ビキニの灰(1954年3月1日)の放射化学的研究〔その1〕

塩川孝信・尾崎徳郎・神原富尙・八木益男・松岡喜保・高橋絢子**

Radiochemical Studies on "Bikini Ashes" (March 1, 1954). Part I.

TAKANOBU SHIOKAWA, TOKURO OZAKI, TOMIHISA KANBARA,
MASUO YAGI, YOSHIYASU MATSUOKA and AYAKO TAKAHASHI

Many damages were caused by the ash fallen on board No. 5 Fukuryu Maru, a fishing boat which was happened to be on water near Bikini area on March 1, 1954. This investigation was started, as an only research institute in the nearest area, for establishing the method of medical treatment of suffering men who were on board, for disposal of radioactively contaminated materials in order to minimize the damage and for preparation of handling of radioactive materials which may happen in future.

1. Total radioactivity of the ash.

The result of test on a small amount of ash brought back by the crew indicated that the state of decaying was as follows:

- (1). $I = ct^{-1.81}$ where, I = Intensity of radioactivity
 (2). $I = ct^{-2.71}$ c = Constant for each case
 (3). $I = ct^{-1.68}$ t = Time (elapsed)
 (4). $I = ct^{-1.66}$

(1) is untreated ash, (2) is a soluble portion from 10 mg. ash in 100 ml water for 24 hours, (3) is an insoluble portion of the (2), and (4) is the result of estimation of γ -ray on the board. The radioactivity of ash, from the estimation of G. M. Tube having a mica window with thickness of 1.7 mg/cm² at distance 0, was 2.89×10^8 c/m/mg, 110 days after March 1.

2. Radiochemical analysis of the ash.

The ash was composed of a white powder of irregular size, with the largest size 20-30 mesh, and composed mainly of thermo-metamorphic calcium carbonate. The radioactive nuclides adhered to it are separated with the use of carrier or collector by precipitation, extraction or distillation method, the other method is to separate without carrier by use of ion exchange resin. The result indicated the presence of following nuclides, and the estimation of the radioactive intensity gave an approximate ratio of them; 16 elements and 23 nuclides were found, in which Ca⁴⁵ was thought to be an induced radio-activity and the amount of Sr, Ag, Ru and Sb indicated that the sample is considered to be contained Pu²³⁹ fission products.

(1). Nuclides separated and confirmed by use of carrier or collector.

Nuclide	Half-life	Amt. of detection (cpm)	Date of sepn.	Nuclide	Half-life	Amt. of detection (cpm)	Date of sepn.
Sr ⁸⁹	53 days	6,000/80x10 ⁴	4/24	Sb ¹²⁷	93 hr.	200/190x10 ⁴	4/20
Zr ⁹⁵	65 days	280/80x10 ⁴	5/7	Te ¹²⁷	9.3 hr.	2,300/180x10 ⁴	4/16
Nb ⁹⁵	35 days	—	—	Te ¹³²	77 hr.	—	—
Ag ¹¹¹	7.6 days	200/200x10 ⁴	4/14	I ¹³²	2.4 hr.	2,500/180x10 ⁴	4/16
Ru ¹⁰⁸	42 days	2,300/25x10 ⁴	5/26	I ¹³¹	8 days	—	—
Ru ¹⁰⁶	1 yr.	—	—	Ba ¹⁴⁰	12.8 "	2,000/30x10 ⁴	4/15
Rh ¹⁰⁶	30 sec.	—	—	La ¹⁴⁰	40 hr.	—	—
Sb ¹²⁵	2.7 yr.	230/200x10 ⁴	5/19	Ca ⁴⁵	180 days	200/200x10 ⁴	4/25

(2). Result of separation by use of Amberlite IR-120 (Separated on April 30, 1945)

Anions : approximately 16%, Rare earths : approx. 74%
 Zr, Nb etc. : approx. 1.3%, Ba, Sr, Ca etc. : approx. 1.7%, and others

