dosimetry System 2002, RERF (2) 588-592 (2005)
 - (19) 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, Planet. Sci. Lett. 231, 307-316 (2005)
 - (20) Tarohda, T., Ishida, Y., Kawai, K., Yamamoto, M. and Amano, R.: Regional distribution of manganese, iron, copper, and zinc in the brains of 6-hydroxydopamine-induced parkinsonian rats, Anal Bioanal. Chem. 383, 224-234 (2005)
 - (21) Yamada, Y., Yasuike, K. and Komura, K.: Temporal variation of ^{14}C concentration in tree-ring cellulose for the recent 50 years. Journal of Nuclear and Radiochemical Sciences 6, 135-138 (2005)
 - (22) Yamamoto, M., Tomita, J., Sakaguchi, A., Shirotori, T., Siraki, K. and Tazaki, K.: Radiochemical aspect of Hokutolite collected recently at Peitou Hot Spring, Taiwan, Proc. Int. Conf. on Centennial of Discovering Hokutolite and Hot Springs, 64-69 (2005)
 - (23) Yamamoto, M., Sakaguchi, A., Sasaki, K., Hirose, K., Igarashi, Y. and Kim, C. K.: Seasonal and spatial variation of atmospheric ^{210}Pb and ^7Be deposition: Features of the Japan Sea side of Japan, J. Environ. Radioactivity 86, 110-131 (2006)

2) 総説・資料・報告書

- (1) 小村和久, 村田祥全, 阿部琢也: 中性子照射による極低レベル放射能測定用の微弱標準線源の作成, 平成16年度近畿大学原子炉等利用共同研究経過報告書 65-67 (2005)
- (2) 小村和久, 桑原雄宇: 雨水中の短寿命宇宙線誘導核種, Isotope News 2005年10月号, 2-6 (2005)
- (3) 田中究: 第7回「環境放射能・放射線夏の学校」, 日本原子力学会誌 47 (12), 69 (2005)
- (4) 山本政儀, 温泉と放射能-放射能泉, 面白く, 楽しい片山津・温泉学-そこ(底)が知りたい 温泉の一, 片山津温泉を支える科学者グループ (田崎和江, 他10名) 80-94 (2005)
- (5) 小村和久, ^{108m}Ag を用いる新しい原爆中性子評価, 放射化学ニュース 13, 11-17 (2006).

3) 学術発表

- (1) Abe, T., Muguntha Manikandan N., Yamaguchi, Y., Tanaka, K., Murata, Y., Kuwahara, Y., Watanabe, S., Sakaguchi, A., Tomita, J., Hamajima, Y. and Komura, K.: High resolution simultaneous measurements of airborne radionuclides at sub-regional sampling points by ultra low background gamma spectrometry, 2nd International Conference on Radioactivity in the Environment & 6th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic and Antarctic, Nice, France, Oct. 2-6, 2005 (2005.10)
- (2) Abe, T., Yamaguchi, Y. and Komura, K.: High Resolution Simultaneous Measurements of Airborne Radionuclides at Sub-regional Sampling Points by Ultra Low Background Gamma Spectrometry, 4th International Symposium of Kanazawa University 21st Century COE Program / IICRC Promoting Environmental Research in Pan-Japan Sea Area - Young Researchers' Network-, Kanazawa, Japan (2006.3)
- (3) 阿部琢也, 山口芳香, ムグンタ マニカndan, 小村和久, 極低バックグラウンドγスペクトロメトリーによる大気中放射性核種の準地域的な高解像度同時観測, 第49回放射化学討論会, 金沢 (2005.9)
- (4) Hamajima Y. and Komura K.: Depth profiles of environmental neutron flux in solids and liquid - 2nd International Conference on Radioactivity in the Environment & 6th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic and Antarctic, Nice, France, Oct. 2-6, 2005 (2005.10)
- (5) 浜島靖典, 小村和久: 固体中の環境中性子深度分布, 第49回放射化学討論会, 金沢 (2005.9)
- (6) 浜島靖典, 小村和久: 物質中の環境中性子分布 -MCNPとの比較-, 第7回「環境放射能」研究会, 高エネルギー加速器研究機構, つくば (2006.3)
- (7) Imanaka, T., Fukutani, S., Yamamoto, M., Sakaguchi, A. and Hoshi, M.: External radiation in Dolon village due to the fallout depositio from the First USSR atomic bomb testing in 1949, *ibid.*
- (8) 今中哲二, 福谷哲, 山本政儀, 坂口綾, 星正治, セミパラチンスク核実験場からのフォールアウトによるドロン村での外部被曝線量評価, 日本放射化学会, 金沢 (2005.9)
- (9) Inoue, M. and Komura, K. Preliminary approach of low-background γ-ray spectrometry to volcanic ground water. APSORC, Beijing, China (2005.10)
- (10) 井上睦夫, 渡部諭, 田中究, 小藤久毅, 山本政儀, 小村和久: 極低バックグラウンドγ線測定

- の海水試料への適用— $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比からみた日本海沿岸海水循環—, 第7回「環境放射能」研究会, 高エネルギー加速器研究機構, つくば (2006.3)
- (11) Kashiwaya, K., Yamamoto, M., Sato, T., Hasebe, N., Tamamura, S., Sakaguchi, A., Ota, Y., Lagason, R. C., Matsuoka, T., Yang, D. Y., Kim, J. K. and Nahm, W. H.: Environmental information inferred from some lake-catchment systems in Japan and Korea, 2nd Japan-Korea Joint International Workshop on Present Earth Surface Processes and Historical Environmental Changes in East Asia, Kanazawa, Japan (2005.10)
- (12) 小村和久, 桑原雄宇: 雨水中の短寿命宇宙線誘導核種の測定と水文学研究への応用, 日本保健物理学会第39回研究発表会, 青森県六ヶ所村 (2005.6)
- (13) 小村和久: 超低レベル放射能測定の現状と展望, アイソトープ放射線研究発表会 (2005.7)
- (14) 小村和久: $^{108\text{m}}\text{Ag}$ を用いる新しい原爆中性子評価, 第49回放射化学討論会, 金沢 (2005.9)
- (15) Komura, K., Kuwahara, Y., Abe, T., Tanaka, K., Murata, Y. and Inoue, M.: Application of short-lived cosmogenic radionuclides in hydrology, Nice, France (2005.10)
- (16) 小村和久, 今中哲二: $\text{Ag-}^{108\text{m}}$ を用いる新しい原爆中性子評価法, 日本放射線影響学会第8回大会, 広島 (2005.11)
- (17) 桑原雄宇, 阿部琢也, 小村和久: 雨水中の短寿命宇宙線誘導核種のトレーサー利用, 第7回「環境放射能」研究会, 高エネルギー加速器研究機構, つくば (2006.3)
- (18) 村田祥全, 小村和久, 古賀妙子, 森嶋彌重: 金の中性子自己吸収の評価と中性子束測定への適用, 第49回放射化学討論会, 金沢 (2005.9)
- (19) Murata, Y., Komura, K., Ahmed Yousef, Koga, T. and Orishima, H.: Evaluation of neutron self-absorption in gold and application to measurement of neutron flux, 4th International Symposium of the Kanazawa University 21st-Century COE Program, Kanazawa, Japan (2006.3)
- (20) Orlov, M., Stepanenko, V., Sakaguchi, A., Yamamoto, M. and Hoshi, M.: Estimation of the width of radioactive trace near Dolon' village, *ibid.*
- (21) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Hoshi, M., Imanaka, T., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Radioactive contamination in the vicinity of Semipalatinsk nuclear test site: Dolon, Mostik, Cheremshki and Budene settlements, *ibid.*
- (22) Sakaguchi, A., Tomita, J., Kashiwaya, K. and Yamamoto, M.: Uranium and thorium records in bottom sediments from Lake Baikal: sedimentary behavior and application to dating, *ibid.*
- (23) Sakaguchi, A., Yamamoto, M. and Kashiwaya, K.: Uranium and Thorium Isotopes in Lacustrine Sediments -Lake Baikal-, The 2nd International Conference on Radioactivity in the Environment & the 6th International conference on environmental radioactivity in the Arctic and the Antarctic, Nice, France (2005.10)
- (24) Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Tomita, J. and Kashiwaya, K.: Uranium and Thorium Isotopes Distribution in a Bottom Sediment Core from the Academician Ridge, Lake Baikal, Siberia, 4th International Symposium of Kanazawa University 21st Century COE Program, Kanazawa, Japan (2006.3)

