1955 年 4 月旭川地方に降つた放射性の落下塵

三宅 泰雄*・杉浦 吉雄*・葛城 幸雄*

Radioactive fallout at Asahikawa, Hokkaido in April, 1955

By Y. Miyake, Y. Sugiura and Y. Katsuragi

Meteorological Research Institute, Tokyo

(Manuscript received 4 April, 1956)

Abstract

A remarkable artificial radioactivity was found in a fallout collected at Asahikawa on April 12, 1955. Its specific activity was determined to be 2,660 cpm/g by our measurement carried out on April 22. This is equivalent to about 22.5 m μ C/g. The quantity of fallout amounts to ca. 1.9 g/m². The ordinary chemical analysis was made, and it was clarified that the sample was to be a loess distributed in North China. It is also explained that the radioactivity of the sample is ascribed to the fission products yielded in an experiment of the atomic weapon carried out at Nevada, U.S.A. In addition, the result of radiochemical analysis is described.

§1. はしがき

1955 年 4 月 12 日、旭川地方に放射性の塵を含んだ雨が降つた。この雨は、かなり多量の塵を含んでいた。旭川測候所の報告によると、眼鏡に附着した雨滴の著しい蒸発残渣のために、かなり明瞭な雨痕を認めた、ということである。塵の比放射能は、当研究室における 4 月 22 日の測定によると、2,660 cpm/g であつた。これは、約 22.5 m μ C/g に相当する。第五福竜丸に降つた所謂ビキニの灰の放射能¹⁾ (およそ 1 c/g) とは比べものにならないが、決して軽視することはできない。

放射能の人体に及ぼす影響を考える場合には、単に、計数値の大小のみに限らず、放射性物質の組成も明らかにしなければならない。ビキニ環礁における原子兵器の実験の際に放出された放射性物質の組成は、すでに、多くの研究者によつて究明された²⁾が、特に、著量の U-237 と NP-239 を検出した³⁾ことは、原子兵器の構造を覗かしめるものとして、注目された。以上に示した如く、放射性物質の組成を知るとは、保健上また原子兵器の構成要素の推定上、必要であるので、上記の試料についても、放射化学分析を実施し放射性物

質の組成を明らかにしようと試みた。また一方では、塵そのものの化学分析を行い、その本体を究めることに努めた。その成果について、次に報告する。なお、本試料の一部は、 α 線測定のため、立教大学の田島英三教授に、ノレルコ X 線分光器による鉱物組成の判定のために、東大地質学教室の久野久教授に、また、土壤学的研究のために、東大農学部三井進午教授に、それぞれ送られた。田島、久野両教授よりは、貴重な資料をそれぞれ寄せられたので、その結果の一部を、ここに合せて発表させていただくことにした。

§2. 試料についての予備的知見

北海道地方に放射性塵が降つたのは、4 月 7~8 日の利尻島鬼脇附近が最初で、その強さは採集当時 1,500 cpm/g と報告された。次いで、12~13 日に旭川、上富良野、岩見沢一帯にかけて約 700 cpm/g、さらに 15 日には、小樽、銭函附近と函館附近にそれぞれ 800, 1500 cpm/g の放射性塵が降つた。

本試料は、全部で約 38 g あり、旭川市郊外の一農家の温床障子 (ビニール製、表面積は約 20 m²) に降つた塵の全量にほぼ等しい。従つて、降塵量は、約 1.9 g/m² になる。4 月 22 日に当研究所

* 気象研究所

Fig. 1. Decay curves for radioactivity of dusts fallen at Asahikawa

Fig. 2. Electron-photomicrograph of dusts fallen at Asahikawa

Fig. 3. Tracks of α ray emitted from the surface of radioactive dusts

地球化学研究室で測った塵の比放射能は、前述の如く、2,660 cpm/g すなわち約 22.5 m μ c であつた。

本試料の β 線の見かけの半減期は、第 1 図に示す通り、4 月 22~23 日ごろで 17 日、6 月以降では、約 70 日であつた。試料は灰褐色で直径数 μ ないし 10 数 μ のものが多い。第 2 図に、塵の電子顕微鏡による外観を示す。第 3 図は、本試料の α 線の飛跡を示すオート・ラジオグラムである。これは、田島教授のもとで行われた研究の一部で、精しくは、別に報告される筈である。

試料に塩酸を加えると、直ちに発泡することから、calcite のような炭酸塩が相当多く含まれていると推察される。試料に蒸留水を加えて煮沸する操作を数回繰返したが、これによつて、抽出できる放射能は全体の 1% にも達しなかつた。しかし、塩酸 (6N) と煮沸すれば、約 50% の放射能は溶液の方に移行することを認めた。

§ 3. 塵の化学組成と鉱物組成

塵の主成分を常法に従つて分析した。ただし、炭酸塩は Conway の微量拡散法によつた*。その結果を第 1 表に示す。これをふつうの火成岩と比べて甚だ異なる点は、灼熱減量や $\text{Fe}_2\text{O}_3/\text{FeO}$ 比や炭酸カルシウムの含量がいちぢるしく大きいことである。結論として、この塵は火成岩と水成岩の混合物と察せられる。従つて、火山灰ではない。久野博士によつて行われたノレルコ X 線分析によれば、主成分鉱物は方解石・石英・アルカリ長石で、微量成分鉱物は粘土鉱物・電気石・角閃石・

Table 1. Chemical composition of major constituents of dusts fallen at Asahikawa.

