

金沢大学環日本海域環境研究センター

低レベル放射能実験施設 研究概要・年次報告 2007.4～2008.3



旧ソ連核実験場周辺（カザフスタン・カイナル地方）

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	5
2-3. 研究費	9
2-4. 研究指導	9
3. 研究報告	
降水に含まれる短寿命宇宙線生成核種の測定法	12
低バックグラウンド γ 線測定法を利用した海水試料の多核種同時測定法の確立	14
新潟県から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体	16
湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体：モンゴル・フブスグル湖	18
Anticoincidence 法を用いた Ge 検出器のバックグラウンド低減	20
液体および固体中の環境中性子エネルギー分布	22
Determination of $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotopic ratios in human tissues collected from areas around the Semiparatinsk nuclear test site by sector-field high resolution ICP-MS	24
Spatial distribution of soil contamination by ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in the village of Dolon near the Semiparatinsk nuclear test site: New information on traces of the radioactive plume from the 29 August 1949 nuclear test	25
4. 記録	
平成 19 年度見学来訪・出張の記録	26

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
- ・助教 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
- ・助教 井上睦夫 (mutsuo@llrl.ku-unet.ocn.ne.jp)
博士 (理学) 専攻 同位体地球化学
- ・博士研究員 稲垣 美幸 (平成 19 年 4-5 月)
- ・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] 安池賀英子
- ・博士後期課程 3 年 [社会人選抜] 山口芳香
- ・博士後期課程 1 年 [社会人選抜] 安田健一郎
- ・博士後期課程 1 年 富田純平
- ・博士前期課程 1 年 中野佑介
- ・化学科 4 年生 古沢優太
- ・化学科 4 年生 美濃健太

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日本海海水のラジウム同位体など放射性核種の情報から、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日本海沿岸のグリーンタフに点在する大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉温鉱泉のラジウム同位体の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

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

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スグル湖で採取した 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) 日本海固有水の多核種同時測定

ラジウム同位体、 ^{137}Cs は溶存成分として海水の動きを探るトレーサーとして、 ^7Be 、 ^{210}Pb および ^{228}Th は粒子に強く反応する核種としてこれら核種の海水からの除去過程、さらには粒子の挙動のトレーサーとしてこれら海水に存在する放射性核種は、古くから海洋化学に重要な役割を果たしてきた。これら半減期および地球化学的挙動の異なる複数の核種を組み合わせることにより海水の物質循環についての総括的な議論が可能になる。

本研究では、平成 19 年 7 月の蒼鷹丸調査航海において、日本海固有水を鉛直方向に採取、簡便な共沈法および低バックグラウンドガンマ線測定法により、海水試料における ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra および ^{228}Th の同時測定をおこなった。その結果は、日本海における水塊、粒子など物質循環に関し重要な知見をもたらした。

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) 日本海沿岸に点在する大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉温鉱泉のラジウム同位体の地球化学的研究

世界の油田・ガス田地域（例えばアメリカ、ロシア、イスラエルなど）において、副産物である油田塩水（高塩濃度 Na-Cl 水）中に Ra 同位体（U 系列の ^{226}Ra （半減期 1600 y）と Th 系列の ^{228}Ra （半減期 5.75 y））およびそれらの娘核種が、高濃度（例えば、 ^{226}Ra 濃度で数 10～数 100Bq/kg）で含まれることが知られている。日本においては、例えば Nakai (1940) により秋田・新潟県などの油田・ガス田地域の温鉱泉水中に数 Bq/kg の ^{226}Ra が見出されている。近年、掘削技術の進歩により平野部や海岸地域など、いわゆる非火山地域の大深度掘削井において、海水または化石海水を起源とする高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉水が得られるようになった。また、日本海側のグリーンタフ地域には第三紀海底火山活動により繁栄したプランクトンなどの死骸（有機物）に絡む海水中 U の濃集層（ ^{226}Ra の供給源）の存在可能性が推測される。以上のことから、我々は日本海沿岸地域の大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉は ^{226}Ra を高濃度に含むのではないかと考え、日本海沿岸地域に点在する Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体の地球化学的研究を始めた。

【極低レベル放射能計測システム開発分野】

1) バックグラウンド低減化システムの開発

Ge 半導体検出器の周り $2\pi\text{sr}$ に薄いプラスチックシンチレータ（PS）と波長変換光ファイバーを設置して、バックグラウンド（BKG）となる宇宙線成分を検出し、逆同時計数により BKG 成分を除去するシステムを開発した。地上設置の Ge 検出器では、BKG 成分の約 50% を除去できる事が確認された。

研究成果は、システム概要は博士論文に、結果は卒業研究にまとめた。

2) 液体窒素製造装置の能力増強

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」の3年度目に当り、文科省特別教育研究経費 680 万円と学長特別研究経費 980 万円の交付をもとに尾小屋地下測定室の整備を行った。大型設備として既存の液体窒素製造装置を改造し、現有の 17 台の Ge 半導体検出器全てに供給可能なように製造能力を増強した。

3) 甲殻類の年齢の推定

若狭湾エネルギー研究センターとの共同研究で、甲殻類の脱皮後の年齢推定に Ra228-Th228 法が応用出来るかを検討した。1 検体でも尾小屋地下実験室で数日測定する事により年齢推定が可能である事を見出した。

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 165 試料を測定した。2007 年 6 月にモナコで開催の国際ワークショップ SHOTS (Southern Hemisphere Ocean Tracer Study: 代表者 気象研 広瀬勝己) で発表した。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」の委員長をつとめた。

2-2. 研究業績

1) 学術論文

- (1) Abe, T., Yamaguchi, Y., Tanaka, K., Nakano, Y., Komura, K.: Highly Time-Resolved Measurements of Airborne Radionuclides by Extremely Low Background γ -ray Spectrometry: Their Variations by Typical Meteorological Events. *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 8, 5-9 (2007)
- (2) Endo, S., Tomita, J., Yamamoto, M., Others 9: Iodine-129 measurement in soil samples from Dolon village near the Semipalatinsk nuclear test site. *Radiat. Environ. Biophys* (accepted 2008)
- (3) Inoue, M., Komura, K.: Preliminary application of low-background γ -spectrometry to volcanic ground water: Low-levels of ^7Be , ^{22}Na , ^{137}Cs and radium isotopes as new geochemical tracers in a ground water flow system. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 273, 177-181 (2007)
- (4) Inoue, M., Tanaka, K., Kofuji, H., Nakano, Y., Komura, K.: Seasonal variation in the $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio of coastal water within the Sea of Japan: Implications for the origin and circulation patterns of the Tsushima Coastal Branch Current. *Mar. Chem.* 107, 559-568 (2007)
- (5) Komura, K., Kuwahara, Y., Abe, T., Tanaka, K., Murata, Y., Inoue, M.: Measurements of short-lived cosmic-ray-produced radionuclides in rainwater. *J. Environ. Radioactivity* 96, 103-109 (2007)
- (6) Nakano, Y., Inoue, M., Komura, K.: A simple coprecipitation method combined with low-background γ -spectrometry: Determination of ^7Be , ^{137}Cs , ^{210}Pb , and radium and thorium isotopes in small-volume coastal water samples. *J. Oceanogr.* (accepted)
- (7) Oikawa, S., Yamamoto, M.: Plutonium concentration and $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ atomic ratio in liver of squid collected in coastal sea area of Japan. *J. Environ. Radioactivity* 93, 170-180 (2007)
- (8) Yasuike, K., Yamada, Y., Komura, K.: Long-term variation of ^{14}C concentration in atmospheric CO_2 in Japan

- from 1991 to 2000. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 275, 313-323 (2008)
- (9) Yasuike, K., Yamada, Y., Komura, K.: Comparison of levels in urban area with background levels of carbon-14 in atmospheric CO₂ in Kanazawa, Ishikawa prefecture, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* 277, 389-398 (2008)
- (10) Yamaguchi, Y., Abe, T., Murata, Y., Muguntha Manikandan N., Tanaka, K., Komura, K.: High resolution Measurements of temporal variations of Airborne ²¹⁰Po, ²¹⁰Pb, and ⁷Be at Ishikawa Prefecture, facing the Sea of Japan. *J. Nucl. Radiochem. Sci.* 8, 149-153 (2007)
- (11) Yamamoto, M., Tomita, J., Sakaguchi, A., Imanaka, T., Fukutani, S., Endo, S., Tanaka, K., Hoshi, M., Gusev, B. I., Apsalikov, K. N.: Spatial distribution of soil contamination by ¹³⁷Cs and ^{239,240}Pu in the village of Dolon near the Semipalatinsk nuclear test site: New information on traces of the radioactive plume from the 29 August 1949 nuclear test. *Health Phys.* 94, 328-337 (2008)
- (12) Yamamoto, M., Oikawa, S., Sakaguchi, A., Tomita, J., Hoshi, M., Apsalikov, K. N.: Determination of ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu isotopic ratio in human tissues collected from areas around the Semipalatinsk nuclear test site by sector-field high resolution ICP-MS. *Health Phys.* (accepted)
- (13) Yamamoto, M., Sakaguchi, A., Imanaka, T., Shiraiishi, K.: Measurements of ²¹⁰Po and ²¹⁰Pb in total diet samples: Estimate of dietary intakes of ²¹⁰Po and ²¹⁰Pb for Japanese. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* (accepted)