(3). Nuclides isolated and confirmed by use of ion exchange resin

Nuclide	Half-life	An approximate detection of radio activity (%)	Date of separation
Y ⁹¹	57 days	52	May 6
Ce ¹⁴¹	30 days	40	May 6
Ce ¹⁴¹	275 days	—	May 6
Pr ¹⁴³	13.8 days	4	May 6
Pr ¹⁴⁴	17.5 min.	—	May 6
Nd ¹⁴⁷	11 days	4	May 6

(Received June 20, 1954)

I 緒 言

1954年3月1日、ビキニ海域に出漁中の魚船第五福竜丸の船上に降った灰が、原子爆発によって生成した放射性物質であったがため、その乗組員には帰港中既に傷害が現れ、水揚げの際同放射性物質によって汚染した魚は全国に出荷されて多くの問題を引起した。

被災乗組員に対する医療対策を確立する上に、或は更に広範囲の放射能害を防止するための同放射性物質の処理上、その成分の分析が火急の事となった。又将来かような放射性物質の取扱いが我が国でも重要視されるであろうことを予想し、船体から採取した試料及び乗組員が持ち帰った少量の灰を試料として本研究を始めた。

既に米国等においてなされているこれに関する多くの研究¹⁾を参考として、許された実験条件の下で行い得る手段を検討し、同放射性灰の混合放射能を明かにすると共にその中に含まれている放射性 Nuclide の分析を行った。

短期間であるため完全な定量分析を行うことは出来なかったが、定量分析方法として採用し得るような方法を出来る限り用いて、大約の存在比を知った。即ち、Carrier 或は Collector を用いて沈澱法、抽出法或は蒸溜法によって、又は Carrier 等を用いずイオン交換樹脂法によって化学的分離を行い、出来る限り純粋に得られた単一な元素について夫々、放射線のエネルギー測定及びその半減期を測定して各 Nuclide を確認した。比較的に多量の試料を用いて微量 Nuclide の検出を主として行った。その結果一応検出されたが不確実なものはすべて除き、16 元素、23 Nuclide を確認した。

II 実験結果

1. 一般的事項

試料の処理、測定試料の調製及び放射能測定は特に附記するものの他は次のようにして行った。

化学的分離 難溶性沈澱の分離及び沈澱は遠心分離機を用いて行った。放射能測定用の沈澱はβ線測定用沈澱濾過器を用いて直径約 2 cm の濾紙上に濾別した。

放射能測定試料の調製 沈澱は前記濾過器を用いて濾別して、濾紙と共に測定用試料皿の底に平に置き、赤外線ランプで乾燥した上、ポリビニルアセテートのアセトン溶液を落して、皮膜を一樣に形成させ測定試料とした。

溶液はその一定分量を試料皿にとり、底一ぱいの大きさに円形に切った薄い和紙を入れ、同様に乾燥し、皮膜を形成させて測定試料とした。

放射能測定 測定はすべて神戸工業KK製 100 進法測定器によって、G. M. 管は端窓型、膜厚 1.7mg/cm² のものを用い、距離は1~5 cm において夫々測定した。低カウン트의試料にあっても誤差を小にするために測定総カウンートを最低 2,000 とした。

放射線のエネルギー測定は科研製吸収板セットにより、種々な面積密度の吸収板を通過した放射線を同様測定し、得られた見かけの吸収範囲は一般に低値を与えるので、Feather Analysis により補正し Feather Range (F. R.) を求め文献値と比較した。Feather Analysis の標準としては RaE を使用することが出来なかったため、今回

の実験により最も純粋に化学的に分離され、又単一のβ線のみを有する Sr89, Y91 及び Pr144 をえらんで、その平均値をとって Feather Analyser を作成し、それによって Feather Analysis を行い、満足すべき結果が得られた。

2. 灰の放射能

乗組員の持ち帰った少量の灰から、次の3つの場合の測定試料を調製して、その減衰を3月17日以降、G. M. 管との距離は 3~5 cm の夫々一定距離でβ+γ線を測定した。

- 1) 灰そのまま。極少量の灰を測定試料に調製した。
- 2) 可溶性部分。灰約 10 mg を水 30 ml に 24 時間浸し、得られた溶液の 1 ml を測定試料に調製した。
- 3) 不溶性部分。前記処理による不溶性残渣を 3 N 塩酸 30 ml に完全に溶解させ、その 1 ml を測定試料に調製した。

