

計數管による土壤放射能の測定に就て*

萩原 篤太郎

森 田 修 二

小 林 幸 平

最近吾々は土壤の放射能を實測する機會を得たので、豫備的に若干の產地及母岩の地質學的種類を異にする土壤試料に就て測定した結果を、その測定方法と共に茲に簡単に報告する。

從來、著者等(萩原、小林)はガイガー型電氣計數管をもつて種々の人工的誘導放射能元素の放射能を調べてゐる關係上、本報告に於ける土壤の自然放射能の測定にも亦此型の計數裝置を使用して見たのである。ガイガー・ミューラー型計數裝置は最早此處に新しく説明するまでもなく、近來放射能の研究に非常に広く利用され、又よく知られた極めて有力な測定裝置であるが、唯茲には此種の測定にも利用して比較的簡便な實用的の薄壁 β -線計數電離管として、現在の測定に使用したものを説明する。

薄壁 β -線計數管

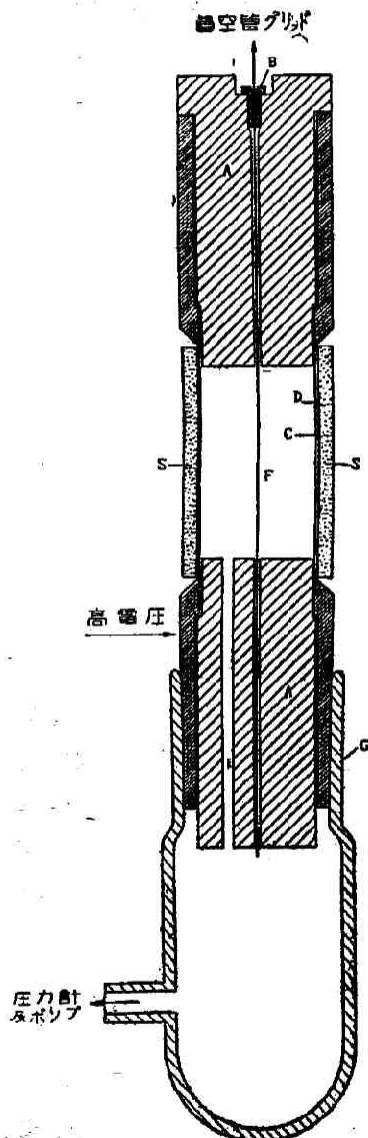
第1圖はその電離管の断面略圖を示すものである。即ち先づ管壁の厚さ約 $1/10$ mm のデュラルミン製の薄壁圓筒を作り、その中軸に沿つてタングステンの細線 ($\phi=0.02$ mm) を張る。圓筒の内側は優秀な研磨面である。此圓筒の上下には夫々電氣的絶縁物質の部分片 A が取付けられ、圖示の如くタングステン細線 D とデュラルミン圓筒 D との間の電氣的絶縁を完全にする。圓筒の下端は磨り合せ面に依つてパイレックス硝子管 G と氣密に連り、管内の排氣及使用氣壓の調節が之を通じて行はれる。此電離管使用の際に於ける管内の氣體には Hg-柱 ~ 8 cm の乾燥空氣が用ひられ、デュラルミン管壁(直徑=1.5 cm)にはタングステン線に對して約 -1200 ボルト邊の一定適度の電位差が選ばれ、電源から附與される。即ち管壁はフィラメントに對して陰電極となる。

被驗粉末試料は圖示の如く、内壁の徑 1.5 cm、外壁の徑 1.9 cm、高さ 3 cm、即ち厚み 2 mm の紙製二重壁の半圓壺狀容器 2 箇の 1 對に分割して均等に滿される。放射能測定の際に充分高める爲め此容器の内側の壁には特に極めて薄い(0.02 mm)セロファン紙が用ひられ、試料よりの β -放射線が之によつて減殺されるのを出来るだけ避けてゐる。

* 本研究の概要は既に昭和17年12月12日、日本化學會討論會の席上に於て報告された。

萩原篤太郎、日本化學會誌, 64 (昭和18), 564.