2) 総説・資料・報告書

- (1) 小村和久、井上睦夫：「極低レベル放射能検出法開発と実証に関する基礎研究」海水試料への低バックグラウンドγ線測定法の適用—日本海沿岸海水における²²⁸Ra/²²⁶Ra比の研究—。平成15-19年度石川県受託研究報告書 (2008)
- (2) 小村和久：海洋環境における放射性核種の長期挙動に関する研究。平成18年度気象研究所受託研究報告書 (2007)
- (3) 坂口 綾、山本政儀：ウラン系列核種を利用した年代測定—堆積物への応用、第四紀研究を推進する最先端の年代測、デジタルブック最新第四紀学。(書籍など)
<http://staff.asit.go.jp/t-azuma/50QRCD/index.html>。(代表：中村俊夫) 分担執筆 (2007)

3) 学術発表

- (1) 阿部琢也、山口芳香、田中 究、中野佑介、小村和久：極低バックグラウンドγ線スペクトロメトリによる大気中放射性核種の高時間解像度観測。日本保健物理学会第41回研究発表会、東京 (2007.6)
- (2) 阿部琢也、山口芳香、田中究、小佐古敏荘、飯本武志、小池裕也、中野佑介、小村和久：メソスケールにおける²¹²Pb、²¹⁰Pbおよび⁷Be濃度分布。第9回環境放射能研究会、つくば (2008.3)
- (3) Abe, T., Koike, Y., Iimoto, T., Kosako, T., Komura, K.: Investigation of Dynamics of Radioactivity in the Atmospheric Environment - focusing attention on natural radioactivity -. Joint International Symposium on Nuclear Science and Technology "Global Sustainability and Nuclear Engineering, Education and Research", Xi'an, China (2008.3)
- (4) 遠藤 暁、富田純平、田中憲一、山本政儀、福谷 哲、今中哲二、天野 光、川村秀久、河村日佐男、星 正治：旧ソ連核実験場近郊ドロン村から採取した土壌試料中¹²⁹I汚染量の測定。原子力学

会中四国支部研究発表会、広島 (2007.9)

- (5) Endo, S., Tomita, J., Tanaka, K., Yamamoto, M., Fukutani, A., Imanaka, T., Sakaguchi, A., Amano, H., Kawamura, H., Apsalikov, K. N., Gusev, B. I., Whitehead, N., Shinkarev, S., Hoshi, M.: Iodine-129 measurements in soil samples from Dolon village near the Semipalatinsk nuclear test site, 13th Hiroshima International Symposium-Radiation Effects in Semipalatinsk, Hiroshima (2008. 2)
- (6) Hamajima, Y. and Komura, K.: DISTRIBUTIONS OF ENVIRONMENTAL NEUTRON AND ITS INDUCED ACTIVITYIES IN LIQUIDS AND SOLIDS – 12th International Conference ‘Modern Trends in Activation Analysis, Tokyo, Japan (2007. 9)
- (7) 浜島靖典、小村和久：環境中性子の遮へい。第51回放射化学討論会、静岡 (2007. 9)
- (8) 今中哲二、福谷 哲、山本政義、富田純平、坂口 綾、遠藤 暁、田中憲一、星 正治：ソ連最初の原爆実験による放射能雲の通過位置とフォールアウト沈着パターン。日本放射線影響学会第 50 回大会、千葉 (2007. 11)
- (9) 井上睦夫、中野佑介、田中究、小藤久毅、小村和久：対馬沿岸分枝海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動。日本地球化学会第 54 回年会、岡山 (2007. 9)
- (10) Inoue, M., Nakamura, N., Kimura, M.: REE fractionations in chondrules from the CM meteorites, Murchison and Yamato-793321 and their implications for aqueous alteration processes in the early solar system. Workshop on the Chronology of Meteorites and the Early Solar System, Kauai, Hawai'i (2007. 11)
- (11) 中野佑介、井上睦夫、皆川昌幸、小村和久：極低バックグラウンド γ 線測定法を利用した海水試料の多核種同時測定法の確立と日本海海水への適用。日本地球化学会第 54 回年会、岡山 (2007. 9)
- (12) 中野佑介、井上睦夫、皆川昌幸、小村和久：低バックグラウンド γ 線測定の日本海海水試料への適用により得られた知見—多核種同時測定を中心に—。第 51 回放射化学討論会、静岡 (2007. 9)
- (13) 小島貞男、有信哲哉、斎藤 直、山本政儀：セミパラチンスク核実験場の土壌中に残存する中性子誘導長寿命放射性核種。第 51 回放射化学討論会、静岡 (2007. 9)
- (14) Sakaguchi, A., M. Yamamoto, M., Sasaki, K. Fukushima, K. Kashiwaya, K., Kawai, T.: Uranium and thorium isotopes distribution in bottom sediments of lake Hovsgol, Mongolia: Sedimentary behavior and application to dating. Inter. Symp. on terrestrial environmental changes in far Eurasia and adjacent areas - Environmental and climatic changes and biodiversity in east Eurasia and adjacent areas, Irkutsk-Listvyanka, Russia (2007. 8)
- (15) 坂口 綾、山本政儀、佐々木圭一、柏谷健二、河合崇欣：湖沼堆積物中のウラン・トリウム同位体からみる古環境情報—フスグル湖、モンゴル。BICER シンポジウム 2007、名古屋 (2007. 5)
- (16) 鈴木 款、青野辰雄、石川義明、山本政儀：海水中の有機物の挙動と放射性核種相互の関係。第 51 回放射化学討論会、静岡 (2007. 9)
- (17) 富田純平、山本政儀、佐竹 洋：高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体。2007 年度日本温泉科学会第 60 回大会、鹿児島 (2007. 9)
- (18) 富田純平、山本政儀、佐竹 洋：高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉水中 Ra 同位体の地球科学。第 51 回放射化学討論会、静岡 (2007. 9)
- (19) 安池賀英子、山田芳宗、小村和久：低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタを用いる樹木年輪中の ^{14}C 濃度の長期変動。第 74 回日本分析化学会有機微量分析研究懇親会・第 74 回計測自動制御学会力学量計測部会第 24 回合同シンポジウム、東京 (2007. 5)

- (20) 安池賀英子、山田芳宗、小村和久：石川県内におけるアジア大陸からの化石燃料消費による二酸化炭素の影響。日本本薬学会第128年会、横浜（2008.3）
- (21) 安池賀英子、山田芳宗、小村和久：5km 圏内に位置する田園地帯及び住宅地の大気 CO₂ の ¹⁴C/¹²C 同位体比の比較。第9回環境放射能研究会、つくば（2008.3）
- (22) 山口芳香、阿部琢也、村田祥全、田中究、中野佑介、小村和久：大気中 ²¹⁰Po, ²¹⁰Pb 及び ⁷Be をトレーサーとした日本海沿岸地域における環境動態計測。第9回環境放射能研究会、つくば（2008.3）
- (23) Yamamoto, M., Oikawa, S., Sakaguchi, A., Tomita, J., Hoshi, M., Apsalikov, K. N.: Determination of ²⁴⁰Pu/²³⁹Pu isotopic ratios in human tissues collected from areas around the Semipalatinsk nuclear test site, 13th Hiroshima International Symposium-Radiation Effects in Semipalatinsk, Hiroshima (2008.2)
- (24) Yamamoto, M., Mino, K., Tomita, J., Imanaka, T., Endo, S., Hoshi, M., Apsalikov, K. N.: Radionuclide contamination of the Settlements where the Semipalatinsk historical cohort resided. International Symp on 4th Dosimetry workshop on the Semipalatinsk Nuclear Test Site Area, Hiroshima (2008.2)

4) 研究交流

・共同研究

- (1) 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
- (2) 浜島靖典、放射性同位元素分析によるズワイガニの年齢評価、若狭湾エネルギーセンター、2007-現在
- (3) 山本政義、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

・海外渡航

- (1) 小村和久、Workshop on Southern Hemisphere Ocean Tracer Studies, Monaco (2007.6-7)
- (2) 山本政義、旧ソ連核実験場周辺住民の被曝線量評価の解決に向けて（科学研究費-海外）、カザフスタン（2007.8-9）
- (3) 井上睦夫、Workshop on the Chronology of Meteorites and the Early Solar System, Kauai, Hawai'i (2007.11)

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、日本アイソープ協会理工学部会第常任委員

山本政義：日本放射線影響学会幹事、日本原子力学会中部支部幹事、日本放射化学会編集委員

・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

山本政義：原子力安全委員会核燃料安全専門審査会審査委員、国連科学委員会 UNSCEAR 国内対応委員、核融合科学研究所重水実験安全評価委員会委員、環境科学技術研究所委員会委員、福井県原

原子力安全専門委員会委員、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

・ 招待講演および特別講演

- (1) 山本政儀：環境試料中の α 放射体の測定技術と最近の話題，放射線取扱技術研修会、日本原子力産業協会・北陸原子力懇談会（北陸地域アイソトープ研究会との共催）、金沢（2007.3）
- (2) 山本政儀：湖沼堆積物のウラン・トリウム同位体組成から見る古環境情報-バイカル湖およびフズスグル湖，第27回石橋雅義先生祈念講演会（第22回海洋化学学術賞（石橋賞）授賞式）、京都（2007.4）
- (3) 山本政儀：天然および人工放射性核種の地球化学的研究への利用 - 陸域環境，主催平成19年度生命環境科学連体教育研究活動支援プログラム「トレーサーによる流域圏水・物質循環研究」、平成19年度プレ戦略イニシアティブ「流域圏における水・物質循環科学教育研究拠点」、筑波（2007.11）

2-3. 研究費

1) 科学研究費等

- (1) 小村和久（代表）文部科学省特別研究、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、6,800 千円
- (2) 小村和久（代表）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、9,800 千円
- (3) 山本政儀（代表）基盤(C)、放射性核種を利用した環境変動解析：湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体、2,210 千円
- (4) 山本政儀（代表）基盤(B)、旧ソ連核実験場周辺住民の被曝線量評価の解決に向けて、6,500 千円
- (5) 井上睦夫（代表）基盤(C)、短寿命宇宙線誘導核種をトレーサーとする水文科学研究、3,510 千円

