核爆発実験中止後2年経過した核分裂生成核種の空气中濃度*

笠 井 篤

(日本原子力研究所保健物理部)

(昭和36年5月8日 受理)

緒 言

核爆発実験が1958年10月末で、一部の小規模

なもの*を除いて中止して以来、2年有余経過している。この間に、核分裂生成物の地上への降下量は、1959年7月を界にして著しく減少してきていることを観測している**。そして原子力施設周辺の空気汚染を、明確に評価するために、核爆発実験中止後2年経過した1960年10月に、核爆発により生じた核種の確認と、 ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の空气中濃度を求めた。

試料の採取は、大容量湿式電気集塵器を用いたが、この集塵器は、原子力施設周辺の空気汚染を監視するため、とくに化学分析が可能な量の空気を短時間で集塵しうる装置として設置したものである。構造をFig.1に示した。集塵電極は、直径3cm、長さ150cmのアルミ合金の中央に、ステンレススチールの針金をつるしたもの392本からなっている。これに最高約8kVの、直流電圧をあたえコロナ放電をおこさせる。この電極に水蒸気を送りこむ。電極の外側は冷却水が通っており、水蒸気は吸引した塵埃とともに集塵され、同時に塵埃を洗い出す。試料は懸濁液となって採取される。その液量は、約30分間の集塵で7~8l程度である。最初にこの集塵器の集塵効率を自然放射能を測定することにより求め、つぎに集塵器内の風速を測定して吸

Fig.1 Large volume air sampler

* 1961. 2. 16 第2回原子力研究総合発表会に“大容量湿式電気集塵器による ^{90}Sr 、 ^{137}Cs の定量”と題して発表

* フランスが小規模な核爆発実験を数回おこなっている。

** 日本原子力研究所保健物理部発行野外管理季報 No.15

引量を求めた。

この集塵器で 1960 年 10 月に、21,000 m³ と 13,100 m³ の空気を吸引し、試料を採取した。この 2 つの試料について、まず 256 channel pulse height analyzer で、¹⁰⁶Ru, ¹⁴⁴Ce, ¹³⁷Cs, などの核種を確認し、さらにそれらの核種の相対比率を求めた。続いて同一試料について、⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs のみを対象に化学分析し、空气中濃度を決定したものである。

実験とその結果

1. 集塵効率の測定

直径 10 cm のロ紙式集塵器 (staplex) で約 20 分集塵し、終了直後にロ紙のまま G-M 計数装置で測定すると、約 50 cpm 程度の計数率であった。しかし急速に減衰が認められるので、これは空气中的自然放射能ラドン、トロンの系統であることが推定される。この自然放射能を測定することにより集塵器の集塵効率を求めた。すなわち、集塵器本体の吸引口と排出口

に、同型のロ紙式集塵器 (staplex) と、手製の直径 5 cm の電気集塵器をそれぞれ 1 台ずつおき、集塵器本体と同時間集塵した。集塵器本体の印加電圧が可変であるので、4.4, 6.6, 7.3, 8.1 kV の各

Fig. 2 Sampling efficiency of large volume air sampler

Table 1 Activity at inlet and outlet of the large volume air sampler

Applied voltage (kV)	Current (mA)	Activity of inlet* (cpm)	Activity of outlet* (cpm)	Efficiency* (%)
4.5	0	19.4	12.1	75
		0.6	0.3	50
6.6	3	57.7	16.1	89
		2.8	0.5	82
7.3	20	54.5	10.1	93
		9.2	0.5	94
8.1	60-23	27.7	2.8	97
		21.5	1.2	95

* First number: Value for the "staplex".

Second number: Value for the electric air sampler.

電圧で集塵し、集塵終了直後に、吸引口、排出口においた集塵器から採取した試料の放射能を測定した。測定は low background counter と 2π gas flow counter でおこなった。結果を Table 1 に示したが、両方の計数率を比較してみると、電気集塵器よりロ紙式集塵器の方が、高い計数率を示している。これは試料採取から測定までの時間が、電気集塵器の方が多くかかっているため、減衰したものと考えられる。集塵効率、吸引口と排出口の計数率の差に流量による補正をして求めた。各電圧における集塵効率を、Fig. 2 に示した。すなわち、集塵器の最高印加電圧 8.1 kV のとき、ロ紙式集塵器 (staplex) での測定では集塵効率 97%、電気集塵器では 95% の値であった。

2. 吸引量の測定

吸引量は集塵器内の風速を測定し、その値に風洞の断面積を乗じて求めた。風速の測定は集塵器中もっとも静流である電極上部の場所を選び、16点での風速をピトー管で測定した。Fig. 3 にその分布を示した。16点での平均風速は 1.9 m/sec である。また同じ数点を熱線型風速計で測定した値は 2.0 m/sec であった。この平均風速

