4 価のウランが流出しはじめる時にあらわれる大きな分離効果の数値(表中, Δr の値で太字で示したもの)のみを代入して得られた値を第 4 表中(b)に示す。

第 4 表 分離係数

	塩酸濃度 (N)	4 価(%)	分離係数	
			(a)	(b)
1	2.0	98	1.00033	1.00028
2	2.0	84	1.00048	1.00040
3	0.6	87	1.00038	1.00030

4 価のウランを主成分とする塩酸溶液を用いた本実験では、陽イオン交換樹脂による同位体分離効果はかなり大きいものであることが明らかとなった。さらに溶液の酸濃度を変えることにより、また、架橋度の異なった樹脂を用いることなどにより、より大きな分離係数を得ることが期待できよう。

(1962年 8月9日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) T. I. TAYLER: *National Bureau of Standards*, SAM Rept. A-314.
- (2) T. I. TAYLER: *University of Minnesota & National Bureau of Standards*, Washington D.C., unpublished work.
- (3) F. H. SPEDDING, J. E. POWELL, et al.: *AEC Rept. ISC-475*, (1954); declassified (1958).
- (4) 垣花秀武, 野村昭之助, 小平 潔: 本誌, 3, No. 7, 519 (1961).
- (5) 垣花秀武, 野村昭之助, 森 芳弘: 同上, 3, No. 11, 849 (1961).
- (6) H. KAKIHANA, T. NOMURA, Y. MORI: *J. Inorg. Nucl. Chem.*, in press.
- (7) H. KAKIHANA: 'Fundamental Study on the Ion Exchange Separation of Lithium, Nitrogen & Uranium Isotopes', *J. Chim. Physique*, in press.
- (8) E. GLUECKAUF: *J. Am. Chem. Soc.*, 81, 5262 (1959).

研究論文

259. フォールアウト粒子に関する研究, (II)

真室 哲雄*, 吉川 和子*, 松並忠男*, 藤田 晃*, 東 俊雄*

Studies on Fall-out Particles, (II)

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

In this article are reported the experimental results obtained by γ -ray spectrometry about the so-called fractionation effect^{(7)~(10)} that the radiochemical composition of highly radioactive fall-out particles is different from that of average fission products. Figs. 1 (a) and (b) are the γ -ray spectrum of a filter-paper on which air-borne dusts were collected on Nov. 8, 1961 and that of a highly radioactive particle which was found in the yard of our laboratory at that time, respectively. The radiochemical composition of the particle was strongly enriched in $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ and impoverished in ^{103}Ru , $^{140}\text{Ba} + ^{140}\text{La}$, ^{131}I and $^{141}\text{Ce} + ^{144}\text{Ce}$. Figs. 2(a),(b) and (c) are shown as another example showing the fractionation effect clearly. Figs. 4 and 5 show the decay characteristics of radioactivity of highly radioactive particles. Fractionation factors defined by Eq.(1) were calculated for many highly radioactive particles and the results are summarized in Table 1. The yield values for fast fission of ^{238}U , as shown

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

in Table 2, were used on carrying out the calculation of fractionation factors. Twenty one of the highly radioactive particles which are given in Table 1 were actually isolated from among non-radioactive dust particles⁽⁶⁾. In Fig. 6 is given the relation between particle radioactivity and fractionation factor for $^{141}\text{Ce} + ^{144}\text{Ce}$, showing that particles of larger radioactivity were more affected by the fractionation effect. Fractionation factors for ^{103}Ru were smaller than 0.1 for all the particles and those for $^{141}\text{Ce} + ^{144}\text{Ce}$ were smaller than 0.6 for almost all of the particles. The fractionation effect is the most remarkable for ^{103}Ru and, moreover, seems to extend to much smaller particles for ^{103}Ru than for $^{141}\text{Ce} + ^{144}\text{Ce}$. Fig. 7 is an example showing the fractionation effect which was observed in rain water. From the test sample of small quantity in which the fractionation effect is remarkably observed, may be obtained a higher measured value of the concentration of fall-out than that which would be obtained from an average sample of much larger quantity. Such a case may often take place just after a large scale nuclear detonation, especially when the quantity of sample is too small.