そこで今デュラルミン圓筒の薄壁部の周圍に於て、その有效表面積、約 12 cm^2 の全表面に互つて此様な粉末試料を 2 mm の厚さに満たした上記セロファン容器を密接して圍繞させ、試料を電離管に對して對稱に配置する。今若しこの容器内の放射能試料より放出される β -線、 γ -

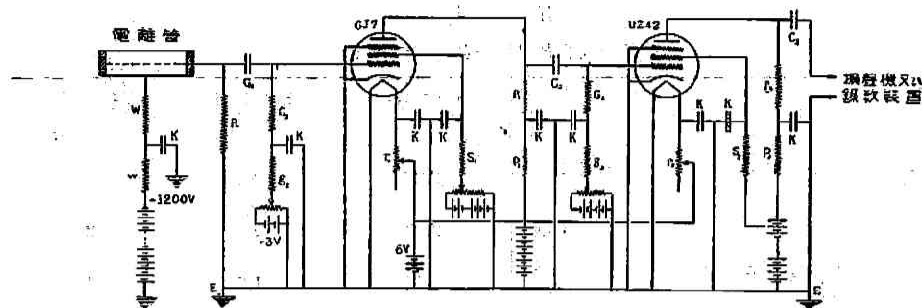


第1圖. 薄壁計數電離管断面略圖.

A, 電気絶縁材質, B, 眞鍮金具, C, セロファン容器内壁, D, 陰極デュラルミン薄壁管部, E, 陽極タングステン・フィラメント, G, パイレックス電子管, S, 試料.

線がセロファン薄壁とデュラルミン薄壁 $1/10\text{ mm}$ とを透過して管内に到達することが出来れば、管内の低圧空気はその電子飛跡に沿つて直ちに電離され、その電離イオンの強電場による電圧脈動が放電的に誘發されて、之が圓筒の中軸に張られたタングステン線の陽電極に集められる。そこでこの電圧脈動を導線によつて第1真空管のグリッドに導き、更に適當な真空管増幅に依つて之を擴大した上、擴聲機或は録數装置によつて計數するのである。即ち此様な計數値の多少によつて夫々試料の放射能強度を比較測定するものである。第2圖は此際に使用された真空管二段増幅の回路結線の略圖を示すもので、此場合には比例増幅の場合と異り甚だ簡單で増幅の點に關し特に記述する程のものはない。但だ上述計數管及回路全部の周圍を充分の接地鉄板をもつて外界から完全に遮蔽したのは云ふまでもない。

處が此種の計數電離管により放射能物質の放射能を測定する際には、周知の如く必ずその放射性物質自體からの放射線のみに起因する計數の他に、主として宇宙線による管内の電離が之と同時に重複して計數されてくるものである。所謂此自然計數 (Background) なる計數は、夫々各測定に當つてその程度統計的に實際の測定値から常に補正されなければならぬものである。此處に用ひられた計數管の自然計數は7—8/分の程度のもので、放射能試料の計數とかゝる自然計數のみの計數とは各30分間毎に交互に、又之が連続的に計數されて、夫々求むる放射能強度が測定された。斯様に、中性子等によつて核化學的に誘起される種々の人工的放射能元素の半減期の如きも之によつて充分満足に測定されつゝあ



第2図. 真空管増幅回路結線略図.

る。斯様な計数管に於て、先づ所定量の厚さ 2 mm の粉状鹽化加里のみが與へる計數値、即ち自然計數値を測定の都度定めて之を補正した値は、計数管薄壁管部の厚さ、表面積、材質の種類、その他によつて當然異れども、現在の場合その數値の程度は約 100—160/分のものにして、以下述べる一聯の測定には所定條件の下に於て總てこの鹽化加里 ($K=52.44\%$) に對して計數 100/分の電離管が用ひられた。

放射能測定

扨て次に此様な測定装置によつて土壌の放射能を試験して得た結果に就て述べる。此處に試験した試料は何れも所謂殘積土の種類に屬すべきもので、主として柑橘園附近の地層から採集された土壌である。此に關聯して尙對照の爲めに二三の含加里岩石の破砕粉末をも併せ測つてみた。即ち試験試料は花崗岩質土壌、玄武岩質土壌、火山灰質土壌、第三紀層土壌、秩父古生層土壌等に屬するものにして、他に尙 海綠石、加里明礬石、石英粗面岩等に就てもその測定を行つた。

第1表はその結果の一例を示すものである。第1行は試料の種類並に其產地、第2行は各試料中に含有される加里分を化學分析¹⁾の結果 K_2O の百分率として示したもの、第3行はその放射能強度を計數/分で表したもの、第4行は夫々の計數/分を $K_2O\%$ で除した $K_2O-1\%$ 當りの計數/分である。尙最後に附記された KCl 及 $K_2C_2O_4 \cdot H_2O$ なる化學藥品の放射能は對照の爲めに全く同様な條件の下で測定されたもので、此處に KCl の 100/分の如き數値は殊に甚だ顯著な計數値と云はねばならぬ。

