研究論文

479. フォールアウト粒子に関する研究, (Ⅱ)

真室哲雄*, 松並忠男*, 藤田 晃*, 吉川 和子*

(1967年 11月29日 受 理)

(1968年 1月20日 再受理)

Studies on Fallout Particles, (Ⅱ)

By Tetsuo MAMURO, Tadao MATSUNAMI, Akira FUJITA and Kazuko YOSHIKAWA

The fifth Chinese nuclear explosion on 28 Dec. 1966 is believed to have been a land surface burst of about 200 kton yield. The radionuclide fractionation appearing in individual hot particles (highly radioactive fallout particles) from this explosion has been investigated by γ -ray spectrometry. The activities of the 10 radionuclides ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}Te , ^{133}Xe , ^{140}Ba , ^{141}Ce and ^{239}Np were determined, and the initial atom numbers of these nuclides contained in each sample were estimated. The fractionation factor defined with respect to ^{95}Zr was calculated as in the preceding papers in order to express the degree of fractionation. The result obtained is discussed in relation to the fission-product decay chains, and compared with that obtained on the hot particles from the earlier air bursts. Significant difference in radiochemical nature is revealed between the present hot particles from a surface burst and those from the previous air bursts.

I. 緒 言

1966年12月28日12時頃(日本時間)に行われた第5回中国核爆発は規模数百 kton で、原爆を地表面で爆発させたものといわれている。30日午前爆発の約40hr後から新しい放射性塵の降下が検出され始め、結局数 $\text{m}\mu\text{Ci}$ 以上の β 放射能を持つ強放射能粒子(H.P. と略記)が 1 m^2 あたり約150個の割合で見出された⁽¹⁾。31日23時から1月1日20時まで、この爆発後初めての降雨(15.8mm)があったが、この降雨およびそれまでの dry fallout による大阪地方の地表面降下量は、1月2日12時現在の値として約 1.5 Ci/km^2 と推定された。当時、降雪の多い裏日本地域ではこの10倍を超える降下量が報ぜられた。単独分離されたいくつかの H.P. について、 γ 線スペクトロメトリーにより、 ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}Te , ^{133}Xe , ^{140}Ba , ^{141}Ce および ^{239}Np の放射能測定をなし、これらの核種の H.P. に含有されていた初期原子数を推定し、fractionation 効果について考察を加えた。今回の爆発に由来する H.P. に見

られた fractionation の特徴は、予想されたように、同じく地表面爆発であった中国の第1回核爆発に由来する H.P. に見られたもの⁽²⁾と比較的類似していた。しかし、今回は着目する核種を多くとり、測定試料とした H.P. の個数も多かったので、前回よりもずっと詳細に地表面核爆発に由来する H.P. に現われる fractionation の有様を調べることができた。こうして得られた結果を、前報した空中核爆発に由来する H.P. に見られた fractionation⁽³⁾⁽⁴⁾と比較してみた。

II. γ 線スペクトロメトリーによる測定結果

顕微鏡下で単独分離した数多くの H.P. のなかから17個を選んだもの(Table 1 および3において P-1, P-2, …… P-17 と記してある), 約90個の大小の H.P. を含むとみられる H.P. の群(Sample G), および雨水試料(Sample R, 12月31日~1月1日の平均雨水27.2 l を蒸発乾固したもの)の γ 線スペクトルを、試料採取

* 大阪府立放射線中央研究所(Radiation Center of Osaka Pref.)