緒 言

1961年9月初めから10月末にかけて行なわれたソビエトの一連の核爆発実験のために、日本全国にわたって強い放射能を帯びたフォールアウト粒子が落下したことはよく知られている⁽¹⁾⁻⁽⁶⁾。これらの強放射能粒子に関して観測した結果を第I報に引き続いてとりまとめて報告する。本報では、強放射能粒子の放射化学的成分が微細なフォールアウトのそれと異なる現象 (fractionation effect と呼ばれている) をγ線スペクトルの測定によって調べた結果について主として述べる。

I. Fractionation effect および Fractionation factor

核爆発に際して高温に熱せられた爆発生成物は周囲に拡がりながら気体の状態から次第に凝結して液滴状となり、ついで固化すると考えられる。したがって、こうして生成したフォールアウト粒子は表面張力のために球形となる。この際、凝結しやすい生成物は密度の比較的高い所で凝結するから、大きい粒子ではこれらの含有率が高くなるのではないかと推測される。一般に核爆発に伴う高温のためにフォールアウト粒子によって放射性核種の含有率が異なってくる現象は fractionation effect と呼ばれている⁽⁷⁾⁻⁽⁹⁾。

Fractionation の程度を表わすために fractionation factor なる量が考えられているが、これは次式で定義されている。

$$f = \left(\frac{N(A)}{N(^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb})} \right)_{\text{exp.}} \times \left(\frac{N(^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb})}{N(A)} \right)_{\text{theor.}} \quad (1)$$

ここに $N(A)$ は問題としている核種 A の放射能、 $N(^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb})$ は $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ の放射能である。添字 exp.

および theor. はそれぞれ ( ) 内の値が実験的および理論的に求められた値であることを示す。

つぎのような理由から粒子によって放射性核種含有率が異なることもありえよう。たとえば、核分裂に際して ^{90}Sr は下記のような崩壊を経て希ガス ^{90}Kr から生成する。したがって、 ^{90}Sr は核爆発後比較的遅く凝結するように考えられる。

一方また、 SrO は化学的に不安定であるので大気浮遊中に変化を受けやすい。したがって、強放射能粒子の ^{90}Sr の含有率は微細なフォールアウトのそれに比べて小さいのではないかと推測される。

II. 強放射能粒子の示すγ線スペクトルの特異性

1. Fractionation effect の例 1

Fig. 1 (a) は1961年11月8日の集塵濾紙について11月15日に測定したγ線スペクトル図であり、(b) はちょうどその頃に採取した1個の強放射能粒子について11月29日に測定したγ線スペクトル図である。スペクトルは128チャンネル波高分析器と $1\frac{1}{2}''\phi \times 2''$ の NaI クリスタルを用いて測定した。一見して両者の間に極めて顕著な相異があることがわかる。強放射能粒子では $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ の含有率が極めて高く、逆に ^{103}Ru , $^{140}\text{Ba} + ^{140}\text{La}$ および ^{131}I の含有率が極めて低く、 ^{141}Ce および ^{144}Ce の含有率もやや低い。

2. Fractionation effect の例 2

Figs. 2 (a), (b) および (c) のγ線スペクトル図は fractionation effect を明らかに示すもう1つの例として掲

Fig. 1(a) γ -ray spectrum of the filter-paper on which air-borne dusts were collected on Nov. 8, 1961, measured on Nov. 15

Fig. 1(b) γ -ray spectrum of a highly radioactive particle, measured on Nov. 29, 1961

Fig. 2(a) γ -ray spectrum of a highly radioactive particle (Particle P), measured on Mar. 13, 1962

Fig. 2(b) γ -ray spectrum of the dust sample collected at an air-filter, measured on Mar. 13, 1962

Fig. 2(c) γ -ray spectrum of the dust sample which was prepared by excluding larger fall-out particles, measured on Mar. 16, 1962

