

研究論文

巨大水槽による水チェレンコフ検出器とその周辺環境の天然放射能のバックグラウンドレベル——KAMIOKANDE-II——

山本政儀*¹, 阪上正信*², 小村和久*¹, 上野 馨*¹(1989年5月1日受理)
(1989年7月20日再受理)

Background Level of Natural Radioactivities in a Giant Water Cherenkov Detector and Its Surrounding Environment——KAMIOKANDE-II——

Masayoshi YAMAMOTO,*¹ Masanobu SAKANOUÉ,*² Kazuhisa KOMURA*¹
and Kaoru UENO*¹

The KAMIOKANDE-II water Cherenkov detector for the measurements of nucleon decay and/or solar neutrino has been operating in the underground laboratory at a depth of 2,700 m.w.e. (meter water equivalent) in Kamioka mine of Gifu Prefecture. Concentrations of ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra and ^{222}Rn as the major background sources have been measured for various kinds of rocks, mine water, mine air and high purity water used as a detector during the period from August 1986 to December 1987. The concentration levels of these radionuclides and their seasonal variation have become clear. Some of these results have provided useful informations for decreasing the background level of water Cherenkov detector.

KEY WORDS : background level, natural radioactivities, water Cherenkov detector, KAMIOKANDE-II

I 緒 言

岐阜県の神岡鉱業所茂住鉱の地下 1,000 m (2,700 m.w.e.) に巨大な水槽の水チェレンコフ検出装置を備えた地下観測所 (Fig. 1)¹⁾ が設置されている。1983年7月から、この実験装置 (KAMIOKANDE-I) を用いて陽子崩壊の観測が開始され、途中 1985 年に天体・宇宙ニュートリノ (とくに太陽ニュートリノ) の測定を可能にさせるための装置の大幅な改良 (KAMIOKANDE-II) を

経て、1986年の初め頃から両者の観測が継続して行われている²⁾。

この実験装置で、陽子崩壊のような大きなチェレンコフ光 (約 1 GeV 相当の光) を発する現象を測定する場合には、装置の放射線によるバックグラウンドはそれほど問題にならない。しかし、太陽ニュートリノなどの低エネルギーの核現象を測定する場合には、バックグラウンドを吟味するとともに、その低減化がきわめて重要となる^{3,4)}。

1986年当時、電子エネルギーに換算して 8.5 MeV 相当以上 (将来より低いエネルギーまで測定の子定) のチェレンコフ光をすべて観測しており、バックグラウンドとしては、このレベル以上のエネルギーの放射線や宇宙線およびこれらの放射線と周りの物質との核反応で生ずる放射線が考慮の対象となる。おもなバックグラウンド放射

*¹ 金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設; 石川県能美郡辰口町和気 (〒923-12)

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University; Tatsunokuchi, Ishikawa 923-12.

*² 現住所: 兵庫県宝塚市宮の町 14-20 (〒665)

Present Address: Miyano-cho, Takarazuka, Hyogo 665.

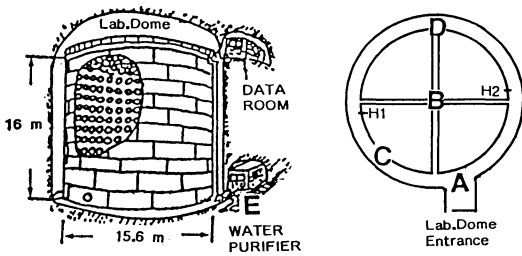


Fig. 1 Outline of the KAMIOKANDE 3,000 ton water Cherenkov detector¹⁾ and its plane figure of Lab. dome. (The symbols in the figure show the sampling points of airborne ^{222}Rn .)

線としては、① ^{238}U および ^{232}Th の自発核分裂により放出される $\sim 8\text{ MeV}$ までの γ 線および β 線、② $^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{222}\text{Rn} \rightarrow ^{214}\text{Bi}$ の最大エネルギー 3.24 MeV までの β 線 (検出器のエネルギー分解能により $\sim 8\text{ MeV}$ 相当の信号になることがある)、③宇宙線の μ^- 中間子およびそれと ^{16}O との核破砕反応によって生成する放射性核種(^{16}N , ^{12}N , ^{12}B , ^8B など)からの $10\sim 16\text{ MeV}$ の β 線、などが考えられる。天然放射性核種に限れば、 ^{238}U , ^{232}Th と ^{214}Bi の親核種である ^{226}Rn および ^{226}Ra がとくに問題となる核種である²⁻⁴⁾。

天然放射能のバックグラウンドについては、1984年6月から1986年9月にかけて山越^{4,5)}が装置周辺の岩石および坑内地下水(1試料)についてU, Th系列核種と ^{40}K などを γ 線スペクトロメトリーで、化学組成を中性子放射化分析で測定した結果が発表されている。しかし、坑内の ^{222}Rn 濃度や水槽の純水中の ^{238}U , ^{226}Ra などについては測定されていない。