Table 1 Samples subjected to investigation and atom numbers estimated

Sample	Mean diam-eter (μ)	Color	Atom number										^{239}Np	^{237}U
			mass -95	mass -97	mass -99	mass -103	mass -131	mass -132	mass -133	mass -140	mass -141			
P-1	20.7	yellowish brown	5.2×10^6	4×10^6	3.5×10^7	4.5×10^7	2.3×10^7	1.0×10^7	3.8×10^7	4.0×10^6	1.3×10^6	5.6×10^8	—	
P-2	24.6	yellowish white	2.1×10^7	—	3.8×10^7	3.8×10^7	3.5×10^7	1.5×10^7	4.0×10^7	1.3×10^7	5.2×10^6	4.1×10^8	—	
P-3	21.8	yellowish white	1.2×10^7	1.1×10^7	1.3×10^7	—	1.6×10^7	1.0×10^7	1.6×10^7	6.3×10^6	3.7×10^6	1.4×10^8	—	
P-4	20.8	brown	1.0×10^7	—	6.5×10^6	—	6.2×10^6	4.8×10^6	1.4×10^7	5.0×10^6	5.7×10^6	7.2×10^7	—	
P-5	27.3	colorless	7.7×10^6	—	4.1×10^6	—	7.0×10^6	4.1×10^6	1.1×10^7	4.2×10^6	4.8×10^6	4.1×10^7	—	
P-6	20.0	brown	1.7×10^7	—	8.4×10^6	7.7×10^6	9.7×10^6	5.6×10^6	1.7×10^7	8.8×10^6	1.0×10^7	9.0×10^7	—	
P-7	21.0	yellow	1.1×10^7	9×10^6	6.0×10^6	—	7.3×10^6	5.3×10^6	1.0×10^7	5.0×10^6	6.5×10^6	3.8×10^7	—	
P-8	26.0	black	3.8×10^7	3.3×10^7	2.1×10^7	1.9×10^7	2.0×10^7	1.3×10^7	2.9×10^7	1.9×10^7	2.5×10^7	1.8×10^8	—	
P-9	25.8	reddish black	3.1×10^7	2.6×10^7	1.5×10^7	1.2×10^7	1.5×10^7	7.4×10^6	2.2×10^7	1.2×10^7	1.6×10^7	1.2×10^8	—	
P-10	26.5	black	1.8×10^7	1.6×10^7	1.0×10^7	8.0×10^6	7.2×10^6	5.0×10^6	1.5×10^7	6.6×10^6	9.0×10^6	7.2×10^7	—	
P-11	26.1	reddish black	2.6×10^7	2.2×10^7	1.5×10^7	1.1×10^7	1.3×10^7	7.9×10^6	2.2×10^7	7.9×10^6	1.1×10^7	1.1×10^8	—	
P-12	27.4	black	2.3×10^7	2.0×10^7	1.2×10^7	—	1.0×10^7	7.9×10^6	2.3×10^7	8.3×10^6	1.2×10^7	8.8×10^7	—	
P-13	26.5	yellow	3.0×10^7	2.5×10^7	1.4×10^7	1.2×10^7	1.1×10^7	7.8×10^6	2.3×10^7	9.4×10^6	1.4×10^7	1.0×10^8	—	
P-14	27.8	yellowish white	2.6×10^7	2.2×10^7	1.0×10^7	9.6×10^6	8.9×10^6	6.7×10^6	1.8×10^7	7.1×10^6	1.1×10^7	1.2×10^8	—	
P-15	24.0	black	2.3×10^7	2.0×10^7	1.0×10^7	7.9×10^6	8.2×10^6	5.8×10^6	1.7×10^7	6.2×10^6	9.6×10^6	6.3×10^7	—	
P-16	23.8 18.5	black black	2.4×10^7 2.1×10^7	1.1×10^7	—	—	6.3×10^6 6.2×10^6	1.3×10^7	7.1×10^6	1.1×10^7	7.9×10^7	—	—	
P-17	27.0	black	4.3×10^7	3.7×10^7	1.6×10^7	1.1×10^7	8.6×10^6	7.5×10^6	1.6×10^7	8.8×10^6	1.6×10^7	7.9×10^7	—	
Sample G	about 90 hot particles combined		1.1×10^9	8.7×10^8	7.5×10^8	5.2×10^8	5.6×10^8	6.7×10^8	1.0×10^9	7.3×10^8	7.9×10^8	5.5×10^9	2.3×10^9	
Sample R	rain water shortly after the explosion, 27.2 l		2.8×10^9	2.5×10^9	2.0×10^9	1.6×10^9	1.3×10^9	1.4×10^9	1.5×10^9	2.0×10^9	1.4×10^9	1.3×10^{10}	5.4×10^9	