2) 受託研究費等

- (1) 小村和久、浜島靖典、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、8,253 千円
- (2) 小村和久、井上睦夫、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
- (3) 浜島靖典、若狭湾エネルギー研究センター共同研究、放射性同位元素分析によるズワイガニの年齢評価、525 千円

2-4. 研究指導

1) 博士論文

- (1) 浜島靖典、液体および固体中の環境中性子深度分布及びエネルギー分布，自然科学研究科環境科学専攻、博士（理学）、小村和久
- (2) 山口 芳香、大気環境動態のトレーサーとしての ^{210}Po 、 ^{210}Pb および ^7Be の高解像度観測、博士

(理学)、小村和久、山本政儀

- (3) 安池賀英子、樹木年輪及び大気 CO_2 の ^{14}C 濃度の時間的空間的変動に関する研究、自然科学研究科環境科学専攻、博士 (理学)、小村和久、山本政儀
- (4) 安田健一郎、保障措置のための放射線計測システムの開発、博士 (理学)、小村和久、山本政儀

2) 卒業研究

- (1) 古沢優太、Anticoincidence 法を用いた Ge 検出器のバックグラウンド低減、理学部化学科、学士 (理学)、山本政儀
- (2) 美濃健太、湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体：モンゴル・フブスグル湖、理学部化学科、学士 (理学)、山本政儀

3. 研究報告

降水に含まれる短寿命宇宙線生成核種の測定法

中野佑介、井上睦夫、小村和久

〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学環日本域環境研究センターLLRL

Y. Nakano, M. Inoue, K. Komura

Measurement of short-lived cosmogenic nuclides in rain water

[はじめに]

核破砕反応起源の宇宙線生成核種には、窒素や酸素から生成する ^3H ($t_{1/2} = 12.3$ 年)、 ^7Be (53.3 日) 等とアルゴンから生成する ^{24}Na (15.0 時間)、 ^{28}Mg (20.9 時間)、 ^{39}Cl (56.0 分)、 ^{38}Cl (37.2 分)、 ^{38}S (2.83 時間) 等がある。アルゴン由来の核種は、そのほとんどが 1 日未満と短い半減期をもつため、その時間スケールの大気現象の解明を目的とした研究において非常に有用なトレーサーとなり得る。しかしながら、大気中のアルゴン存在度は約 1% であるため、その核破砕反応による核種の生成率は低く、短寿命宇宙線生成核種の測定は非常に困難である。当研究室では、バッチ法による目的核種の回収および極低バックグラウンド線測定により、降水中のアルゴン由来の短寿命宇宙線生成核種について多核種同時検出に成功した (桑原 修士論文、2006)。さらにはこれら核種の定量に期待される。本研究では、降水中の短寿命宇宙線生成核種を利用した地球化学的な応用研究に向けて、試料採取方法および処理法の確立を目的とした。

[採水方法の再検討]

従来は、当施設屋上 (面積: 27 m^2) を捕集面として雨どいを経由して降水を回収した。その一方で、コンクリート面との接触による元素の溶出、吸着、実験前の降下物の影響が懸念された。本研究では、新たにスチールパイプの骨組みに張ったブルーシート (面積: 15 m^2) を捕集面とした採水器を作製し (Fig. 1)、従来法と比較した。その結果、従来法では、 Na^+ 、 Mg^{2+} 、 F^- 、 Cl^- 、および SO_4^{2-} 全てにおいて屋上捕集面からの明らかな汚染がみられ、採水器を利用した降水試料採取が有効と考えられる。

[樹脂の選定]

バッチ法の迅速化のため、先の研究で用いた陽および陰イオン交換樹脂 (Powdex-PCH、-PAO) より粒子径が大きく、デカンテーションが容易な陽イオンおよび陰イオン交換樹脂 (Amberlite-IR120B、-IRA410J) を降水試料に各 1 g/L 加えて 10 分間攪拌した。溶存イオンの回収率を Powdex 樹脂 (樹脂量、各 0.2 g/L ; 攪拌時間、5 分) と比較した。その結果、Amberlite は樹脂からの汚染の寄与も大きく目的核種の回収率が著しく低かった (Na^+ 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} ; Amberlite、 $<30\%$; Powdex、 $>75\%$)。本研究における核種回収を目的としたバッチ法において、Powdex 樹脂が適当と考えられる。

[攪拌時間の検討]

擬似降水試料 (海水を 1000 倍希釈) 1 L に Powdex-PCH、-PAO をそれぞれ 0.4 g ずつ加え、攪拌時間 1-20 分の範囲で目的核種の回収率を攪拌前後の溶存イオンの濃度比より算出した。

その結果、10 分間の攪拌で回収率 90%以上に達し、それ以降は緩やかに上昇する傾向が明らかになった (Fig. 2)。収率、処理時間を考慮した結果、攪拌時間は 10 分間が妥当と考えられる。さらに攪拌前後の降水試料の溶存イオン濃度比より回収率を算出した結果、一雨ごとに溶存イオン濃度が大きく変動し、溶存イオンが高濃度で回収率が低下する傾向がみられた。試料ごとに回収率の確認が必要である。

[改良した方法で核種の測定]

本研究で確立した方法で処理した樹脂をプラスチック容器に封入、尾小屋地下測定施設の Ge 半導体検出器 (相対効率 93.5%) で γ 線測定をおこなった。その結果、 ^{24}Na 、 ^{28}Mg が定量的に測定可 (^{24}Na 、0.5-4.7 atom/L; ^{28}Mg 、1.1-3.8 atom/L)、 ^{39}Cl 、 ^{38}Cl 、 ^{38}S は信頼度の高い値は得られなかった。 ^{39}Cl 、 ^{38}Cl および ^{38}S は ^{24}Na や ^{28}Mg と比較して生成率が高いが、半減期が短いので、より迅速な採取・化学分離が不可欠である。

[今後の予定]

より信頼度の高い処理方法への改良を試みる。さらには、降水の短寿命宇宙線誘導核種濃度より、大気上層部の物質循環モデル (生成高度、雨滴による物質輸送など) の構築を試みる。



Fig. 1 Rain-water sampler (15 m²) installed on a roof of our laboratory (LLRL, Kanazawa Univ.)

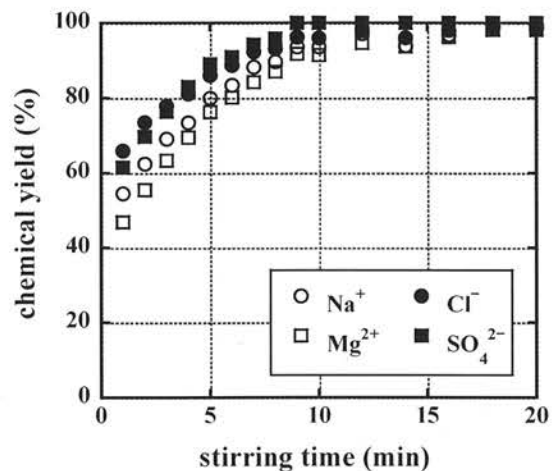


Fig. 2 Chemical yield for Na⁺, Mg²⁺, Cl⁻ and SO₄²⁻ through the batch treatment

文献：桑原優宇 (2006) 宇宙線誘導核種の挙動とトレーサー利用への試み、金沢大学自然科学研究科修士論文

低バックグラウンド γ 線測定法を利用した海水試料の多核種同時測定法の確立

中野佑介、井上睦夫、小村和久

〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学環日本域環境研究センターLLRL

Y. Nakano, M. Inoue, K. Komura

A simple coprecipitation method combined with low-background γ -spectrometry

: Determination of ^7Be , ^{137}Cs , ^{210}Pb , and radium and thorium isotopes

in small-volume coastal water samples

[はじめに]

^7Be 、 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 、ラジウム同位体およびトリウム同位体といった海水に存在する放射性核種は、古くから海洋化学に重要な役割を果たしてきた。ラジウム同位体、 ^{137}Cs が溶存成分として海水の動きを探るトレーサーであるのに対し、 ^7Be 、 ^{210}Pb および ^{234}Th は粒子に強く反応する核種としてこれら核種の海水からの除去過程、さらには粒子の挙動のトレーサーとして多くの報告例がある。これら半減期および地球化学的挙動の異なる複数の核種を組み合わせることにより海水の物質循環についての総括的な議論が可能になる。

本研究では、簡単な共沈法による海水試料の多核種同時測定法の確立を目的とし、実際の海水試料から、 BaSO_4 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ およびリンモリブデン酸アンモニウム(AMP)による共沈回収により、ラジウム同位体、 ^{137}Cs の他、 ^7Be 、 ^{210}Pb 、トリウム同位体の同時回収、測定を行なった。また、その回収率、再現性により、実測値から本手法を評価した。

[実験]

本手法の再現性を確認するため、以下の手順で実験をおこなった。石川県金沢市沿岸で海水 $\sim 100\text{ L}$ を採取 (2007 年 4 月 19 日)、カートリッジフィルター (pore size: $0.5\mu\text{m}$) を用いてろ過し、18 L の 5 試料に分けた。その後、濃 HNO_3 で pH 1 に調製した。セシウムキャリア、リンモリブデン酸アンモニウム試薬 (以下、AMP) を加え、一時間攪拌後、 ^{137}Cs 測定のための AMP/Cs を回収した。Ra 汚染の少ない Ba キャリア (^{226}Ra ; 0.7 mBq/g-Ba) を使用し、 BaSO_4 沈殿により Ra を共沈回収した。さらに、 ^7Be 、 ^{210}Pb および ^{234}Th の回収のため、Fe キャリアを加え、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 沈殿を同時に回収した。Fe キャリアおよび AMP など他の試薬においても、目的核種の汚染は全く問題のないレベルであることを確認した。また、回収率の検討のためにこれら上澄み液に対して同様の操作をおこない、5 試料

