

008 1966年における中国核実験による放射性降下物の観測(2)

河合 広, 本田嘉秀, 森嶋弥重
古賀妙子, 木村雄一郎, 西脇 安*

Observations on the Radioactive Fallout originated from the Chinese Nuclear Explosions in 1966 (2)

By Hiroshi KAWAI, Yoshihide HONDA, Hiroshige MORISHIMA,
Taeko KOGA, Yuichiro KIMURA and Yasushi NISHIWAKI*

We have observed properties of radioactive fallout originated from the third, the fourth and the fifth Chinese nuclear explosions in 1966. The differences in gross beta-activities, activities per unit volume and their particle sizes of highly radioactive particles are discussed with relation to the differences in burst conditions among the three explosions from which they originated.

It was found that radioactivities of the highly radioactive particles were roughly proportional to their volumes. The differences in the radioactive decay rates of highly radioactive fallout particles were found in connection with their colors. From the results of decay characteristics of gross beta-activities and γ -ray spectra of fallout samples, it was found that the contribution of radioactivities of ^{239}Np in samples from the fifth Chinese explosion was larger than that from the third Chinese explosion.

In comparison between the γ -ray spectra of highly radioactive fallout particles from the third and the fifth Chinese explosions, the particles from the third Chinese explosion were enriched in $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ and impoverished in ^{103}Ru , while on the particles from the fifth Chinese explosion, the reverse of phenomenon above mentioned was observed.

1. 緒 言

中国は1964年10月16日に第1回核実験を行なつてから1966年には5月9日, 10月27日, 12月28日と第3回, 第4回, 第5回の核実験を行い, 爆発材料も熱核材料を含むようになるといった変化が指摘されたが当研究所でも前報¹⁾に引続き落下塵埃, 雨水および強放射能粒子などを採取して観測を行ったのでこれらの結果を報告する。

2. 試料採取

試料の採取は前報¹⁾と同様であるが強放射能粒子については当研究所屋上に設置した $50 \times 50 \text{ cm}^2$ のスリガラス板上に落下した粒子を主として採取した。粒子はGMサーベイメータでその放射能を確認しながらセロテープに附着させ採取し更にスライドガラス上に移して顕微鏡下で観察して単離した。

3. 結果と考察

3.1 落下塵埃の放射能の変動

1966年の第3回, 第4回, 第5回の中国核実験によ

* 東京工業大学原子炉工学研究所

る落下塵埃の放射能の変動を Fig. 1 に示す。これによると第3回と第5回の実験ではともに爆発後2日目に放射能のピークが見られ、第3回ではその後、急激に減少したが、第5回では爆発後20日以上にわたって放射能レベルの上昇がみられた。これらに対して第4回では著明なピークが見られなかった。このような落下塵埃の放射能の変動の相違は爆発条件とともに爆発後の気象条件によるものと思われる。

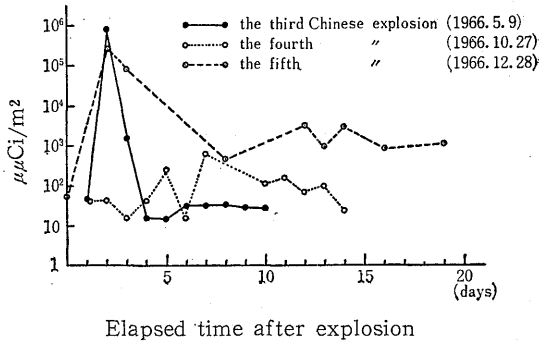


Fig. 1 Radioactivity of dry fallout (by gummed paper)