— : Not measured

直後から約2ヶ月間追跡し、光電ピークの面積から上記10核種の放射能を求め、これからそれぞれの試料中に含まれていた初期原子数を計算した。この際、爆発は1966年12月28日12時(日本時間)と仮定した。結果をTable 1に掲げる。さらに、fractionationの程度を表わすために、前報⁽⁴⁾で定義したような ^{95}Zr に対するfractionation factorを計算した*。ただし、一応簡単

Table 2 Assumed fission yield values for thermal-neutron fission of ^{235}U

Mass chain	Yield(%)
95	6.26
97	6.08
99	6.06
103	2.98
131	2.93
132	4.38
133	6.58
140	6.42
141	6.44

に爆発が ^{235}U の熱中性子による核分裂であったと仮定し、Table 2に掲げるような核分裂収率値⁽⁵⁾を用いた。計算されたfractionation factorとともに3つの初期原子数比 $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$, $^{239}\text{Np}/^{95}\text{Zr}$ および $^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$ をTable 3に掲げる。

* 問題としている核種Aのfractionation factor $f(A)$ を次式で定義した。

$$f(A) = \frac{A \text{を含む mass chain の原子数}}{\text{mass-95 の原子数}} \times \frac{\text{mass-95 の収率値}}{A \text{を含む mass chain の収率値}}$$

この式で定義されたfactorはEdvarsonらによって次式のように定義されたfactorとはほぼ同じ意味を有している。

$$f(A) = \left(\frac{N(A)}{N(^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb})} \right)_{\text{exp.}} \times \left(\frac{N(^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb})}{N(A)} \right)_{\text{theor.}}$$

ここに $N(A)$ は核種Aの放射能を表わし、第1の()内は実験的に得られた値を、第2の()内は試料のageがわかっている核分裂収率値を用いて計算される値を表わしている。

Table 3 Fractionation factors, initial atom number ratios of $^{239}\text{Np}/^{95}\text{Zr}$, $^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$ and $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$, and estimated time intervals between detonation and particle formation

Sample	Fractionation factor								Initial atom number ratio			Estimated time interval (sec)
	^{97}Zr	^{99}Mo	^{103}Ru	^{131}I	^{132}Te	^{133}Xe	^{140}Ba	^{141}Ce	$\frac{^{239}\text{Np}}{^{95}\text{Zr}}$	$\frac{^{239}\text{Np}}{^{237}\text{U}}$	$\frac{^{140}\text{Ba}}{^{141}\text{Ce}}$	
P-1	0.9	6.9	18	9.4	2.9	6.9	0.75	0.24	108	—	3.3	
P-2	—	1.9	3.8	3.5	1.1	1.8	0.61	0.24	20	—	2.5	
P-3	1	1.1	—	2.8	1.2	1.3	0.51	0.30	12	—	1.7	
P-4	—	0.67	—	1.3	0.71	1.3	0.49	0.55	7.2	—	0.88	
P-5	—	0.55	—	1.9	0.79	1.4	0.53	0.60	5.3	—	0.88	
P-6	—	0.51	0.95	1.2	0.49	0.95	0.51	0.57	5.3	—	0.88	
P-7	0.9	0.56	—	1.4	0.71	0.86	0.44	0.57	3.5	—	0.77	
P-8	1	0.57	1.1	1.1	0.51	0.73	0.49	0.61	4.7	—	0.76	
P-9	1	0.50	0.81	1.0	0.35	0.80	0.38	0.50	3.9	—	0.75	
P-10	1	0.57	0.93	0.85	0.41	0.79	0.36	0.49	4.0	—	0.73	
P-11	1	0.59	0.89	1.1	0.45	0.80	0.30	0.41	4.2	—	0.72	
P-12	1	0.54	—	0.93	0.51	0.95	0.35	0.51	3.8	—	0.69	115
P-13	1	0.48	0.84	0.75	0.39	0.73	0.31	0.45	3.3	—	0.67	108
P-14	1	0.40	0.78	0.73	0.38	0.66	0.27	0.41	4.6	—	0.65	100
P-15	1	0.45	0.72	0.76	0.37	0.70	0.26	0.41	2.7	—	0.65	100
P-16	1	0.47	—	0.56	0.38	0.51	0.29	0.45	3.3	—	0.64	99
P-17	1	0.38	0.54	0.43	0.26	0.35	0.20	0.36	1.8	—	0.55	75
Sample G	0.94	0.74	1.0	1.1	0.95	0.91	0.68	0.73	5.2	24	0.92	
Sample R	1.0	0.73	1.2	1.0	0.73	0.51	0.71	0.49	4.7	24	1.4	