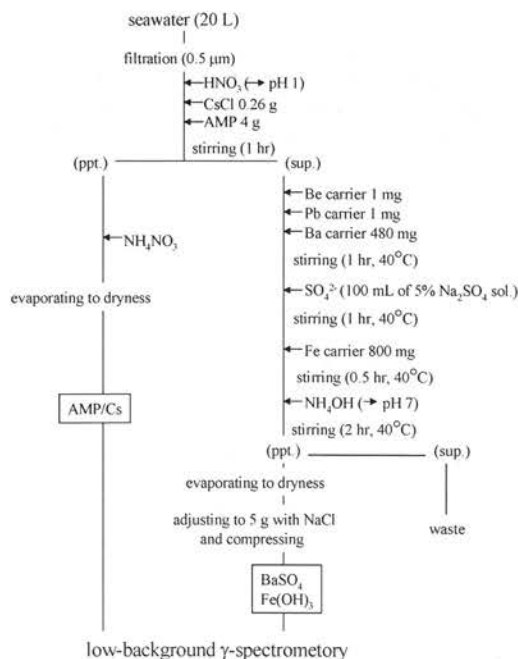


Fig.1 Experimental scheme for coprecipitation processing of seawater samples

重ねて測定試料とした。全ての AMP/Cs および $\text{BaSO}_4 + \text{Fe}(\text{OH})_3$ 試料の測定は、石川県小松市の尾小屋地下測定室（水深換算 270 m）に設置した低バックグラウンド仕様の平板型 Ge 検出器を使用した。 ^{234}Th 、 ^7Be など比較的短寿命核種も対象とするため、採取 5 日後より、5 日間 γ 線測定をおこなった (Fig.1)。

γ 線測定後、沈殿混合物試料 ($\text{BaSO}_4 + \text{Fe}(\text{OH})_3$) を硝酸溶液に浸し、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ を溶解、溶け残った BaSO_4 の質量より BaSO_4 の回収率を見積もった。さらに、上澄み液を再びアンモニア水によって中和し、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ を回収後、電気炉で 500°C で 5 時間加熱し、 Fe_2O_3 とした後、質量を測定し、Fe の回収率を見積もった。本研究では、共沈処理過程におけるラジウム同位体の回収率を BaSO_4 、 ^7Be および ^{234}Th の回収率を $\text{Fe}(\text{OH})_3$ の回収率で補正した。 ^{210}Pb については BaSO_4 、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ へそれぞれ 25%、75% が取り込まれたとみなし (BaSO_4 フラクシオンのみを γ 線測定した結果から見積もった平均値)、回収率を補正した。

[結果]

実際の測定値による再現性について、 ^{210}Pb 以外については確認することが出来た (Fig.2)。また、上澄み液による二度目の操作試料の放射能濃度は ^7Be 以外については検出限界以下であった。各核種における回収率の確認の必要があるが、互いに妨害にならないキャリアを利用した簡便な共沈法の組み合わせにより、海水試料における ^7Be 、 ^{137}Cs 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra および ^{234}Th (≤ 1 年で ^{238}U と放射平衡になる) の同時測定が可能となった。

今後、本手法を用いた、多核種同時測定による、海水の循環、混合および粒子の挙動解明が期待される。

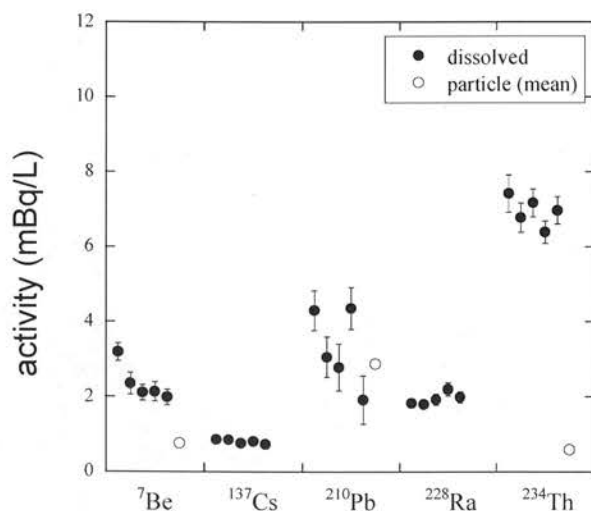


Fig. 2 Replicate determinations of ^7Be , ^{137}Cs , ^{210}Pb , ^{228}Ra , and ^{234}Th in 18 L of seawaters (dissolved fraction). Open circles show $>0.5 \mu\text{m}$ particle fractions (means of five replicate waters)

新潟県から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体

富田純平¹、山本政儀¹、佐竹洋²

〒923-1224 石川県能美市 金沢大学環日本海域環境研究センター, LLRL ; 〒930-8555 富山県富山市
富山大学理学部生物圏環境科学科

J. Tomita¹, M. Yamamoto¹, H. Satake²: Ra isotopes in Na-Cl type saline spring waters from Niigata Prefecture, Japan

1. はじめに：世界の油田・ガス田地域（例えばアメリカ・ロシア・イスラエルなど）において、副産物である油田塩水中に Ra 同位体（U 系列の ^{226}Ra （半減期 1600 y）および Th 系列の ^{228}Ra （半減期 5.75 y））およびそれらの娘核種が、非常に高濃度で含まれることが知られており、その原因は塩濃度依存性の吸脱着反応に帰することが知られている。また、油田塩水問題として、これら排水の周辺環境（特に生態系）への影響も近年懸念されている。日本においては、例えば Nakai (1940) により秋田・新潟県などの油田・ガス田地域の温鉱泉水中に比較的高濃度の ^{226}Ra が数例見出されているが、Ra の起源およびその溶出機構について詳細な議論はなされていない。

近年の掘削技術の進歩により平野部や海岸地域などの大深度掘削井において、海水または化石海水を起源とする高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉水が得られるようになった。また、日本海側のグリーンタフ地域には第三紀海底火山活動により繁栄したプランクトンなどの死骸（有機物）に絡む海水中 U の濃集層（ ^{226}Ra の供給源）の存在可能性が推測される。以上のことから、我々は日本海沿岸域の大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉は ^{226}Ra を高濃度に含むのではないかと考え、日本海沿岸地域に点在する Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体の地球化学的研究を始めた。

本研究では、(1) Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体の濃度分布、(2) Ra 同位体の起源、(3) Ra 同位体が高濃度となる温鉱泉の生成過程を明らかにすることを目的とした。本報では、日本の油田・ガス田地帯として最も有名である新潟県から得られた Na-Cl 型温鉱泉の結果について報告する。

2. 試料採取・実験方法：Na-Cl 型温鉱泉水の試料採取は、2007 年 3 月に、主に新潟県内海岸域を中心に計 23 地点で行った。比較のため、3 地点で河川水採取も行った（図 1）。Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra・U 同位体は、およそ 20 L から BaSO_4 共沈および $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法により回収し、それぞれ γ 線および α 線スペクトロメトリにより定量した。主要溶存成分はイオンクロマトグラフ、アルカリ度は 0.1 M 塩酸を用いた滴定法により測定した。Sr および Ba は、それぞれ ICP-AES および ICP-MS により定量した。 δD および $\delta^{18}\text{O}$ は、それぞれ水素平衡法および二酸化炭素平衡法により同位体比用質量分析計で測定した。

3. 結果と考察：本研究で採取した Na-Cl 型温鉱泉水は、 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、Cl および SO_4/Cl の関係から岩石との反応や粘土鉱物の層間水による希釈などによって化学的・同位体的に変質した海水（化石海水）と天水の混合物であると考えられた（加藤と梶原(1986), Xu et al. (2006)）。

図 2 に Na-Cl 型温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の測定結果を示す。 ^{226}Ra 濃度は 7.89

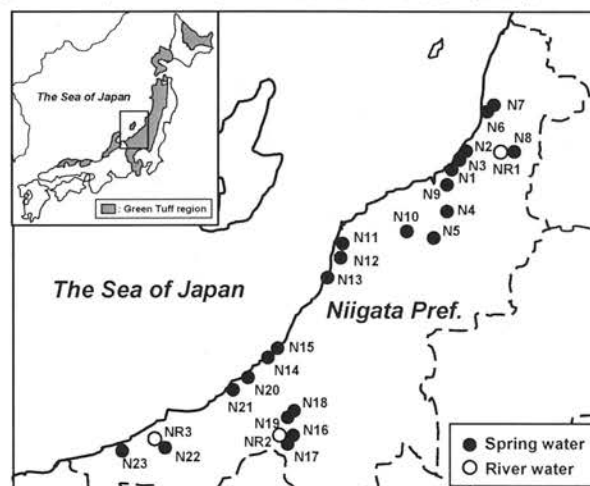


図 1 試料採取地点

—1897 mBq/kg であり、我々の推測通り ^{226}Ra を高濃度に含む温鉱泉が見出された。また、 ^{226}Ra 濃度は Ca, Sr, Ba および塩濃度 (TDS) と正の相関があり (図 3)、 ^{226}Ra は塩濃度依存性の吸脱着反応やイオン交換反応により水相中に保存されていることが示唆された。

$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は 0.28 - 5.21 であった。一般的に、石油に絡む U 濃集層が存在する場合、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は低くなると考えられる (Bloch and Key (1981))。N13 の温鉱泉は ^{226}Ra 濃度が高く (1897 mBq/kg) かつ $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比が低い (0.28) ため、Ra 同位体が U 濃集層を起源とする可能性が示唆されるが、大部分の Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体の起源は帯水層岩石に由来すると考えられる。