Fig. 3 Wind velocity in large volume air sampler

から集塵器の吸引量を求めると、 $8,750 \text{ m}^3/\text{hr}$ である。

3. 核種の決定とその相対比率

以上、大容量湿式電気集塵器の特性をとったのち 1960 年 10 月 6 日に $21,000 \text{ m}^3$ (試料 A) と同 13 日に $13,100 \text{ m}^3$ (試料 B) の空気を吸引して、試料を採取した。採取試料は、約 20 l の懸

Fig. 4 A shield of the detector

濁液であるため、これを蒸発乾固した。蒸発残さは、試料 A が 13 g、試料 B が 5 g であった。

この試料を個々に、256 チャンネル波高分析装置で測定して核種を決定した。検出部 ($3''\phi \times 3''$ NaI(Tl) は鉛 10 cm でしゃへいし、試料は薄いポリエチレン袋に入れ、蛍光体に密着させた (Fig. 4)。測定時間は 5,000 秒でおこなった。その結果、2つの試料ともほぼ同じ位置にピークが認められた。核種の確認は、標準試料に ^{144}Ce の 0.134 MeV と ^{137}Cs の 0.662 MeV の2つを用いて判定した。その結果確認した核種は ^{144}Ce – ^{144}Pr , ^{141}Ce – ^{141}Pr , ^{106}Ru – ^{106}Rh , ^{103}Ru – ^{103}Rh , ^{137}Cs – $^{137\text{m}}\text{Ba}$, ^{95}Zr – ^{95}Nb , である (Fig. 5, 6)。Fig. 6 はバックグラウンドを差引いたものである。なお 0.30 MeV 付近にかなりはっきりしたピークを認めているが、これは何んであるか未確認である。

つぎに確認した核種の光電ピーク面積から、相対比率を計算によって求めた。すなわち各核種の γ 線強度は、光電ピーク面積を光電ピークの効率で除して求め、さらにその γ 線強度を1崩壊あたりの γ 線放出数で除して、

Fig. 5 Gamma-ray spectrum of dust sample (Sample A)

Fig. 6 Gamma-ray spectrum of dust sample showing corrected background (Sample B)

相対放射能強度を算出した¹⁾。結果は Table 2 に示すとおり、 $^{106}\text{Ru}-^{106}\text{Rh}$ を1として、 $^{144}\text{Ce}-^{144}\text{Pr}$ 0.65, $^{137}\text{Cs}-^{137m}\text{Ba}$ 0.12 である。

4. ^{90}Sr , ^{137}Cs の分析

核種の確認をしたのち、同一試料について ^{90}Sr , ^{137}Cs を化学分析した。分析法は、試料を濃塩酸 100 ml で2回加熱抽出し、担体として Sr, Cs おおの 30 mg を加えた。Sr は発煙硝酸

法^{2),3),7)}で分離し、生成した ^{90}Y を2回分離して ^{90}Y の確認をおこない、 ^{90}Y の放射能から ^{90}Sr 量を算出した。 ^{137}Cs は発煙硝酸のロ液からリンモリブデン酸アンモニウムで共沈させたのち、塩化白金酸セシウムとして沈殿させ測定した^{4),5),7)}。測定はすべて薄窓のローバックグラウンド・カウンタ (Tracerlab, Inc.) でおこない、標準試料は、NBS $^{90}\text{Sr}+^{90}\text{Y}$ 標準溶液と、電気試験所製

Table 2 Relative ratio of radionuclides in air

Nuclide	Half-life*	Relative activity (dpm)	Relative ratio
¹⁰⁶ Ru ¹⁰⁶ Rh	1.0 y 30 s	192	1
¹⁴⁴ Ce ¹⁴⁴ Pr	282 d 17 m	126	0.65
¹³⁷ Cs ^{137m} Ba	33 y 2.6 m	22	0.12
⁹⁵ Zr ⁹⁵ Nb	65 d 35 d	4	0.02

* Radiological Health Handbook (1957)

¹³⁷Cs 標準溶液を用いた。その結果 ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs の空気中濃度は、2つの試料ともほぼ近い値を示し、⁹⁰Sr は $5.9 \times 10^{-4} \mu\mu\text{c}/\text{m}^3$ 、および $7.3 \times 10^{-4} \mu\mu\text{c}/\text{m}^3$ 、¹³⁷Cs は $1.2 \times 10^{-3} \mu\mu\text{c}/\text{m}^3$ および

$1.0 \times 10^{-3} \mu\mu\text{c}/\text{m}^3$ である (Table 3)。

総括および考察

確認した核種の比率をみると、¹⁰⁶Ru-¹⁰⁶Rh が一番多く、続いて ¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Pr、¹³⁷Cs-^{137m}Ba の順になっている。定量した ¹³⁷Cs の濃度と比率から、¹⁰⁶Ru-¹⁰⁶Rh および ¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Pr の空気中濃度を推定すると、¹⁰⁶Ru-¹⁰⁶Rh は $9 \times 10^{-3} \mu\mu\text{c}/\text{m}^3$ 、¹⁴⁴Ce-¹⁴⁴Pr は $6 \times 10^{-3} \mu\mu\text{c}/\text{m}^3$ となる。しかし正確にこれらの核種の濃度を評価するためには、さらに詳細な分析が必要である。