- (25) 坂口綾, 佐々木圭一, 柏谷健二, 山本政儀: ウラン・トリウム同位体組成から見るバイカル湖の堆積環境, 第49回放射化学討論会, 金沢 (2005.9)
- (26) Stepanenko, V., Hoshi, M., Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Orlov, M., Ivannikov, A., Skvortsov, V., Apsalikov, K. and Gusev, B.: A gradient of external dose in Dolon' village near Semipalatinsk nuclear test site: comparison of computed values with instrumental estimate, *ibid.*
- (27) Stepanenko, V., Hoshi, M., Sakaguchi, A., Yamamoto, M., Apsalikov, A., Gusev, B., Kolizhenkov, T. and Jungner, H.: International intercomparison of radiospective luminescence dosimetry method: sampling and distribution of the brick samples from Dolon' village, Kazakhstan, 10th Hiroshima International Symposium on 3rd Dosimetry Workshop on the Semipalatinsk Nuclear Test Site Area, Hiroshima (2005.3)
- (28) Tamamura, S., Ringor, C., Ota, Y., Sakaguchi, A., Matsuoka, T., Sato, T., Hasebe, N., Yamamoto, M., Kashiwaya, K., Yang, D. Y., Kim, I. Y. and Nahm, W. H.: Records of human activities derived from lakustrine sediments in Korea and Japan, *ibid.*
- (29) Tanaka, K., Inoue, M. and Komura, K.: Application of low-background γ -ray spectrometry to sea water analysis: Implications for water circulation patterns in the Sea of Japan. APSORC, Beijing, China (2005.10)
- (30) 田中究・井上 睦夫・小村 和久: 日本海における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比および ^{137}Cs 濃度の鉛直分布, 第7回「環境放射能」研究会, 高エネルギー加速器研究機構, つくば (2006.3)
- (31) 田中究・井上睦夫・御園生淳・小村和久: 極低バックグラウンド γ 線測定による深層海水の ^{228}Ra 濃度の測定-日本海の鉛直循環の解明- 環境放射能研究会, つくば (2006.3)
- (32) 太郎田融, 石川康, 河合恵一, 山本政儀, 榎本秀一, 天野良平: パーキンソン病進行に伴う関連部位へのマンガン集積, 日本放射化学会, 金沢 (2005.9)
- (33) 富田純平, 坂口綾, 佐竹洋, 中村俊夫, 山本政儀: 白山周辺に温鉱泉の同位体地球化学的研究, 日本放射化学会, 金沢 (2005.9)
- (34) 渡部諭, 井上睦夫, 小藤久毅, 田中究, 山本政儀, 小村和久: 日本海 沿岸海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動, 日本放射化学会, 金沢 (2005.9)
- (35) 山口芳香, 阿部琢也, 村田祥全, Muguntha Manikandan, N., 小村和久: 大気中の放射性核種変動の高解像度同時観測 - 気象条件や自然災害の影響 -, 第42回アイソトープ・放射線研究発表会, 東京 (2005.7)
- (36) 山口芳香, 阿部琢也, 村田祥全, M. Manikandan N., 小村和久: 大気中の放射性核種変動の高解像度同時観測 - 気象条件や自然災害の影響 -, 第49回放射化学討論会, 金沢 (2005.9)
- (37) Yamamoto, M., Tomita, J., Sakaguchi, A., Shirotori, T., Shiraki, K. and Tazaki, K.: Radiochemical aspect in Hokutolite collected recently from Peitou Hot Spring, Taiwan, International Conference on Centennial of Discovering Hokutolite and Hot Springs, Taipei, Taiwan (2005.10)
- (38) Yamamoto, M., Hoshi, M., Sakaguchi, A., Shinohara, K., Apsalikov, K. N. and Gusev, B. I.: Preliminary results of Pu and U in human tissues from people living near the Semipalatinsk nuclear test site, *ibid.*
- (39) Yamamoto, M., Sakaguchi, A., Kashiwaya, K., Szyniszewska, A., Krivonogov, S., Watanabe, T. and

Nakamura, T.: Uranium and thorium isotopes distribution in the sediment core of the Lake Hovsgol, Mongolia: As a proxy of paleoenvironmental reconstruction, International Symp. on Terrestrial Environmental Changes in East Eurasia and Adjacent Areas, Korea-Japan-Russia-Mongolia Joint scientific Program, Gyeongju, Korea (2005.12)

4) 研究交流

・共同研究

- (1) 小村和久, 宇宙線照射石英中の ^{22}Na と ^7Be の生成量 (NASA GENESIS Project.), K. Nishiizumi Space Science Lab. Univ. of California. 2004-2005
- (2) 小村和久, 個人線量モニターによる環境放射線レベル測定, 金沢工業大学, 南戸秀仁, 2000-現在
- (3) 小村和久, JCO 臨界事故で被爆した歯の $^{110\text{m}}\text{Ag}$ と ^{65}Zn の測定, 豊田新, 岡山理科大, 猿渡暁, 広島大学
- (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) 小村和久, NAMLS8 (8th Nuclear Analytical Methods in the Life Sciences)リオデジャネイロ, ブラジル (2005.4)
- (2) 小村和久, 大気中放射能の環境動態に関する研究打ち合わせ, 漢陽大学校環境産業医学研究所, 韓国 (2005.7)
- (3) 小村和久, 2nd International Conference on Environmental Radioactivity & 6th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic and Antarctic, ニース, フランス (2005.10)
- (4) 山本政義, 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評価 (科学研究費-海外), カザフスタン (2005.9)
- (5) 山本政義, 北投石発見 100 周年国際会議, 台北, 台湾 (2005.10)
- (6) 山本政儀, 韓国-日本-ロシア-モンゴル共同国際会議, International Symp. on Terrestrial Environmental Changes in East Eurasia and Adjacent Areas, 慶州, 韓国 (2005. 12)
- (7) 浜島靖典, 2nd International Conference on Radioactivity in the Environment & 6th International Conference on Environmental Radioactivity in the Arctic and Antarctic, ニース・フランス, (2005.10)
- (8) 井上睦夫, Asia-Pacific Symposium on Radiochemistry-05, 北京, 中国 (2005.10)

5) 各種活動 (学会・社会)

・学会活動

小村和久：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，日本アイソープ協会理工学部会第常任委員

山本政儀：日本放射線影響学会幹事，兼 J. Radiat. Res. 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. 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，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，辰口国際交流協会副会長，能美市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：福井県原子力安全専門委員，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，財団法人日本分析センター環境放射能分析研修委員会

・招待講演および特別講演

小村和久：

2005.9 保健物理学会夏の学校 特別講演 「我が国の環境放射能研究の歴史」

2005.5 第22回希土類討論会(大阪) 特別講演「ランタノイド元素と放射能」

2005.11 日本放射線安全管理学会第4回学術大会，招待講演(パネル討論)「劣化ウラン弾の放射能」

2005.8 日本アイソトープ協会 理工学部会夏の学校，特別講演「劣化ウラン弾の放射能」

2006.3 日本応用物理学会 シンポジウム「広島・長崎原爆放射線新評価システム DS02 と環境放射線計測技術」極低レベル ^{152}Eu の測定と $^{108\text{m}}\text{Ag}$ を用いる新しい原爆中性子評価法

2-3.. 研究費

1) 科学研究費等

(1) 小村和久，文部科学省特別教育研究 極低レベル放射能測定による新領域の開発と全国共同利用微弱放射能測定拠点の形成 10,100 千円

(2) 山本政儀(代表) 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，4,600 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，1,100 千円(平成16年度-平成17年度)

2) 研究助成金等

(1) 小村和久，学長戦略経費(重点研究経費)，極低レベル放射能測定による新領域の開発と全国共

同利用微弱放射能測定拠点の形成, 20,000 千円

- (2) 小村和久, 財団法人放射線影響協会研究奨励助成金, ^{108m}Ag を用いる新しい原爆中性子評価法の開発, 350 千円
- (3) 小村和久, 長瀬ランダウア共同研究, 個人線量計の自己照射評価 100 千円

3) 受託研究費

- (1) 小村和久, 気象研究所受託研究, 海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究, 5,254 千円
- (2) 小村和久, 石川県受託研究, 極低レベル放射能の検出方法の開発と実証に関する基礎研究, 2,000 千円

2-4. 研究指導

1) 博士論文

- (1) 太郎田融, 脳成長過程におけるマンガン, 鉄, 銅および亜鉛の局在分布と脳変性疾患への影響, 自然科学研究科物質科学専攻, 博士 (理学), 山本政儀

2) 修士論文

- (1) 桑原雄宇, 宇宙線誘導核種の挙動とトレーサー利用への試み, 修士 (理学), 小村和久
- (2) 渡部諭, 日本海沿岸海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動, 自然科学研究科物質化学専攻, 修士 (理学), 山本政儀

2-5. その他

新聞等報道

- 放射能研究所を視察, 馳代議士, 小松・尾小屋測定室へ: 北國新聞 (2005.6.6)
- 測定技術向上目指す: 北陸中日新聞 (2005.6.6)
- 被爆線量 新方式で推定, 広島・長崎 10%多く: 朝日新聞 (2005.7.30)
- 被爆の強さ銀で解明: 北國新聞 (2005.9.22)
- 宇宙からの“手紙”雨の中から発見 上空の現象解明のてがかりに: 北陸中日新聞 (2005.10.3)
- 銀が語る被爆のつめ跡: HAB スーパーJ チャンネル (2005.10.19)
- 尾小屋から世界に「驚き»: 北陸中日新聞 (11.19)
- 広島・長崎の原爆放射線量 銀製品から測定: 広島読売新聞 (2005.12.3)

3. 研究報告

^{108}mAg を用いる新しい原爆中性子評価法

自然計測研究部門 低レベル放射能実験施設

小村和久

New Method for the evaluation of Atomic Bomb neutrons by ^{108}mAg

K. Komura

はじめに

広島・長崎の原爆によって生成した ^{152}Eu (半減期 13.54 年) の実測と計算値の不一致問題は kg レベルの花崗岩から分離したユウロピウム試料の極低バックグラウンド測定によって解決され、新しい原爆被ばく線量評価方式 DS02 が策定された。原爆投下 60 年を経た現在では、爆心から 1km 以上の ^{152}Eu の検出は極めて困難な状況にあり、これに代わる新しい方法が模索されていた。核データを検討する中で、中性子捕獲反応断面積が小さく考慮されたこともない半減期 418 年の ^{108}mAg を用いる方法を思いついた。

Table 1. ^{108}mAg 及び ^{152}Eu を用いる原爆中性子評価法の感度の比較

項目	データ	^{108}mAg	^{152}Eu	$^{108}\text{mAg}/^{152}\text{Eu}$
核データ	半減期	418年	13.5年	0.032
	ターゲット同位体	^{107}Ag (51.84%)	^{151}Eu (47.88%)	1.083
	放射化断面積 (cm^2)	1.30E-24	5.90E-21	0.000
試料	被ばく試料	銀製品,他の金属製品	岩石	
	典型的元素濃度	100~1%	< 1 ppm	> 10,000~1,000,000
測定		437 keV (90.5%)		
	γ 線 (放出率)	615 keV (89.8%)	344 keV (26.6%)	10.2
		723 keV (90.8%)		
壊変	2005年	0.913	0.0599	15.2
	2050年	0.840	0.0046	181.5
	2100年	0.773	0.0004	2,159.9
	3000年	0.174	3.50E-24	5.0.E+22
総合 (純銀)	2005年			1,200
	2050年			14,300