Constituent	%	Constituent	%
SiO_2	54.57	Na_2O	2.08
TiO_2	0.71	K_2O	1.58
Al_2O_3	12.78	P_2O_5	0.27
Fe_2O_3	4.22	H_2O^-	1.73
FeO	2.30	H_2O^+	7.41
MnO	0.70	CO_2	3.31
MgO	2.84	SO_4	0.008
CaO	5.75	Total	100.25

* この分析は、当研究室の猿橋勝子氏が行つた。

紫蘇輝石であるという。この結果を参照して、第1表の化学組成からノルムを計算すれば、第2表のようになる。

Table 2. 'Norm' of dusts fallen at Asahikawa.

Norm	Chemical formula	%
Quartz	(SiO ₂)	28.3
Orthoclase	KAlSi ₃ O ₈	9.5
Albite	NaAlSi ₃ O ₈	17.8
Anorthite	CaAl ₂ Si ₂ O ₈	2.2
Corundum	Al ₂ O ₃	7.1
Hypersthene	(Mg, Fe)O·SiO ₂	8.7
Hematite	Fe ₂ O ₃	4.2
Ilmenite	FeO·TiO ₂	1.4
Apatite	3CaO·P ₂ O ₅	0.6
Calcite	CaCO ₃	7.5
Tremolite	CaMg (SiO ₃) ₄	5.3
Gypsum	CaSO ₄	0.01
Total		92.6

§ 4. 塵の出所について

以上の分析結果から推定される塵の出所について、次に、若干ふれてみたい。

灼熱減量や Fe₂O₃/FeO 比の比較的大きい値は、試料がすでに風化を受けていることを証明する。

また、石英・長石などの比較的風化を受けにくい成分と、受けやすい方解石が共存することからみて、本試料は、乾燥又は半乾燥地帯の土壌であろうと考えられる。以上の諸点とその粒度分布から判断すれば、本試料は所謂レス (Loess) に相当するものと考えることができる。レスというのは、風成の堆積岩のことで、これとロームとの区別は、勿論、化学組成の全般にわたり比較した上でなされるべきであるが、便宜上、(Na₂O+K₂O+CaO)/Al₂O₃ の比の値 如何によつて行われる。すなわち、ロームではこの値が 1 より小さいのに反して、レスでは 1 より大である⁹⁾ (第3表参照)。この基準に照してみれば、本試料はレスとみなすことができる。レスについては、古くから多くの研究がある。第4表には、特に本試料に近い組成を示す北支のレスを比較の

Table 3. Comparison of chemical compositions of dusts fallen at Asahikawa and soil samples collected at several places in the world.

Kind of sample and location	SiO ₂ /Al ₂ O ₃	(CaO+Na ₂ O+K ₂ O)/Al ₂ O ₃
Loess along the Rhein,	10.5	2.3
Sandy loam along the Mississippi	16.2	0.39
Loess loam, Kansas	9.3	0.51
Loess, Hairong province, China	8.8	1.4
Loess, Taiyuan province, China	9.2	1.3
Dusts, Asahikawa	7.3	1.2

Table 4. Comparison of chemical compositions of dusts fallen at Asahikawa and loess samples collected in North China.

Constituent	Kansu	Taiyuan	Asahikawa
SiO ₂	59.30	61.23	54.57
TiO ₂	0.60	0.70	0.71
Al ₂ O ₃	11.45	11.35	12.78
Fe ₂ O ₃	2.32	3.50	4.22
FeO	1.55	1.20	2.30
MnO	—	—	0.70
MgO	1.32	1.14	2.84
CaO	5.96	5.36	5.75
Na ₂ O	1.80	1.65	2.08
K ₂ O	2.17	2.10	1.58
P ₂ O ₅	0.20	0.18	0.27
CO ₂	8.96	7.96	3.31
SO ₄	0.20	0.20	0.007
H ₂ O	0.95	0.64	1.73

Fig. 4. Air trajectories in the Northern Hemisphere in April, 1955

ために掲げておく。

第 4 図は中央気象台の根本順吉氏が描いた流跡線図である。これによると、降塵当時旭川地方の上空を占めていた気塊は、500 mb の高度についてみると、ほぼ 24 時間前に、北支の上空を通過したことが判る。