本研究は、実験装置の改良後、水槽内外のバックグラウンドの低減化が急務であったころの1986年8月から1987年12月にかけてその低減化の基礎データを提供するために、装置周辺の岩石、坑内空気、坑内地下水ならびに実験に使用している水槽の「純水」中のウラン(U)およびトリウム(Th)同位体、ラジウム(^{226}Ra)、ラドン(^{222}Rn)などの放射能強度と年間変動を調べた。

II 実験方法—放射能測定—

2.1 岩 石

岩石試料については、U, Th同位体および ^{226}Ra と ^{40}K の定量を行った。測定した試料は実験施設建設時に、水槽設置地点中央部より採取(1983年)した岩石(1試料)およびその後実験施設周辺で採取(1986~1987年)した岩石(6試料)である。これらの試料をま

ず粗く粉碎し、ボールミルで均一に粉碎混合後、その一定量($\sim 50\text{ g}$)を取り、油圧プレスで直径 5 cm のディスク状に加工してポリエチレン袋で二重に封入し、 ^{226}Ra と ^{222}Rn 間の放射平衡が成立するよう1カ月保存した後、低バックグラウンドGe(Li)検出器による γ 線スペクトロメトリーによりU, Th系列核種と ^{40}K を定量した。比較標準には、NBL(New Brunswick Laboratory)からのU, Thの標準試料および塩化カリウムを用いた。その後、試料 $1\sim 5\text{ g}$ を用い、 ^{232}U , ^{226}Th を収率補正用のトレーサとして、Fig. 2に示す方法でUとThの放射化学分離と精製を行い、電着後、 α 線スペクトロメトリーによりUおよびTh同位体を定量した。

2.2 地下水および純水

地下水については、U(Th)同位体、 ^{226}Ra , ^{222}Rn と ^3H を、純水についてはU同位体および ^{226}Ra の定量を行った。

地下水($\sim 20\text{ l}$)および水槽内の純水($\sim 40\text{ l}$)を定期的にポリタンクに採取し、実験室に持ち帰った後、5lビーカーに入れ、ホットプレート上でゆっくり蒸発させて、全量 $10\sim 40\text{ l}$ を $300\sim 500\text{ ml}$ まで濃縮した。蒸発濃縮した試料に、 ^{232}U および ^{229}Th - ^{225}Ra を収率補正用トレーサとして添加しFig. 2に示す方法により化学分離、精製、電着を行い、 α 線スペクトロメトリーによりU(Th)同位体および ^{226}Ra を定量した⁶⁾。Fig. 3に地下水試料より分離したU, Th, Raの α 線スペクトルの例を示す。 ^{226}Ra については ^{225}Ra が α 線を放出しないのでその娘核種 ^{225}Ac , ^{221}Fr , ^{217}At の成長(1~2週間)を待ってから測定を行い、他の α 線の妨害のない ^{217}At のピークにより収率を求めた⁶⁾。なお、一部の地下水試料については上記の濃縮試料との比較のため、蒸発濃縮操作を行わないで、試料水 10 l より直接 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ および CaCO_3 沈殿を生成させることによりUとRaを共沈捕集した後、上述の方法でU同位体および ^{226}Ra の定量も試みた。また、用いた試薬やガラス器具からのU, Thおよび ^{226}Ra の汚染や α 線測定の際の検出器のバックグラウンドについても十分検討した。

地下水中の ^{222}Rn および ^3H の測定は低バックグラウンド液体シンチレーションカウンターLSC-LB1を用いて行った。 ^{222}Rn 測定用の試料水は、 500 ml と $1,000\text{ ml}$ の三角フラスコにそれぞれ地下水を満たして採取後ただちに密閉した。これを空気中の ^{222}Rn 濃度の低い坑外に持ち出してから 500 ml と $1,000\text{ ml}$ に正確にメスアップし、それぞれにシンチレーターを含むトルエン 25 ml を加えて、振とうした。この状態で実験室に持ち帰り、トルエン層を 20 ml のガラスバイアルに手早く移し密閉

