研究論文

508. 核爆発による放射性塵の測定および分析

五十嵐 俊 次*

(1968年 9 月 27 日 受 理)

(1969年 3 月 7 日 再受理)

*Measurements and Analyses of Radioactive Airborne Debris
from the Nuclear Test Explosion*

By Shunji IGARASHI

The radioactive airborne debris that reached the sky over Japan in the wake of the 7th Chinese nuclear test explosion of December 24, 1967 were collected with the use of an airborne dust sampler mounted on aircraft and subjected to gross β -activity measurement, γ -ray spectrometry and mass spectrometry. The concentration of radioactive debris in the air stood at about 18,000 pCi/m³ on December 25, from where it decreased gradually to reach a level below 1 pCi/m³ on December 28, the level prevalent before the test explosion. Short-lived radionuclides such as ²³⁹Np, ¹⁴³Ce, ¹³²I and ⁹⁹Mo were clearly detected by γ -ray spectrometry, but the presence of ²³⁷U was not confirmed. The elementary composition of the debris collected shortly after the explosion was not substantially different from those collected at normal times. The content of lithium however, was about 120 times as high as the level before the test explosion. The isotopic abundance ratio of ⁶Li was 14.6%, about twice the natural isotopic abundance ratio.

I. 緒 言

核爆発によって生ずる放射性塵中の核分裂生成物に關してはすでに多くの研究者によって究明されており、特に著量の ²³⁷U 等の検出⁽¹⁾は注目されている。また、放射性塵中には核分裂生成物のほかに核分裂あるいは核融合の材料物質の一部分が未反応のまま混っていることが知られており、この未反応物質の検出⁽²⁾は核爆発生成物を明らかにするものと考えられている⁽³⁾。

1967年12月24日に行われた中国の第7回目の核爆発実験の際に、日本の上空に飛来した放射性塵を航空機を用いて採取し、放射能の測定および含有核種の分析を行うと共に、特に Li 含有率およびその同位体比の測定に着目して、質量分析器により塵の組成元素を分析し、平常における放射性塵の組成と比較してその相

異を調べ、未反応物質の検出を試みた。

II. 実験方法

1. 試料の採集および処理

平常時においては、Fig. 1 に示す実線ループ内の空域を 6 km, 10 km および 12 km の 3 高度について週 1 回の予定で試料採集を行なっているが、1967年12月24日に中国新疆省ロブノール地区 (N: 40°, E: 90° 付近) で行われた第7回核爆発実験に際しては、次のようにして塵の採集を行なった。実験の当時、実験場付近を通り九州、四国および紀伊半島をかすめて約 9 km の高度を毎時約 180 km の速度で吹いていたジェット気流があり、もしこの気流に新しい放射性塵が乗って来るとすれば、24 hr 程度で日本上空に到

* 防衛庁技術研究本部 第1研究所(The 1st Res. Center Tech. Res. & Development Inst., J.D.A.)

Fig. 1 Sampling area for radioactive airborne dusts at high altitude

達するものと予想された。また 5~6 km の高度の気流に乗った場合には、ジェット気流のコースよりもかなり北側を通り到達時間も 40~50 hr を要するものと予想された。しかし今回は核爆発の正確な時刻および高度等が明らかでなく、また確認する資料も得られなかったため、日本上空に塵の到達する時刻等についての予想ができなかったため、25日10時よりまずジェット気流の通過予想コースである太平洋側 (Fig. 1 の点線ループ内の南側半分) の空域を主に、また26日は 5~6 km の高度の気流の予想コースにあたる日本海側 (Fig. 1 の点線ループ内の北側半分) の空域を主に、全般的には平常時の飛行域を南北に広げた状態で、約 2 hr 間隔で 1 日 3 回程度、6~10 km の高度を集塵飛行して試料の採取を行なった。

平常時の採集は、6 km および 10 km の 2 高度については航空機 (F-86F 型ジェット機) の翼下面に装着した濾紙式集塵器⁽⁴⁾を主として使用し、12 km の高度については翼前縁に添付したガムドペーパーを用いて行なっている。核爆発後の25日からの採集についてもこれと同様にして行なった。