— : Not measured

今回の H.P. では、空中爆発による H.P. においてきわめて含有率の低かった ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}Te , ^{133}Xe などが高い含有率を示している。約 80 keV のところに顕著な光電ピークが認められたが、これは半減期とエネルギーから ^{133}Xe に由来するものとみなされた。Aarkrog と Lippert は Ge 検出器を用いて第 5 回中国核爆発からの放射性塵中にこの核種を確認したと報告している⁽⁶⁾。

Ⅲ. 考 察

1. 原子数と粒子体積との関係

Figs. 1~3 はそれぞれ ^{95}Zr , ^{132}Te , ^{141}Ce の初期原子数と μ^3 で表わした粒子体積との間の関係を示す。ただし、測定に供した 17 個の H.P. を後述するような事情により、説明の便宜上 A, B の 2 群に分類し、前者を黒丸で後者を白丸で表わしてある。refractory な振舞をすると考えられる mass-95 については、例外はあるが、原子数と体積との間に大体において正比例の関係が成立しているようである。もっとも refractory な振舞をすると考えられる mass-97 についても mass-95

の場合とほぼ同様なプロットが得られる。一方、volatile な振舞をすると考えられる mass-132 については、プロットされた点が分散して着目する体積範囲内では特別な傾向が認められない。mass-103, -131, -133 の場合もこれと類似している。中間的な振舞をすると考えられる mass-141 については、mass-95 ほど明白ではないが比例関係があるように見える。mass-140 についても mass-141 の場合とほぼ同様なことがいえる。mass-99 と ^{239}Np については、A 群についてはほぼ比例の関係が認められるが、B 群についてはプロットされた点が大幅に分散している。

今回の H.P. と中国の第 3 回核爆発(空中爆発)による H.P. とを比較してみると、mass-95, -97, -99, -140, -141 などについて後者の方がずっと良好な比例関係が認められた。なお、比放射能は後者の方がずっと大きく、例えば $1\mu^3$ あたりの mass-95 の原子数については後者は前者の約 100 倍である。なお、後者では、母体物質の化学成分による顕著な原子数密度(μ^3 あたりの原子数)の相異—淡色粒子と濃色粒子との間の原子数密度の相異—が認められたが⁽⁴⁾、今回の H.P. につい

Fig. 1

Relation between the initial atom number and the particle volume

Particles of A group are denoted by solid circles and particles of B group by open circles.

Fig. 2

Fig. 3

ては特にこのような傾向は認められなかった。

2. $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の初期原子数比

前報⁽⁴⁾において、中国の第3回核爆発に由来する粒径 $8\sim 14\mu$ の H.P. について、 $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の初期原子数比に着目して爆発と粒子生成との間の時間間隔を推定したところ $30\sim 40\text{ sec}$ の値が得られたことを報告した。ところで今回の H.P. について得られた $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の初期原子数比は、第3回核爆発に由来する H.P. のものに比べると一般にかなり大きく、なかには1以上のものさえある。

火球中の $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ba}$ の原子数比は爆発後時間の経過につれて、前報⁽⁴⁾の Fig. 21 の曲線で示されるように次第に増加し、したがって、 $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の初期原子数比の大きい H.P. は生成時間が長かったと考えられる。しかし、急速に冷却する火球の表面部ではもっと大きい速さで $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ba}$ の比の値が増加すると推測される。何となれば、高温の火球内部から低温の外方に向かって希ガス Xe や Cs 蒸気の拡散があると考えられ、 ^{140}Xe (16 sec) は ^{141}Xe (1.7 sec) よりも、 ^{140}Cs (66 sec) は ^{141}Cs (25 sec) よりも半減期が長いからである。このように、火球周辺部では粒子生成時期において希ガスあるいは volatile な元素が refractory な元素よりも相対的に高い密度を示すと考えられる。 $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の値が特に大きい H.P. は火球の周辺部で生成されたのではなかろうか。