3.2 全β放射能の減衰

Fig. 2 および 3 に第3回、第5回核実験による試

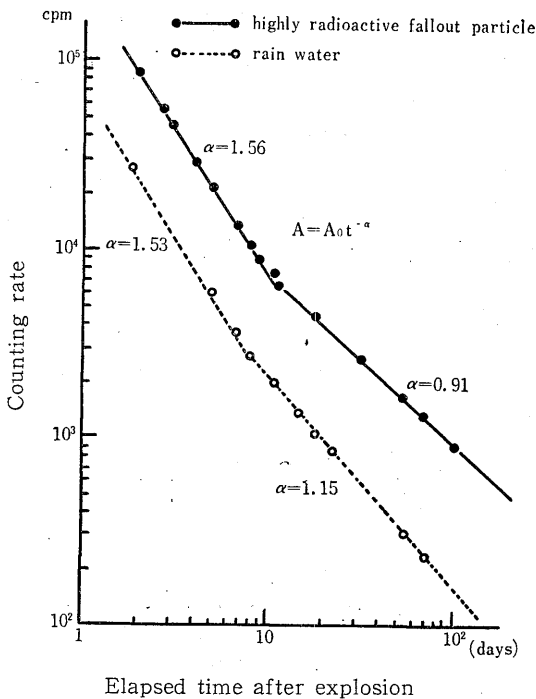


Fig. 2 Decay curves of fallout samples from the third Chinese explosion

料の全β放射能の減衰を両対数グラフで表した。Fig. 2 に示す第3回目の減衰は強放射能粒子、雨水とも爆

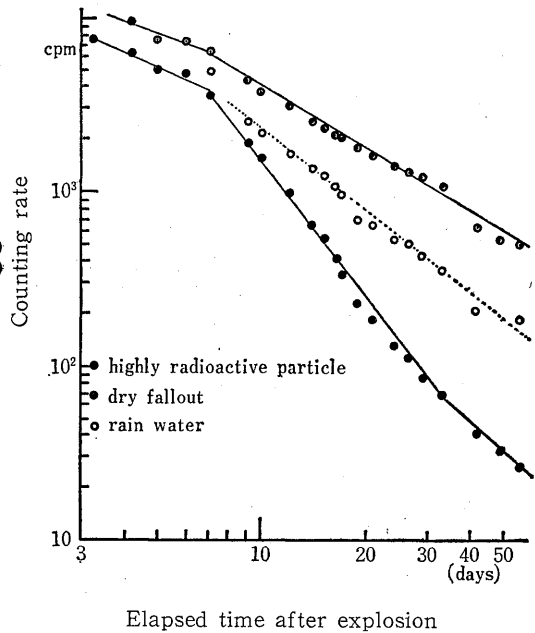


Fig. 3 Decay curves of fallout samples from the fifth Chinese explosion

発後約10日頃に屈曲点が見られる。その勾配は前半約1.6、後半は約1.0になっている。これに対して Fig. 3 に示す第5回目の核実験においては爆発後約7~8日で屈曲点が見られ、勾配は前半約0.9、後半約1.4~2.5と減衰は非常に早く半減期の比較的短い核種が多く含まれていると考えられる。放射能粒子についてその放射能が1/10²に減衰するのに要した日数をみると第3回目は85日、第5回目は25日と減衰特性が大きく相異している。そして Fig. 4 に示す西脇等²⁾のビキニ水爆実験による放射性降下物の減衰解析からも知られる様に ²³⁹Np の影響の大きい F.P. の減衰曲線と第5回目の減衰曲線が非常に相似していることから ²³⁹Np の影響が大きいように思われる。このことはさらに γ線スペクトルの分析結果からも確認された。

3.3 γ線スペクトル

3.3.1 第3回核実験による試料のγ線スペクトル Fig. 5 に落下塵埃、雨水、強放射能粒子の爆発後4日目のスペクトルを示す。これによるとこれら3種類の試料についてのγ線スペクトルのパターンには著しい相違がみられなかった。また Fig. 6, 7 に落下塵

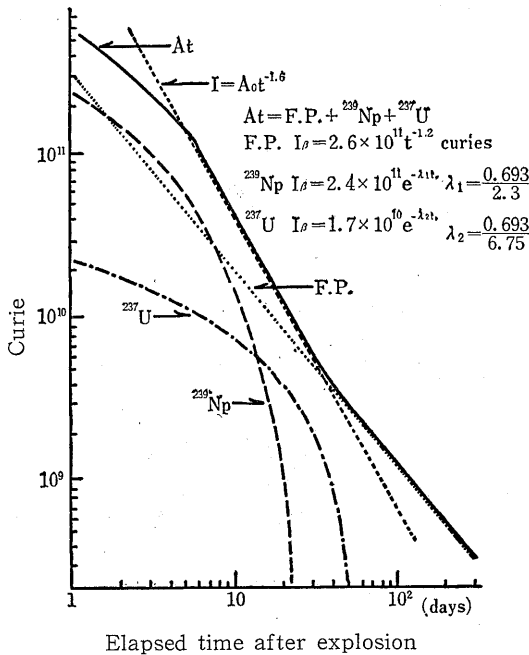


Fig. 4 Decay curves of fallout samples from U. S. Explosion at Bikini (by NISHIWAKI)