帯水層岩石から水相への Ra 同位体の輸送メカニズムとして、(1) 岩石の溶解、(2) α -recoil が考えられる。本研究で採取した Na-Cl 型温鉱泉水は化石海水と天水の混合物であると考えられたため、単純な系で ^{226}Ra および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の進化を見積もった。その結果、岩石の溶解では高濃度の ^{226}Ra は説明可能であるが、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比を説明することが出来ず、また、 α -recoil では $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は説明可能であるが高濃度の ^{226}Ra は説明できないため、その他の Ra の起源が必要であることが示唆された。そこで、 ^{226}Ra および ^{228}Ra はそれぞれ ^{230}Th および ^{232}Th の α 壊変によって生まれる娘核種であること、Th 同位体は天然水中で不溶性であること考慮すると、岩石の溶解によって水相へ輸送された Th 同位体は岩石表面に吸着し、水-岩石境界面に Th 同位体を濃集した表面コーティングが存在すると考えられる。このような Th 同位体を濃集した表面コーティングの存在を仮定すると、本研究で得られた高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比が説明可能であることが明らかとなった。

参考文献

- Bloch, S., Key, R.M. (1981). *The American Association of Petroleum Geologists*, 65, 154-159.
 加藤進, 梶原義昭 (1986). 石油技術協会誌, 51, 113-122.
 Nakai, T. (1940). *Bull. Chem. Soc. Japan*, 15, 333-426.
 Xu, H.-L., Shen, J.-W., Zhou, X.-W. (2006). *Island Arc*, 15, 199-209.

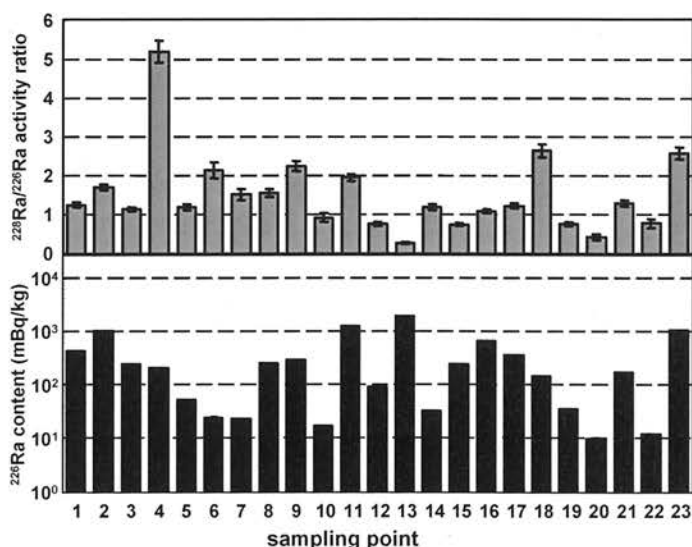


図 2 温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度と $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比

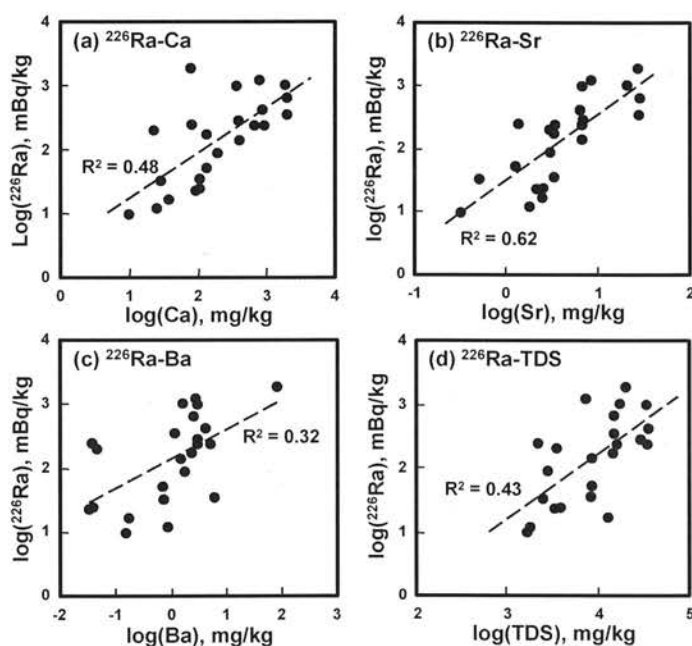


図 3 ^{226}Ra 濃度と Ca, Sr, Ba, TDS の関係

湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体:モンゴル・フブスグル湖

美濃健太¹、山本政儀¹、柏谷健二²

¹〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学環日本海域環境研究センターLLRL

²〒923-1192 石川県金沢市角間町 金沢大学環日本海域環境研究センター

K.Mino, M.Yamamoto and K.Kashiwaya: Uranium and thorium isotopes in the lacustrine sediments : Lake Hovsgol, Mongolia

[はじめに] 現在陸域における気候変動の将来予測を目的として、古代湖の湖底堆積物から古気候の解析が試みられている。湖底堆積物は集水域や湖内における気候変動に対応した物理・化学・生物的な変化の記録を保存している。当研究室ではこれまで、ロシア・バイカル湖やモンゴル・フブスグル湖をフィールドとしたウラン(U)・トリウム(Th)同位体研究から、湖底堆積物中の U 濃度が氷期間氷期の気候変動に対応して分布し、年代測定のツールのみならず古環境復元プロキシーとしても利用でき得ることを示唆してきた。しかし、ウランが気候変動とどのような対応で堆積するのか、そのメカニズムは依然不明である。

フブスグル湖はバイカル湖と比べ標高が 1000m 以上高いこと、容積が 1/60 と小さいことから、気候変動により敏感であることが期待されている。本研究では、湖東側の小さな湾(Bortsog Bay)から採取した堆積速度が 0.1cm/y 程度と予想される 12.3m のコア(BB03)を用いて、完新世の U(Th)の堆積挙動を検討した。

[方法] 2004 年にフブスグル湖東部・Bortsog Bay (Fig.1)から採取された BB03 コア(12.3m)を用いた。BB03 コアは直近で同時に採取された BB04 コア(7.2m)の分析から過去 1 万年(ほぼ完新世全域)の情報を持つと考えられる。1cm 毎に切断した 1233 個の試料のうち 10-15cm 間隔で取り出した全 110 個の試料について、全分解・化学分離後、アルファ線測定によりウラン・トリウム同位体を測定し、全分解後に分取した試料溶液について ICP-AES により主要元素を測定した。また、溶存相から沈降したウラン(自生性 U)、河川などで運ばれてくる土壌・岩石起源のウラン(陸源性 U)についてその識別法を検討するため、アイソクロン法を用いて自生性 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比を求めた。

[結果・考察] 全分解によるバルクの ^{238}U 、 ^{232}Th 濃度は 19-103、7-46Bq/kg の範囲で変動した。 ^{238}U に比べ ^{232}Th 濃度は分散が小さく、その大半は 20-40Bq/kg であった (Fig.2)。

堆積物中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は平衡値 1 から大きくずれ、1.5-2.2 であった。同地点における現在の湖水の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は 2.06 であるので、堆積物中に陸源性以外の U 成分が存在することが明らかである。堆積物が持つ湖水と集水域(陸域)の情報を読み取るためには自生性・陸源性成分に識別することが必要である。そこで陸源性 U には放射平衡が成り立ち、 ^{232}Th は溶存相から沈降しないものと仮定して、下記の式を用いて両者の識別を試みた:

$$U(\text{obs}) = U(\text{auth}) + U(\text{terr})$$

$$U(\text{auth}) = U(\text{obs}) - R * ^{232}\text{Th}(\text{obs})$$



Fig.1 Map of Lake Hovsgol showing coring site BB03

ここで $U(\text{obs})$ 、 $U(\text{auth})$ 、 $U(\text{terr})$ はそれぞれ堆積物中のバルク U、自生性 U、陸源性 U の濃度を示す。 $R(=1.03)$ は ^{230}Th の成長が無視できる表層の $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 放射能比である。識別された自生性 U 濃度はアイソクロン法によって求めた 8 地点の自生性 U 濃度とほぼ一致したことから (Fig.3)、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比を基準とした識別法は妥当であると考えられる。識別の結果、バルク U の変動は自生性 U の変動に起因することが見出された。

主要元素測定の結果、堆積物中に含まれる Fe, Al, Ca, Ti, Ba, Mn, P, Sr, Cu, Ni, V, Zn 濃度の深度分布が明らかになった。主要元素についても自生性・陸源性成分を識別すべく、化学的風化を受けにくい酸化物を作る Al 濃度を基準に土壌・岩石起源の成分による寄与を差し引き自生性成分とした。自生性 Fe, Cu, Ni, Zn, V は堆積物中の有機物含有量と類似した深度分布を示し、集水域における生物生産の増減を反映していると考えられる。また、自生性 U と自生性 Fe, Cu, Ni, Zn, V の深度分布も良い相関を示す。この結果から、このコアの自生性 U は主に有機物や、大量に存在する鉄の酸化・水酸化物によって吸着・沈降したものと推定される。今後、温暖寒冷・湿潤乾燥などの気候変動によるウラン流入量の変化、湖内 pH・イオン強度の変化による吸着質とのウラン脱着などの観点から気候変動とウラン堆積量の対応を検討していく。