6月19日迄の測定結果は両軸が対数目盛のグラフにより放射能の強さと経過日数とはすべての場合、よく直線的関係が認められた。それらの直線関係を式で表すと次のような値が得られた。

- 1) 灰そのまま $I = ct^{-1.81}$ 但し、 I_0 は放射能の強さ
- 2) 可溶性部分 $I = ct^{-2.71}$ c は夫々定数
- 3) 不溶性部分 $I = ct^{-1.68}$ t は経過日数

一方科研山崎博士に協力して4月16日以降、第五福竜丸の船上のγ線をローリッツェン検電器で測定してきた結果、魚具置場屋根上の結果を同様に表すと次の通りである。

$$I = ct^{-1.66}$$

これは不溶性部分のそれとほぼ一致する。可溶性部分は少量で、しかもその減衰が極めて著しい事実は、可溶性の放射性物質を予想させるのに役立つものと考えられる。

これらの減衰の様子は、既に明かにされている²⁾ ウラニウム 235 核分裂生成物の場合の $I = ct^{-1.2}$ に比しいづれも減衰は甚しいことが明かになった。

かような割合で減衰してきている灰の放射能の強さはその 12.6 及び 9.7 mg を正確に秤り取って測定してきた試料について6月18日(3月1日より110日後)種々の距離で測定し距離 0 mm 当りに換算した平均値は 2.89 × 10⁸ c/m/mg であった。

3. 灰の放射化学分析

灰は純白色のさらさらした比較的軽い、大きさは不揃いで、大きなものは 20~30 メッシュ程度の粉末である。その化学的組成の大略は比較的簡単な試験で容易に見分けられ、さんご礁の破片と考えられる炭酸カルシウムとそれが高熱等によって変化したものであると認められた。それは稀塩酸或は稀硝酸に少量の炭酸ガスを発生して完全に溶解した。それ故灰が附着していると認められる布片及び甲板上の放射性物質を含む塵を湿った濾紙で拭い取って持ち帰り、それらを 2 N 硝酸或は 2 N 塩酸の少量で処理し、細密濾紙で濾別して分析用試料溶液とした。

核分裂生成物及び誘導放射能として当時存在が予想された数十種の元素の内、半減期が中等程度から比較的短いもので、見出し得る可能性のあるもの及び多量の試料

* 静岡県大岩町 2 丁目 ** 静岡県立工業試験場

をとれば確認し得る見込の微量元素を目標とした。それらは純粋に単一な元素として分離されて、適当な放射能測定型とされ、それらについて放射線のエネルギー及び半減期の測定がなされなければ、同一元素の場合によっては多数の放射性 Nuclide を詳細に確認することは出来ない。

更に定量的に分析を行うためには操作の化学的収率を明かに出来るものでなければならない。それ故著者等は各種核分裂生成物の定量法として検討されて居る種々の方法、及びイオン交換樹脂使用の分離方法を採用した。しかし大略の存在量を判定するにとどめ、精密定量のための特殊操作、及び既に消失して居ると考えられた元素に対する操作は省略し、短期間内に出来るだけ多くの Nuclide を確認しようとつとめた。

(1)' Carrier 或は Collector を用いて分離確認⁹

特に純化剤 (Scavenger) として Fe^{+++} を多くの場合に添加し、他の放射性元素を $\text{Fe}(\text{OH})_3$ の沈澱と共に除くことを行い、極めて有効であった。次に確認に至るまでの分離操作及び放射能測定の結果の要点を記す。

(i) Sr89 (53 日)

HNO_3 試料溶液 20 ml (80 万 cpm), Sr^{++} , Ba^{++} 各 20 mg 添加, 発煙硝酸 25 ml, Sr , $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ 沈澱分離, 水 20 ml 溶解, Fe^{+++} 5 mg (scavenger), $6N\text{NH}_4\text{OH}$ 2 ml, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 除去, 溶液 HNO_3 で中和, $6N\text{HAc}$ 1 ml, $6a$ 沈 $M\text{NH}_4\text{Ac}$ 2 ml, 煮沸, $1.5M\text{Na}_2\text{CrO}_4$ 1 ml 添加, B 澱除去, NH_4OH 2 ml, 飽和 $(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ 5 ml, $\text{SrC}_2\text{O}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 沈澱, 洗滌, 乾燥, 測定 (6,000 cpm). 極めて純粋に分離され, 見かけの Al 吸収 Range は 690 mg/cm^2 , Feather Analysis による F.R. は 710 mg/cm^2 , それより 1.5 MeV. 及び半減期は 53 日で文献値⁴⁾ とよ

第 1 図 Al 吸収 Range (Ag 111).