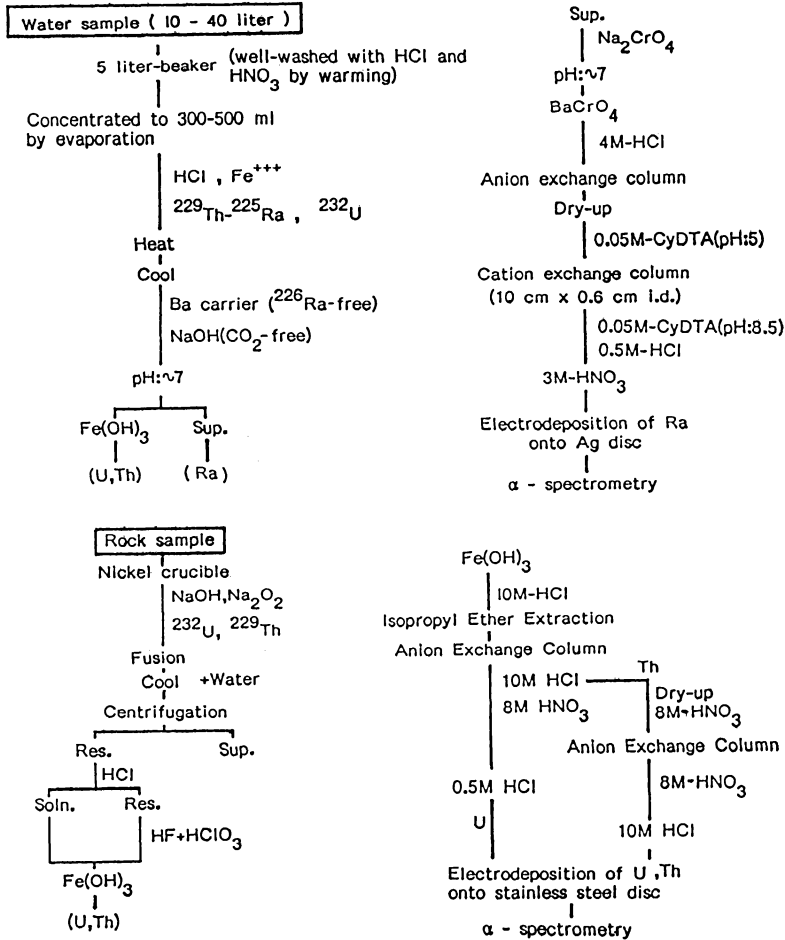


Fig. 2 Flowsheet for the measurements of U and Th isotopes, and ²²⁶Ra in rock and water samples by alpha-ray spectrometry.

の後、測定を行った⁷⁾。

一方、³H の測定は、地下水試料約 100 ml を蒸留し、その 40 ml をとり乳化シンチレーター (Instagel) 60 ml とともに 100 ml のテフロンバイアルに入れ湯浴上で混合、2 日以上冷暗所で保存後、液体シンチレーションカウンターで測定した。

2.3 空 気

空気中の放射能については主として ²²²Rn の測定を行った。ドームおよび坑内の空気中の ²²²Rn 濃度は、活性炭を吸着剤とした、(1)Passive 法⁸⁾ および、(2)冷却トラップ法⁹⁾ で ²²²Rn を捕集し、実験室に持ち帰った後、²²²Rn の娘核種である ²¹⁴Pb および ²¹⁴Bi からの γ線を NaI(Tl) または Ge(Li) 検出器で測定した。Passive 法では、内径 9.3 cm、高さ 5.2 cm のプラスチック容器に活性炭 100 g を充填し、測定現場で 24 時間放置し空気

中の ²²²Rn を捕集した。一方、冷却トラップ法では、内径 7 mm の銅管に活性炭 14 g を充填し、ドライアイスとエタノールの混合冷媒で約 -75°C に保ち、流量 5~7 l/min で 30~60 分間空気を通し活性炭に ²²²Rn を捕集した。比較標準試料としては、同型同大の活性炭入り容器に濃度既知の ²²⁶Ra 溶液を均一に滴下したものを用いた。ラドン除去装置を通した空気中の ²²²Rn の捕集の際には、高濃度の ²²²Rn を含む周りの空気の混入を避けるため、装置を通して精製した空気を大きなビニール袋に充満させながら捕集した。

Fig. 4 に坑内空気とラドン除去装置を通して精製した空気中の ²²²Rn を冷却トラップ法により捕集した試料の γ線スペクトルの例を示す。この方法では、1 m³ の空気を吸引し、12 時間 γ線測定を行う場合 ²²²Rn の検出限界は約 0.1 Bq/m³ である。

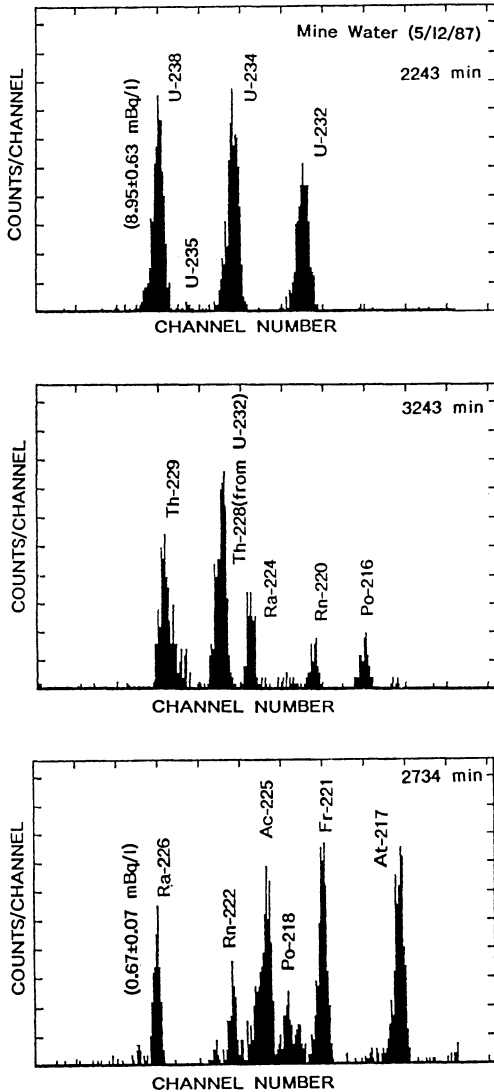


Fig. 3 Examples of alpha-ray spectra of uranium, thorium and radium isotopes separated from mine water.