げた。これらのスペクトル図は比較対照の便のために

$^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ の光電ピークの高さを揃えて描かれている。(a)の測定試料は1個の強放射能粒子である。この粒子は後述するように放射能の減衰特性から10月30日に生成したものと推定される。(b)の測定試料は大阪府立病院手術室の給気用フィルタ(金属メッシュ製)に付着していた塵埃の一部で、1962年2月に採取したものである。この塵埃中の大部分の放射性塵も後述する理由から10月30日に生成したものと推定される。(c)の測定試料はつぎのようにして作られた。大阪府立病院手術室の給気用フィルタから採取した塵埃をガムドペーパーの面に一様に付着させ、これを富士工業用X線フィルム No. 200 に2日間密着してオートラジオグラフをとった。オートラジオグラフ上には比較的小さいスポットが散在していたが、スポットの径から判断してこのガムドペーパー上には1961年11月頃において $m\mu\text{c}$ 程度以上の放射能を示したと考えられる強放射能粒子は存在していなかった。つぎに、フィルムにスポットを

生じなかったガムドペーパーの部分を取り取って集め、これを測定試料(c)とした。したがって、この測定試料は非常に低い放射能のフォールアウト粒子の集合であって、X線フィルムにスポットを生じる程度の強さの放射能を持つフォールアウト粒子を全然含まない。

(a)と(c)を比較対照すると、強放射能粒子が微細なフォールアウト粒子に比べて $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ の含有率が高く、 ^{103}Ru の含有率が極めて低く、 ^{141}Ce および ^{144}Ce の含有率も低いことが明らかにわかる。(b)と(c)を詳細に比較すると、測定試料(b)の ^{103}Ru または $^{141}\text{Ce}+^{144}\text{Ce}$ の含有率が測定試料(c)のそれよりも幾分小さいことがわかる。これらのスペクトルの測定は1962年3月中旬に行なわれたので、 ^{131}I 、 $^{140}\text{Ba}+^{140}\text{La}$ などの光電ピークはほとんど認められない。スペクトルの210 keV付近に現われているピークは、主として $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ の754,722および760 keVの γ 線によるback scatterのピークおよび ^{95}Nb の231 keVの光電ピークによると考えられる。

(a)の測定試料である強放射能粒子について、 $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ の放射能の減衰を実測した結果をFig. 3において○印で示した。測定は754,722および760 keVの $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ の光電ピークを調べることによってなされた。曲線Aは10月30日に核分裂を起こしたとして計算した $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ の放射能減衰曲線である(分裂時において ^{95}Nb の放射能が0であると仮定)。実測点が計算曲線によく乗っていることから、この強放射能粒子は10月30日に生成したものであると推定される。(b)の測

Fig. 3 Decay characteristics of activity of $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$

定試料である塵埃についても上と同様な考察をしてみると、実測点●印が計算曲線Bによく乗っている。したがって、塵埃放射能の大部分が10月30日の核分裂生成物によるとみてよいことがわかる。

3. 強放射能粒子の放射能減衰特性

強放射能粒子の γ 線スペクトルの時間的変化の例をFig. 4に掲げる。また、いくつかの強放射能粒子のgross activityの減衰曲線をFig. 5に示す。起爆日を10月30日としてHunter-Ballouの法則があてはまるかを調べたところ、放射能の低い粒子RおよびSは比較的良好にこの法則に従うが、粒子PおよびQは従わない。これは起爆日の設定の誤りよりはむしろ放射性核種含有率の相異によると考えられる。 γ 線スペクト

Fig. 4 Change of γ -ray spectrum of a highly radioactive particle (Particle P)

Fig. 5 Decay of gross activity of highly radioactive particles (Particles P, Q, R and S)

ルからみると、後者の方が前者よりも fractionation effect をより大きく受けている。

II. Fractionation factor の計算

採取した数多くの強放射能粒子について γ 線スペクトルをとり、(1)式にしたがって fractionation factor f を計算した結果を Table 1 にとりまとめた。ただし、(1)式の theor. の値は ^{238}U の高速中性子による核