いま、 $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の比が 0.7 以下の H.P. について、上述したような場所的な fractionation の影響が小さいとみて、前報したような生成時間の推定法が適用可能と

仮定するならば、Table 3 に掲げてあるように P-12 $\sim$ -17 について $115\sim 75\text{ sec}$ というような値が得られる。これらの値は前回に得られた $30\sim 40\text{ sec}$ に比べてかなり大きい。この説明として次のようなことが考えられる。今回の H.P. の母体物質は主として地表面物質に由来しているが、第3回核爆発による H.P. の母体物質は爆弾構成材料に由来する Fe や Al の酸化物であったと推定され⁽⁷⁾、したがって今回の H.P. の方が凝結温度が低く、凝結時間が長かったと思われる。なお、今回の爆発の方が火球内物質密度が高く、輻射による熱損失の速さが小さかったことも理由の1つではなかろうか。さらにまた、今回の爆発の方が第3回よりも規模が幾分か大きかったと報ぜられているが、これも1つの理由かも知れない。

3. Fractionation factor の decay chain による考察

$^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の初期原子数比を fractionation の程度を表わす目安とみなすことにして、横軸にこの比をとり、縦軸に fractionation factor および初期原子数密度をとって各試料についてプロットすると Figs. 4 $\sim$ 7 のようになる*。Fig. 9 は縦軸に $^{239}\text{Np}/^{95}\text{Zr}$ の初期原子数比および ^{239}Np の原子数密度をとったものである。いずれの図においても A 群を黒丸で、B 群を白丸で表わしてある。参考のために、Table 4 に ^{235}U の熱中性子による核分裂における decay chain の一部⁽⁸⁾と収

* 前報⁽⁴⁾においては fractionation の程度を表わす目安として ^{141}Ce の fractionation factor をとった。しかし、今回はその変化の範囲があまりにも小さいので $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の比を目安とした。

Table 4 Decay chains and yields from thermal-neutron fission of ^{235}U

95.	short Kr <u>0.40</u>	→	short Rb <u>2.12</u>	→	40-sec Sr <u>2.77</u>	→	10-min Y <u>0.94</u>	→	65-day Zr <u>0.02</u>	0.02 0.98	→	90-hr ^m Nb 35-day Nb	→	stable Mo
97.	short Kr <u>~ 0</u>	→	short Rb <u>~ 0</u>	→	short Sr <u>0.61</u>	→	short Y <u>2.46</u>	→	17.0-hr Zr <u>2.41</u>	0.96 0.04	→	60-sec ^m Nb 73-min Nb <u>0.60</u>	→	stable Mo
99.	<1.6-sec Zr <u>5.38</u>	→	2.4-min Nb <u>0.68</u>	→	66.5-hr Mo <u>0.87</u>	0.13	→	6.0-hr ^m Tc 2.1×10 ⁵ -yr Tc	↓	→	stable Ru			
103.	1.2-min Tc <u>2.98</u>	→	39.7-day Ru <u>0.995</u>	→	57-min Rh <u>0.005</u>	→	stable Rh							
131.	3.4-min Sn <u>0.93</u>	→	23-min Sb <u>1.31</u>	0.15 0.85	→	30-hr Te <u>0.46</u>	0.80 0.20	→	8.05-day I <u>0.01</u>	0.008 0.992	→	12-day ^m Xe stable Xe		
132.	2.2-min Sn <u>0.93</u>	→	2.1-min Sb <u>2.06</u>	→	77-hr Te <u>1.22</u>	→	2.30-hr I <u>0.17</u>	→	stable Xe					
133.	4.1-min Sb <u>3.33</u>	0.72 0.28	→	52-min Te <u>2.61</u>	0.87 0.13	→	20.8-hr I <u>0.64</u>	0.024 0.976	→	2.3-day ^m Xe 5.27-day Xe	→	stable Cs		
140.	16-sec Xe <u>2.31</u>	→	66-sec Cs <u>2.96</u>	→	12.8-day Ba <u>1.12</u>	→	40.2-hr La <u>0.04</u>	→	stable Ce					
141.	1.7-sec Xe <u>1.20</u>	→	25-sec Cs <u>2.96</u>	→	18-min Ba <u>1.93</u>	→	3.8-hr La <u>0.34</u>	→	33-day Ce	→	stable Pr			

The underlined figures are independent yield values in per cent. (The yield value of the first member of each chain includes those of the short-lived precursors.)