採集した試料は清浄な白金ルツボに入れ、開放型電気炉で約 2 hr, 400~500°C に加熱して炭化した後、電気マッフル炉で約 12 hr, 600°C に熟して灰化した。

灰化恒量後秤量して灰の重量を求めた後ステンレス鋼製の試料皿に移し、蒸留水を滴下して試料を試料皿の底面に一様に広げ、赤外線ランプで乾固して放射能の測定試料とした。

2. 全 β 放射能の測定および γ 線スペクトロメータによる核種分析

第 1 節で述べたような方法で調製した試料の全 β 放射能は GM 計数装置を用いて測定し、 U_3O_8 の標準試料 (β 線: 500 d.p.s) と比較して放射能を計算した。試料の採集時における放射能の算定については、平常時の試料の場合、その減衰状態が Fig. 2 の①、③および④に見られるように単調であり、また採集から最初の測定までの時間が約 18~20 hr で割合短時間であることから、およそ 24 hr をへだてて 2 回目の測定を行い、外挿法によって採集時における放射能を逆算した。一方、爆発直後の試料の場合は、試料によってその減衰状態が異なるので、最初の測定より 6~10 hr おきに数回測定し、グラフ上に計数率をプロットして、各測定値の標準偏差内に入るような曲線を引いて採集時の値を外挿によって求めた。一方、集塵器に装備されているヴィラム型流量計によって測定した採取空気体積を標準状態 (760 mmHg, 15°C) に換算して、1 m³ あたりの放射能を計算した。さらにまた、Ge 半導体検出器 (東芝製 M-8823 型 Ge(Li) Detector, 検出有効面直径: 10 mm, 検出有効厚: 4 mm, 分解能 (半値幅): < 7 keV (¹³⁷Cs の 662 keV ピークにおいて)) を用いた γ 線スペクトロメータで試料のスペクトルを一定時間をへだてて測定を繰返し、これらの結果から含有核種を推定した。

3. 放射性塵の元素分析

放射能測定がおわった後の試料のうち、集塵器で採取したものについて、採集回数 4 回分 (平常時の試料は約 1 ヶ月間の 4 回分、核爆発直後の試料は 25 日~27 日の間の 4 回分) をまとめて 1 分析試料 (約 10~20 mg) とし、Mattauch-Herzog 型 2 重収束質量分析器を用いて成分元素の定量分析を行なった。

純度 99.999% 程度の純金の棒の先端に孔をあけ、これに 1 回 4~5 mg の試料をつめ (1 試料について 3~4 回繰返して測定)、これを電極として真空中で高周波火花放電を行わせて試料をイオン化し、発生したイオンを 20~30 kV で加速してエネルギー選択器を通して後 500 G 程度の磁界に送り、分散させて写真乾板上に焦点を結ばせてスペクトルを求めた。エネルギー選択器には 2,300 V の電圧をかけ、ここでのイオンの偏向角は 31°48' であり、磁界での偏向角は 90°であ

った。こうして得られたスペクトルについて、マイクロフォトメータを用いて各スペクトル線の黒化度を測定し、あらかじめ目的成分について作成した検量線によりイオン強度を求めて定量した。また、集塵に使用した汚紙と同種の未使用の汚紙20枚を試料と同様に処理して分析し、汚紙1枚当たりの含有元素量を算出して試料の分析値から使用汚紙分の量を差し引いて塵自体の組成元素量を求めた。

Ⅲ. 結果と考察

Table 1 は、1967年10月～1968年4月の期間に採集した試料(いずれも集塵器使用)について得られた空中の全 β 放射能濃度および空中塵濃度の測定値を示す。核爆発の約1ヵ月前までの空中放射能濃度は 1 pCi/m^3 以下であったが、25日11時頃に潮岬南東約120 km (N: 137° , E: 33° 付近)の空域で採取したものは約 $18,000 \text{ pCi/m}^3$ と非常に大きな値を示した。この試料の β 放射能の減衰を調べた結果は **Fig. 2** の曲線②に示すとおりであり、平常時のものと比べて減衰が急激で、新しい核爆発生成物を含んでいたことは明らかである。また27日以降の放射能濃度は低く、28日には 1 pCi/m^3

Fig. 2 β -decay curves of radioactive airborne dusts

以下となっている。これは放射性塵を含んだ気団が

Fig. 3 γ -ray spectrum of the radioactive airborne dusts collected on 25 Dec. '67, measured on 26 Dec.