分裂の場合について計算し、収率値としては Table 2 の値を用いることにした⁽¹¹⁾⁽⁹⁾。核分裂物質としては ^{238}U の他に ^{235}U , ^{239}Pu , ^{232}Th などが考えられるが、一応 tamper 物質が ^{238}U であったと仮定して計算を試みた。各試料について10月1日、10月23日および10月30日の3種の起爆日を仮定して f を計算したが、試料の大多数は10月30日に生成したと考えて間違いないと考えられる。

Table 1 Fractionation factors

Sample No.	Estimated β activity at the beginning of Nov. 1961 (m μ c)	Particle diameter (μ)	Date of γ -ray spectrometry	Sampling place	Fractionation factor					
					Assumed date of explosion					
					Oct. 30, 1961		Oct. 23, 1961		Oct. 1, 1961	
					$^{141}\text{Ce} + ^{144}\text{Ce}$	^{103}Ru	$^{141}\text{Ce} + ^{144}\text{Ce}$	^{103}Ru	$^{141}\text{Ce} + ^{144}\text{Ce}$	^{103}Ru
No. 1	24	10.1	June 11, 1962	air-filter	0.45	~ 0	0.45	~ 0	0.40	~ 0
No. 2	25	10.4	June 18, 1962	air-filter	0.40	~ 0	0.40	~ 0	0.35	~ 0
No. 3	16	8.7	June 12, 1962	air-filter	0.25	~ 0	0.25	~ 0	0.25	~ 0
No. 4	87	13.9	June 11, 1962	air-filter	0.25	~ 0	0.25	~ 0	0.25	~ 0
No. 5	18	9.8	June 9, 1962	air-filter	0.30	~ 0	0.30	~ 0	0.30	~ 0
No. 6	13	9.0	June 18, 1962	air-filter	0.50	~ 0	0.50	~ 0	0.45	~ 0
No. 7	22	10.1	June 27, 1962	air-filter	0.40	~ 0	0.40	~ 0	0.35	~ 0
No. 8	20	11.8	June 29, 1962	indoors	0.30	~ 0	0.30	~ 0	0.25	~ 0
No. 9	6.3	8.4	June 30, 1962	indoors	0.50	~ 0	0.50	~ 0	0.45	~ 0
No. 10	23	11.3	July 2, 1962	air-filter	0.25	~ 0	0.25	~ 0	0.20	~ 0
No. 11	14	9.0	June 14, 1962	air-filter	0.50	~ 0	0.50	~ 0	0.45	~ 0
No. 12	16	9.2	June 28, 1962	air-filter	0.70	~ 0	0.70	~ 0	0.60	~ 0
No. 13	17	12.1	June 29, 1962	air-filter	0.55	~ 0	0.50	~ 0	0.50	~ 0
No. 14	5.8	6.9	June 30, 1962	air-filter	0.85	~ 0	0.85	~ 0	0.75	~ 0
No. 15	16	10.1	June 15, 1962	air-filter	0.35	~ 0	0.35	~ 0	0.30	~ 0
No. 16	24	10.4	June 8, 1962	air-filter	0.50	~ 0	0.50	~ 0	0.45	~ 0
No. 17	32	10.1	June 28, 1962	air-filter	0.40	~ 0	0.40	~ 0	0.35	~ 0
No. 18	12	8.1	June 16, 1962	air-filter	0.65	~ 0	0.65	~ 0	0.60	~ 0
No. 19	8.3	8.7	June 26, 1962	air-filter	0.60	~ 0	0.60	~ 0	0.55	~ 0
No. 20	10	8.7	June 27, 1962	air-filter	0.60	0.02	0.60	0.02	0.55	0.03
No. 21	11	10.4	June 15, 1962	air-filter	0.35	~ 0	0.35	~ 0	0.35	~ 0
L	17	-	Feb. 27, 1962	indoors	0.25	0.07	0.25	0.07	0.30	0.12
M	11	-	Feb. 27, 1962	indoors	0.40	0.04	0.40	0.05	0.50	0.06
N	9.6	-	Feb. 26, 1962	indoors	0.35	~ 0	0.35	~ 0	0.40	~ 0
O	13	-	Mar. 16, 1962	indoors	0.50	~ 0	0.55	~ 0	0.60	~ 0
P	24	-	Feb. 27, 1962	outdoors	0.30	0.04	0.30	0.05	0.40	0.06
Q	12	-	Feb. 16, 1962	outdoors	0.25	~ 0	0.25	~ 0	0.30	~ 0
R	3.0	-	Dec. 7, 1961	outdoors	0.50	0.03	0.60	0.03	0.80	0.04
The dust sample the γ -ray spectrum of which is given in Fig. 2 (b)			Mar. 13, 1962	air-filter	0.85	0.45	0.90	0.50	1.10	0.55
The dust sample the γ -ray spectrum of which is given in Fig. 2 (c)			Mar. 16, 1962	air-filter	1.00	0.55	1.05	0.60	1.25	0.70