此第1表の結果に依つて見ると、被驗試料には殆んどその總てに可なり著しく自然放射能が檢出されてゐる。そして此等の放射能強度は又略々試料中に含有される加里の化學分析値¹⁾に直接關係してゐるものの如くに推察される。元來天然のカリウムが弱い β -線を放出する事實

1) 加里(カリウム)はその鹽化白金の加里鹽として分析定量された。著者の一人、森田修二氏は京大農學部農林化學教室の所屬にして、本實驗に於ける土壌試料の提供とその化學分析を分擔した。

第 1 表
残積土及含加里岩石放射能の測定

試料及其産地	加里百分率 K_2O : %	放射能 計数/分	K_2O : 1% に対する 計数/分
大分縣東國東郡奈狩江村, (花崗岩質土壤) A-層土壤	2.22	5.4	2.5
同上 C-層土壤	2.03	5.0	2.5
長崎縣西彼杵郡村松村子口川, (玄武岩質土壤) C-層土壤	0.42	1.7	4.0
鹿児島縣鹿児島郡西樓島村西道, (火山灰質土壤) A-層土壤	0.92	3.5	3.8
大阪府南河内郡赤坂村森屋, (第三紀層土壤) C-層土壤	1.50	6.4	4.3
静岡縣引佐郡三ヶ日町福長字大福寺, (秩父古生層) A-層土壤	0.49	0.7	1.4
海綠石, 樺太大泊産	4.98	9.7	1.9
加里明礬石, 廣島縣比婆郡勝光山産	10.60	22.2	2.1
石英粗面岩, 静岡縣下田町萬蔵山産	10.09	24.1	2.4

化 學 試 料	カチオン百分率 %	放射能 計数/分	カチオン1% に対する 計数/分
鹽 化 加 里	52.44	100	1.9
蓚 酸 加 里	42.45	86	2.0
鹽 化 ル ビ デ ウ ム	70.07	4.4	—
アルミニウム微細粉中のウラン	$U=7 \times 10^{-4}$	1.1	—

は既に可なり古くからよく認められてをり、現在では ^{39}K 、 ^{40}K 及 ^{41}K なる3つの同位元素が存在する内で、頻出度 0.012% の K^{40} の原子核のみが β -線及 γ -線を放出することが確められてゐる²⁾。そして此放出 β -線の保有するエネルギーは速い方の群の最大値が 700 KeV 位、遅い方の群の最大値が 400 KeV 位であると云はれる。即ち本實驗に於て、上述の薄壁計數管によつて檢出されえた土壤の放射能なるものは、主として此放射性、 ^{40}K なる不安定な天然同位元素の核より放出される放射線 β - 及 γ -線に基因するものであることが大體に於て推知され得る。

そこで更に此推定を確める爲めに、前の被驗土壤の内から適宜その二三を撰んで、別にその原試料中に既に含有されてゐる 加里の化學的分析實測値の上に更に既知適量の加里分を蓚酸加里により逐次添加増量してゆき、如上の方法に依つてその都度各々の示す放射能を測定してみたのである。試料中へ加里分添加の操作は、所定量の蓚酸加里を水溶液となし之を一定量

2) A. O. Nier, *Phys. Rev.*, 50, 1041 (1936).