Table 1 に示すように中性子捕獲によって銀から生成する ^{108}mAg の測定は岩石中に ppm レベルしか存在しないユウロピウムから生成する ^{152}Eu よりも約 3 桁感度が高いことが分かる。中性子捕獲断面積が約 4 桁小さいという欠点がターゲット原子数が 6 桁高いことで克服され、さらには半減期が長いので、放射壊変が殆どないこと、 ^{108}mAg からの γ 線の放出率が高いことに誰も気付かなかったのである。

測定

2005 年 4 月から広島・長崎の原爆資料館から被爆資料を借用し尾小屋地下測定室の大型 Ge 検出器による測定が行われた。に爆心から 4 5 0 m 地点で被ばくした勲章 (Ag 95%) の γ 線スペクトルを Fig.1 に示す。予想した通り、高濃度の ^{108}mAg が検出され、 ^{108}mAg を利用する原爆中性子線量評価が感度の高さが極めて感度が高いことが確認された。似島 (にのしま) に埋葬された原爆犠牲者 (被爆地点不明) が身につけていたと考えられる真

鍮製の指輪試料は蛍光 X 線分析による銀の検出ができなかったが、Fig2 に示すように ^{108}mAg が明瞭に検出されている。 ^{108}mAg の感度の高さを示すとともに、岩石中の ^{152}Eu の測定では不可能な犠牲者の中性子線量の直接評価が可能な点で画期的な方法である。

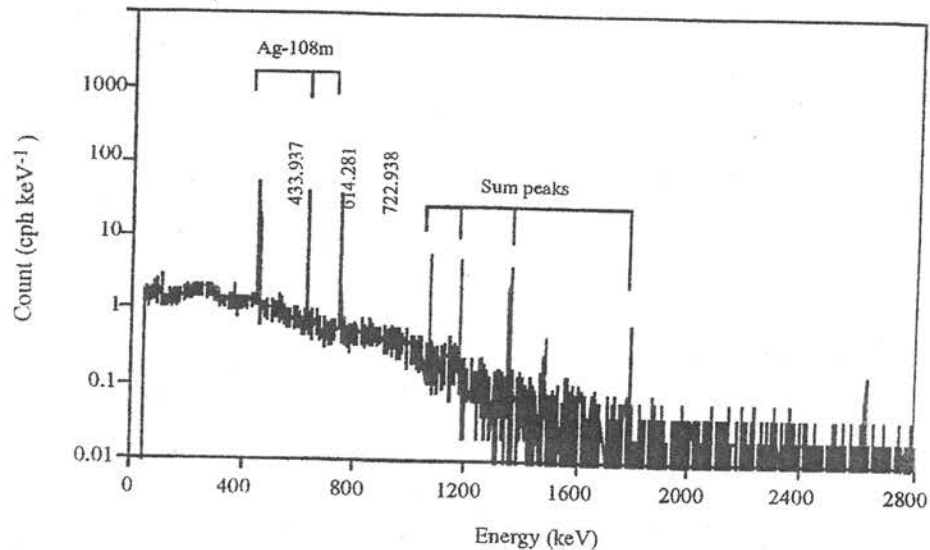


Fig. 1. 広島原爆の爆心から 450m 地点で被ばくした銀製の勲章の γ 線スペクトル。

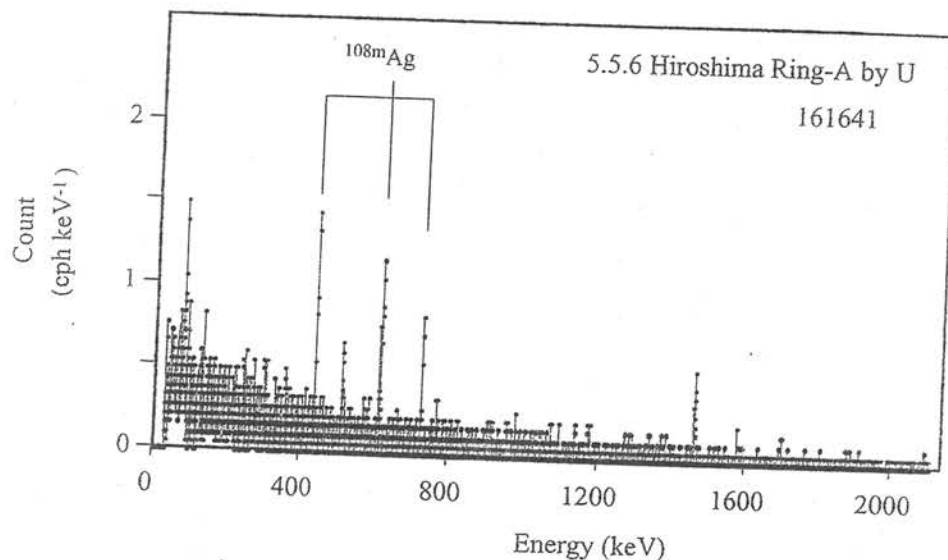


Fig. 2 似島に埋葬された犠牲者が身につけていた真鍮製の指輪の γ 線スペクトル。

銀貨、銀を含む指輪、銀製のロザリオなどの測定が可能になれば、広島では爆心から 1.6km 長崎では 1.4km 地点の中性子線量の測定も可能と考えられる。

測定試料を貸していただいた広島と長崎の原爆資料館及び本研究に対する研究助成をいただいた放射線影響協会に深く感謝する。

[第 49 回放射化学会(2005.9 金沢)および第 48 回放射線影響学会(2005.11 広島)で発表した。]

金の中性子自己吸収の評価と中性子束測定への適用

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: Evaluation of neutron self-absorption in gold and application to measurement of neutron flux

[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。

これまでに筆者らは、金粒や重ねた金板を環境中性子および近畿大学原子炉内および炉外中性子による照射を行い、中性子の自己吸収を実験的に評価してきた。本研究では、近畿大学原子炉を用いて過去の実験よりも多数枚重ね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、金を検出器として用いる中性子束測定への補正の適用を目指した。

[実験方法]

約 $10 \times 10 \times 0.15 \text{ mm}$ 、重量約 290 mg の 30 枚の純金板を重ねたものを、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 10 分間中性子照射を行った。照射後、高純度 Ge 半導体検出器を用いて、炉内照射した金板は 1 時間、炉外照射した金板は 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]

炉内照射した金板の ^{198}Au 放射能が最も強い外側の試料を 1 としたときの相対放射能の値をプロットしたものを Fig. 1 に示す。両側からそれぞれ 1 mm までは減少が大きい、それより内側は 0.5~0.6 の間でほぼ一定の値であった。これは、金板に進入してきた中性子束は、金による吸収により減少していくが、中心に近い部分は両方向からの照射の影響を同程度に受けるため、見かけ上一定になっていると考えられる。

両側から中性子照射を受ける場合、 ^{198}Au 放射能は次式で表すことができる。

$$y = A \cdot e^{-\alpha x} + B \cdot e^{-\alpha(T-x)} \quad (1)$$

ここで、 y は ^{198}Au 放射能、 $A \cdot B$ は各側の相対的な中性子束、 α は中性子吸収係数、 T は重ねた金板の総厚、 x は金板の位置である。各側の最も外側の金試料の ^{198}Au

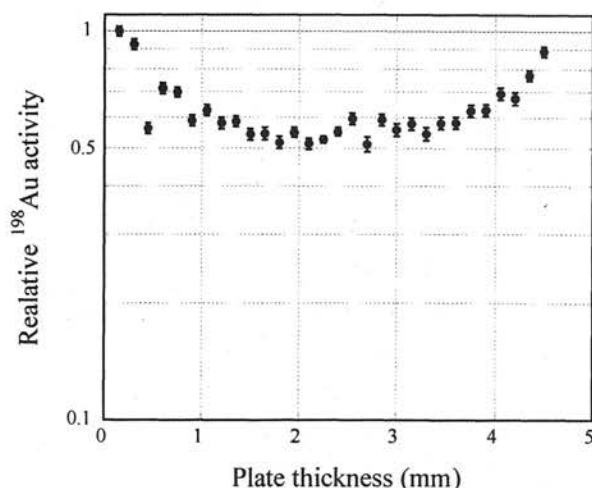


Fig. 1 Relative ^{198}Au activity in pure gold plates irradiated by neutron of UTR-KINKI

放射能の測定値より、 $A=1.0$ 、 $B=0.9$ とした。さらに $T=4.5$ を代入して、回帰分析により a の値を求めた。 $a=0.618$ を式(1)に代入して、式(2)が得られる。

$$y = 1.0e^{-0.618x} + 0.9e^{-0.618(4.5-x)} \quad (2)$$

両側からの中性子束が等しい場合、式(1)は式(3)ようになる。

$$y = e^{-0.618x} + e^{-0.618(T-x)} \quad (3)$$

自己吸収を求めるために、式(3)を x について 0 から T の範囲で積分すると式(4)のようになる。

$$\frac{2}{0.618} (1 - e^{-0.618T}) \quad (4)$$

自己吸収が全く存在しないと仮定すると、式(3)は $y = 2$ となりこれを積分すると $2x$ となり式(4)を $2x$ で割ることにより、自己吸収を示す式(5)が得られる。

$$\frac{1}{0.618T} (1 - e^{-0.618T}) \quad (5)$$

式(5)を近畿大学原子炉内、炉外および環境中性子照射で行なった過去中性子自己吸収の実験結果と併せて Fig.2 にプロットする。図中に実線で示した式(5)は、近畿大学原子炉内で照射した金粒の実験結果とよく一致していることがわかる。しかし、環境中性子の実験結果とは多少ずれがあり、これは近畿大学原子炉内と環境中性子のエネルギースペクトルの差に起因すると思われる。とはいえ、差はそれほど大きくないことから、式(5)は環境中性子の自己吸収の補正する際の指標として利用可能であると思われる。