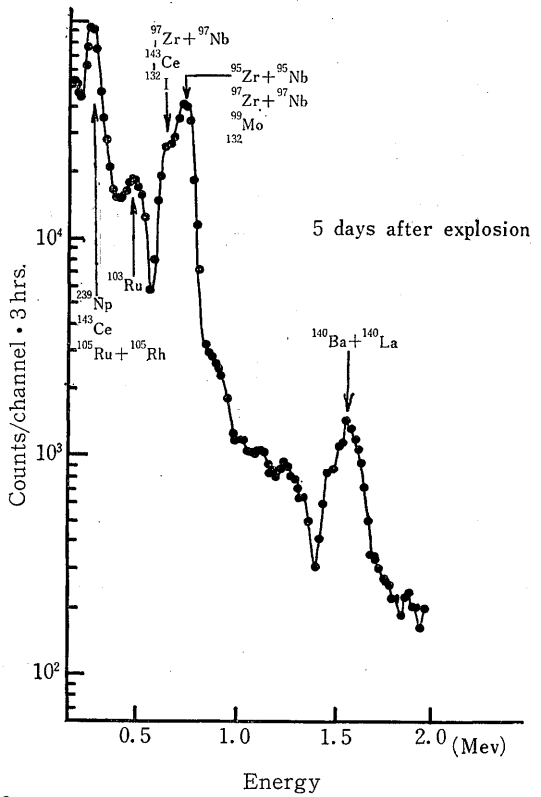


Fig. 6-1 γ -ray spectrum of dry fallout from the third Chinese explosion

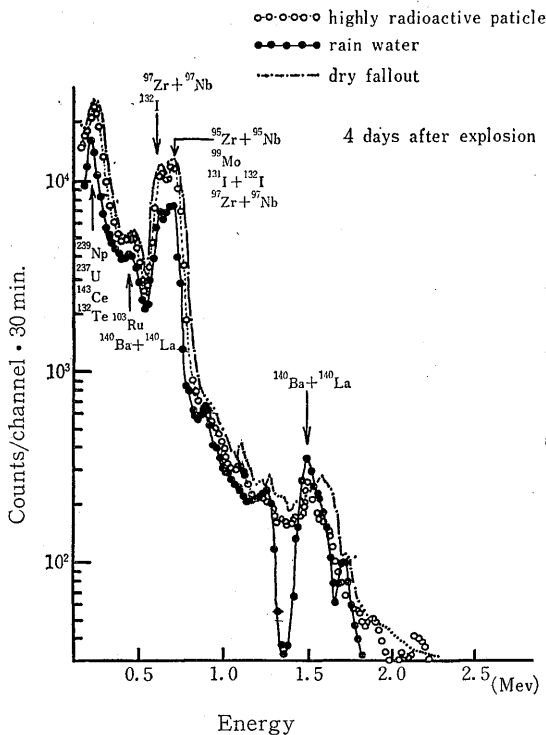


Fig. 5 γ -ray spectra of fallout samples from the third Chinese explosion

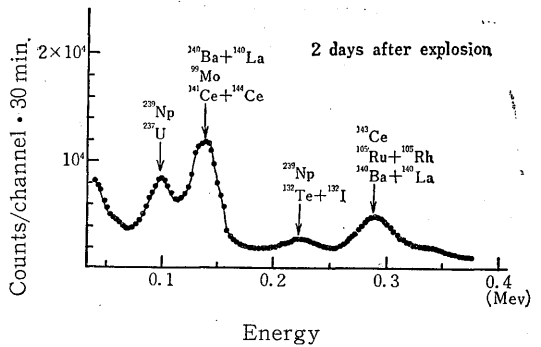


Fig. 6-2 γ -ray spectrum of dry fallout from the third Chinese explosion

埃の γ 線スペクトルを示す。Fig. 8 には強放射能粒子について経時的に測定した γ 線スペクトルを示したが、これによると 0.66 Mev に相当するピークは 8 日後には消失したことから $^{97}\text{Zr} + ^{97}\text{Nb}$ のフォトピークと思われる。つぎにこれらの γ 線スペクトルに表われたピークのエネルギーとピークの減衰特性から推定し