III 結果と考察

3.1 実験装置周辺の天然放射能

岩石の測定結果について述べる。観測所の位置する神岡鉱山は、数億年前に形成された飛驒変成岩類の分布する地域にあり、スカルン、変成岩、火成岩、堆積岩と大別される数多くの岩石が混在している¹⁰⁾。これらの岩石試料中の U, Th, K 含有量の測定結果を Table 1 に、また U, Th, Ra 同位体の放射能比を Table 2 に示す。表中の試料 No. 1 は緑泥石片麻岩、試料 No. 2 は珪長

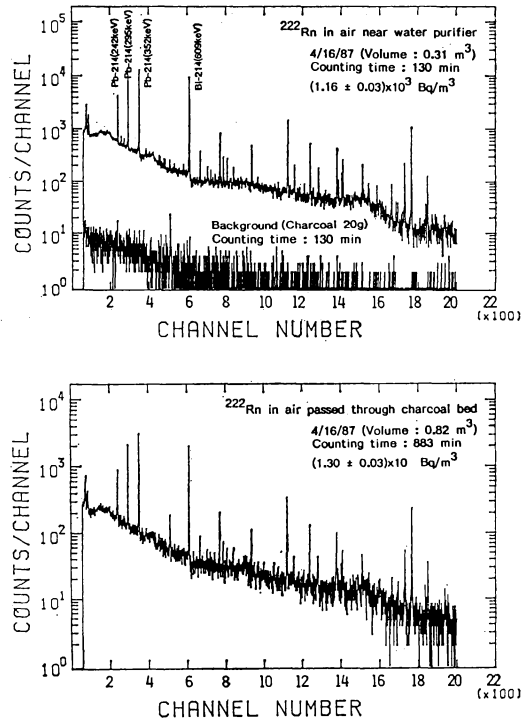


Fig. 4 Examples of gamma-ray spectra for the measurement of ^{222}Rn in air collected by the cold charcoal-trap method.

質片麻岩、試料 No. 3, 5, 6, 7 はすべて伊西岩、試料 No. 4 はスカルンであり、伊西岩がこの地域の代表的な岩石(変成岩)といわれている¹⁰⁾。試料 No. 6 は建設時に水槽設置地点中央部から採取したものである。表からわかるように、U, Th および K 含有量はそれぞれ 0.13 ~ 2.23 ppm, 0.42 ~ 7.73 ppm, 0.04 ~ 3.40% の広い範囲に分布しており岩石の種類によっても、また同じ伊西岩でも採取地点によりかなり濃度が異なっている。一方、U や Th 系列の核種は、測定した ^{226}Ra および ^{228}Th までにはほぼ放射平衡に近い状態にあることが Table 2 からわかる。

測定結果から見ると、周辺岩石中の U や Th 含有量は一般の花崗岩類中のそれ¹¹⁾と比べて $1/2 \sim 1/3$ と低く、これは、山越の測定した結果⁵⁾とも矛盾しない。実験装置の設置場所としては好適な条件にあると思われる。

次にドームや坑内の空気中の ^{222}Rn 濃度の測定結果 (Appendix I) を地下水の ^{222}Rn 濃度の測定結果 (Appendix II) とともに Fig. 5 に示す。Fig. 5 には、タンク内の空気中の ^{222}Rn 濃度の結果もあわせて示してあるが、これについては後述する。

Passive 法による ^{222}Rn 濃度測定結果 (□) は Ap-

Table 1 Concentrations of uranium, thorium and potassium in rock samples near KAMIOKANDE.

Sample	U (ppm)	Th (ppm)	K (%)	Th (ppm) U (ppm)
No. 1 : Chloritized Gneiss	1.89±0.09	4.18±0.10	0.09±0.02	2.21
No. 2 : Felsic Gneiss	0.13±0.01	0.80±0.08	3.40±0.05	6.15
No. 3 : Inishi Rock	0.95±0.07	4.41±0.18	2.52±0.03	4.64
No. 4 : Skarn	0.68±0.05	0.42±0.04	0.04±0.01	0.62
No. 5 : Inishi Rock	2.23±0.09	7.73±0.22	2.21±0.06	3.47
No. 6 : Inishi Rock	0.32±0.02	1.31±0.05	1.15±0.03	4.09
No. 7 : Inishi Rock	0.63±0.04	3.24±0.15	1.63±0.08	5.14
Average	0.98 (0.13-2.23)	3.16 (0.42-7.73)	1.56 (0.04-3.40)	3.22 (0.62-6.15)

Table 2 Activity ratios of $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, $^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$, $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$, $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ and $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ in rock samples near KAMIOKANDE.