W. R. Smythe and A. Hennemendinger, *Phys. Rev.*, 51, 178 (1937).

の原微細粉末試料に添加、充分均等に混和し、蒸發乾涸の後、 105°C の乾燥粉末を再び瑪璃乳鉢中に微粉としたるものにして、夫々の放射能測定を試料とした。

第2表及第3圖は長崎縣村松村の C-層土壤 ($\text{K}_2\text{O}=0.42\%$) と大分縣奈勢江村の C-層土壤

第 2 表

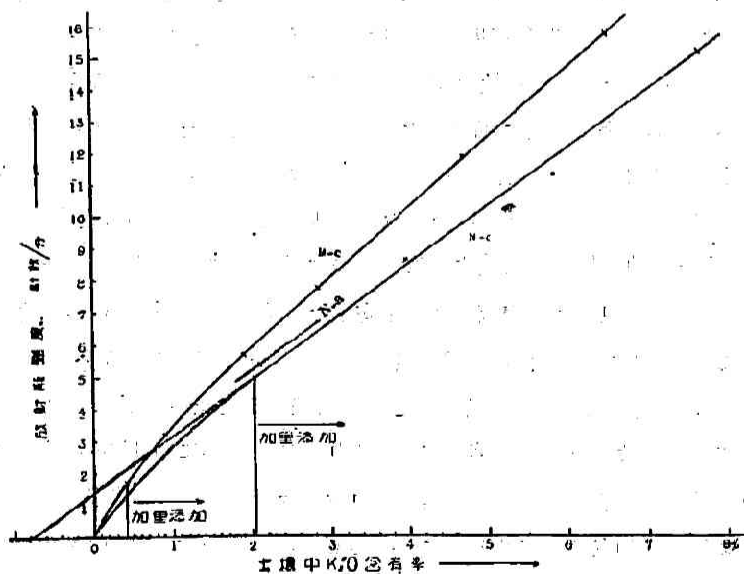
加里添加土壤の放射能測定.

(M) 長崎縣西彼杵郡村松村子口川, C-層土壤 (鹽基性岩質)

添加 K_2O , %	0	0.50	1.48	2.44	4.31	6.11
K_2O 全含有率, %	0.42	0.92	1.90	2.86	4.73	6.33
計数/分 (自然計数ヲ除 外シタル數値)	1.7	3.2	5.7	7.7	11.8	15.6

(N) 大分縣東國東郡奈勢江村, C-層土壤 (酸性岩質)

添加 K_2O , %	0	1.05	3.83	5.65
K_2O 全含有率, %	2.03	3.98	5.86	7.68
計数/分 (自然計数ヲ除 外シタル數値)	5.0	8.6	11.2	15.0

第3圖. 土壤中添加 K_2O 含有率と放射能強度との關係.M-c: 長崎縣西彼杵郡村松村子口川, C-層土壤, $\text{K}_2\text{O}=0.42\%$.N-c: 大分縣東國東郡奈勢江村, C-層土壤, $\text{K}_2\text{O}=2.03\%$.N-a: 同上, A-層土壤, $\text{K}_2\text{O}=2.22\%$.

($\text{K}_2\text{O}=2.03\%$) とに就て得られた結果を示したものである。前者は風化玄武岩、即ち鹽基性岩質土壤であり、後者は風化花崗岩、即ち酸性岩質土壤に屬する。即ち試料中に添加された加

里濃度と検出放射能とはその濃度が比較的高い範囲に於て大體直線的の關係に在ることが確められる。處が此第3圖から見られるやうに、未だ村松村土壤 $M-c$ の一つだけの例からではあるが、その直線的關係は加里濃度が約2%邊から以下横軸に向つて凹型の經過をとつて、曲線は最後に丁度座標軸の0點上に延長されて来るやうに見られる。換言すれば、此土壤は加里含有分が0に於て丁度その検出放射能を殆んど消失することを意味する。従つて此村松村土壤に就て検出された初めの放射能の殆んど全部は、加里の原含有量に負ふものとの結論に到達する³⁾。

又第2の奈狩江村土壤、 $N-c$ の場合には、その原加里含有量は $K_2O=2.03\%$ であつて、それ以下の加里分の濃度範囲に對する放射能の實測が行はれ得ないのであるから、實際にはかかる僅小濃度範囲に於て、より正確な外挿延長が出来ないけれ共、孰れにしても直線としての延長線と0點を通る延長曲線との間に挟まれる範囲内にその延長經過が外挿されてくる可きものである。今若しかゝる發性岩質土壤に於て、假りにその原含有加里以外にラヂウムその他の強放射能元素の如きものの共存をも之に期待し得るとすれば⁴⁾、即ち最高 ~ 1.5 /分以下の強放射能元素に屬すべき放射能が茲に豫期されなければならぬ。—但し單に前者の村松村土壤の曲線經過のみから之を同様に類推すれば、反つてその延長線は相當の類似曲率をもつて計數 1.5/分より遙かに低く縦軸を切り、0點により近く延長されてくるべきものゝやうに考へられぬこともない。此やうな強放射能物質の混在に關聯して甚だ粗略的な一つの對照試驗としてではあるが、第1表の最終に掲げたセロファン容器内の全アルミニウム微粉中に U が $7 \times 10^{-1}\%$ だけ添加された場合、即ち U の 2×10^{-5} gr. が均等に全アルミニウム粉と共に混和された場合の計數は、測定り結果 1.1/分となる。即ち此數値は U から生成された、セロファン壁附近の UX その他の放射能崩壊生成物からの放射線を計數してゐることになる。