一方 ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs の濃度比をみると、¹³⁷Cs/⁹⁰Sr は 1.3 および 2.0 となり、伊沢、他がおこなった fallout 中の ¹³⁷Cs/⁹⁰Sr 平均 2.8⁶⁾ よりわずかに低い値になっている。これは今後さらに空気中の ⁹⁰Sr、¹³⁷Cs の定量をおこなって確認したいと思っている。

Table 3 Concentration of ⁹⁰Sr, ¹³⁷Cs in air

Date of sampling	Volume(m ³)	Gross activity (dpm)	⁹⁰ Sr($\mu\mu\text{c}/\text{m}^3$)	¹³⁷ Cs($\mu\mu\text{c}/\text{m}^3$)
Oct. 6, 1960	21000	562	5.9×10^{-4}	1.2×10^{-3}
Oct. 13, 1960	13100	340	7.3×10^{-4}	1.0×10^{-3}

Fig. 7 Activity of ⁹⁰Y and Sr-fraction

^{89}Sr については, Sr -fraction より ^{90}Y を分離したのちの Sr -fraction activity と, 分離した ^{90}Y の放射能からみると, ^{89}Sr の放射能は認められていない (Fig. 7)。なお, 今後これらの核種の比率および濃度が, どのように変化していくか検討を加えたいと思っている。

終りに, 集塵効率と吸引量の測定に, 種々ご指導ご助力をいただいた日本原子力研究所保健物理部, 石原豊秀, 角川正義, 大内正房, 人見清一, 森内茂の諸氏ならびに, 日立製作所諫早典夫氏に厚くお礼を申しあげる。

文 献

- 1) 矢島聖使: 放射化学分析法, γ 線スペクトロメトリ - P. 223, 共立出版社 (1959)
- 2) E. A. Martell: The Chicago Sunshine method. *A. E. C. U-3262* (1956)
- 3) F. J. Bryant: The determination of radiostrontium in biological materials. *A. E. R. E-R 3030* (1959)
- 4) N. Yamagata: Separation of Radiocesium in biological materials. *Bull. Chem. Soc. Japan*, **31**, (9) (1958)
- 5) I. B. Whitney: New York Operation Office Health and Safety Laboratory-Analytical Manual. NYO-4700
- 6) 伊沢正実, 他: Fallout 中の ^{90}Sr , ^{137}Cs について, 第2回放射能調査研究発表会論文集 (1960)
- 7) 科学技術庁, ^{90}Sr 分析法, ^{137}Cs 分析法。

Concentration of Fission Products in Air due to a Nuclear Detonation

By

Atushi KASAI

(Div. of Health Phys., Japan Atomic Energy Research Inst.)

(Received May 8, 1961)

Studies were made of the concentration in air of radionuclides due to a nuclear detonation, two years after the detonation.

A large volume air sampler was used for the sampling, and the air dusts were collected as suspension in October 1960 by suction of 21,000 m³ and 13,100 m³ air. Both suspensions were reduced in a large evaporating dish nearly to dryness.

A determination of the radionuclides in these dried residues has been made using a 256 channels pulse height analyzer. The detector (Crystal 3" ϕ $\times$ 3" NaI) was shielded from other radiations with lead about 10 cm

thick. As the results of the measurements, ^{106}Ru , ^{144}Ce , ^{137}Cs , etc. were detected, and the relative ratios of these nuclides were calculated from the γ -ray photopeak area. (Figs. 5, 6, and Table 2)

A chemical analysis of the same samples has been made for ^{90}Sr and ^{137}Cs . Each sample was treated by extracting the elements twice with hot concentrated HCl and combining the two extracts into one. Thirty milligrams of a Sr and Cs carrier were added to the extracts. Strontium was separated from other elements with a fuming nitrate acid method, and ^{90}Sr was calculated by the activity of ^{90}Y

which was separated from the Sr-fraction. Cesium was precipitated as Cs_2PtCl_6 , and the activity of Cs-precipitate was measured by a counter. On the whole, measurements were

made by a thin window anticoincidence type low background counter. The results were shown in Table 3.

写 真 説 明

写真は、電気通信研究所茨城支所のコバルト照射室内のBセルの大型しゅへい窓ガラス(N光学製)である。ホット側から撮影したものであるが、破損しているのは、ホット側から2枚目のノンブラウニングガラス(70 cm×100 cm×20 cm)である。小さなひび割れが集合してできている樹枝状の模様がガラス全面を蔽い(その深さは、厚みのほゞ中ほどの平面上にあるように見える)、それに沿って大きな曲面のひび割れがある。

3月7日まで242時間連続照射(線量率約 1,000 r/hr)したのちに線源を格納して、翌8日朝破壊を発見した。原因は調査中であるが、静電気の蓄積が大きな要素であるように考えられている。

(電気通信研究所茨城支所 松尾博撮影，門永政雄記)