Sample	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{230}\text{Th}/^{238}\text{U}$	$^{226}\text{Ra}^*/^{238}\text{U}$	$^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$	$^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$
No. 1 : Chloritized Gneiss	0.92±0.04	0.94±0.05	0.99±0.07	1.00±0.03	1.29±0.06
No. 2 : Felsic Gneiss	1.01±0.06	1.15±0.05	1.13±0.23	1.20±0.07	0.58±0.07
No. 3 : Inishi Rock	0.97±0.05	1.11±0.12	1.45±0.13	0.94±0.05	0.74±0.06
No. 4 : Skarn	0.98±0.05	0.97±0.04	1.00±0.14	1.46±0.06	4.85±0.52
No. 5 : Inishi Rock	0.98±0.04	0.98±0.04	1.26±0.10	1.02±0.04	0.85±0.05
No. 6 : Inishi Rock	1.00±0.05	0.95±0.08	0.96±0.07	0.94±0.05	0.75±0.08
No. 7 : Inishi Rock	0.97±0.05	0.99±0.04	0.97±0.26	1.05±0.06	0.59±0.06

* : ^{226}Ra (γ -ray spectrometry)

pendix I に示した同じ時刻に採取した試料の最高値と最低値の濃度範囲で示した。図からわかるように坑内の空気中の ^{222}Rn 濃度は、坑外の空気中の ^{222}Rn 濃度 $\sim 10 \text{ Bq/m}^3$ と比べて数 $10 \sim$ 数 100 倍高い。地下約 $1,000 \text{ m}$ にあるため坑内の気温は $13 \sim 14^\circ\text{C}$ 、湿度は 90% 以上で年間を通じてほぼ一定に保たれているが、水槽のドーム内の空気中の ^{222}Rn 濃度 (●) は夏季で約 $1,500 \text{ Bq/m}^3$ 、冬季は夏季の $1/7 \sim 1/8$ の約 200 Bq/m^3 まで低下するという大きな季節変動をしている。純水処理装置付近の空気中の ^{222}Rn 濃度 (○) はドーム内よりやや高い傾向にあるものの、同じような季節変動が認められる。

一方、地下水中の ^{222}Rn 濃度 (■) は坑内の空気中の ^{222}Rn 濃度ほど大きな変動はしないが、12月の値 ($7 \sim 8 \text{ Bq/l}$) と比べると4, 5, 6月の値 ($12 \sim 14 \text{ Bq/l}$) は2倍程度高くなっている。坑内地下水中の ^{222}Rn 濃度の季節変化は、地下水の量の変動パターン (2月ごろから徐々に増加し始め5月ごろに最も少なくなる秋季の3~4倍にまで達し、その後徐々に減少する) と類似してい

る。

坑内の空気中の ^{222}Rn 濃度が夏季に高く、冬季に低くなる現象はこれまでにいくつかの洞穴¹²⁾などで観測されており、一般に坑内と坑外の温度差による空気の混合によって起こるものと説明されている。しかし地下水の結果も考え合わせると、上記の要因以外に冬季に降った大量の降雪が春から夏にかけて溶け、これが岩石中へ浸透することによる ^{222}Rn の押し出し効果が加わっているものと考えられる。坑内空気と外気との混合が少ない夏季のドーム内の ^{222}Rn 濃度 $1,500 \text{ Bq/m}^3$ を用いて岩石からの ^{222}Rn の散逸率を試算すると $1 \times 10^{-6} \text{ Bq/cm}^2 \cdot \text{s}$ となる。

地下水中の ^{238}U や ^{226}Ra 濃度は Appendix II に示すように、それぞれ $6.36 \sim 8.95 \text{ mBq/l}$ ($0.52 \sim 0.73 \mu\text{g/l}$)、 $0.57 \sim 0.67 \text{ mBq/l}$ で年間を通じてほぼ一定である。 ^{226}Ra 濃度は ^{238}U 濃度の約 $1/10$ のレベルである。また $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比はほぼ1であり α -recoil 等による ^{234}U の選択的溶出は認められない。なお、Th 同位