27日にはすでに通過し去ったことを示すものと考えら

Table 1 Gross β -activity and concentration of airborne dusts in air at high altitude

Date of sampling	Altitude (km)	Gross β -activity (pCi/m ³)	Concentration of dust (μ g/m ³)
09.00 a.m., 11 Oct. '67	10	0.9	10.5
01.00 p.m., 18 " "	6	0.2	10.1
09.00 a.m., 31 " "	10	0.4	9.3
09.00 a.m., 24 Nov. "	6	0.2	11.5
11.00 a.m., 25 Dec. "	10	17,960	15.1
09.00 a.m., 26 " "	6	2,859	10.3
01.00 p.m., 26 " "	6	203.4	14.4
09.00 a.m., 27 " "	6	2.8	12.7
09.00 a.m., 28 " "	6	0.8	9.8
10.00 a.m., 30 Jan. '68	10	26.04	6.5
10.00 a.m., 6 Feb. "	10	1.2	11.4
10.00 a.m., 12 " "	10	18.7	5.3
09.00 a.m., 20 " "	6	1.2	8.6
09.00 a.m., 27 Mar. "	10	6.6	7.2
09.00 a.m., 1 Apr. "	6	0.5	7.4
09.00 a.m., 19 " "	10	14.2	10.1
09.00 a.m., 22 " "	6	5.9	9.0

れる。また1967年12月末以降の測定結果からは、核爆発の影響が多少の消長を示しながら漸次うすれて行くことが認められる。1月30日および2月12日の試料が比較的大きな値を示しているが、これは核爆発によって放出された放射性塵が拡散しながら地球の周りを何回か移流したための影響によるものと推定される。また4月の値は他の平常時の値にくらべ全般的に幾分高くなっている。これは、いままでに報告されている測定結果⁽⁵⁾等を考慮すると、今回の核爆発の影響によるばかりでなく、スプリングピーク⁽⁶⁾に大きく影響されたものと考えられる。

一方、塵自体の空中濃度(μ g/m³)については、核爆発直後に幾分増加したようにも思われるが、核爆発に明らかに関連づけられるほどではない。また高度による変化についても特に明白な傾向は出ていない。

Figs. 3, 4 は12月25日に採取した約 18,000 pCi/m³の β 放射能を示した試料の γ 線スペクトルである。Fig. 3 は起爆3日後の12月26日午後測定した1 MeV以下のエネルギーについてのスペクトルであり、Fig. 4 は28日に測定した2 MeVまでのエネルギーについ

Fig. 4 γ -ray spectrum of the radioactive airborne dusts measured on 28 Dec.

てのスペクトルの例である。スペクトルに明瞭に現われているピークは、1 MeV 以下では ^{239}Np の 0.106,

0.278, 0.228, ^{99}Mo の 0.140, 0.181, 0.741, ^{143}Ce の 0.294, 0.722, ^{132}I の 0.67, 0.78 MeV 等の各光電ビ