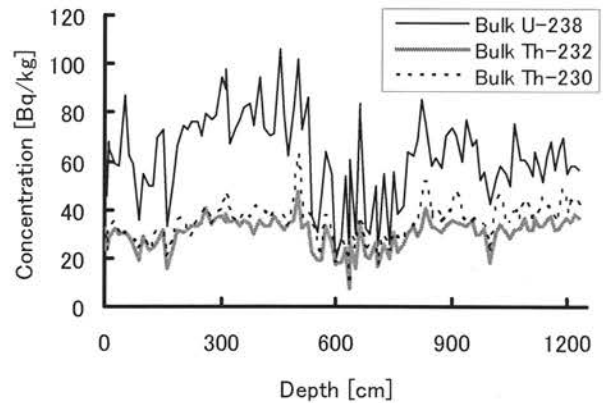


Fig.2 Vertical distribution of ^{238}U , ^{232}Th and ^{230}Th in sediment core (BB03)

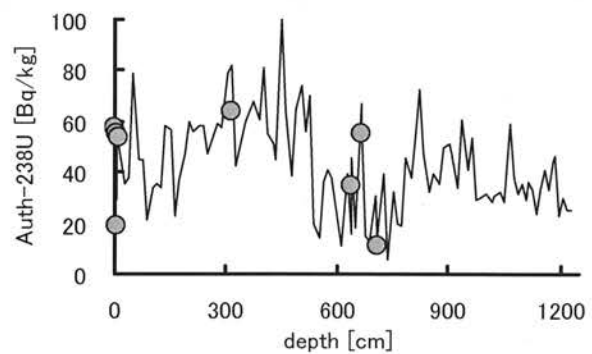


Fig.3 Vertical distribution of authigenic ^{238}U (solid line: calculation, point: isochron method)

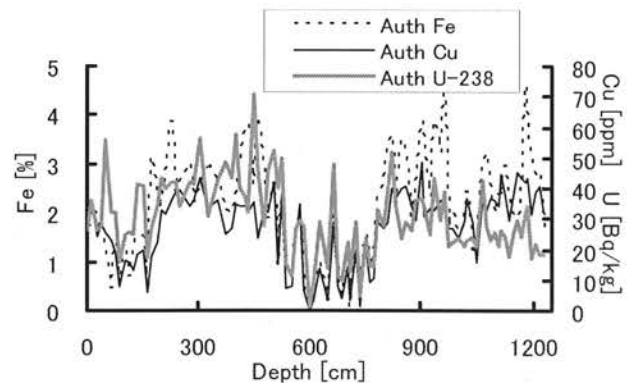


Fig.4 Vertical distribution of authigenic ^{238}U authigenic Fe and authigenic Cu

Anticoincidence 法を用いた Ge 検出器のバックグラウンド低減

古澤優太、浜島靖典、小村和久

〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学環日本海域環境研究センターLLRL

Y.FURUSAWA, Y.HAMAJIMA, K.KOMURA :

Background reduction for analysis of low level environmental radionuclides using an anticoincidence method

【はじめに】Ge 検出器による γ 線測定において、微弱な放射能を精度良く測定するには、スペクトルに表れるバックグラウンド(BG)を減らすことが必要である。BG の原因には、主に環境中の放射性核種によるもの、検出器自身に含まれる放射性核種によるもの、二次宇宙線(μ 粒子)によるものがある。この内宇宙線を低減させる方法は、地下に検出器を設置する方法、プラスチックシンチレーター(PS)を設置し PS と Ge 検出器の信号が同時に発生したものを除く方法(Anticoincidence 法)がある。これまで用いられてきた Anticoincidence 法では、厚い PS(通常、50 mm 厚)を遮蔽外部に設置しているために環境中の γ 線も検出する。このため偶然 Coincidence を起こし、被測定試料中の γ 線を数え落とす確率が高く、更なる改良が必要である。

本研究では、 μ 粒子の波高は検出されるしきい値以上となり、 γ 線の波高はしきい値以下となるように厚さ 3 mm の PS を使用した。また遮蔽内側に PS を設置することで、 γ 線の影響をさらに低減させるようにした。これにより、地上の検出器でも μ 粒子に由来する BG を 1 桁低減できる新しい γ 線測定システムの開発を試みた。

【実験】180 mm×200 mm×3 mm の PS (KURARAY 製, SCSN-81)の周囲に深さ 2mm、幅 1mm の溝を掘り、波長変換光ファイバー(BICRON 製, BCF-91A)を挿入した。同形のものを 5 枚作製し、遮光フィルムで全面を覆った。出力となる 5 本の光ファイバーを一本の光電子増倍管(浜松フォトニクス製, H3165-10 ;以下 PMT)に接続した。PS は Ge 検出器(Ortec 社製, 463cc, 相対効率 90%)の上面と側面に設置した。その側面は厚さ 10 cm Pb、20cm Fe、上面は 2 cm Pb、20 cm Fe で遮蔽をした(Fig. 1)。PS は宇宙線を模擬した ^{90}Sr を用いて、相対検出効率を測定した。

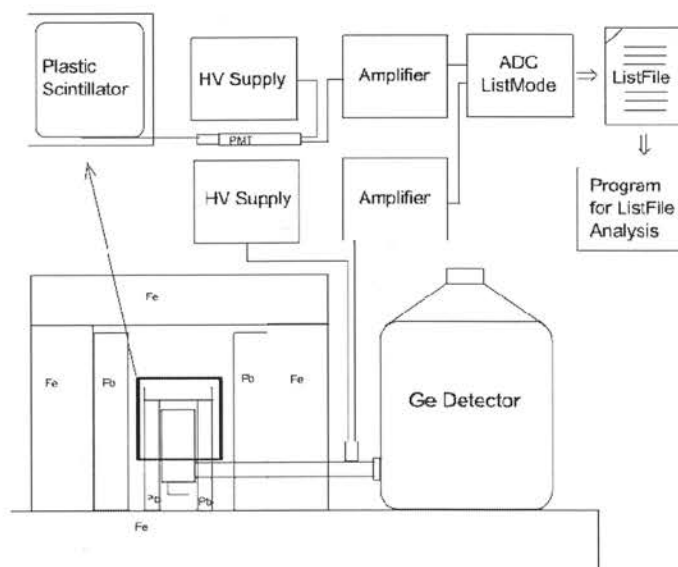


Fig.1 Schematic diagram of a Ge spectrometer.

Ge 検出器及び PS の信号は増幅器を通し ADC に入力した。ADC は入力信号の波高と検出された時刻を ListFile として記録する。この ListFile を解析するために、ソフトウェアを今回新たに作成した。このソフトウェアで、Ge 検出器と PS との信号の Coincidence を取った。Ge 検出器のスペクトルから PS との Coincidence スペクトルを差し引くことで宇宙線由来の BG を除いたスペクトルを得た。

【結果】

適切な Coincidence 時間幅の決定

Ge 検出器と PMT の信号が相対的に何 μ 秒の時間差で検出されるかをプロットした。(Fig. 2) この結果、 -14μ 秒と -9μ 秒に二本のピークを観測した。偶然 Coincidence して除かれるパルスを極力少なくするため、Coincidence の時間幅は Ge のパルスが検出される時間を基準として -20μ 秒 $\sim 0 \mu$ 秒と決定した。

試料測定における Anticoincidence 法の適用

Ra 試料を測定。70 keV-4 MeV までの BG 計数率は 138.0 cpm であった。PMT の計数率は 1411 cpm であった。このうち PS と

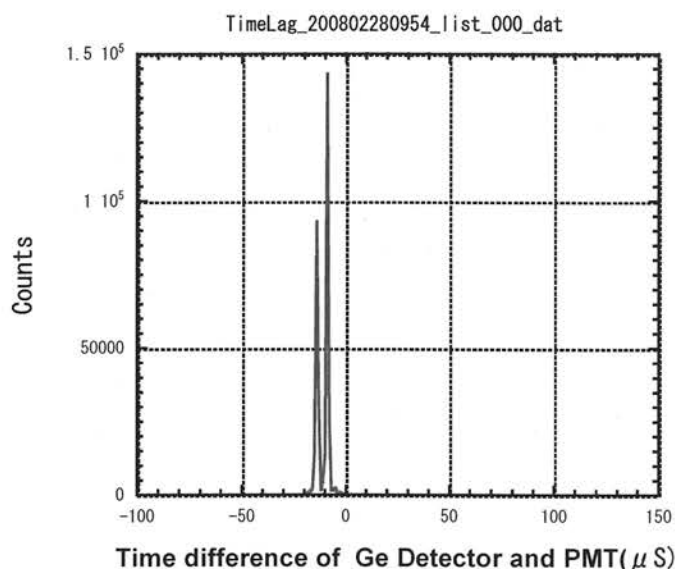


Fig.2 TAC spectrum

Coincidence して除かれたものは 57.2 cpm であり、BG を 41.5% 低減させることができた。

ピーク別のスペクトルを Fig. 3 に示す。各ピークの cps は変わらないが、BG を減少させることが出来ている。 ^{228}Ac (338 keV, Fig. 3-a) や ^{214}Bi (2204 keV, Fig. 3-e) は BG が減少したためにピークが見えるようになった。 ^{40}K , ^{208}Tl のピークも S/N 比が向上していることがわかる (Fig. 3-d, f)。宇宙線由来の γ 線を含む 511 keV の消滅ピークは 47% 低減することができた (Fig. 3-b)。

エネルギーごとの BG 減少率を Table 1 に示す。3 MeV 以上のエネルギー領域は宇宙線のみとなるが、減少率は最大 53.2% であった。

【考察】

全体で 41.5% の BG を下げることに成功し、3 mm の PS でも Anticoincidence 法を用いて宇宙線由来の BG を下げることが出来ると証明できた。今後は PMT の遮光を徹底して計数率を下げることに、TAC のピークが二本に分かれている理由の解明、一つの Ge 検出器の信号に対して PMT の信号が 2-3 μ 秒の間隔をあけて連続入射している現象の解明、遮蔽とプラスチックシンチレータの配置を最適化し、ほぼ宇宙線起源である 3 MeV 以上の領域での BG 減少率を 100% に近づけることを検討していく。

Table 1 The background decrease rate of each energy.