た核種を Table 1. に示した。

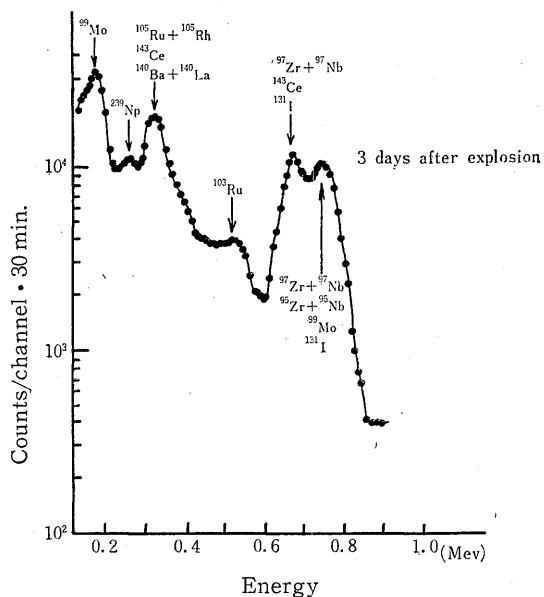


Fig. 7 γ -ray spectrum of dry fallout from the third Chinese explosion

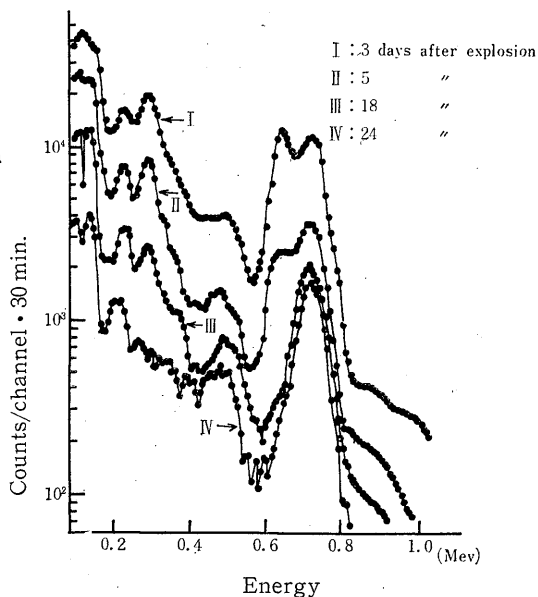


Fig. 8 γ -ray spectra of a highly radioactive fallout particle from the third Chinese explosion

Table 1 Nuclide assumed from γ -ray Spectra

Peak Energy (Mev)	Assumed nuclide	Energy (Mev)	Half life
0.11	^{239}Np	0.106(50), 0.228(28), 0.278(31),	2.35 d.
	^{237}U	0.102, 0.208(24)	6.75 d.
0.13~0.16	^{99}Mo	0.141, 0.181(35), 0.741(100)	66 h.
	$^{140}\text{Ba} + ^{140}\text{La}$	0.161(4.5), 0.305(3.5), 0.436(4.5)	12.8 d (^{140}Ba) 40 h (^{140}La)
	^{141}Ce	0.142	33.1 d.
	^{144}Ce	0.134	285 d.
0.20~0.25	^{239}Np	0.231(95) 0.67(100), 0.78(75), 0.96(20), 14(11)	77.7 h. (^{132}Te)
	^{237}U $^{132}\text{Te} + ^{132}\text{I}$		2.26 h. (^{132}I)
0.29~0.36	^{143}Ce	0.294(100), 0.668(32), 0.861, 1.1 0.365(82), 0.638(~9)	33.4 h.
	^{131}I		8.0 d.
0.63~0.67	$^{97}\text{Zr} + ^{97}\text{Nb}$	0.666(100)	17.0 h. (^{97}Zr)
	^{143}Ce		72.1 m. (^{97}Nb)
	$^{132}\text{Te} + ^{132}\text{I}$		
0.72~0.75	^{99}Mo	0.722, 0.754, 0.768	65 d. (^{95}Zr)
	$^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$		35 d. (^{95}Nb)
	$^{97}\text{Zr} + ^{97}\text{Nb}$		
1.47~1.63	$^{140}\text{Ba} + ^{140}\text{La}$	0.815(25), 1.6(100)	40 h (^{140}La)