率(%)⁶⁾を掲げる。

^{95}Zr の初期原子数密度 $^{95}\text{Zr}/\mu^3$ を示す Fig. 4 をみると、A群とB群はそれぞれ別の分布の仕方をしてるようにみえる。A群は比較的小範囲にかたまっているが、B群では $^{95}\text{Zr}/\mu^3$ の値が比較的小さいのに $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の値は大きくその分布範囲も広い。mass-95に属する原子が粒子に捕獲されるのは主として ^{95}Sr (40

Fig. 4 Initial atom number densities of ^{95}Zr as the function of the initial atom number ratio of $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$

sec) と ^{95}Y (10 min) の状態においてであり、いずれの酸化物もきわめて refractory な振舞をすると考えられる。したがって、mass-95 の原子は粒子に凝結と同時に取り込まれるものが大部分であって、凝固以後に表面付着するものは無視できよう。この意味において、 $^{95}\text{Zr}/\mu^3$ の値は H.P. の生成した場所における単位物質あたりの mass-95 の存在量を示すと見られる。P-5 は特にこの値が小さいが、この粒子はおそらく物質密度のきわめて高い場所で生成されたものであろう。mass-97 は Sr や Y よりもさらに refractory な元素 ^{97}Zr の状態で粒子に捕獲されるので、 ^{97}Zr の factor はいずれの H.P. でも 1 あるいは少しこれより大きい目である。

^{90}Mo の factor および初期原子数密度を示す Fig. 1 においては、A群とB群は1つの単調な曲線上にはのっていると思われる。しかし、前報のように fractionation の目安として ^{141}Ce の factor を横軸にとってみると Fig. 8 のようになり、A群とB群が全く傾向の異なった2つの曲線にのることがわかる (^{90}Mo が

の核種についても Fig. 8 と同傾向のグラフが得られる。mass-99の粒子への捕獲は主として ^{99}Nb (2.4 min)の状態で行われるが(付記参照), Nb は Zr に比較してかなり volatile な振舞をする と推測され, A群のなかにはかなり小さい factor を示すものがある。A群の factor が $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の比の増大につれて一換言すれば, 粒子生成時間の長いほど一増大する傾向を見せているのは, 時間経過とともに粒子に凝結捕獲される $^{99}\text{Nb}/(^{95}\text{Sr}+^{95}\text{Y})$ の原子数比が増大したことを示すと考えられる。一方, B群の ^{99}Mo の factor は概して大きく, 特に P-1, -2, -3 は 1 よりも大きい factor をもつ。これらの粒子は, 上述したような, 火球周辺部で特に顕著となる火球半径方向の fractionation 効果のために, $^{99}\text{Nb}/(^{95}\text{Sr}+^{95}\text{Y})$ の存在比が高くなった周辺部で生成されたのではなかろうか。一方, P-5 は地表面からの物質の密度が高いところで生成されたために比放射能は著しく低くなったが, 生成の場所は極端な周辺部ではなく, fractionation についてはA群と大差なくなったものではなかろうか。いずれにしても, B群およびA群のうちの $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の比の比較的大きいものについては, $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$ の比を簡単に粒子生成時間に関係づけることは妥当でなく, むしろ粒子が生成された場所における fractionation の程度を表わす目安と