Energy (MeV)	0.07 - 1	1 - 2	2 - 3	3 - 4	> 4
Decrease rate (%)	28.7	43.8	44.2	53.2	50.3

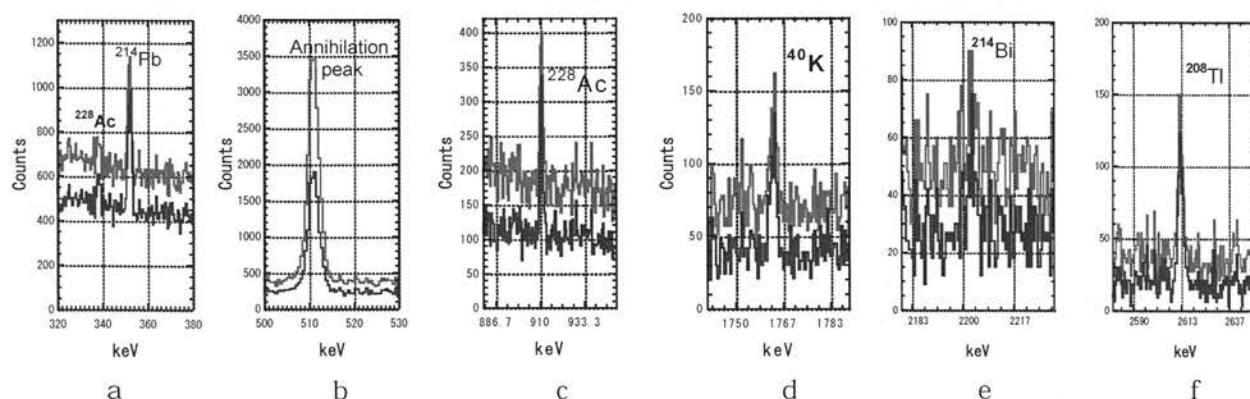


Fig.3 Spectrum of Ra sample.

液体および固体中の環境中性子エネルギー分布

浜島靖典、小村和久

〒923-1224 石川県能美市和気町 金沢大学環日本海域環境研究センターLLRL

HAMAJIMA, Y. and KOMURA, K.:

Energy distributions of environmental neutron in liquids and solids

1. はじめに

環境中性子の起源は、主に 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の際には妨害となることがある^{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。本報告では、この実験結果と MCNP 計算の比較をおこなう。特にどのような中性子エネルギー分布を仮定すると Au-198 深度分布を再現するか、またそのエネルギー分布の深度変化を報告する予定である。

2. 実験

16 から 33g の金箔を、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。約 20 日

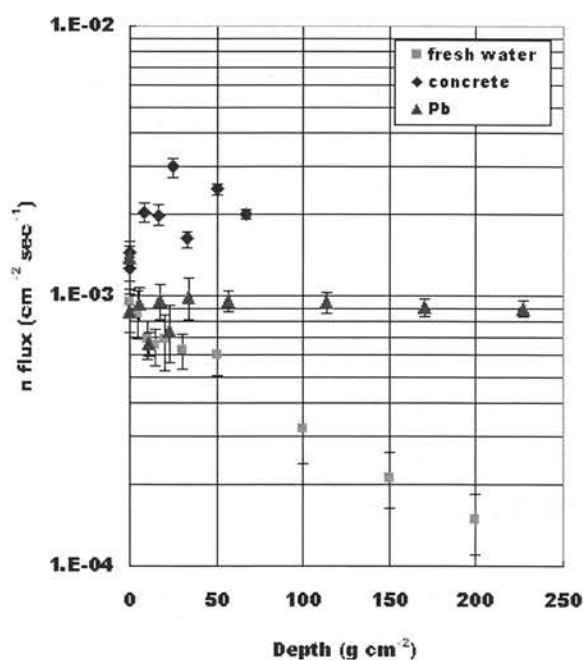


Fig.1 Depth profiles of environmental neutron flux in fresh water, concrete, and lead.

照射後、尾小屋地下測定室で、生成したAu-198の412keV γ 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ると仮定し、各深度の中性子束を求めた。中性子自己しゃへい、輸送中の照射、 γ 線の自己吸収、計数効率等の補正を行った⁵⁾。

計算コードはMCNPX2.4.0を用いた。3種類中性子エネルギースペクトル源を仮定してそれぞれ各物質中の深度分布を計算し、金の励起関数と積分し生成放射能を求めた。

3. 結果と考察

実験結果の中から、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。深度 0 g cm^{-2} の絶対値の差は、照射期間中の空气中環境中性子束強度差に由来する。淡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。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。図2にコンクリート中のMCNPX計算結果の例を示す。環境中性子と同等のエネルギー分布を持つ大気中分布の中性子源を仮定すると、計算結果は実験値をよく再現している。極大は速中性子が減速し生じた熱中性子によるものである。

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,
2006, **8**, 511-519.

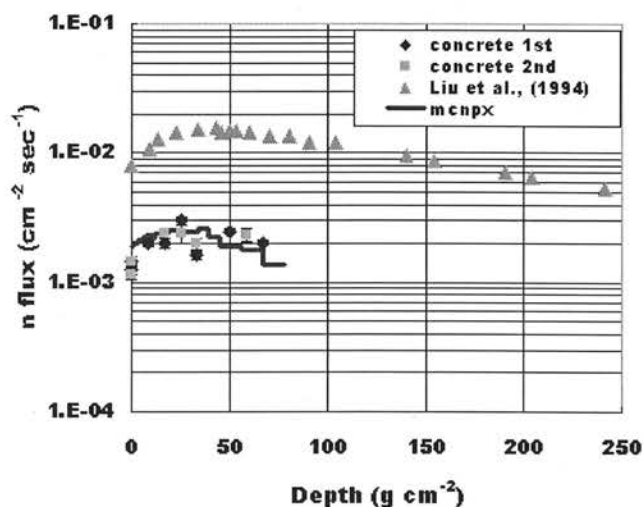


Fig.2 Depth profiles of Au and neutrons in concrete simulated by MCNPX.

DETERMINATION OF $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ ISOTOPIC RATIOS IN HUMAN TISSUES COLLECTED FROM AREAS AROUND THE SEMIPALATINSK NUCLEAR TEST SITE BY SECTOR-FIELD HIGH RESOLUTION ICP-MS

M. YAMAMOTO¹, S. OIKAWA¹, A. SAKAGUCHI¹, J. TOMITA¹, M. HOSHI², K. N. APSALIKOV³

¹LLRL, K-INET, Kanazawa Univ., Nomi, Ishikawa, 923-1224, Japan,

²Hiroshima Univ., ³The Kazakhstan Republic

Information on the $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratios in human tissues for people living around the Semipalatinsk Nuclear Test Site (SNTS) was deduced from nine sets of soft tissues and bones, and 23 other bone samples obtained by autopsy. Plutonium was radiochemically separated and purified, and Pu isotopes (^{239}Pu and ^{240}Pu) were determined by sector-field high resolution ICP-MS. For most of the tissue samples from the former nine subjects, low $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratios were determined: bone, 0.125 ± 0.018 (0.113-0.145, n=4); lungs, 0.063 ± 0.010 (0.051-0.078, n=5) and liver, 0.148 ± 0.026 (0.104-0.189, n=9). Only ^{239}Pu was detected in the kidney samples; the amount of ^{240}Pu was too small to be measured, probably due to the small size of samples analyzed. The mean $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratio for bone samples from the latter 23 subjects was 0.152 ± 0.034 , ranging from 0.088 to 0.207. A significant difference (a two tailed Student's t-test; 95% significant level, $\alpha = 0.05$) between mean $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratios for the tissue samples and for global fallout value (0.178 ± 0.014) indicated that weapons-grade Pu from the atomic bombs has been incorporated into the human tissues, especially lungs, in the residents living around the SNTS. The present $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations in bone, lung and liver samples were, however, not much different from ranges found for human tissues from other countries that were due solely to global fallout during the 1970s-1980s.



Table 1. Results of $^{239,240}\text{Pu}$ concentrations and their $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ isotope ratios in human tissues from nine subjects