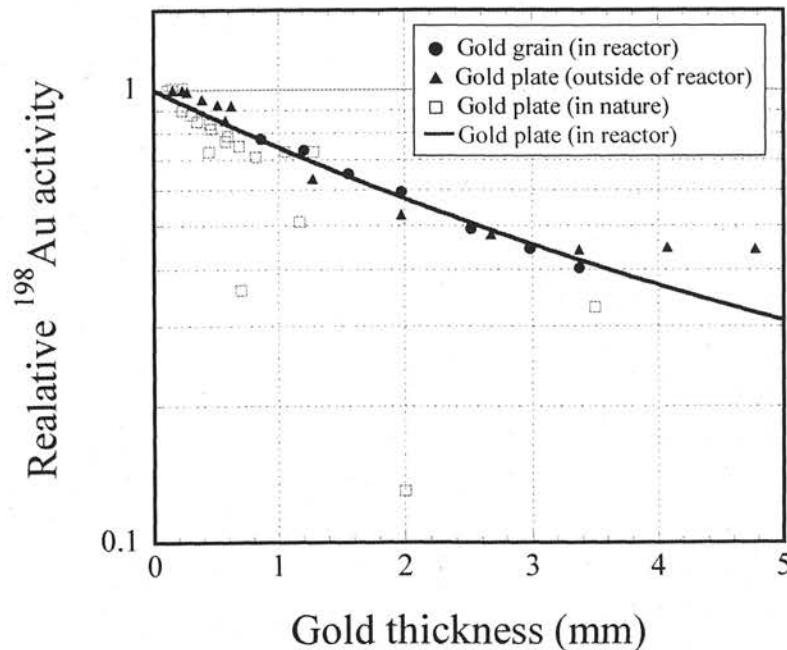


Fig. 2 Relative ^{198}Au activity obtained by many experimental to investigate neutron self-absorption of gold.

謝辞

本研究は、「平成 17 年度近畿大学原子炉等利用共同研究」の一部として行われ、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。

物質中の環境中性子分布 -MCNP との比較-

浜島靖典, 小村和久

923-1224 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

Yasunori Hamajima and Kazuhisa Komura: Depth profiles of environmental neutron in liquids and solids

1. はじめに

環境中性子の起源は、1 次宇宙線と大気との核破砕反応による2 次宇宙線成分の一つとして、また一部は放射性壊変による事が知られている。環境中性子誘導核種は、地球科学分野で年代測定や浸食の研究に有用に用いられている。一方、極低レベル放射能測定、例えば広島長崎の残留放射能測定や JCO 事故による誘導放射能測定の際には、環境中性子誘導核種は妨害となる^{1, 2}。いずれの場合も、物質中の環境中性子誘導核種分布、或いは中性子束分布を知ることが重要である。しかし、1970 年代以後、カウンターを用いた大気中の高度分布は報告されているが、固体や水中深度分布の詳細な報告例は少なく、計算により推定されていた³。本研究では、金箔を環境中性子で照射し $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応で生成した Au-198 を測定することにより、淡水、海水、コンクリート、鉄及び鉛中の環境中性子束分布を深度分解能、中性子束共に精度よく測定した。この測定は、旧尾小屋鉱山トンネル内の地下測定室（水深換算 270m）に設置した計 11 台の高分解能・高効率・極低 BG の Ge 検出器⁴を同時に用いる事で可能となった。また実験結果と MCNP 計算との比較も報告する予定である。

2. 実験

16 から 33g の金箔（約 40 x 300 mm, 0.1mm 厚）7-10 枚を、淡水、海水中に水平に吊るした。また重ねたコンクリート板、鉄板、鉛板の間に挿入した。照射は約 20 日行った。測定は尾小屋地下測定室の Ge 検出器計 8-10 台で、生成した Au-198 の 412keV ガンマ線を約 4 日間同時に測定した。金標的中の放射能は全て熱中性子によって生成したと仮定し（反応断面積 98.8b）、各深度の中性子束を求めた。標的中の中性子自己しゃへい、標的輸送中の照射、測定ガンマ線の自己吸収、計数効率等の補正を行った⁵。

3. 計算

計算コードは MCNP 4C を用いた。図 2 のように直径 40-200m 高さ 10m の大気空間と同じ直径で深さ 1m のしゃへい物質のセルを定義した。中性子源は図 3 のように、文献により異なる 3 種類の環境中性子エネルギースペクトル^{6, 7, 8}をテストした。

4. 結果と考察

実験結果の中から、特徴的な分布をもつ淡水、コンクリート及び鉛中の環境中性子束深度分布を図 1 に示す。図中の誤差はピーク面積の統計誤差のみを示した。深度 0 g cm^{-2} の絶対値の差は、照射期間中の空気中環境中性子束強度差に由来する。水中の分布はほぼ指数関数的に減少、コンクリート中では 30 g cm^{-2} から 40 g cm^{-2} まで増加後減少、鉛中では表面付近で減少し、その後 227 g cm^{-2} までの範囲ではほぼ一定で、極大は見られなかった。海水中の分布は 100 g cm^{-2} まで単調減少ではないが淡水とほぼ同じ、また鉄中の分布は鉛の分布とほぼ同じであった。固体中の分布は、照射セットアップ条件の差が、特に浅い深度分布に影響している可能性がある。図のように、物質によって中性子束深度分布は大きく異なる。コンクリート中の分布

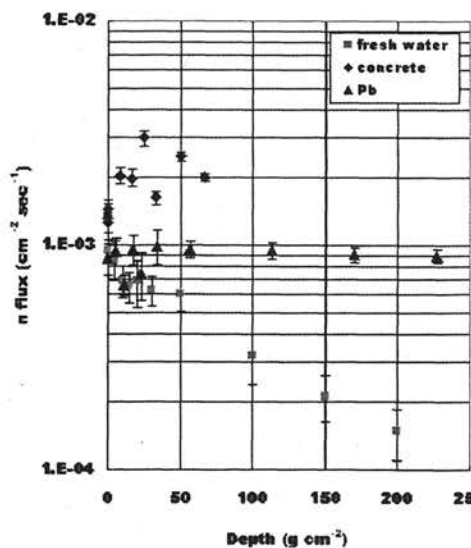


Fig.1 Depth profiles of environmental neutron flux in fresh water, concrete, and lead.

から高速中性子の寄与が大きい事が予想される。

MCNP によりこれらの違いが再現するか、また照射セットアップ条件の違いが結果に影響を与えるかも検討中である。計算には空間のセルの定義方法、初期の中性子のエネルギー分布、空間配置、方向性など計算パラメータの設定が重要であることがわかった。予備的な結果の一部を図4に示す。3種類の環境中性子エネルギースペクトルを用いて計算した淡水中の全中性子の深度分布は、図1の実験値と似た減少傾向は示すが、減少の大きさはどのエネルギー分布を用いても全く再現していない。どの中性子エネルギーが、実験に用いた金の放射化に寄与しているか検討する必要がある。或いは金の反応断面積と中性子エネルギー分布を全範囲で積分し生成した金の放射能の深度分布を求める必要があるかもしれない。さらに既報の文献では MCNP3B がよく用いられているが、新版の MCNP 4C でさえ 20MeV 以下のエネルギー範囲でしか計算できない。Nakamura らのエネルギースペクトルは 100MeV 付近にも分布の極大があるので、MCNPX などさらに高速中性子を考慮した計算コードを用いなければならないかもしれない。

文献

- 1) Komura, K. and Hamajima, Y., Applied Radiation and Isotopes, 2004, **61**, 185-189.
- 2) Komura, K, J. Radiation Research, 2001, **42**, S17-S29.
- 3) Dunne, J. A. and Elmore D., Earth and Planetary Science Letters, 2003, **206**, 43-49.
- 4) Hamajima, Y. and Komura, K., Applied Radiation and Isotopes, 2004, **61**, 179-183.
- 5) Hamajima, Y. and Komura, K., Radioactivity in the environment, International Conference on Isotopes and Environmental Studies, Vol. 8, (2006) 511-519.
- 6) Armstrong T. W. et al., Journal of Geophysical Research **78**, 2175-2726(1973)
- 7) Nakamura T. et al., Journal of Nuclear Science and Technology **42**, 843-853 (2005)
- 8) Dep L. et al., Nuclear Instruments and Methods B **92**, 321-325 (1994)

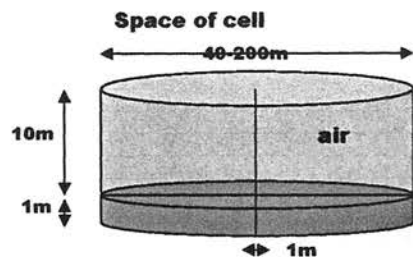


Fig. 2 Space of cell on MCNP

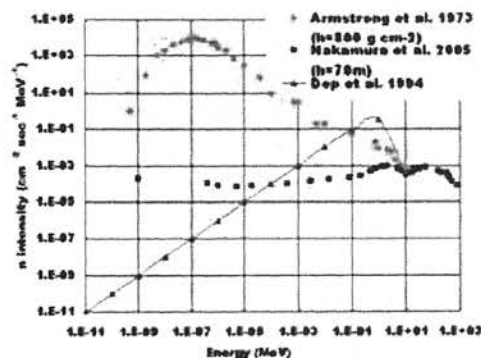


Fig.3 Energy distribution of three environmental neutron sources.