く一致した。Sr90 未確認。

(ii) Zr95 (65 日), Nb95 (35 日)

HNO_3 試料溶液 20 ml, Zr^{++++} 20 mg 添加, HF 2 ml, LaF_3 除去, 繰返し, Ba^{++} 50 mg 添加, BaZrF_6 沈澱分離, H_3BO_3 , HNO_3 に溶解, クベロンにて Zr 沈澱, 灰化, ZrO_2 , 測定. Ba 少量汚染, それより F.R. 390 mg/cm^2 , 0.9 MeV (2%), 100 mg/cm^2 0.36 MeV (98%) の β 線を認め, 半減期もよく文献値と一致した。更に 0.16 MeV の β 線を認め, 娘の Nb 95 を検出した。

(iii) Ag111 (7.6 日)

HNO_3 試料溶液 30 ml (200 万 cpm), Ag^{+} 20 mg, $6N\text{HCl}$, AgCl 分離, $3M\text{NH}_4\text{OH}$ 4 ml 溶解, Fe^{+++} 5 mg 添加, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 除去, H_2S , Ag_2S 分離, 温 $6N\text{HNO}_3$ 溶解 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 除去繰返し. $6N\text{HCl}$ 5 滴, HNO_3 2 ml, AgCl 沈澱, 分離, 乾燥, 測定 (200 cpm). 本操作の化学的収率は約 75% であり, ほとんど汚染は認められなかった。Al 吸収範囲及び半減期測定の結果を第 1 図及び第 2 図に示す。

第 1 図に示す通り, 見かけの Range は夫々 $300, 40 \text{ mg/cm}^2$, F.R. として夫々 $410, 40 \text{ mg/cm}^2$ 即ち 1.0 MeV と 0.2 MeV の β 線を認め, 従来の文献値 1.0 MeV, 0.2 MeV と全く一致する。しかし S. Johansson⁹⁾ によれば 1.04 MeV (91%), 0.8 MeV (1%) 及び 0.7 MeV (8%) と云われる。半減期は第 2 図に示す通り, 7.7 日で文献値 7.6 日によく一致する。

(iv) Ru103 (42 日), Ru106 (1 年), Rh106 (30 秒).

HNO_3 試料溶液 5 ml (25 万 cpm), 5% KMnO_4 10 ml, H_2SO_4 25 ml, 蒸溜 (H_2SO_4 白煙まで) 溜分を $\text{Fe}(\text{OH})_3$ の懸濁液中に導く, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 分離, 洗滌, 乾燥, 測定, (2,300 cpm). $\text{Fe}(\text{OH})_3$ を Ru の Collector と

○: 測定点 △: 測定曲線とその外挿曲線との差

第2図 半減期 (Ag111)

○ : 測定点 △ : Hard γ Back ground と ○ の差
 □ : Weak γ . B. G. と △ との差 ⊗ : □ と □ 外挿曲線との差
 第3図 Al 吸収範囲 (Sb125)

して使用し極めて有効であった。汚染は全く認められず、Al 吸収範囲測定結果、半減期測定結果はいずれも夫々文献値とよく一致し、Ru103、及びRu106の娘としてRh 106を検出し、併せてRu106を確認した。

(v) Sb125 (2.7年)