それから放射能 K^{40} 以外に、尙天然には不安定な ^{87}Rb が又軟い β -線を放出することがよく知られてゐる⁵⁾。即ちその放出 β -線の最大エネルギーは硬い方の成分で 250 KeV 位、軟い方の群で 100 KeV 位と云はれる。故に前と全く同様な測定條件の下で $RbCl$ をセロファン容器内に滿して之を計數した處が、第1表に示される如く僅かに 4.4/分の計數値しか得られず、又土壤中の Rb 含有量も實際に於て極めて僅少に過ぎないものであるから、 Rb -放射線は本計數裝置による土壤測定には餘り影響なく、考慮の要がないやうである。

- 3) 勿論、此處に加里の3同位元素、 K^{39} , K^{40} 及 K^{41} 間の相對的頻出量比 (93.44 : 0.012 : 6.55%) は常に一定不變に保たるべきものと假定される。
- 4) 一般に地球化學に於て火成岩中に於ける強放射能元素の含有量は、花崗岩等の場合の如く、岩石が雙性である程増大する傾向が窺はれる。
- 5) O. Hahn, F. Strassmann u. E. Walling, *Naturwiss.*, 25, 189 (1937); J. Mattauch, *Naturwiss.*, 25, 189 (1937). 最近この他 ^{176}Lu も亦天然に β -活性核であることが確められてゐる。— M. Heyden u. W. Wefelmeyer, *Naturwiss.*, 26, 612 (1938); J. Mattauch u. H. Lichtblau, *Zeits. f. Phys.*, 111, 514 (1939).

圖上に於て、村松及奈狩江村兩土壤の直線部分の傾斜が又可なり兩者によつて異なるのは、該試料内に含有される構成化學全成分に對する $^{19}\text{K}^{40}$ -放射線の吸収率の差異に依るものとの推察を生ずる。何れにしても被驗試料中に、もし特にラチウムその他の強放射能元素が共存しない場合、或は極微の痕跡の場合には、逆に斯様な近似的直線乃至曲線の相關關係を利用して、加里放射能 0 の點にまで之を外挿延長することによつて、一即ち試料内の含有全成分に對する $^{19}\text{K}^{40}$ -放射線の吸収率を夫々實驗的に顧慮することによつて、一該土壤中の加里含有率がかかる單純な物理的方法によつても近似的に推知され得る可能性が期待される。そして此際 試験試料の密度が特に低い場合ほど、此様な物理的分析の結果は良好となり得ることが容易に推察される。

又一般に、或試料中に含有する化學分析的の加里分のみに起因する K^{40} -放射能の強度が、假りにその試料全體に對して檢出され得る全放射能強度に比して遙かに僅少であるやうな場合には、容易に又之と混在してゐる他の強放射能物質が判別され、之に關する考察をも更に進められることが出来る筈である。

要 約

要するに、本實驗に取扱はれたる兩試料、即ち長崎縣西彼杵郡村松村子口川(玄武岩質土壤)、及び大分縣東國東郡奈狩江村(花崗岩質土壤)の C-層土壤 ($\text{K}_2\text{O}=0.42\%$ 及 2.03%) の實測例に於ては、上述の如く、その檢出放射能の殆んど大部分が土壤内に含有される放射性加里分、 $^{19}\text{K}^{40}$ よりの放射線に基因するものであることが結論される。そして尚この外、添加加里濃度とその放射能との間の上記實驗的關係より、實際には土壤中微量含有の強放射性元素に由ると思惟される如き他の放射能の混在は、又特に風化花崗岩質土壤等の酸性岩質土壤に於て之が檢出可能なるものゝ如くであるが、之を更に明確な數値として各種土壤に就て夫々識別せんが爲には尚 K^{40} -放射線の適度な吸収濾過等の方法による今後の測定結果に俟たなくてはならぬ。研究は尙目下繼續中である。

終りに、本研究に對して御懇篤なる御指導と御鞭撻とを賜りし堀場先生に衷心謝意を表する。又本研究費の一部は文部省自然科學研究費の補助によるものでこゝに厚く感謝する。

京都帝國大學理學部化學教室

物理化學研究室

(昭和 18 年 8 月 13 日受理)

ON THE MEASUREMENT OF THE RADIOACTIVITY OF SOILS BY A GEIGER-MÜLLER COUNTER.