3.3.2 第5回核実験による試料の γ 線スペクトル
 Fig. 9 は落下塵埃, 雨水, 強放射能粒子の爆発後7日目の γ 線スペクトルであるが, 縦軸は $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ のフォトピークの高さを1とした任意目盛とした。これによると雨水と落下塵埃に比べて, 単離した強放射

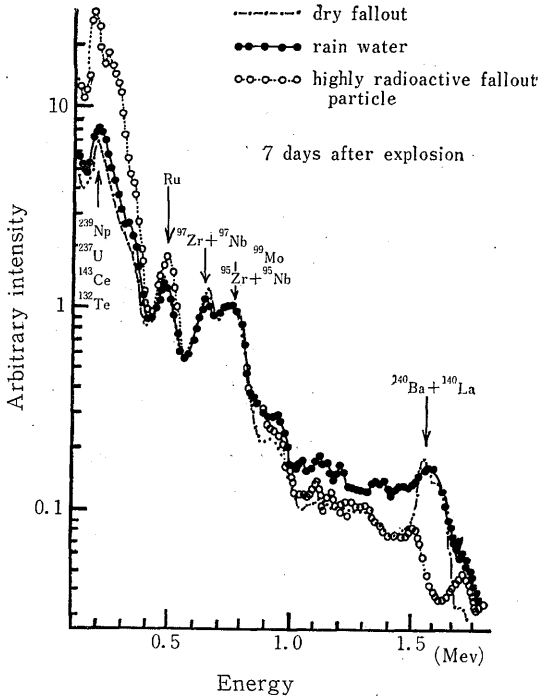


Fig. 9 γ -ray spectra of fallout samples from the fifth Chinese explosion

能粒子は ^{239}Np と ^{103}Ru の寄与が大きく, $^{140}\text{Ba}+^{140}\text{La}$ の寄与が少いことが認められた。真室等⁽³⁾も落下塵埃, 雨水, 等の微粒子の多い試料においては $^{140}\text{Ba}+^{140}\text{La}$ の寄与が強放射能粒子に比較して多いことを報告している。

3.3.3 第3および第5回核実験による試料の γ 線スペクトルの比較

Fig. 10 は落下塵埃について爆発後12日目の γ 線スペクトルを縦軸に $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ のフォトピークの高さを1とした任意目盛をとり比較したものである。これによると第3回核実験によるものは ^{103}Ru に比して $^{95}\text{Zr}+^{95}\text{Nb}$ の占める割合が大きいのに対して, 第5回核実験によるものはその関係が逆になっている。同様の関係が Fig. 11 に示した強放射能粒子についての γ 線スペクトルにおいても認められた。このような相違は既に EDVERSON 等⁽¹⁰⁾ および真室等⁽¹¹⁾ も