HNO₃ 試料溶液 70 ml (200 万 cpm), HCl, Fe⁺⁺ 20 mg, Sb⁺⁺⁺ 10 mg 添加, 9 N HCl 酸性で isopropyl ether 50 ml 3 回抽出, 抽出液を 8 N HCl 50 ml で洗滌 3 回, 水 30 ml 添加水溶液分離, Sb⁺⁺⁺ 10 mg 添加, NH₄OH 中和, H₂S, Sb₂S₃ 分離, HCl 溶解 NaOH アルカリ性, Fe⁺⁺ 10 mg, Fe(OH)₃ 除去, HCl 弱酸性, H₂S Sb₂S₃ 分離, 洗滌, 乾燥, 測定 (230 cpm). 化学的収率は悪く約 30 %, しかし汚染は全く認められなかった。又 5 月 19 日本操作の分離においては Sb 127 (93 時) は全く認め

られず Sb 125 のみであった。その吸収範囲を第 3 図に示す。

第 3 図に示すように見かけの Range 夫々 210, 70 mg/cm², F. R. 夫々 250, 70 mg/cm² エネルギーはそれより夫々 0.7, 0.3 MeV. 弱い γ 線の半値厚として 400 mg/cm² より 0.02 MeV を認め文献値とよく一致した。軟 γ 線については A. R. Brosi 等⁹⁾ によれば Te125m の 0.035 MeV, 0.11 MeV が認められているが明かでない。半減期は 6 月 19 日現在, 文献値 2.7 年とよく平行を示し, 一致するものと認められる。

(vi) Sb127 (93 時)

HNO₃ 試料溶液 50 ml (190 万 cpm). 発煙硝酸 25 ml, KClO₃, Sb⁺⁺⁺ 20 mg 添加, Sb₂O₅ 沈澱分離. HCl 30 ml, H₂SO₄ 10 ml 添加. 加熱 Te⁺⁺⁺⁺ 10 mg, CuCl 2 g,

蒸溜 (135~155°C), 溜出液, NH_4OH 中和 (弱酸性), H_2S , Sb_2S_3 沈澱, 分離, 洗滌, 測定 (200 cpm). Sb^{+++} 20 mg Carrier 使用此の操作によつては Sb^{127} が分離されると云う文献⁷⁾ とよく一致し, Sb^{125} はほとんど認められなかった. 汚染は多少あったが識別容易であり, Al 吸収範囲 F, R. 及び半減期は文献値とよく一致した.

(vii) Te^{127} (9.3 時), Te^{132} (77 時), I^{132} (2.4 時).

HNO_3 試料溶液 30 ml (180 万 cpm), Te^{++++} 10 mg 添加, 加熱, SO_2 , Te 分離, 6 NHNO_3 5 ml 溶解, 乾涸, 6 NHCl 3 滴, 水 10 ml, 6 NNH_4OH 中和, 溶解, Fe^{+++} 3 mg, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 除去, 溶液加熱, 6 NHCl 酸性 SO_2 , Te 分離, 洗滌, 乾燥, 測定 (2,300 cpm). Se Nuclide に対する操作は行わなかったが支障なかった. Al 吸収範囲 F, R. 及び半減期測定の結果はいずれも, Te^{127} , Te^{132} の文献値と夫々よく一致し, Te^{132} の娘として I^{132} を同一測定試料から見出すことが出来た.

(viii) I^{131} (8 日)

HNO_3 溶液 10 ml (50 万 cpm), I^{20} mg 添加, CCl_4 15 ml, 0.1 N NaNO_2 5 滴添加, 酸化抽出, 水溶液層抽出繰返し CCl_4 合す. 水 10 ml, 0.1 N NaHSO_3 添加還元, 水溶液, 酸化抽出, 還元溶出を二回繰返す. 水溶液, Ag^+ 25 mg 添加, AgI 沈澱, 洗滌, 乾燥, 測定 (2,000 cpm). 化学的収率よく汚染もほとんど認められず又, 操作を短時間に行うことが出来た. Al 吸収範囲測定の際,

R. 及び半減期測定の結果はいずれも I^{131} の文献値と夫々よく一致した. 又 3 月 24 日の実験により I^{132} を認めた.

(ix) Ba^{140} (12.8 日), La^{140} (40 時)

HNO_3 溶液 10 ml (30 万 cpm), Ba^{++} 20 mg 添加 HCl -Ether (5:1). 30 ml 添加, 冷却, $\text{BaCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 沈澱, 分離, 水 5 ml 溶解, Fe^{+++} 2 mg, NH_4OH 添加 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 除去, HCl -Ether 添加, 結晶析出繰返す. $\text{BaCl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 分離, アルコール (40 %) 洗滌, 乾燥, 測定, (2,000 cpm). 汚染はほとんど認められなかった. Al 吸収範囲の測定結果及び半減期の測定結果を夫々第 4 図及び第 5 図に示す.