みた方がよいようである。

^{131}I , ^{132}Te , ^{133}Xe についても ^{99}Mo の場合とほぼ同様な傾向のグラフが得られる。Fig. 6 は ^{131}I についてのグラフである。3 者の factor の大きさの順は

$$f(^{131}\text{I}) > f(^{133}\text{Xe}) > f(^{132}\text{Te})$$

となっているが, もし mass-131, -132, -133 がいずれも decay chain の中で Sb までで粒子への捕獲がほとんど決定されると仮定すれば, Table 4 に記せられた収率と半減期から考えて, この順番は

$$f(^{131}\text{I}) > f(^{132}\text{Te}) > f(^{133}\text{Xe})$$

となると予想される。この食違いの説明としてつぎのようなことが考えられる。爆発後数時間において, mass-131 と mass-133 はほとんどがそれぞれ ^{131}I と ^{133}I になり, これらの蒸気が十分に冷却した粒子の表面に付着することがありうるが, mass-132はほとんど ^{132}Te にとどまっている。A群のなかにも ^{131}I の factor が 1 を超えるものがあるという事実は, I の表面付着による捕獲を物語っているのではなかろうか。 ^{133}Xe なる希ガス元素が H.P. 中にかなりの含有率で見出されたが, これは H.P. の mass-133 の捕獲が主として Sn, Sb の状態で行われたため, かなり内部にこれらの

Fig. 5

Fig. 6

Fig. 7

Fractionation factors and initial atom number densities as the function of the initial atom number ratio of $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$

原子が抱き込まれていること、また、I や Te として粒子表面に捕獲されたものも H.P. 単独分離後直ちにセダー油滴中に沈めたため逸散が防がれたことにもよるであろう。

^{103}Ru と ^{239}Np についてもほぼ同様な傾向のグラフが得られる。Fig. 9 には ^{239}Np について得られた結果を表わしてある。

Relation between $f(^{99}\text{Mo})$ and $f(^{141}\text{Ce})$
Fig. 8

Initial atom number ratios of $^{239}\text{Np}/^{99}\text{Zr}$ and initial atom number densities of ^{239}Np as the function of the initial atom number ratio of $^{140}\text{Ba}/^{141}\text{Ce}$

Fig. 9

^{141}Ce および ^{140}Ba については、A, B 両群の分布状態の相異が顕著に認められるグラフが得られる。特に、 ^{141}Ce については、Fig. 7 に示すように B 群の factor は $^{141}\text{Ce}/^{140}\text{Ba}$ の比の増大とともに減少の傾向を示している。この事実、H.P. が生成される空間領域内で、粒子生成時期に $^{141}\text{Ba}/(^{88}\text{Sr} + ^{95}\text{Y})$ の原子数比が極大となるような場所ができたことを示すように思われる。

以上に述べたように、A 群は火球の比較的内方で、B 群は周辺部で生じたと考えられそうである。火球の内方では核種の存在比が場所によってあまり変化しないが、周辺部では volatile な核種の拡散移動が激しく、場所による存在比の変化が著しくなると推測される。きわめて大雑把な考え方であるが、模型的に表わせば Fig. 10 のような事情が粒子生成時に成立しているとみなすこともできよう。

Fig. 10 A schematic model of the density distribution of various nuclides at the time of particle formation near the circumference of the fireball

以前に、第 1 回中国核爆発(地表面爆発)に由来する H.P. について、 ^{103}Ru の fractionation factor が 1 より小さい場合を“第 1 の fractionation”，1 より大きい場合を“第 2 の fractionation”と呼んで分類したが⁽²⁾、これらはそれぞれ今の場合の A 群と B 群に相当すると考えられる。

4. H.P. と雨水との比較

Figs. 5～9 などからわかるように、Sample R は A 群よりも B 群に似た fractionation を示している。この雨水試料には大粒の粒子は含まれず、比較的小さな粒子が含まれていたことは X 線フィルムによるオートラジオグラフィーにより確認された。一方、Sample

はA, B両群の中間的 fractionation を示している。この試料は、約90個の H.P. を集めて作った積りのものであったが、粒子を単独分離してはいないので、おそらく20 μ 径くらいの H.P. のほかに多数の小粒子の凝集したものが半数程度含まれていたと思われる。以上のことから、 μ サイズの小粒子は概してB群の H.P. に似た fractionation を示すものが多いと推測される。