Table 2 Results obtained from quantitative analysis by mass spectrometry

Atomic Element No.	Sample No. 1		Sample No. 2		
	Component (%)	Concentration in air ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Component (%)	Abundance (%)	Concentration in air ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
3 Li	0.04	0.004	3.60		0.472
			(87.2)	85.4	(0.412)
			(12.8)	14.6	(0.060)
4 B	0.59	0.060	0.04		0.005
9 F	0.004	0.0004	—		—
11 Na	9.51	0.977	14.37		1.881
12 Mg	0.08	0.008	0.03		0.003
13 Al	0.04	0.004	0.02		0.003
14 Si	27.24	2.798	42.12		5.514
15 P	0.05	0.005	0.01		0.002
16 S	—	—	3.07		0.402
17 Cl	3.24	0.333	2.37		0.310
19 K	31.91	3.277	8.48		1.111
20 Ca	0.0006	0.0001	—		—
22 Ti	0.05	0.005	0.09		0.012
23 V	0.04	0.004	—		—
24 Cr	0.26	0.027	0.004		0.0006
25 Mn	0.007	0.0007	0.004		0.0006
26 Fe	1.35	0.139	0.42		0.054
27 Co	0.04	0.004	—		—
28 Ni	0.08	0.008	0.10		0.014
29 Cu	0.46	0.047	0.13		0.016
30 Zn	18.36	1.886	19.69		2.578
32 Ge	0.003	0.0003	0.02		0.003
34 Se	0.005	0.0006	—		—
35 Br	0.001	0.0001	—		—
48 Cd	0.38	0.039	0.03		0.004
50 Sn	0.11	0.011	—		—
82 Pb	0.49	0.05	0.04		0.005
etc.	5.65	0.582	5.36		0.699
Atomic Element No.	Sample No. 3		Sample No. 4		
	Component (%)	Concentration in air ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)	Component (%)	Abundance (%)	Concentration in air ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
3 Li	0.26	0.021	1.49		0.125
			(90.8)	89.4	(0.113)
			(9.2)	10.6	(0.012)
4 B	1.29	0.102	0.10		0.009
9 F	0.01	0.001	0.002		0.0002
11 Na	3.96	0.315	14.94		1.257
12 Mg	0.13	0.010	0.45		0.038
13 Al	0.06	0.004	0.39		0.034
14 Si	60	4.767	48.77		4.104
15 P	0.09	0.008	0.22		0.019
16 S	0.31	0.025	20		1.683
17 Cl	0.55	0.043	0.22		0.018
19 K	12.66	1.006	9.29		0.782
20 Ca	—	—	0.003		0.0003
22 Ti	0.06	0.005	0.13		0.011
23 V	0.03	0.002	0.04		0.004
24 Cr	0.02	0.002	0.06		0.005
25 Mn	—	—	0.02		0.001
26 Fe	0.07	0.005	1.12		0.094
27 Co	0.07	0.005	—		—
28 Ni	—	—	0.004		0.0004
29 Cu	0.16	0.013	0.16		0.013
30 Zn	11.02	0.876	1.32		0.111
32 Ge	0.01	0.0008	0.002		0.0002
34 Se	0.003	0.0002	—		—
35 Br	0.003	0.0003	—		—
48 Cd	0.32	0.026	—		—
50 Sn	—	—	—		—
82 Pb	0.10	0.008	0.02		0.002
etc.	8.81	0.70	1.24		0.105

* Sample No. 1: Collected 11, 18, 31 Oct. and 24 Nov.

No. 2: Collected 25, 26, 27 Dec.

No. 3: Collected 30 Jan., 6, 12, 20 Feb.

No. 4: Collected 27 Mar., 1, 19, 22 Apr.

ーク, また 1 MeV 以上では ^{97}Zr の 1.02 および ^{140}La の 1.6 MeV の光電ピークであるが, これらのうち ^{239}Np のピークがもっとも優勢である。

^{238}U をタンパーとして使用した場合の核爆発反応によって生ずる ^{237}U の放射性降下物中からの検出については, すでにいくつかの報告^{(7)~(9)}がある。本試料については, γ 線スペクトロメトリーからは確認することができなかった。したがって, もし存在するとしてもその量はきわめて少ないものと思われる。