特に第 4 図について他の Nuclide の場合にも行つてきた曲線解析の方法を記すと,

曲線 A : 分離後 1 時間, Al の厚い方より測定した結果.

曲線 B : 同一試料 5 日後の測定結果.

曲線 C : B と γ Back ground との差.

曲線 D : C の外挿曲線.

曲線 E : C と D の差.

曲線 F : E の外挿曲線.

曲線 G : E と F の差

これらについて Feather Analysis を行つた. F. R. の値及びそれより求められるエネルギーを文献値と比較すると第 1 表の如くである.

第 4 図 Al 吸収範囲 (Ba^{140} , La^{140}).

半減期については第5図に示すように、分離後1時間で測定を開始し、La140の出現により約8日以後Ba140の半減期を示し12.6日となり文献値の12.8日とよく一致した。

(x) Ca45 (180日)¹⁰

HNO₃ 試料溶液 50 ml (200万cpm), Ca⁺⁺, Bi⁺⁺ 20 mg, Fe⁺⁺⁺, La⁺⁺⁺ 10 mg 添加, 加熱 H₂S, Bi₂S₃ 除去,

繰返し, H₂S 追出し, Y⁺⁺⁺10mg, NH₄OH 添加, Fe, Y, La の水酸化物除去, 再び各 Carrier を加え繰返し, 溶液濃縮 (5 ml). Ba⁺⁺, Sr⁺⁺10mg, 発煙 HNO₃ 30 ml 添加 Ba, Sr (NO₃)₂ 除去三回繰返す. 更に Sr について二回繰返し, 溶液濃縮, 沈澱除去, NH₄OH 弱アルカリ性, 飽和 (NH₄)₂C₂O₄ 添加, CaC₂O₄ 分離, HNO₃ 5 ml, KClO₃ 分解, NH₄OH, Fe⁺⁺⁺10mg, Fe(OH)₃ 除

第5図 半減期 (Ba140, La140)

第1表 Al 吸収範囲 (Ba140, La140)

第4図曲線	見かけの Range (mg/cm ²)	Feather Range (mg/cm ²)	エネルギー (MeV)	Nuclide	文献値 (MeV)
C	730	820	1.8	La ¹⁴⁰	1.8*
E	360	415	1.0	Ba ¹⁴⁰	1.0(75%)**
F	105	110	0.4	Ba ¹⁴⁰	0.4(25%)**

* Ballon, Rubinson & Glendenin (1944)⁸.

** Engerkemire, Freedman, Glendenin & Metcalf (1944)⁹

第2表 Carrier 或は Collector を用い分離確認した Nuclide

Nuclide	半減期	大約検出量* 測定試料**/原試料 (cpm)	分離日附 (月一日)	核分裂収率 U ²³⁵ (%)	Pu ²³⁹	備考
Sr ⁸⁹	53日	6,000/80 × 10 ⁴	4.24	4.6	1.8	Sr ⁺⁺ : Carrier
Zr ⁹⁵	65日	280/80 × 10 ⁴	5.7	6.0	5.0	Zr ⁺⁺⁺⁺ : Carrier
Nb ⁹⁵	35日	—	—	—	—	Zr ⁹⁵ の娘
Ag ¹¹¹	7.6日	200/200 × 10 ⁴	4.14	0.081	0.27	Ag ⁺ : Carrier
Ru ¹⁰³	42日	2,300/25 × 10 ⁴	5.26	3.7	5.5	Fe(OH) ₃ : Collector
Ru ¹⁰⁶	1年			0.52	4.7	
Rh ¹⁰⁶	30秒			—	—	
Sb ¹²⁵	2.7年	230/200 × 10 ⁴	5.19	0.023	—	Sb ⁺⁺⁺ : Carrier 抽出
Sb ¹²⁷	93時	200/190 × 10 ⁴	4.20	0.093	0.37	Sb ⁺⁺⁺ : Carrier 酸化
Te ¹²⁷	9.3時	2,300/180 × 10 ⁴	4.16	—	—	Te ⁺⁺⁺⁺ : Carrier
Te ¹³²	77時			4.4	4.9	
I ¹³²	2.4時			—	—	
I ¹³¹	8日	2,500/180 × 10 ⁴	4.16	2.8	3.6	I ⁻ : Carrier
Ba ¹⁴⁰	12.8日	2,000/30 × 10 ⁴	4.15	6.17	5.36	Ba ⁺⁺ : Carrier
La ¹⁴⁰	40時	—	—	—	—	Ba ¹⁴⁰ の娘
Ca ⁴⁵	180日	200/200 × 10 ⁴	4.25	—	—	Ca ⁺⁺ : Carrier