以上の結果を総合して、本試料は北支のレスであると断定した。

§ 5. 塵の放射化学分析とその結果

予備実験により、塵の全放射能の約 5 割は、塩酸

部については、第 5 表に示すように、放射性物質の組成を決めた。不溶部のうち、2 時間放置後に沈澱した部分を除き、24 時間後に沈澱した部分を集めた。この部分の比放射能は特に強かつたので、全量 1.2 g のうち 0.5 g をとって、炭酸ソーダとともに熔融し以後常法に従つて分析を行つた。陽イオン交換樹脂による分属分離の結果を第 6 図に示す。第 6 図の結果に基いて、前記の不溶部 0.5 g について、第 6 表のように、放射性物質の組成を決めた。

Fig. 5. Elution curve of the hydrochloric acid soluble portion

抽出液に移行することを確認したので、試料をまず、塩酸可溶部と不溶部に分け、その各々について分析を実施した。すなわち、可溶部は一旦陽イオン交換樹脂 (Amberlite IR-120) に吸着させたのち、常法に従つて、分属分離を行つた。その結果を第 5 図に示す。第 5 図の結果に基いて、可溶

Table 5. Result of group analysis of the portion soluble in HCl (1:1).

Fraction	β radioactivity cpm	β radioactivity %
anion	40	1.3
0.5% oxalic acid effluent	45	1.5
5% ammonium citrate effluent	2,160	73.5
alkaline earths	570	19.4
alkali	127	4.3

Fig. 6. Elution curve of the hydrochloric acid insoluble portion

Table 6. Result of group analysis of the portion insoluble in HCl (1:1).

Fraction	β radioactivity cpm	β radioactivity %
anion	35	2.0
0.5% oxalic acid effluent	104	6.0
5% ammonium citrate effluent	1,320	74.5
alkaline earths	230	13.0
alkali	80	4.5

次に、それぞれの区分について得られた放射能の減衰曲線とエネルギー吸収曲線に基いて、各区分に含まれる核種を推定した。その結果、5 月 24 日現在、本試料に含まれる核種は第 7 表の通りと推定された。

Table 7. Result of radiochemical analysis of radioactive dust fallen at Asahikawa.

Nuclide	Half life	Energy of β ray Mev
Ru —103	39.8 d	0.22
Te —129 m	33.5 d	0.1
Te —129	72 m	1.8
Zr — 95	65 d	0.38
Nb — 95	35 d	0.16
La —140	40 h	1.32
(Ce —143)	33 h	1.39
Y — 91	61 d	1.54
Nd —147	11.3 d	0.83
(Pm—147)	2.6 y	0.22
Pr —143	13.7 d	0.93
Ce —141	33.1 d	0.44
Ce —144	282 d	0.30
(Sr — 83)	38 h	1.35
Sr — 89	53 d	1.46
Ba —140	12.8 d	1.02
Cs —136	13.7 d	0.35

§ 6. 旭川の塵の放射能の出所について

先に、本試料は火山灰ではなく、北支の黄土であろうと述べたが、放射能の源については、これとは別に考えている。原爆実験の日(3月29日)から算えた日数を横軸に、放射能の強さを縦軸にとつて、放射能の減衰曲線を描くと、観測点はかなりよく一直線上にのり、かつ、その勾配は1.25となる。このように、前記の操作によつて得られた塵の放射能の減衰曲線の勾配が、U-235の核分裂生成物の示す放射能の減衰曲線について見られる

勾配(1.2)に近いことは、3月29日を実験施行の日とする説を支持するものと思われる。事実、米国の発表によれば、3月29日にネバダで原爆実験が行われた。従つて、旭川の塵の放射能は、3月29日に米国ネバダ州で行われた実験の際放出された核分裂生成物による、と考えられる。

放射性微塵は大西洋を越え、ヨーロッパ、中央アジアを経て、ネバダを発してから約15日後に、北海道に達したと考えられる。これより、放射性微塵の平均移動速度は約20 m/secとなる。この移動の途中で、放射性微塵は地上から舞上つた黄土に捕捉されて、この放射性塵を形成したものと断定される。

終りに、本研究に対して、快く御協力下さつた立教大学田島教授、同じく道家忠義氏、東大久野教授、三井教授、また、レスに関する文献を貸与された教育大の関口武助教授、流跡線図の作製に当られた中央気象台の根本氏、炭酸の分析を担当した当研究室の猿橋氏、以上の方々に対して厚く感謝の意を表する。

文 献

1. 木村健二郎 (1954): 分析化学 **3**, (4), 336.
2. 分析化学 **3** (4), (1954): “ビキニの灰”の分析特集に精しい報告がある。
3. 横山裕之 (1955): 放射能雨の化学に関する懇談会、第1集、気象研究所。
4. 猿橋勝子 (1955): 分析化学 **4** (5), 337.
5. Scheidig, A. (1934): “Der Löss und seine geotechnischen Eigenschaften” Dresden & Leipzig, 73.