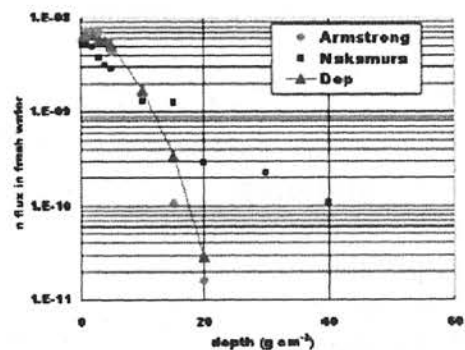


Fig.4 Total neutron depth profile in fresh water

日本海側（石川県辰口）における過去 15 年間の放射性核種 ^{40}K と ^{137}Cs 降下量の変動

山本政儀¹, 坂口 綾², 富田 純平³

〒923-1224 石川県能美市和気町オ-24, 金沢大学自然計測応用計測センター・低レベル放射能実験施設¹, 金沢大学大学院自然科学研究科^{2,3}

M. YAMAMOTO, A. SAKAGUCHI and J. TOMITA, Seasonal Variation of Atmospheric ^{40}K and ^{137}Cs Deposition in the past 15 years at Tatsunokuchi of Ishikawa Pref. facing the Sea of Japan

1. はじめに

我が国は、極東アジアの中緯度に位置するため、偏西風が卓越し、風上側のアジア大陸から日本海を經由して自然・人為起源物質が日本列島さらに北太平洋に輸送される。人為起源物質のエアロゾルによる気候変動の影響については、定量的な議論を行うための研究が精力的に進められている。最近、自然起源の風送ダスト（黄砂）についてもその放射強制力による気候変動や海洋表層のプランクトン等の一次生産への影響評価、さらに大気中汚染物質のスカーベンジャー等の面から実態把握と輸送モデルによる研究が重要視されている。

大気中には、種々の放射性核種、宇宙線起源の ^{35}S , ^7Be , ^{10}Be , ^{22}Na , や陸起源の ^{222}Rn , ^{210}Pb (^{210}Po), U や Th 同位体, ^{40}K さらに大気圏核実験起源の ^{90}Sr , ^{137}Cs , $^{239,240}\text{Pu}$ などが存在している (Fig. 1)。これらの放射性核種は、一定の物理的半減期で減少することに加え、供給源や供給量がよく把握されているために、大気の循環と混合過程、気団の移動、エアロゾルの挙動、汚染物の輸送や除去過程研究等のトレーサーとして多用されている。 ^{40}K は一般的には地

殻起源である。黄砂を含む粘土鉱物中にイライトの占める割合が非常に高いことが知られている。イライトはその層状構造の間に K を取り込んだ粘土鉱物であり、その意味で K , ひいてはその同位体の放射性 ^{40}K は黄砂の主成分と関係があり黄砂降下量の指標になる。 ^{137}Cs は、1960 年代の大気圏核実験からの放射性降下物であり、1980 年代までにその殆どが地上に降下沈積し、現在大気中に見出せる ^{137}Cs は地上表層土壌からの再浮遊による。それ故、この核種も土壌起源の指標として見なせる。本研究は、大陸からの汚染物質の影響が最も懸念される日本海域に着目し、 ^{40}K および ^{137}Cs をトレーサーとして特に日本海側の大陸からの黄砂を含む土壌起源物質の長距離輸送の実態把握とその結果を長期・短期環境変動解析・予測に役立てることを目的として降下量の連続観測を進めている。ここでは、石川県辰口町（当実験施設、LLRL）で 1991～2005 年にかけて毎月に測定してきた過去 15 年間の長期降下量の推移を報告する。

2. 試料採取・分析

降下物試料は、当実験施設屋上に設置した大型水盤（ステンレス製、受水面積 0.5m^2 ）で 1991

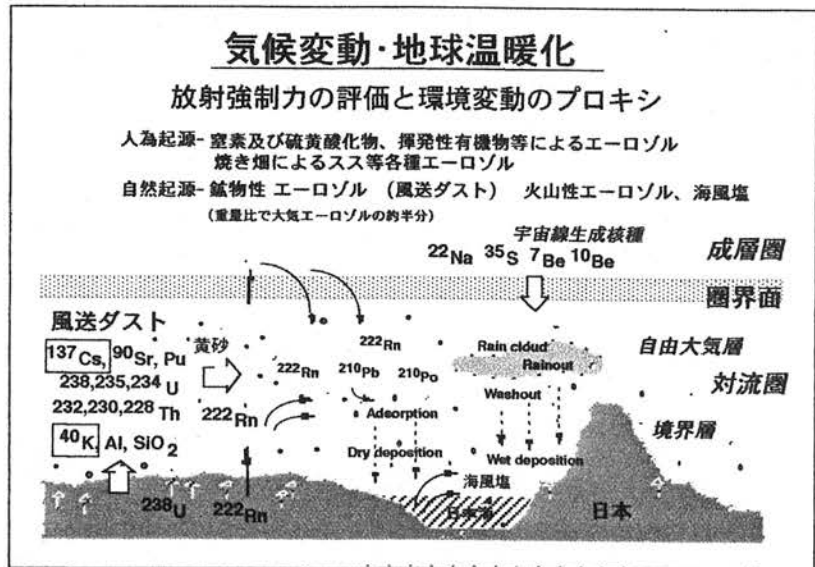


Fig. 1 Useful radioactive tracers used in the fields of atmosphere

年から月毎に採取した。試料は、陽・陰イオン交換樹脂 (POWDEX) を充填した 2 段カラム (直径 5cm, 上部カラムに各 30g, 下部カラムに各 40g の樹脂) に直接通し放射性核種を含むダストや溶存成分を殆ど 100% の収率で捕集した。カラムから樹脂を取りだし乾燥・灰化 ($\leq 450^{\circ}\text{C}$)・混合後、一定の容器に詰めたものを測定線源として γ 線スペクトロメトリーにより ^{40}K および ^{137}Cs を定量した。2002 年以降は別途採取した雨水降下物試料を用いて溶存イオン (Na^+ , K^+ , Cl^- , SO_4^{2-} など) をイオンクロマトグラフィーで定量した。

3. 測定結果と考察

過去 15 年間の石川県辰口での ^{40}K および ^{137}Cs 月間降下量の推移を Fig. 2 に示す。 ^{40}K 月間降下量は、0.23–9.07, 平均 2.51 Bq/m^2 , 一方 ^{137}Cs のそれは、0.005–3.77, 平均 0.086 Bq/m^2 であった。 ^{40}K は冬から春先にかけて高く、夏季に低くなる明瞭な季節変動を示す。 ^{137}Cs は、 ^{40}K とは多少異なり春先の黄砂飛来時期 (3–4 月頃) に高く、夏季は ^{40}K 同様に低く、全体として季節変動は示すものの降下量が漸減しつつある。1991 年 9, 11 月の異常に高い ^{137}Cs 降下量については、その原因は不明である。 ^{40}K 年間降下量は、 $25.8\text{--}46.6 \text{ Bq/m}^2$ (大部分は 30 Bq/m^2 前後) で、2002 年に高い降下量 (46.6 Bq/m^2) を示した。

K の発生源として、海塩粒子、土壌 (表層土壌の舞上り、火山噴火、黄砂)、森林火災エアロゾル、さらに森林などの植物葉表面気孔からの放散 (気温・湿度が高い時に顕著) が挙げられる。Fig. 3 に、 $0.45\mu\text{m}$ ミリポアフィル

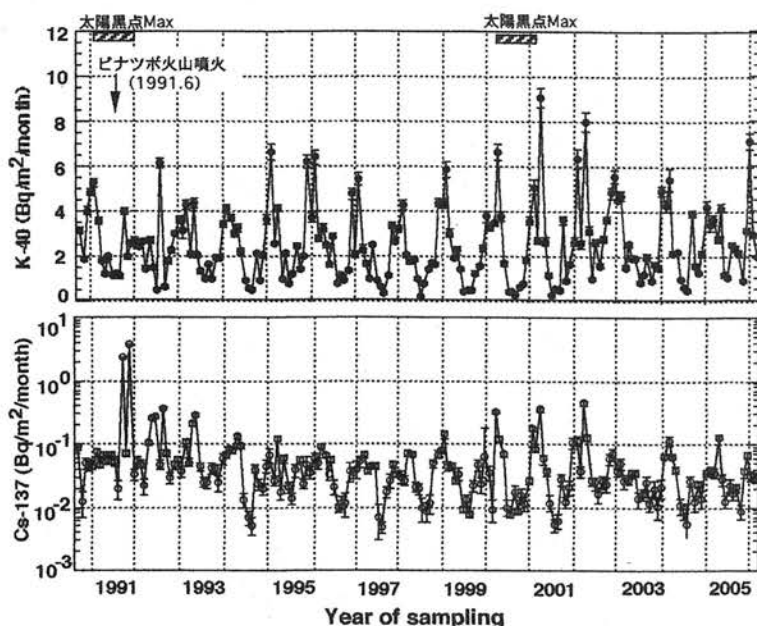


Fig. 2 Monthly depositions of ^{40}K and ^{137}Cs observed at Tatsunokuchi during 1991-2005.

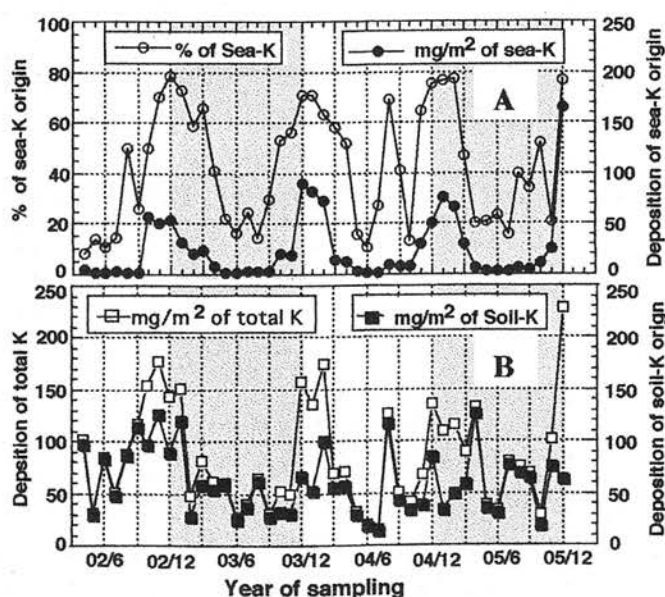


Fig. 3 Contribution of sea-salt K and soil-derived K in the K deposition observed at Tatsunokuchi in 2002-2005.