* β 及び γ 線測定によるカウント数の比較。

** 他 Nuclide による沈澱の汚染が著しいものはその分を除いた β 及び γ 線測定値, 但し各分離操作の夫々の化学的収率 (30~90%) の補正は施してない。

去、溶液より CaC_2O_4 生成、分離、洗滌、乾燥、測定 (200cpm)、汚染やや大であったが Sr 及び Ba と認められ、それらの値を除去して Al 吸収範囲からは 60 mg/cm²。0.25 MeV の β 線を認め文献値の 0.2~0.26MeV とよく一致した。

これらの結果を一括して第2表に示す。

(2) イオン交換樹脂による分離確認

(xi) 稀土類元素の分離

Amberlite IR-120 の 30~40 メッシュのものを直径 5 mm 長さ 10 cm の層とし、その水素形に 0.05 N HCl 試料溶液 (100 万 cpm) を流速 3 ml/cm²/m で通し、第3表に示す如く順次溶離して稀土類元素を分離した。

(xii) Y91(57日), Ce141(30日), Ce144(275日),

Pr144(17.5分)。

前記稀土類部分を蒸発灰化し、0.05 N HCl 溶液とし同一樹脂の長さ 60 cm の柱に交換吸着させ、Tompkins 等¹¹⁾の方法に従って、5%クエン酸アンモニウムと NH_4

OH で夫々第6図に示すように pH 3.1, 3.2, 3.3, 3.4 として順次溶離した。

第3表 イオン交換樹脂による分離*

溶 離 剤	分離された元 素	検出放射能(cpm) (原試料100×10 ⁴ cpm)
—	陰イオン	約 16×10 ⁴
0.5% 蔞酸溶液 50ml	Zr. Nb 等	// 1.3×10 ⁴
5%クエン酸+ アンモニア水 (pH3.4)	稀土類元素	// 74×10 ⁴
// (pH 5)	Ba. Sr. Ca	// 1.7×10 ⁴
1N HCl 20 ml	その他	// 0.1×10 ⁴

* Carrier を用いず、Amberlite IR-120 を用い、4月30日実施。

** 0.05 N 蔞酸々性溶液 50 ml.

第6図 稀土類溶出曲線

第7図 Pr. Nd 溶出曲線

Y 及び Ce と予想される部分の溶出液より測定試料を調製して、放射能を測定した結果、Al 吸収範囲 F. R. 及び半減期測定結果から Y91, Ce141, Ce144 及び Ce 144 の娘としての Pr144 を検出した。

(xiii) Pr143(13.8 日), Nd147(11 日)。

第 8 図溶出曲線における中央の Pr. Nd 混合物の部分に灰化、同様試料溶液とし同様 60 cm の樹脂層に交換吸着させ 5% クエン酸アンモニウムと NH_4OH による pH3.2 溶液で溶離し第 9 図に示す如き溶出曲線を得た。

此の溶出曲線によって示されるように、Ce, Y. の少量が前後に溶離された。これらの夫々 Nd 及び Pr と予想される部分の溶出液から、放射能測定の結果、Al 吸収範囲及び半減期共によく文献値と一致して、Pr143 及び Nd147 を検出した。