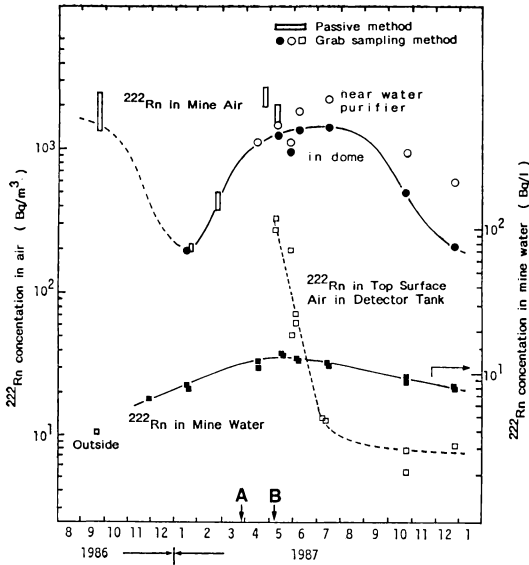


Fig. 5 Variation of ^{222}Rn concentrations in mine air and in top surface air of detector tank, and in mine water. (The symbols A and B show the date of construction of the air-tight ceiling on the top of the detector tank and of the initiation of introduction of the ^{222}Rn -free air into the top surface of detector tank, respectively.)

体の測定も同時に試みたが 20 l 程度の試料水では検出できなかった。 ^{232}Th 濃度については、山越⁵⁾は 39.1 l の地下水を蒸発乾固させた粉末試料 (2.7 g) を鋸山施設の極低レベル半導体検出器で 15,000 分にわたって測定を行い、約 0.04 mBq/l (約 0.01 $\mu\text{g}/\text{l}$) であると評価している。この試料中の ^{40}K 濃度も同時に評価されており、その値は 4.4 Bq/l (K としては 143 mg/l) である。 ^3H の濃度は 2.3 Bq/l であり最近の降水の値 $\sim 1 \text{ Bq}/\text{l}$ ¹³⁾ と比べて 2 倍程度高くなっており、この地下水は 1960 年代初めの大気圏核実験に由来する高濃度の ^3H を含む水の影響をかなり受けていることが示唆される。

3.2 水槽内の純水および水槽内空気の放射能

水槽内の純水については、 ^{238}U (^{234}U) と ^{214}Bi および ^{222}Rn の親核種である ^{226}Ra の測定を行った。Fig. 6 に測定結果を示す。個々の値は Appendix II に示してある。純水中の ^{238}U および ^{226}Ra 濃度は Fig. 6 に示すようにキレート樹脂 (1986 年 3 月) およびイオン交換樹脂装置導入 (1986 年 9 月) などの精製対策の効果により時間の経過とともに漸減している。1987 年 4 月 16 日現在の純水中の ^{238}U 濃度は周辺地下水の約 1/1,000,

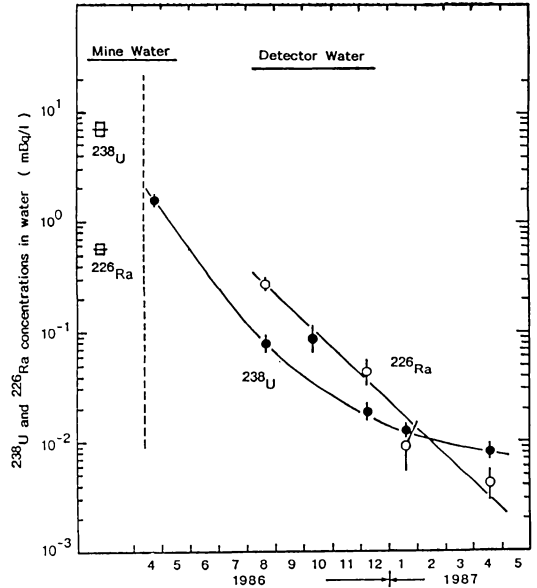


Fig. 6 Decrease of the ^{238}U and ^{226}Ra concentrations in the high purity water as a Cherenkov detector.

^{226}Ra は約 1/100 のレベルに低減されている。なお、地下水と同様にトルエン抽出による ^{222}Rn の測定も試みたが検出限界 ($\sim 37 \text{ mBq}/\text{l}$) 以下であった。

純水中の ^{238}U や ^{226}Ra に加えて、バックグラウンドの要因として、水槽内の空気中の ^{222}Rn (あるいはその娘核種の ^{214}Bi) の純水への溶解も考慮すべきである。当初水槽上部はビニールテントで簡単にシールしてあったが、水槽内空気中の ^{222}Rn に起因するバックグラウンドを減少させる目的で 1987 年 3 月に鉄製の蓋をし、5 月からラドン除去装置を通した空気を水槽上部に流し続けている。ラドン除去装置を通して精製した空気中の ^{222}Rn 濃度は Appendix I (T_1 , T_2) に示すように $10 \sim 15 \text{ Bq}/\text{m}^3$ (外気と同レベル) とほぼ一定しており夏季の坑内空気中の値の 1/100 \sim 1/200 のレベルである。