Table 2 Assumed fission yield for fast fission of ^{235}U

Nuclide	Yield (%)
^{95}Zr	5.7
^{103}Ru	6.6
^{141}Ce	5.6
^{144}Ce	4.5

(1)式の $(N[A]/N[^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}])_{\text{exp.}}$ の N を求めるに際してつぎの点に留意した。 $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ の750 keV付近の光電ピークより高いエネルギー範囲では、顕著な光電ピークや連続スペクトルはないので、 $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ の750 keV付近の光電ピークには他の核種の存在による影響はないと考えた。 ^{103}Ru と $^{141}\text{Ce}+^{144}\text{Ce}$ の光電ピークについては $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ のコンプトン・スペクトルをグラフ上で差し引いて評価した。なお、NaIクリスタルの photoefficiency は γ 線の全吸収量と photofraction の計算値から求めた⁽¹²⁾。強放射能粒子は ^{131}I や $^{140}\text{Ba}+^{140}\text{La}$ の含有率も低い、これらは半減期が短いので f を測定することができなかった。

Table 1 の強放射能粒子 No. 1~21 は実際に他の塵の粒子から選別して1個だけとり出したものである(第I報⁽⁶⁾のTable 2 参照)。Table 1 からつぎの傾向が明らかに読み取れる。 ^{103}Ru の f はいずれの粒子についても0.1以下であり、 $^{141}\text{Ce}+^{144}\text{Ce}$ の f もほとんど0.6以下である。前者の方が後者よりも fractionation の程度が大きい。Fig. 6 は $^{141}\text{Ce}+^{144}\text{Ce}$ の f と粒

Fig. 6 Relation between particle radioactivity and fractionation factor for $^{141}\text{Ce}+^{144}\text{Ce}$

子の放射能(1961年11月上旬地表落下時の推定値)の関係をプロットしたものである。粒子の放射能が大きいほど——粒径の大きいほど——fractionation effect が大きい傾向が認められる。

Table 1 の粒子 P, Q および R はⅡ-3において述べた強放射能粒子である。粒子 S については放射能が低すぎたため f の計算は行なわなかった。

Ⅱ-2において述べた測定試料(a)は粒子 P であった。なお、Table 1 の最下部に、測定試料(b)および(c)について f を計算した結果を掲げた。試料(c)について $^{141}\text{Ce}+^{144}\text{Ce}$ の f がほとんど1であるのに対して、 ^{103}Ru の f は約0.6であって、 ^{103}Ru に関してはなお fractionation effect が認められる。もし Table 2 の収率値が正しいものとするならば、この理由としてつぎのようなことが考えられる。試料(c)は大阪府立病院手術室のエアーフィルタから採取されたものであったが、エアーフィルタは金属メッシュ製であったため極めて微細なフォールアウト粒子のかんりの部分が通過してしまい、フィルタにかかった粒子は比較的大きい粒径のものにかたよったと考えられる。オートラジオグラフにスポットを生じる程度の粒子を除去して作られた試料(c)になお ^{103}Ru について fractionation が認められるということは、 ^{103}Ru は $^{141}\text{Ce}+^{144}\text{Ce}$ に比べて fractionation effect を大きく受けるのみならず、はるかに小さいフォールアウト粒子に至るまで及ぼされていると推測される。

Ⅳ. 雨水にみられた Fractionation effect

1961年11月17日の雨水(雨量37.6 mm)は降り始め0~1, 1~2, 2~3 mmの試料がそれぞれ0.19, 0.10, 0.03 $\mu\text{c/l}$ の放射能濃度を示した(採取雨量はそれぞれ約

Fig. 7 Fractionation effect observed in rain water on Nov. 17, 1961, γ -ray spectra were measured on Feb. 24, 1962.