Table 2 は, 採集浮遊塵の組成成分の質量分析器による分析結果を示す。各試料とも約20余種の元素が検出されたが, そのうち Si, Na および K の含有量が大きく全体の約70%をしめている。これら検出された組成成分を理科年表等に表示されている土壤母材としての火成岩や堆積岩の平均化学組成と比較すると, Na および K の含有量が大きいのに反して, Al, Fe および Ca 等が非常に小さくなっている。一方, フォールアウト粒子の組成成分については, 真室らによって報告^{(10)~(12)}されているように, Fe, Ca, Si および Al 等数種の元素が主体をなし, 一般的には Fe が多いといわれている。なお, これら元素の成分比は, その粒子の生成条件によって広い範囲に異なるといわれている。Si, Na および K の含有量が大きいという本分析結果は, 浮遊塵の主要構成物質が単に土壤物質に由来するもののみでないことを示していると考えられる。また, 核爆発直後の試料についてもほぼ同様な分析結果が得られたことは, その主要構成物質もフォールアウト粒子ではなかったことを示している。いずれにしても, 本分析結果については目下のところまだ満足な説明が与えられない。

Table 2 に見られるように, 一般的にいう塵の主要成分については, 核爆発直後および平常時の相異は特に見られない。しかし Li 元素の空中濃度については, 爆発直後のものがその前後に比べて明らかに高い。すなわち, 核爆発の約1ヵ月前の試料の約120倍, 爆発後の2月試料の約23倍となっている。また4月試料は2月試料よりは増加しているが, 核爆発直後の試料の $\frac{1}{4}$ の値を示すにすぎない。したがって, この結果から見ると, 核爆発によって Li 元素が大気中に放出され, その後拡散移流の結果空中濃度は減少して行き, 4月にはスプリングピークによる過去の塵の影響が加わって含有量が増加したものと考えられる。なお, Li

元素の質量数 6 と 7 の存在比を見ると, 核爆発直後の試料では, ^6Li が天然のものの場合に比べて約2倍の14.6%を示している。爆発前後の10月および2月の試料については存在比を精確に測定することができなかったが, 4月試料では10.6%という測定値が得られ, これは天然の存在比に比べて1.4倍となっている。このような爆発直後における Li 濃度増加および ^6Li の存在比の増加のすべてが爆弾から放出された Li によるものであるとすることはできないとしても, 核爆発に強く関連していると結論することは妥当と考える。また U 元素についても検出をはかったが, いずれの試料からも確認することはできなかった。

以上の結果を総合すると, 核爆発直後における放射能に関しては, その空中濃度が急激に増大し, 新しい核爆発生成物の存在が明瞭に確認でき, また含有核種についても推定できた。一方, ^{237}U は検出できず, したがって熱核反応は起こらなかったと推定されるが, 核爆発直後において Li 元素の空中含有量が増加したこと, および質量数 6 の存在比が天然のものの場合の約2倍であったことは, この核爆発実験において放出された濃縮 ^6Li に起因するものと考えられる。

本研究の実施に当って質量分析および核種分析についてご援助, ご協力下さった東芝中央研究所の寺田実男博士はじめ近藤正之氏, 高柳誠一氏, 梅宮伸夫氏に深く感謝いたします。

— 参 考 文 献 —

- (1) 木村健二郎: 分析化学, 3[4], 335(1954).
- (2) MAMURO, T., MATSUNAMI, T.: *Nature*, 218 [5141], 555~556 (1968).
- (3) 気象協会: 地球物理学文献抄, 10, 407~451(1963).
- (4) URAI, T.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 2 [1], 18 (1964).
- (5) URAI, T.: 本誌, 5[9], 735 (1963).
- (6) 三宅泰雄: 科学, 34[3], 143(1964).
- (7) 真室哲雄, 他: 本誌, 8[5], 242~248 (1966).
- (8) 三宅泰雄, 他: 放射線影響学会第7回研究発表会, (1965).
- (9) 小山誠太郎, 他: 同上第8回研究発表会, (1966).
- (10) 真室哲雄, 他: 本誌, 5[6], 491~497 (1963).
- (11) 真室哲雄, 他: 同上, 8[6], 309~316 (1966).
- (12) KEMMOCHI, M.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, 3[3], 106~113 (1966).