報告している様に爆発条件によるものと考えられる。

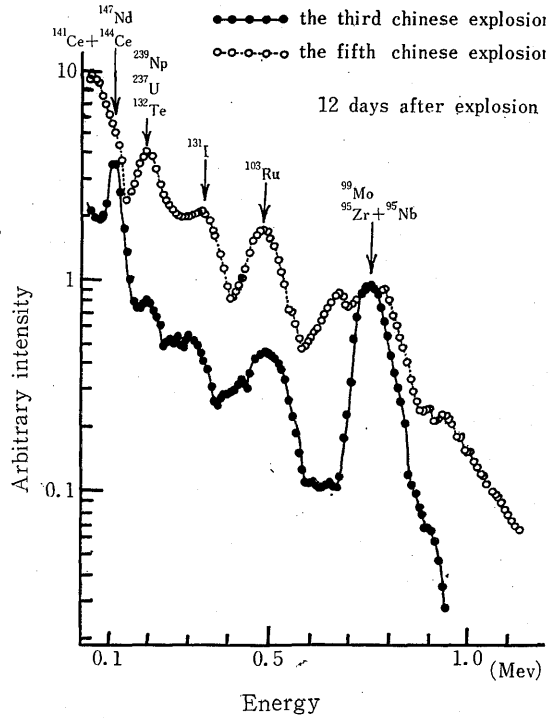


Fig. 10 γ -ray spectra of dry fallout

3.4 強放射能粒子について

3.4.1 大きさ, 色調, 放射能強度

中国が1966年に行った核実験後に採取した強放射能粒子について観察した大きさ, 色調, 放射能強度などの結果を Table 2, 3, 4 に示す。粒子の形は真室等^(4) 5) がソ連核実験について報告しているようにすべて球形かそれに近い形をしていた。落下数は3回目は 1 m^2 当り5~6ヶ, 4回目は 3 m^2 当り1ヶと非常に少く, 5回目は 1 m^2 当り約30ヶであった。大きさも各回大きく相違し, その平均直径はそれぞれ 15μ , 6μ , 25μ であった。中国第1回および一連のソ連の実験では直径が 20μ よりも大きい粒子はわが国では報告されていないようである。真室等⁽⁶⁾ によると直径 20μ 以上の粒子は重力落下に主として支配され局地降下物となるが, 直径 20μ 以下の粒子は大気運動に支配され運ばれると説明されているが, 第5回核実験による粒子について, われわれは直径約 30μ 程度のものを見出している。

これは地表面物質をより多く吸い込んでそれだけ比重が軽くなったものと思われる。Crocker 等⁽⁷⁾ によると低空爆発の場合は直径 $5\sim 3,000\mu$, 高空爆発では直