ターでろ過した溶存成分について測定した海水起源 K 寄与%とその降下量, および全 K 降下量 (^{40}K (Fig. 2) より K 降下量に換算) と海水起源 K を差し引いた主に土壌に由来すると考えられる K 月間降下量を示した。採取期間中、降水に含まれる土壌からの K (Na) の溶出および溶存 K (Na) の土壌などへの吸着は無視できると仮定した。Fig. 3 の (A) に示すように、冬期には海水起源 K の割合が 60–80% と高い。海水起源 K 降下量は夏季には低く、冬期には $20\text{--}40 \text{ mg/m}^2$ (2002 年 12 月を除去) もある。2003–2005 年の主に土壌に由来する K 降下量は $0.83\text{--}1.11 \text{ g-K/m}^2/\text{y}$, 土壌換算で $23\text{--}27 \text{ g-soil/m}^2/\text{y}$ と推定される (Fig. 3 (B))。K は発生源が幾つか有り、きめ細かな測定を通じての発生源別の変動解析が重要であり、特に土壌降下量の推移は環境変動解析のプロキシになる可能性を秘めている。

日本海沿岸海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動

井上睦夫¹・渡部諭¹・田中究¹・小藤久毅²・山本政儀¹・小村和久¹

¹〒923-1224 石川県能美市 金沢大学 K-INET, LLRL

²〒035-0064 青森県むつ市港町 日本海洋科学振興財団

Mutsuo INOUE¹, Satoru WATANABE¹, Kiwamu TANAKA¹, Hisaki KOFUJI², Masayoshi YAMAMOTO¹
and Kazuhisa KOMURA¹: Seasonal variation of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio for coastal water within the Sea of Japan

1. はじめに

日本海沿岸海域は、豊富な漁場を多くかかえている一方で、原子力発電所事故やタンカー座礁事故など人為的な汚染物質の流入の懸念に加え、最近ではエチゼンクラゲの被害といった新たな問題にも直面している。沿岸汚染事故などに対処するにおいて、沿岸域の海水循環に関する情報は不可欠である。われわれのグループは、海水に溶存する ^{226}Ra (半減期 1600 年) と ^{228}Ra (5.75 年) を、海水循環のトレーサーとして利用することにより、この問題に取り組んできた。第一段階として、低バックグラウンドγ線測定法および化学処理法の確立により、少量 (10-20 リットル) の海水試料での $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の精密測定を可能とした (Inoue et al., 2005)。本研究では、この手法を能登半島を中心とした日本海沿岸海水に適用、海水循環解明のため、短期間 (1-3 ヶ月) に採取された海水試料のデータを用いた、高分解能な議論をおこなう。

2. 試料および実験

2-1. 沿岸海水採取地点

2003 年 4 月より 2005 年 9 月にかけて、能登半島沿岸とその周辺の 5 地点 (通常の海岸線に加え、河口部や閉鎖系湾内; AT, MN, SZ, TK, TY), および輪島沖 50 km に位置する舩倉島 (HG) において 1-3 ヶ月間隔で海水試料 20 L を採取した。さらに島根県松江市沿岸 (MT), また太平洋および津軽海峡に面する静岡県御前崎市 (OM), 青森県大間町 (OH) で 2004 年 5-9 月より沿岸海水試料を採取した。

2-2. 実験手順

20 L の沿岸海水を試料とし、Ra 汚染の少ない Ba キャリア (^{226}Ra ; 1.5 mBq/g-Ba) を使用し、 BaSO_4 沈殿により Ra を共沈回収した。尾小屋地下測定室に設置した検出効率の高い井戸型 Ge 検出器を使用し、極低バックグラウンドγ線測定を適用、 ^{226}Ra および ^{228}Ra 濃度を測定した。

3. 結果および考察

3-1. $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の経時変動

3-1-1. 能登半島沿岸海水

能登半島沿岸海水の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比においては、主に ^{228}Ra 濃度の季節変動 (1-4.5 mBq/L) を反映し、夏期に最小値を示し (〜0.7), 秋期から冬期にかけて高くなる (1.7-2) 特徴が、能登半島沿岸全地点に共通してみられた (Fig. 1)。さらに塩分濃度が低い河口付近や閉鎖系湾内の海水試料においても、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の特徴に違いはみられない。能登半島全体が、大きな海水循環の季節変動にさらされていることを示す。

3-1-2. 本州沿岸海水

能登半島 (平均値) と他地域の沿岸海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比を、Fig. 2 に比較した。能登半島沿岸海水でみられ

た $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動が、舢倉島および対馬海流の能登半島への通り道である松江市 (MT 地点) の沿岸海水でも得られた (Fig. 2a)。一方、黒潮の寄与の大きい御前崎市 (OM 地点) の沿岸海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比には、明らかな季節変動はみられず、その値も小さい (0.2-0.6) (Fig. 2b)。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動は、本州全沿岸域の海水に共通した特徴ではない。本結果は、日本海西部沿岸 (松江~能登半島) を含む沿岸支流の海水循環系が季節的に異なることを示唆する。

3-2. 日本海沿岸海水循環

冬期に ^{228}Ra が日本海沿岸へと供給されていることが考えられる。日本海沿岸は、東シナ海から対馬海峡を経由し、沿岸に沿って北上する沿岸支流にさらされている。また東シナ海大陸側は、日本海沿岸海水よりも大きなラジウム濃度を示す ($^{226}\text{Ra}=2.5\text{ mBq/L}$; $^{228}\text{Ra}=7\text{ mBq/L}$; $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}=3.5$; 5-6 月, 1987) (Nozaki et al., 1989)。一つには、冬期に東シナ海西域の ^{228}Ra -rich な海水の日本海への混入比が増加し、それが松江市沿岸を通過し、能登半島にもたらされるとするモデルが提案される。

謝辞

本研究で用いた一部の海水試料は、静岡県環境放射線監視センター鈴木敦雄博士および島根県産業技術センター中島剛博士に採取をご協力いただいた。本研究の一部は、石川県保健環境センターからの受託研究としておこなわれた。

参考文献

- 1) Inoue, M., Kofuji, H., Yamamoto, M. and Komura, K. *J. Environ. Radioactivity* **80**, 341-355 (2005)
- 2) Nozaki, Y., Kasemsupaya, V. and Tsubota, H. *Geophys. Res. Lett.* **16**, 1297-1300 (1989)

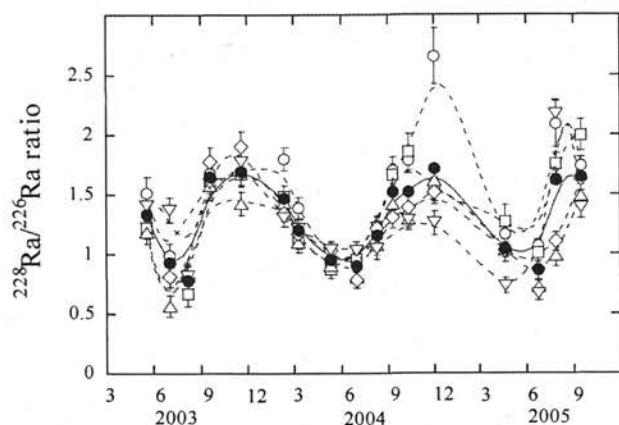
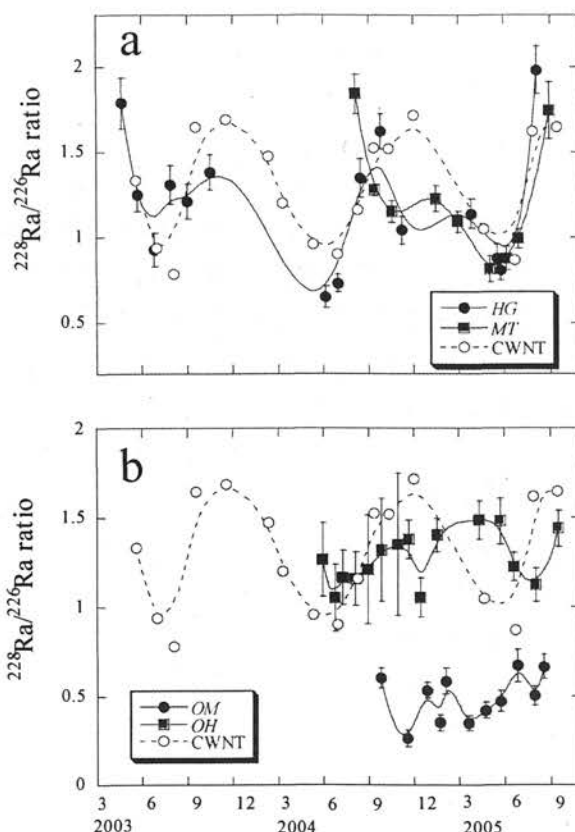


Fig. 1 Temporal variation in $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio of coastal surface water around Noto Peninsula, as measured from May 2003 until September 2005.

Fig. 2 Comparison of temporal variations in $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio between the mean value for coastal water samples of Noto Peninsula and coastal surface water around Honshu Island from a) HG and MT sites, and b) OM and OH sites.



天然放射性元素ウラン・トリウム湖底堆積物情報-バイカル湖：
同位体比を活用する環境変動解析・堆積年代測定

坂口 綾¹、山本政儀¹、富田純平¹、落合伸也²、中川裕文²、柏谷健二²

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

A. Sakaguchi, M. Yamamoto, J. Tomita, S. Ochiai, H. Nakagawa and K. Kashiwaya: Lacustrine sediment information on U and Th isotopes -Lake Baikal.