詳しく検討すると、Sample R の ^{109}Ru , ^{131}I , ^{133}Xe の factor および $^{239}\text{Np}/^{99}\text{Zr}$ の比はB群のものとして予想される値より明らかに小さい。 ^{109}Ru と ^{131}I については試料の蒸発乾固の過程での逸散が、 ^{133}Xe については希ガスの逸散が考えられる。しかし、 $^{239}\text{Np}/^{99}\text{Zr}$ の比については、地表面爆発では ^{238}U は幾分大粒の粒子に濃縮される傾向—refractory な振舞の傾向—があることが示されているのではなからうか(空中爆発では、これと反対に、大粒粒子において ^{239}Np の含有率が低くなる傾向が明らかに認められている⁽³⁴⁾)。

5. $^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$ の初期原子数比

^{239}Np と ^{237}U はともに粒子生成時にはUの状態にあるので、両者の間には fractionation は起こらないはずである。したがって両者の比は、試料の種類—雨水とか粒子などの—に無関係である。この比は何か高速中性子の含有率に関係があるように思われる。今回の第5回中国核爆発に由来する塵での $^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$ の初期原子数比は約24と推定された。ちなみに、第3回の塵については約4.0⁽⁴⁾、第6回の塵については約1.8⁽⁶⁾の値が得られている。

〔付 記〕

(1) 第3回中国核爆発(空中爆発)に由来する H.P. について報告した前報⁽⁴⁾においては、mass-99 の fractionation を論ずる際に Orth らに従って ^{99}Zr の半減期を33 sec と仮定したが⁽³⁰⁾、これでは0.5以下というような小さい $f(^{99}\text{Mo})$ の値の説明がつかず、半減期の測定値に誤りがあるのではないかと疑問視された。その後調査の結果、Troutner らが <1.6 sec という1桁以上も小さい値を推定していることがわかった⁽¹¹⁾。生成時間が数十 sec と推定される H.P. の

なかに0.5以下の小さい $f(^{99}\text{Mo})$ を示すものがあるというわれわれの測定結果からすれば、Troutner らの値の方が正しいと思われる。 ^{99}Zr の半減期がこのような短ければ、mass-99 の粒子への捕獲はほとんど ^{99}Nb の状態でなされるから、mass-99 の振舞は mass-147 のそれに似たものではなくて、むしろ ^{239}U や ^{237}U の振舞に似たものとして分類すべきである。

(2) H.P. に現われる fractionation は種々の物質の凝結あるいは凝固温度や蒸気圧、また冷却速度などに微妙に関係するので、高温における物質の挙動に関する基礎的知識が乏しい現在では満足に理解することがむずかしい。将来、高温放射化学といった分野の研究が発展するとすれば、これに基づいての説明が可能にならう。

— 参 考 文 献 —

- (1) MAMURO, T., et al.: *Ann. Rept. Rad. Cent. Osaka Pref.*, **8**, 1 (1967).
- (2) MAMURO, T., YOSHIKAWA, K., MATSUNAMI, T., FUJITA, A.: *Health Phys.*, **12**, 757 (1966); 本誌, **8**[5], 242~248 (1966).
- (3) MAMURO, T., YOSHIKAWA, K., MAKI, N.: *Health Phys.*, **11**, 199 (1965).
- (4) MAMURO, T., MATSUNAMI, T., FUJITA, A.: *ibid.*, **14**, 223 (1968); 本誌, **9**[11], 646~655 (1967).
- (5) WEAVER, L.E., STROM, P.O., KILLEEN, P.A.: *USNRDL-TR-633*, (1963).
- (6) AARKROG, A., LIPPERT, J.: *Nature*, **213**, 1001 (1967).
- (7) MAMURO, T., FUJITA, A., MATSUNAMI, T.: *Health Phys.*, **13**, 197 (1967); 本誌, **8**[6], 309~316 (1966).
- (8) KATCOFF, S.: *Nucleonics*, **18**[11], 201 (1960).
- (9) MAMURO, T., MATSUNAMI, T.: *Ann. Rept. Rad. Cent. Osaka Pref.*, **8**, 35 (1967).
- (10) ORTH, C.J., SMITH, R.K.: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, **15**, 4 (1960).
- (11) TROUTNER, D.E., FERGUSON, R.L., O'KELLEY, G.D.: *Phys. Rev.*, **130**, 1466 (1963).