By TOKUTARO HAGIWARA, SHUJI MORITA
and SAIHEI KOBAYASHI.

(Abstract)

The natural radioactivity of different soils and related rocks were measured by means of a thin walled Geiger-Müller counter. The samples measured were various kinds of residual soils gathered at different geological districts, and several rocks containing a quantity of potassium as one of their chemical components. They belong to granitic soil, basaltic soil, volcanic ash soil, tertiary soil, *Chichibu* palaeozoic soil, etc. and glauconite, alauinite, liparite, etc.

The β -ray counter for the present actual use consisted of a closed thin wall cylinder of duralmin with polished interior, about $1/10$ mm thick, 15 mm in diameter, 25 mm in effective length, in which a fine wire of tungsten was stretched along its axial direction with the aid of highly insulating end pieces. Such an ionization chamber was filled with dry air at a pressure of about 8 cm Hg, the duralmin cylinder itself being maintained at a high negative potential, ~ 1200 V with respect to the ion-collecting wire. The thin cylindrical wall of this ionization chamber forming the window, through which β -rays enter, had a total effective area of 12 cm^2 . It was surrounded with a thin double-walled cellophane cylinder, of which the annular space was filled to 2 mm thickness with the fine powdered sample. The ionization pulses in the enclosed air between the electrodes, caused by the radiations from the radioactive sample, were collected upon the stretched wire and fed on to a first grid of the vacuum tube amplifier of double stages, through which the frequency of these amplified impulses was counted. Such countings afforded a simple means of comparing the radioactivity of the various samples mounted in place. The operating condition of our counting apparatus here used was such that the background count due to mainly cosmic radiation gave rise to about 7—8 per minute under the perfect shielding of the apparatus, and tests with fine powdered potassium chloride in the containers gave the average number of impulses, 100 per minute over and above the background.

From the experimental evidence resulting by employing such a counter, it was found that almost all of the soils and the powdered rocks manifest the remarkable radioactivity and its measured intensities appear to have a direct relationship to the chemical contents of potassium in the samples. Hence, the greater part of the natural radioactivity of the soils detected in the present experiments must be ascribed to β - and γ -rays emitted from the atomic nuclei of an unstable rarer natural isotope $^{40}_{19}\text{K}$ contained in the soils.

In order to ascertain such an assumption, the authors attempted further to measure the corresponding radioactivity for a series of homogeneous mixtures obtained by adding increasing

quantities of potassium oxalate into a definite quantity of a soil. The results thus obtained show that there holds a linear relation between the concentration of the potassium and the corresponding radioactivity over the range of fairly high contents of potassium. In a very low range of the potassium content, however, such a linear relation tends to alter to one with some concaved curvature with respect to the concentration-axis. The numerical evaluation for a residual radioactivity corresponding to zero potassium content in the original soil could be easily performed by the graphical extrapolation of the above empirical relation between the activity and the potassium content. It leads to a conclusion that most of the radioactivity detected for various soils is due to the unstable isotope $^{40}_{19}\text{K}$ of potassium itself originally contained in the natural samples. Consequently, in the case when a strong radioactive substance such as radium is absent or present only in a slight trace, it may be expected that the potassium contents can be approximately predicted from the radioactivity-measurements by similarly extrapolating the empirical correlationship between the activity and the potassium concentration to a point, at which the activity vanishes. Moreover, if the radioactivity due to $^{40}_{19}\text{K}$ alone in the sample is only a small fraction of the total radioactivity measured, it could be inferred from the quantitative measurements as just described that there coexist some other strong radioactive substances in the sample in question and even a further information about them may be derived.

Of the samples here studied in some details, the soil of *C-horizon* (basaltic soil, $\text{K}_2\text{O}=0.42\%$) gathered at the neighbourhood of the citrus garden in *Muramatsu-mura*, *Nagasaki* Prefecture and the similar soil (granitic soil, $\text{K}_2\text{O}=2.03\%$) in *Nakarie-mura*, *Oita* Prefecture, it is concluded that they have the radioactivity to be regarded almost as that of the *natural radioactive potassium* contained. However, it appears that a sort of radioactivity due to some other *strong radioactive elements* is possible to be detected for some cases of the *acidic rock soil* such as in the granitic soil.

The Department of Physical Chemistry,

Chemical Institute, Kyoto Imperial University.

(Received Aug. 13, 1943)