[はじめに] バイカル湖は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、気候変動の将来予測を目的とし、湖底堆積物からの短期・長期的気候変動復元がロシア・日本などでの共同プロジェクト研究により進められてきた。その中でも珪藻殻を主成分とする生物起源シリカ(Bio-SiO₂)およびウラン(U)は、気候変動に敏感なプロキシとして注目され、さらにUの生物濃縮という観点からも興味を持たれている。しかし、気候変動と珪藻(一次生産物質)の生産性、さらに珪藻との関係を主としたUの沈降・堆積挙動についても未だに不明瞭な点が多い。また、自然環境変化が激しく、人類の進化も含め自然-人間が深く関与している第四紀・更新世における数万～数十万年の堆積絶対年代決定法が確立されていない。そこで、この時代の詳細な堆積年代決定法として、²³⁸U-²³⁴U法、アイオニウム(²³⁸U-²³⁰Th)法の適応、およびU・Thの古環境復元プロキシとしての確立を目的とし、これら元素の沈降・堆積挙動の課題に取り組んでいる。これまでに得てきた成果の一部を報告する。

[方法] 本研究では、バイカル湖アカデミッシャンリッジ(53°44'46" N, 108°24'38" E)において1998年9月に採取した全長約10mの柱状堆積物試料VER98-1st6を用いた。含水率、有機物含有量、炭酸塩含有量、Bio-SiO₂含有量、中央粒径の詳細な測定を行い、全岩中央粒径による北緯65度・7月の日射量変動をターゲットとしたオービタルチューニング法により堆積年代決定を行った。また、U・Th同位体および化学的情報を得るため、全分解・逐次抽出後(炭酸塩、Fe-Mn 酸化物、有機物、Bio-SiO₂、土壌・鉱物フラクション)、U・Th同位体(²³⁸U, ²³⁴U, ²³²Th, ²³⁰Th)の化学分離・α線測定、ICP-AESによる安定元素の測定を行った。さらに2003、2005年8月に南湖盆の数地点採取した湖水試料(表層、堆積物直上水)のほか、バイカル湖西岸オリホン島、アヤ湾周辺で採取した陸上表層土壌のU・Th同位体分析も併せて行った。

[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(Ave. 2.13)でほぼ一定であった。集水域表層土壌の²³⁸U、²³²Th濃度は、それぞれ16-37 mBq/g(1.3-3.0 ppm)、17-42 mBq/g(4.2-10.5 ppm)の範囲で見出され、²³⁴Uと²³⁸Uは放射平衡(²³⁴U/²³⁸U=ca.1)の状態であった。

オービタルチューニング法による年代決定の結果、柱状堆積物試料(VER98-1st6)は過去約230 kyrまでカバーしており、平均堆積速度は4.31 cm/kyrであった。堆積物中²³⁸U、²³²Th濃度はそれぞれ46-403 mBq/g(3.7-32.6 ppm)、37-108 mBq/g(9.2-26.8 ppm)、これら元素の同位体比も大きく変動していた。堆積物中²³⁴U-²³⁸Uは放射非平衡であり²³⁴U/²³⁸U放射能比は²³⁸U濃度変動と類似していること、²³⁰Th/²³⁸U放射能比が深度と共に明かに大きくなることから、バルクUに対する過剰Uすなわち自生性U(溶存U起源；²³⁴U/²³⁸U=2.13)の寄与が大きいことが示唆された。

湖水溶存Uの²³⁴U/²³⁸U放射能比が過去230kyr一定であったとの仮定の下に、モデル式で堆積物中のUを陸源Uと湖水中溶存Uを起源とする自生性Uに識別した。陸源²³⁸U・²³²Th、鉱物、Bio-SiO₂フラックスを併せてFig. 1に示す。陸源²³⁸Uフラックスは、寒冷期に比較的多く温暖期に少ないという²³²Th、鉱物フラックスの変動と一致しており陸源物質の指標となりうる。これらフラックスの定量

的解釈については、
 鉱物中央粒径や他の
 パラメータと共に
 現在解析中である。
 寒冷期に少なく温暖
 期に多い自生性 ^{238}U
 フラックスは、Bio-SiO₂
 フラックスと非常に
 よい相関があり、
 warm-stack として
 の ^{238}U は陸源 ^{238}U

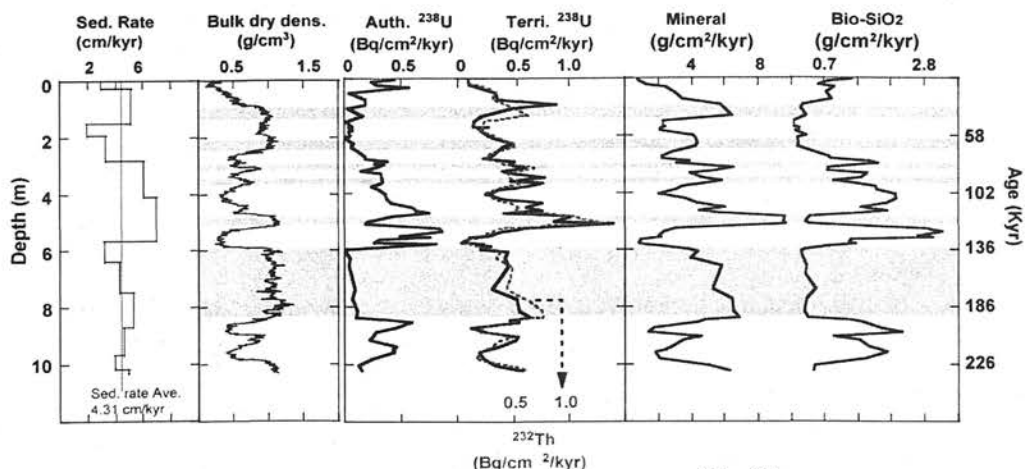


Fig. 1 Comparison of fluxes between authigenic and terrigenous ^{238}U , ^{232}Th , mineral and Bio-SiO₂ in the sediment core.

の影響を取り除いた自生性 ^{238}U であることが明らかになった。湖水中溶存 U の堆積メカニズムには主に
 ①一次生産者などの生物濃縮による水柱からの除去・沈積、②還元状態での U(VI)→U(IV)による沈積、
 ③共沈(固溶体生成・吸蔵・吸着)が考えられる。堆積物中 U 逐次抽出実験、琵琶湖での U-動植物プラン
 クトンの分配係数 Kd の観察・吸着実験の結果、Bio-SiO₂ フラクションにはバルク U の数パーセント程
 度しか含まれていないこと、U のプランクトンに対する Kd(10³-10⁴)では蓄積している U 量を賄えない
 ことから、温暖期の高 U フラックスの主原因は湖内一次生産者による濃縮・除去でないことが示唆さ
 れた。また、②については一次生産者・有機物の急激かつ大量な沈積により、一時的に湖底が還元雰
 囲気になった可能性はあるが、湖底 DO 濃度の高いバイカル湖で温暖期にその状態が長く続いたとは考
 え難い。淡水系溶存 U の特徴、湖内自生性鉱物の性質や成因環境、陸源鉱物組成などを考慮すると、
 水柱溶存 U は③の鉱物-鉄酸化水酸化物-有機物の複雑な相互作用による吸着(表面錯体)・除去メカニ
 ズムが働き湖底に沈積していると考えられる。今後、OMS、XRD、XRF、SEM、FE-TEM、EPMA での
 分析結果、琵琶湖で毎月回収しているセジメントトラップ、湖水、河川水および懸濁物質の分析から
 溶存 U の吸着・除去メカニズムについて詳細な解析を行う予定である。

堆積物は自生性成分以外の陸源成分の寄与も大きい上に、それぞれの成分は上記したように気候変
 動に対応して変化する。そのため自生性の U・Th 同位体濃度を用いる ^{238}U - ^{234}U 法、アイオニウム(^{238}U -
 ^{230}Th)年代決定法の適応時に最も問題となるのは、岩石由来の U・Th 同位体成分の見積もり(除去)であ
 る。本研究では岩石中の U 系列は放射平衡が成立していること、Th 同位体にフラクショネーション
 がないという仮定の下、 ^{230}Th の成長量が無視できる表層堆積物の $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 放射能比(1.05)を基準に
 自生性(成長)U・Th を見積もり、以下の式に代入することで平均堆積速度を試算した。

$$(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_a = 1 + (R_0 - 1) \cdot \exp(-\lambda_{234} \cdot D/S) \quad \text{-----}(1)$$

$$(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})_a = [1 - \exp(-\lambda_{230} \cdot D/S)] + (R_0 - 1) [\lambda_{230}/(\lambda_{230} - \lambda_{234})] \cdot [\exp(-\lambda_{234} \cdot D/S) - \exp(-\lambda_{230} \cdot D/S)] \quad \text{-----}(2)$$

ここで $(^{234}\text{U}/^{238}\text{U})_a$ 、 $(^{230}\text{Th}/^{238}\text{U})_a$ は自生性放射能比、 R_0 は溶存 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比、 λ_0 、 λ_4 は ^{230}Th 、 ^{234}U
 の壊変定数、D および S はそれぞれ深度(cm)と堆積速度(cm/kyr)を表す。(1)、(2)式を同時に満たす非
 線形最小二乗法より平均堆積速度は 4.47 ± 0.37 cm/kyr と試算され、オービタルチューニング法により
 求めた 4.31 cm/kyr とよく一致する値が得られた。今後、アイソクロン法の適応や自生性鉱物・成分の
 抽出を行うことで、個々の堆積層における年代決定法の確立を目指し課題に取り組んで行く予定であ
 る。