100 ml, 放射能は降雨開始後 21 時間に測定)。降り始め 0~1 mm の雨水 103 ml および当日の平均の雨水 30 l をそれぞれ蒸発乾固して γ 線スペクトルをとった。これらをそれぞれ Fig. 7 に ●印および○印で示す。両者でスペクトル分布が異なっているが、この相異は明らかに降り初めの雨水にかなりの強放射能粒子が混在していたことを示すものである。雨水の放射化学的分析を行なうような場合、放射能濃度が高いという理由から降り始めの雨のみを広い面積の受器をもつ雨水採取器で集めこれを分析試料にすると、平均の降雨の分析結果とは異なった結果を得る場合がある。

雨水や大気放射能に限らず、種々の環境物質に含まれる放射能を調べる場合にも、fractionation effect が認められるような試料中には強放射能粒子が含まれていると一応考えてよい。もし試料の全放射能のうちで強放射能粒子の放射能の占める割合が大きければ、このような試料について得られたフォールアウト濃度の測定値は一般に大きく出ることがいえよう。逆に、fractionation effect が全然認められない試料からは、正しいかまたは小さい目の濃度測定値が得られることになろう。

本研究は原子力平和利用委託研究費の交付を受けて行なわれた試験研究の一部である。種々ご尽力賜わ

た科学技術庁の関係各位に厚く感謝申し上げます。

(1962年 8月17日 受理)

— 参 考 文 献 —

- (1) 小山誠太郎：私信。
- (2) 小林宇五郎，佐々木秀穂，外山 巖：新潟大学工学部研究報告，(1962)。
- (3) 真室哲雄，藤田 晃，松並忠男，吉川 和子，東 俊雄：本誌，4，No. 5，299 (1962)。
- (4) T. MAMURO, A. FUJITA, T. MATSUNAMI, K. YOSHIKAWA, T. AZUMA : *Ann. Rept. Radiation Center Osaka Pref.*, **2**, 10 (1961)。
- (5) T. MAMURO, A. FUJITA, T. MATSUNAMI, K. YOSHIKAWA, T. AZUMA : *Nature*, **194**, 643 (1962)。
- (6) 真室哲雄，藤田 晃，松並忠男，吉川和子：本誌，4，No. 11，766~773 (1962)。
- (7) C. E. ADAMS : *US. NRDL-Tr*-209, (1958)。
- (8) K. EDVARSON, K. LÖW, J. SISEFSKY : *Nature*, **184**, 1771 (1959)。
- (9) C. S. COOK, R. L. MATHER, R. F. JOHNSON, F. M. TOMNOVEC : *ibid.*, **187**, 1101 (1960)。
- (10) A. SITTKUS : *Naturwissenschaften*, **46**, 399 (1959)。
- (11) S. KATCOFF : *Nucleonics*, **18**, 201 (1960)。
- (12) M. J. BERGER, J. DOGGETT : *J. Res. National Bureau Standards*, **56**, 355 (1956)。

研究論文

260. 中性子放射化分析法の研究。(I)

ニッケル中のコバルトの放射化分析

亀 本 雄 一 郎*, 山 岸 滋*

Determination of Impurities by Neutron Activation Analysis, (I)

Determination of cobalt in nickel by activation analysis

By Yuichiro KAMEMOTO and Shigeru YAMAGISHI

The neutron activation analysis has been investigated by means of determining trace quantities of cobalt in nickel metal and nickel salts without chemical separation. The sample was irradiated simultaneously

* 日本原子力研究所 化学部(Div. of Chem., Japan Atomic Energy Res. Inst.)