イオン交換樹脂によって Carrier を用いず分離確認した結果を総括して第 4 表に示した。

第 4 表 イオン交換樹脂により分離確認した放射性 Nuclide

Nuclide	半減期	検出放射能 [*] 能比(%)	核分裂収率 [*] $\text{U}^{235}(\%)$ Pu^{239}	備 考
Y 91	57 日	約 52	—	4.9
Ce 141	30 日	" 40	5.7	4.9
Ce 144	2.75 日	—	5.3	3.7
Pr 143	13.8 日	4	La143 ~3.8	—
Pr 144	17.5 分	—	—	Ce 144 の娘
Nd 147	11 日	4	2.6	—

* Carrier を用いず、Amberlite IR-120 により 5 月 6 日分離。

III 考 察

Carrier 或は Collector を用いて、沈澱法等による分離方法は夫々の操作の化学的収率を明かにすることが出来る。又 Fe^{+++} 等の Scavenger 或は Holdback Carrier を有効に使用することによって、汚染を極めて少くする

ことが出来、定量的に各 Nuclide を分析し得ると考えられる。イオン交換樹脂溶出曲線から各元素の大略の存在比を知ることが出来る。

かように確認された各放射性 Nuclide の内 Sr, Ag, Ru, Sb 等の大略の検出量から、分裂生成物としては Pu239 のそれに属するものと考えられる。

終りに、本研究遂行中種々有益な御教示を給った東京大学木村健二郎教授に厚く御礼を申し上げます。又多大の経済的援助を与えられた、大昭和製紙株式会社及び日本軽金属株式会社蒲原工場に心から感謝致しますと共に実験に協力された塚本三男、和泉昭吾、高橋文子の諸氏に謝意を表します。

文 献

- 1) Coryell, Sugarman: "Radiochemical Studies: Fission Products", Book. 1, 2, 3, New York. (1951).
- 2) R. E. Lapp, H. L. Andrew: "Nuclear Radiation Physics", New York (1949), p. 374.
- 3) 文献 1) Book 3, p 1417~p 2055.
- 4) 文献 1) Book 2, 以下同.
- 5) S. Johansson: *Phys. Rev.*, **79**, 896, (1950).
- 6) A. R. Brosi, B. H. Ketelle, H. Zeldes: *Oak Ridge National Lab. Classified Report* ORNL-1116 (Feb. 1952).
- 7) 文献 1) Book 3, Paper 270, 271, Book 2, Paper 133, 134.
- 8) " Book 2, Paper 165.
- 9) " Book 2, Paper 163.
- 10) " Book 1, Paper 49.
- 11) Tompkins, Khym, Cohn: *J. Am. Chem. Soc.*, **69** 2769, (1947).

(大阪市立大学理工学部*・大阪市立医科大学**) (昭和 29 年 6 月 20 日受理)

第五福龍丸より採取せる放射性塵埃について

山寺秀雄*・工藤一郎*・三輪哲雄*・森 正保*・神田精一*

西脇 安**・河合 広**・表野 篤**

On the Radioactive Dust from No. 5 FUKURYU MARU

HIDEO YAMATERA, ICHIRO KUDO, TETSUO MIWA, MASAYASU MORI, SEIICHI KANDA

(Institute of Polytechnics, Osaka City University)

YASUSHI NISHIWAKI, HIROSHI KAWAI, ATSUSHI HYONO

(Osaka City Medical University)

Radioactive elements in radioactive substance collected on board No. 5 Fukuryu Maru were analysed by usual method of chemical separation. The result of chemical separation and estimation of half-life as well as the absorption curve of β -ray confirmed or assumed the presence of nuclides; those were Sr^{89} , Sr^{90} , Y^{90} , Zr^{95} , Nb^{95m} , Nb^{95} , Ru^{103} , Ru^{106} , Rh^{106} , Te^{132} , I^{132} , I^{131} , Ba^{140} , La^{140} , Ce^{141} , Ce^{144} and Pr^{144} . Although Ca showed radioactivity, this was not conclusive. Also, the portion which was considered to belong to transuranium element showed the presence of α -ray by use of ionization chamber. Rare earth elements containing four of the above nuclides and other unidentified nuclides occupied more than one-half of the radioactivity.

(Received June 20, 1954)

* 大阪市区南扇町

** 大阪市区西扇町