雨水中の短寿命宇宙線誘導核種の測定

桑原雄宇、阿部琢也、小村和久

自然計測応用研究センター 自然計測研究部門 低レベル放射能実験施設

Y. Kuwahara, T. Abe, K. Komura

はじめに

宇宙線と大気成分との反応によって生成する宇宙線誘導核種が 1950-60 年代に相次いで発見された。これまで半減期 1 時間以下の短寿命のものから 100 万年を超える長寿命のものまで約 20 の宇宙線誘導核種が知られている。大気の主成分である窒素や酸素原子から生成する ^3H , ^7Be , ^{14}C は比較的濃度が高く、地球化学トレーサーとして広く利用されているが、 ^{40}Ar から生成する質量数が 18-39 の宇宙線誘導核種のうち、半減期 1 日以下の短寿命核種は濃度が極めて低いのでトレーサー利用は皆無に近い。測定には、多量の雨水の短時間採取、迅速な化学分離濃縮、極低バックグラウンド放射能測定の 3 条件をクリアすることが不可欠であり、同一試料で複数核種を同時測定したという報告はない。

通常の Ge 検出器より約 2 桁バックグラウンド計数の低い尾小屋地下測定室を利用して、雨水中の極微量の短寿命宇宙線誘導核種の γ 線測定を試みた。Table 1 に検出できた宇宙線誘導核種を示す。

Table 1. 雨水中の宇宙線誘導核種

Nuclide	Half-life	E nergy (keV)	abundance (%)
Cl-39	55.6m	1267.185	100
S-38	170.3m	1941.944	100?
Cl-38	37.24m	2167.405	42.4
Cl-34	32.0m	2127.492	100
Mg-28	20.91h	1342.25	52.6
(Al-28)	2.241m	1778.85	100
Na-24	14.96h	1368.63	100
Na-22	2.6019y	1274.53	99.94
F-18	109.77m	511	100
Be-7	53.29d	477.59	10.52

実 験

[多量の雨水の迅速採取]

種々の方法を試みたがなかなか成功しなかった。最終的に到達したのは、雨樋を通して研究所屋上の一部 29m² を集水域としてに雨を集める方法である。この方法によって、通常の降雨時で約 30 分、激しい降雨時には 5 分以内に 50L の雨を採取することが可能になった。

[迅速化学分離]

多量の雨水から短時間で宇宙線誘導核種を定量的に化学分離・濃縮する方法としてイオン交換法を採用した。宇宙線誘導核種は陰及び陽イオン形で存在していると考えられるので、陰イオンと陽イオン交換樹脂を同時に使用する必要がある。そのため、原子力施設の汚染水処理に使われている陰イオン交換樹脂 POWDEX-POH と陽イオン交換樹脂 Powdex-PCH の同時使用することにした。予備実験により、雨水 10L 当たり各樹脂 2 g 以上を使えば、20-30 分の攪拌（バッチ法）で陰イオン形および陽イオン形で存在する宇宙線誘導核種を定量的に分離できることを確認した。この方法で 30 分以内に 50L の雨水から約 20mL の樹脂への 2500 倍濃縮が可能となった。ポリエチレン袋に回収した樹脂を封入したものを γ 線測定に用いた。

[極低バックグラウンドγ線測定]

Table 1に示すように、短寿命宇宙線誘導核種には高エネルギーγ線を放出するものが多いので、測定には尾小屋地下測定室に設置してある相対効率93.5%及び90%の同軸型Ge検出器を使用した。

辰口の研究室から約25分で尾小屋地下測定室へ運び1時間半以内に測定開始できるようになった。はじめの数時間は、 ^{36}Cl 、 ^{39}Cl 及び ^{22}Na の測定を目的に約30分間隔で、以降は ^{24}Na と ^{26}Mg の測定を目的に数時間間隔で1-2日間（通常は1日）測定した。Fig. 1にγ線スペクトルの例を示す。

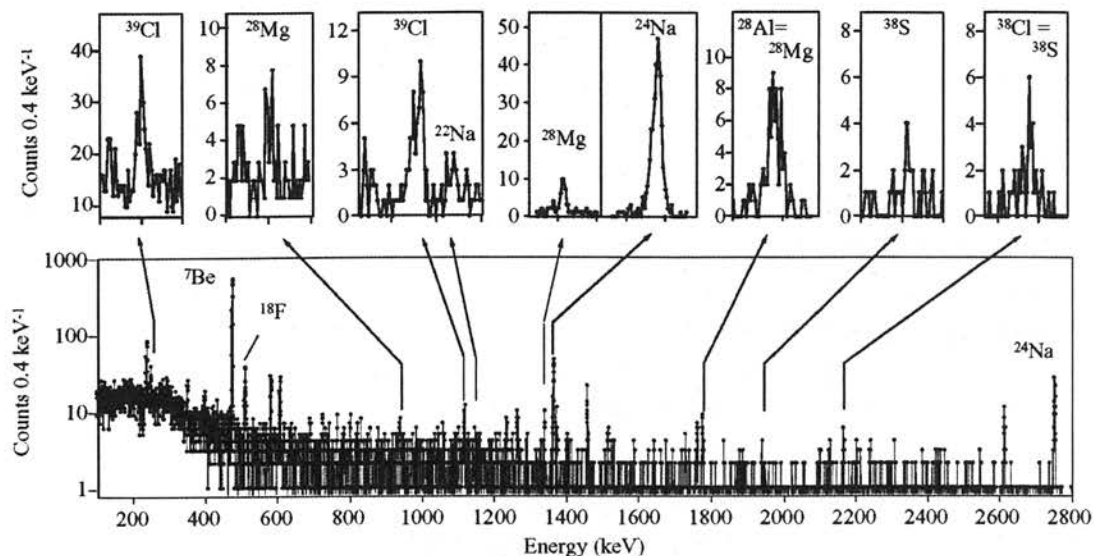


Fig. 1 雨水のγ線スペクトルの例。

Fig. 1から分かるように ^{36}Cl 、 ^{39}Cl 、 ^{38}S 、 ^{18}F 、 ^{24}Na 、 ^{26}Mg (^{26}Al)、 ^7Be 及び ^{22}Na (半減期順)の8核種が同時に検出されている。気象や降雨の状況で、図に示すようにすべてが検出されるわけではないが、 ^{24}Na 、 ^{26}Mg (^{26}Al)及び ^7Be はほとんどの雨水で検出することができた。スペクトル解析を行い、検出効率、γ線放出率、測定開始までの放射壊変等の補正を行い、1L当たりの原子数 (atom L^{-1})を求めた。

結 果

これまでに、50回以上の測定を行った。詳細は省くが、雨水1L当たりの濃度（原子数）として以下の値を得た。

^{24}Na : $n=16$, 30~1500, $\text{mean}=520$, ^{26}Mg : $n=13$, 80~600, $\text{mean}=260$, ^{39}Cl : $n=6$, 400~1900, $\text{mean}=200$, ^7Be : $n=16$, $1 \times 10^6 \sim 4 \times 10^7$, $\text{mean}=7 \times 10^6$, ^{22}Na : $n=9$, $2 \times 10^3 \sim 1 \times 10^5$, $\text{mean}=2 \times 10^4$

[本研究の成果は2005年4月にブラジルのリオデジャネイロで開催された第8回国際会議NAMLS8と2005年10月にフランスのニースで開催された第2回環境放射能国際会議で発表したほか、2005年9月金沢で開催された第49回放射科学討論会及び2006年3月にKEKで開催された環境放射能研究会で発表した。]

4. 記録

平成17年度見学来訪・出張の記録

- 平成17. 4.7、4.19-20、5.11、5.16、5.24、6.1、6・9、6.13、6.23-24、7.28-29、8.5、8.17、8.19、
9.13、9.17-18、11.5、3.27
[輪島市舳倉島周辺環境放射能測定試料採取]
4.14-15、5.17-18、6.21-22、7.20、8.22-24、9.14-16、10.20-21、11.21-23、12.20-22、
18.1.18-20、2.20-22、3.21-23
[琵琶湖にて湖水、湖底堆積物試料採取]
4.16-24 小村教授「8th International Conference on Nuclear Analytical Methods in the
Life Sciences (NAMLS-8)」研究発表のためブラジルへ出張
5.22-23、12.23-26、18.226-3.2
国際基督教大学理学科 岩田 淳 氏、伊藤 納歩子 氏 測定のため来所
5.26、2.16 北陸大学放射薬品学助教授 山田 芳宗 氏 測定のため来所
6.5 馳 浩 衆院議員 尾小屋地下測定室見学
6.15 福井県衛生環境研究センター 徳山 秀樹 氏 研究打ち合わせ
6.23、11.8 東芝電力放射線テクノサービス(株) 南 二郎 氏 研究打ち合わせ
7.3-4、11.10 [近畿大学原子炉共同利用研究]
7.15-21 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
7.29、9.5、10.3、10.31、11.30、12.26、18.1.31、2.22
金沢工業大学 桶橋崇文 氏、井上康弘 氏、深谷 直貴 氏 測定のため来所
9.14-23 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
9.21 高エネルギー加速器研究機構 千田 勝 氏 研究打ち合わせ
9.30-10.10 小村教授、浜島助手「環境放射能国際会議」研究発表のためフランスへ出張
10.6-12 山本教授「北投石発見100周年記念温泉国際会議」出席のため台湾へ出張
10.16-22 井上助手「アジア・太平洋放射化学国際シンポジウム」研究発表のため中国へ出張
11.1 理学部化学科3年生38名実習、尾小屋地下測定室見学
12.6-10 山本教授「Terrestrial Environmental Changes in East Eurasia and Adjacent
Areas」出席のため韓国へ出張
12.27-28、18.2.10、3.17、
東京大宇宙線研究所宇宙素粒子研究施設 森山茂栄 氏、小川 洋 氏、
竹田 敦 氏 尾小屋地下測定室で測定のため来所
平成18. 2.23 福島原子力センター 高橋 浩子 氏、紺野 慎行 氏 研究打ち合わせ
3.1-2 気象研究所 青山 道夫 氏 研究打ち合わせ
3.10 北京大学物理学院(中国) 郭 秋菊 氏 研究打ち合わせ



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