Fig. 5 に水槽上部の空気中の ^{222}Rn 濃度の測定結果 (□) を坑内や地下水の ^{222}Rn 濃度と比較して示してあるが、水槽上部空気中の ^{222}Rn 濃度は 1987 年 7 月ごろまでは指数関数的に減少し、その後約 $7 \text{ Bq}/\text{m}^3$ のレベルに落ち着いている。ラドン除去装置に用いる活性炭は空気流量 $1 \sim 2 \text{ m}^3/\text{h}$ の場合半年間以上使用できることがわかった。

IV 結 語

神岡の KAMIOKANDE-II による陽子崩壊ならびに天

体・宇宙ニュートリノの測定に関して、水槽内外を問わず天然放射能によるバックグラウンドの低減化が急務であったころの1986年8月から1987年12月にかけて装置周辺環境および水槽の純水中などに含まれる天然放射能(^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{222}Rn)を測定した。その結果、検出器としての純水については、キレート樹脂やイオン交換樹脂装置の導入によって、 ^{238}U および ^{226}Ra が坑内地下水の1/1,000 および1/100のレベルまでそれぞれ減少していることを確認した。装置周辺の天然放射能については、それらのレベルや坑内空気中の ^{222}Rn 濃度の年間変動を明らかにし、これらの結果は水槽上面の密閉、ラドン除去装置で精製した低ラドン濃度の空気の水槽内への導入に際して、有効な基礎データとなった。

当初から、この種の大型水チェレンコフ検出器の建設、運営には、放射化学的手法によるバックグラウンド低減対策とその配慮が必要と考えてきたわれわれの測定結果が、今後の計画にも反映されれば幸いである。

最後に、地下水中の ^{222}Rn 測定で多大なご協力をいただいた福井県衛生研究所 五十嵐修一氏、空気中のPassive法による ^{222}Rn 測定でご協力いただいた中国核工業部放射防護研究所からの留学生 馬吉増氏、本文を草するにあたっていくつかの出版物を送ってくださった東京大学宇宙線研究所 山越和雄氏、試料採取に際してご協力いただいた東京大学宇宙線研究所 須田英博氏（現在、神戸大学理学部）の諸氏を始めとする関係各位に深く感謝の意を表します。なお、本研究の一部は昭和62年度東京大学宇宙線研究所 ミュー・ニュー部の共同利用研究費の補助を受けて行ったものである。

参 考 文 献

- 1) 鈴木厚人, 戸塚洋二; 科学朝日, 8月号, 88 (1987).
- 2) A. SUZUKI, *et al.*; 放射線, 15(1), 58 (1988).
- 8) 山越和雄; Tracer, 名古屋大学アイソトープ総合センター, 2 (1985).
- 4) 山越和雄; ミューニュー・グループ・サブシンポジウム報告書, ICR 報告; 48-85-2, 東京大学宇宙線研究所, 48 (1985).
- 5) 山越和雄; 一次線部共同研究, 共同利用研究成果報告書 (1983~1987), ICR-報告-67-88-1, 東京大学宇宙線研究所, 142 (1988).
- 6) M. YAMAMOTO, K. KOMURA and K. UENO; *Radiochim. Acta*, 46, 137 (1989).
- 7) 堀内公子, 村上悠紀雄; 温泉科学, 28(2), 39 (1977).
- 8) 金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設年次報告, LLRA-AR-9, 8 (1985); LLRL-AR-10, 6 (1986).
- 9) 下 道国, 池辺幸正, 前田 淳, 上村力也, 林 叶, 石黒 明; 日本原子力学会誌, 25, 562(1983).
- 10) 三井金属神岡鉱業所鉱石資料館解説書 (神岡青年会議所製作).
- 11) Y. MIYAKE, Y. SUGIMURA and Y. HIRAO; *The Natural Radiation Environment-II*, II, 535 (1975).
- 12) M.H. WILKENING and D.E. WATKINS; *Health Phys.*, 31, 139 (1976).
- 13) 金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設年次報告, LLRL-AR-8, 11 (1984); LLRL-AR-13, 13 (1989).

Appendix I Concentrations of ^{222}Rn in air samples near KAMIOKANDE (Bq/m^3).

Location	Sampling date					
	9/24-25/86	1/21-22/87	2/25-26/87	4/21-22/87	5/12/87	5/28/87
A	1.69×10^3 1.86×10^3	1.9×10^2 $(1.8 \pm 0.2) \times 10^{2**}$	3.7×10^2	1.96×10^3	1.68×10^3	
B	1.38×10^3 1.34×10^3	2.1×10^2 2.1×10^2 $(2.0 \pm 0.2) \times 10^2$	4.2×10^2 4.2×10^2	2.06×10^3	1.60×10^3 $(1.25 \pm 0.04) \times 10^3$	$(9.26 \pm 0.46) \times 10^2$
C	1.67×10^3 1.67×10^3					
D	1.44×10^3 1.64×10^3	2.1×10^2			1.36×10^3	
E	2.46×10^3 2.31×10^3		4.7×10^2 4.9×10^2	2.72×10^3 $(1.16 \pm 0.03) \times 10^{3*}$	2.28×10^3	$(1.07 \pm 0.05) \times 10^3$
F	2.16×10^3					
G	1.04×10^1					
H ₁				$(3.27 \pm 0.10) \times 10^2$	$(4.88 \pm 0.02) \times 10^1$	
H ₂				$(2.75 \pm 0.08) \times 10^2$	$(1.99 \pm 0.10) \times 10^2$	
T ₁			$(1.30 \pm 0.03) \times 10^{1*}$		$(1.07 \pm 0.05) \times 10^1$	
T ₂						