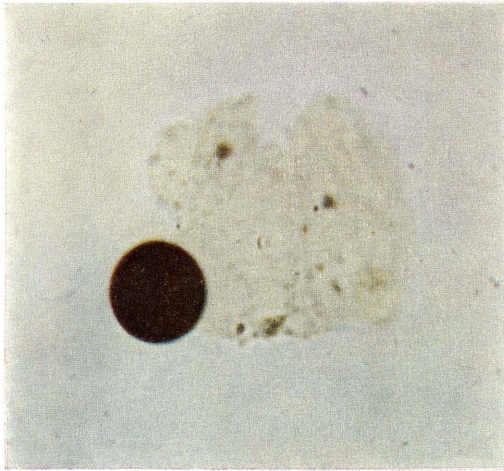


photo 1 3rd exp. No. 4



photo 2 3rd exp. No. 5

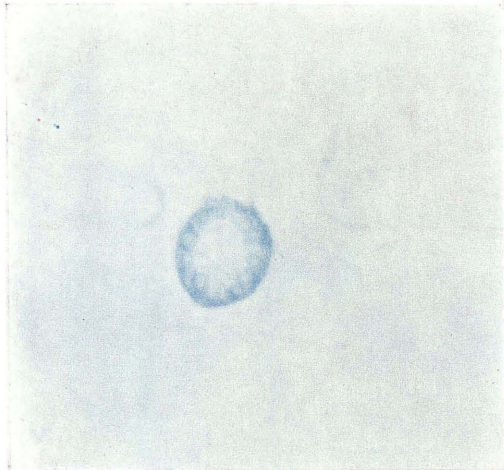


photo 3 3rd exp. No. 10

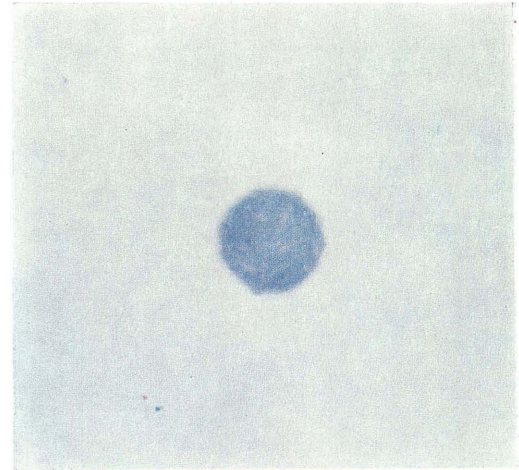


photo 4 3rd exp. No. 11



photo 5 3rd exp. No. 14



photo 6 4th exp. No. 1

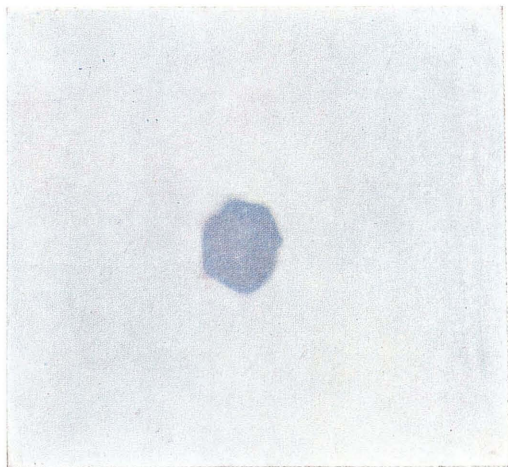


photo 7 4th exp. No. 3

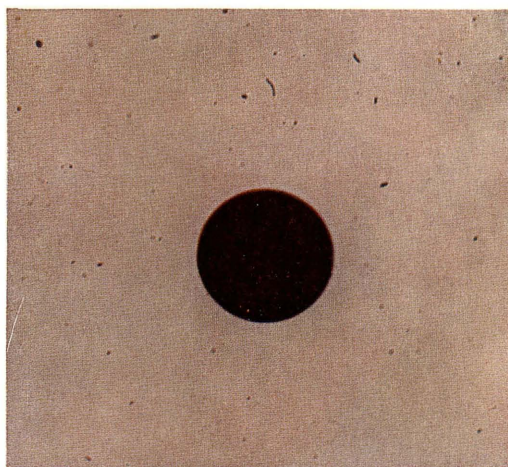


photo 8 4th exp. No. 4

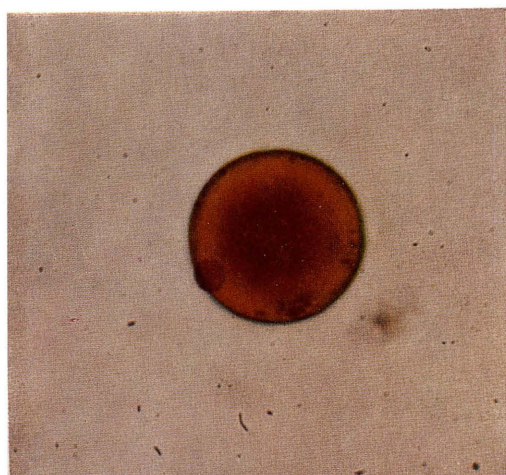


photo 9 5th exp. No. 2

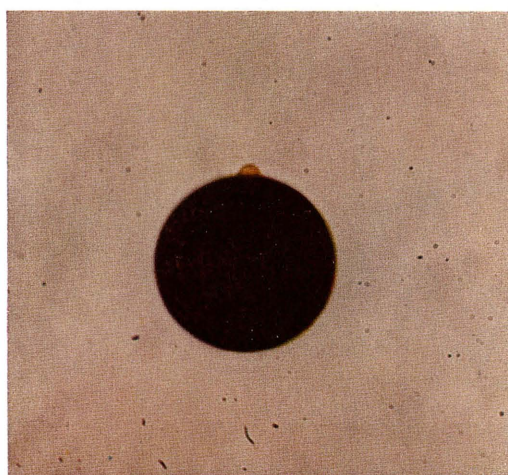