Sample No. (Lab. ID)	Tissue	Concentration				Isotope ratio $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$
		^{239}Pu (mBq g ⁻¹ -ash)	^{240}Pu (mBq g ⁻¹ -ash)	$^{239,240}\text{Pu}$ (mBq g ⁻¹ -ash)	$^{239,240}\text{Pu}$ (mBq kg ⁻¹ -wet)*	
1(#20)	Bone(vertebra)			0.080 ± 0.003	8.2 ± 0.3	0.113 ± 0.012
	Lungs	1.56 ± 0.04	0.27 ± 0.03	1.83 ± 0.19	10.9 ± 1.2	0.051 ± 0.004
	Liver	2.44 ± 0.05	1.06 ± 0.05	3.50 ± 0.17	17.5 ± 0.9	0.123 ± 0.002
	Kidneys	0.25 ± 0.01	n.d.			
2(#70)	Bone(vertebra)			0.129 ± 0.017	13.1 ± 1.7	0.107 ± 0.039
	Lungs	0.37 ± 0.01	n.d.			
	Liver	2.10 ± 0.03	0.98 ± 0.05	3.08 ± 0.17	20.2 ± 1.1	0.133 ± 0.002
3(#71)	Lungs	0.044 ± 0.003	n.d.			
	Liver	1.80 ± 0.04	1.24 ± 0.04	3.05 ± 0.12	25.8 ± 1.0	0.189 ± 0.002
	Kidneys	0.047 ± 0.006	n.d.			
4(#139)	Lungs	0.62 ± 0.02	0.13 ± 0.03	0.75 ± 0.15	7.8 ± 1.5	0.067 ± 0.005
	Liver	2.41 ± 0.07	1.42 ± 0.04	3.83 ± 0.16	36.2 ± 1.5	0.161 ± 0.002
	Kidneys	0.069 ± 0.004	n.d.			
5(#155)	Lungs	0.91 ± 0.02	0.17 ± 0.03	1.08 ± 0.22	11.5 ± 2.3	0.061 ± 0.002
	Liver	1.08 ± 0.02	0.37 ± 0.04	1.45 ± 0.16	13.9 ± 1.6	0.104 ± 0.005
6(#158)	Lungs	0.66 ± 0.01	0.12 ± 0.02	0.78 ± 0.15	8.6 ± 1.7	0.059 ± 0.003
	Liver	4.83 ± 0.06	2.74 ± 0.02	7.57 ± 0.12	46.8 ± 0.7	0.155 ± 0.003
	Kidneys	0.050 ± 0.007	n.d.			
7(#337)	Bone(vertebra)			0.049 ± 0.007	5.1 ± 0.7	0.145 ± 0.008
	Lungs	0.21 ± 0.005	n.d.			
	Liver	0.39 ± 0.01	0.20 ± 0.03	0.60 ± 0.09	2.6 ± 0.4	0.156 ± 0.014
	Kidneys	0.023 ± 0.006	n.d.			
8(#348)	Lungs	0.12 ± 0.01	n.d.			
	Liver	0.46 ± 0.01	0.25 ± 0.04	0.71 ± 0.11	7.3 ± 1.1	0.170 ± 0.010
9(#379)	Bone(vertebra)			0.051 ± 0.005	5.3 ± 0.5	0.135 ± 0.008
	Lungs	0.22 ± 0.01	0.043 ± 0.020	0.26 ± 0.12	1.2 ± 0.6	0.078 ± 0.005
	Liver	0.49 ± 0.01	0.25 ± 0.02	0.75 ± 0.06	5.0 ± 0.4	0.144 ± 0.010
	Kidneys	0.084 ± 0.010	n.d.			

*The values in terms of mBq kg⁻¹-wet were tentatively estimated by using ash-wet weight ratios listed in Table 1.

The levels of $^{239,240}\text{Pu}$ in bone samples were measured by alpha-ray spectrometry and error shows one sigma of counting statistics. Tissue samples other than bone samples were measured by ICP-MS and error shows one standard deviations from three replicate n.d.: not detected.

SPATIAL DISTRIBUTION OF SOIL CONTAMINATION BY ^{137}Cs AND $^{239,240}\text{Pu}$ IN THE VILLAGE OF DOLON NEAR THE SEMIPALATINSK NUCLEAR TEST SITE: NEW INFORMATION ON TRACES OF THE RADIOACTIVE PLUME FROM THE 29 AUGUST 1949 NUCLEAR TEST

M. YAMAMOTO¹, J. TOMITA¹, A. SAKAGUCHI¹, T. IMANAKA², S. FUKUTANI², S. ENDO³, K. TANAKA³, M. HOSHI³, B. I. GUSEV⁴, K. N. APSALIKOV⁴

¹LLRL, K-INET, Kanazawa Univ., Nomi, Ishikawa, 923-1224, Japan

²Kyoto Univ., ³Hiroshima Univ., ⁴The Kazakhstan Republic

The village of Dolon located about 60 km northeast from the border of the Semipalatinsk Nuclear Test Site in Kazakhstan is one of the most affected inhabited settlements as a result of nuclear tests by the former USSR. Radioactive contamination in Dolon was mainly caused by the first USSR nuclear test on 29 August 1949. As part of the efforts to reconstruct the radiation dose in Dolon, ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in soil samples collected from 26 locations in the vicinity of and within the village were measured to determine the width and position of the center-axis of the radioactive plume that passed over the village from the 29 August 1949 nuclear test. Measured soil inventories of ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ were plotted as a function of the distance from the supposed center-axis of the plume. A clear shape similar to a Gaussian function was observed in their spatial distributions with each maximum around a center-axis.

It was suggested that the plume width that contaminated Dolon was at most 10 km and the real center-axis of the radioactive plume passed 0.7-0.9 km north of the supposed centerline. A peak-like shape with the maximum near the center-axis was also observed in the spatial distribution of the $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio, which may reflect the fractionation effect between $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs during the deposition process. These results support the results reported recently by Stepanenko et al.(2006). The data obtained here will provide useful information on the efforts to estimate radiation dose in Dolon as reliably as possible.

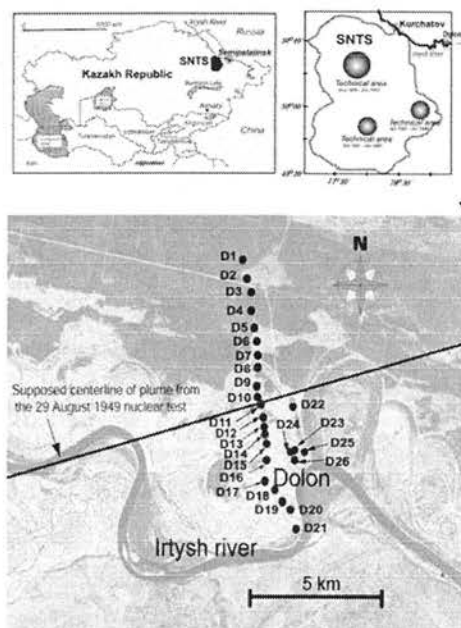


Fig.1 Sampling points of soil in Dolon Village

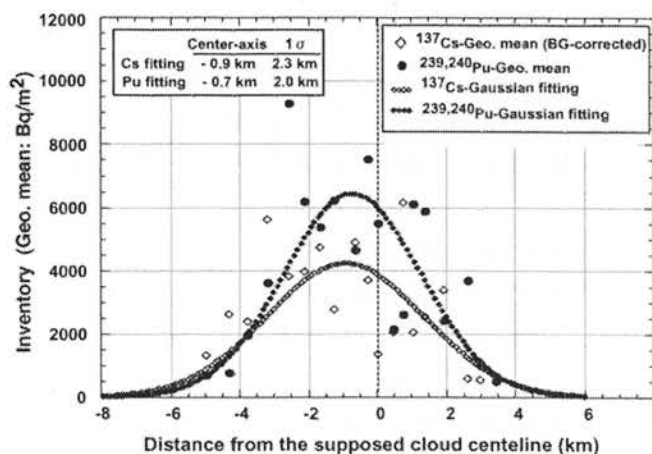


Fig.2 Spatial distributions of geometric means for BG-corrected ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ inventories in soil samples from 19 locations along the line perpendicularly crossing the supposed centerline.

平成19年度見学来訪・出張の記録

平成19. 4.21、4.27、5.10、5.30、 6.1、6.4、 6.11

[輪島市大沢町周辺ラドン測定]

5.3-4、 5.12、5.16、6.15-16

[輪島市舳倉島周辺環境放射能測定試料採取]

4.6、5.8、6.8、7.4、8.3、9.7、10.2、11.5、12.6、 20.1.8、2.5、3.5

金沢工業大学 湯田 勝義氏、西村 明奈 氏、木下 和哉 氏 測定のため来所

5.23 (財)若狭湾エネルギー研究センター 大谷 暢夫 氏、今 攸 氏、白木 秀人 氏、
小野 真宏 氏 研究打ち合わせ

5.25 筑波大学生命環境科学研究科 准教授 恩田 裕一 氏 研究打ち合わせ

6.1 琉球大学大理学部 教授 大森 保 氏 研究打ち合わせ

6.8、10.24、10.30、 20.1.7

北陸大学放射薬品学 助教授 山田 芳宗 氏 測定のため来所

6.21-7.3 小村教授「Southern Hemisphere Ocean Tracer Studies」ワークショップ出席の
ためモナコへ出張

7.20-21 広島大学原爆放射線医科学研究所 教授 星 正治 氏、京都大学原子炉実験所
助教 今中 哲二 氏、Dr.ホワイトヘッドシンカレフ 研究打ち合わせ

8.7 気象研究所 青山 道夫 氏 研究打ち合わせ

8.27-9.12 山本教授「旧ソ連核実験場周辺住民の被曝線量評価」の土壌試料収集のため
カザフスタン共和国へ出張

10.17 岐阜大学総合情報メディアセンター 教授 田阪 茂樹 氏 研究打ち合わせ

11.1-11 井上助教「Workshop on The Chronology of Meteorites and the Early Solar
System」出席のためハワイへ出張

11.9 文部科学省振興局学術機関課 課長補佐 高木 秀人 氏、機構調整共同利用係 主任
吉田 雄介 氏 尾小屋地下測定室 見学

11.22-25 神戸大学名誉教授 中村 昇 氏「短寿命宇宙線生成核種からみた宇宙化学に関す
る研究」打ち合わせ

11.29-12.1 水産総合研究センター中央水産研究所海洋放射能研究室 室長 皆川 昌幸 氏
研究打ち合わせ

12.4 理学部化学科3年生46名実習、尾小屋地下測定室見学

12.12 (財)若狭湾エネルギー研究センター 大谷 暢夫 氏、小野 真宏 氏 研究打ち合わせ

平成20. 1.8、2.28 (財)若狭湾エネルギー研究センター 白木 秀人 氏、小野 真宏 氏
研究打ち合わせ

2.17-19 横田 喜一郎 氏、日本海洋科学振興財団むつ海洋研究所 小藤 久毅 氏
研究打ち合わせ

2.27-3.1 山本教授「セミパラチンスクにおける放射線の影響」国際シンポジウム(広島)出席



金沢大学
環日本海域環境研究センター

環日本海域環境研究センター 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