Location	Sampling date			
	6/5/87	7/13/87	10/27/87	12/25/87
A				
B	$(1.42 \pm 0.03) \times 10^3$	$(1.36 \pm 0.02) \times 10^3$	$(5.25 \pm 0.26) \times 10^2$	$(2.06 \pm 0.11) \times 10^2$
C				
D				
E	$(1.84 \pm 0.04) \times 10^3$	$(2.29 \pm 0.05) \times 10^3$	$(9.26 \pm 0.28) \times 10^2$	$(5.79 \pm 0.26) \times 10^2$
F				
G				
H ₁	$(7.52 \pm 0.53) \times 10^1$	$(1.26 \pm 0.13) \times 10^1$	$(0.51 \pm 0.08) \times 10^1$	$(0.86 \pm 0.07) \times 10^1$
H ₂	$(6.00 \pm 0.38) \times 10^1$	$(1.27 \pm 0.12) \times 10^1$	$(0.76 \pm 0.10) \times 10^1$	
T ₁			$(1.03 \pm 0.04) \times 10^1$	$(0.75 \pm 0.06) \times 10^1$
T ₂	$(1.52 \pm 0.05) \times 10^1$	$(1.32 \pm 0.13) \times 10^1$		

^{222}Rn was measured within one day after sampling, and all data were decay-corrected to the sampling date.

* : Passive method, ** : Grab sampling method, † : 4/16/87.

A~E : Mine air of the sampling points shown in Fig. 1.

F : Mine air of the gallery of about 20 m short of water purifier.

G : Outside air.

H₁, H₂ : Top surface air in the detector tank shown in Fig. 1.

T₁, T₂ : Purified air (^{222}Rn -free air) by flowing mine air through charcoal bed.

Appendix II Concentrations of radionuclides in mine water and high purity water as a Cherenkov detector (mBq/l).

Radionuclide	Sampling date						
	4/20/86	8/07/86	8/23/86	10/14/86	12/10/86	12/19/86	1/21/87
Mine water							
²³⁸ U		6.36±0.44		7.88±0.67			6.81±0.33
(²³⁴ U/ ²³⁸ U)		1.07±0.11		1.13±0.13			1.04±0.07
(²³⁵ U/ ²³⁸ U)				0.043±0.011			0.047±0.007
²²⁶ Ra		0.60±0.08					0.57±0.09
²²² Rn						(7.07±0.44)×10 ³	(8.25±0.48)×10 ³ (7.81±0.48)×10 ³
³ H		(2.27±0.20)×10 ³					
Detector water							
²³⁸ U	1.63±0.48		(7.81±1.33)×10 ⁻²	(8.47±1.10)×10 ⁻²	(1.91±0.35)×10 ⁻²		(1.34±0.29)×10 ⁻²
(²³⁴ U/ ²³⁸ U)				1.05±0.19			1.06±0.32
²²⁶ Ra			0.28±0.04		(4.42±1.53)×10 ⁻²		(9.64±3.21)×10 ⁻³
Radionuclide	Sampling date						
	4/16/87	5/12/87	6/05/87	7/13/87	10/27/87	12/25/87	
Mine water							
²³⁸ U	8.47±0.33	8.95±0.63		7.81±0.26	8.51±0.25		
(²³⁴ U/ ²³⁸ U)	1.02±0.03	1.14±0.05		0.99±0.03	1.05±0.04		
(²³⁵ U/ ²³⁸ U)		0.047±0.006		0.048±0.005			
²²⁶ Ra	0.52±0.10	0.67±0.07		0.60±0.09	0.60±0.10		
²²² Rn	(11.1±0.6)×10 ³ (12.1±0.5)×10 ³	(13.4±0.7)×10 ³ (13.9±0.8)×10 ³	(12.1±0.7)×10 ³ (12.5±0.8)×10 ³	(10.8±0.6)×10 ³ (11.4±0.6)×10 ³	(8.66±0.48)×10 ³ (9.10±0.52)×10 ³	(7.92±0.44)×10 ³ (8.03±0.37)×10 ³	
³ H							
Detector water							
²³⁸ U	(9.03±1.41)×10 ⁻³						
(²³⁴ U/ ²³⁸ U)	0.93±0.20						
²²⁶ Ra	(4.18±1.41)×10 ⁻³						

U isotopes, ²²⁶Ra and ³H were measured within one week after sampling. ²²²Rn was measured within one day after sampling, and all data were decay-corrected to the sampling date.