photo 10 5th exp. No. 3

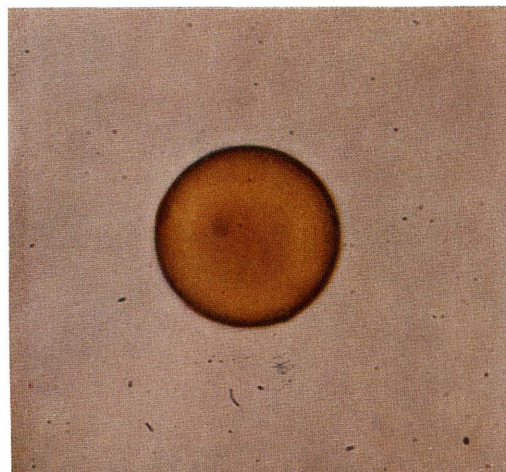


photo 11 5th exp. No. 4

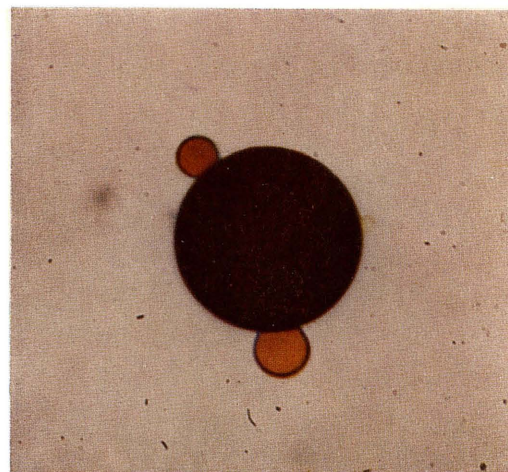


photo 12 5th exp. No. 8

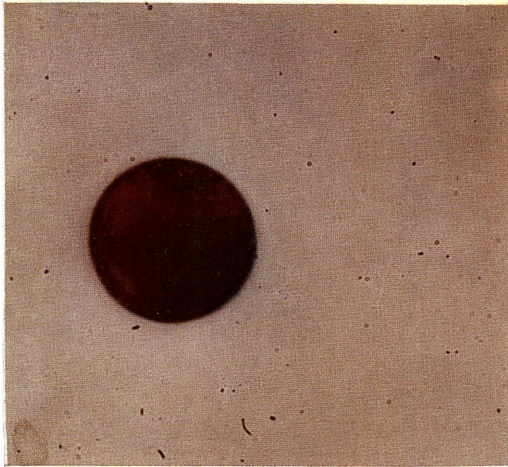


photo 13 5th exp. No. 9

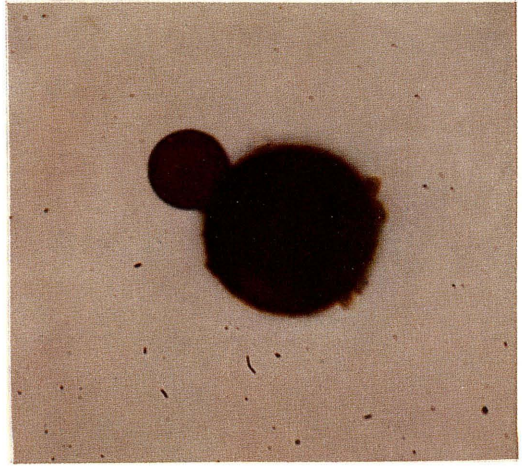


photo 14 5th exp. No. 10

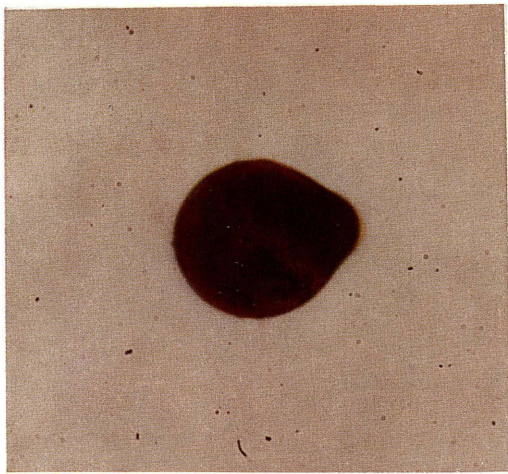


photo 15 5th exp. No. 12

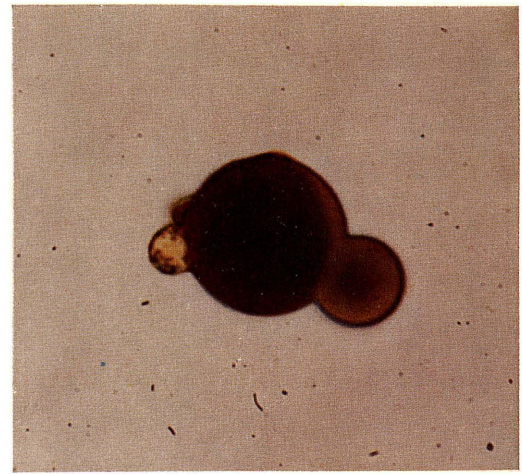


photo 16 5th exp. No. 16

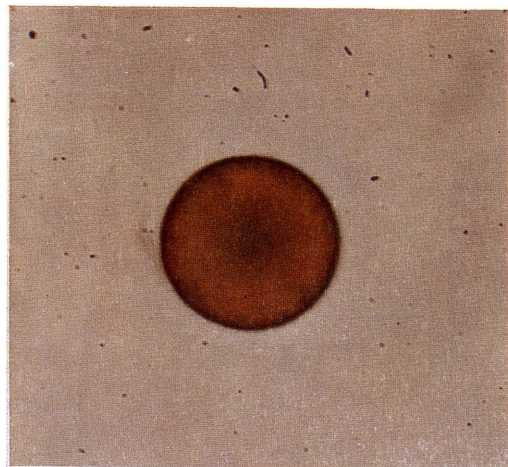


photo 17 5th exp. No. 23

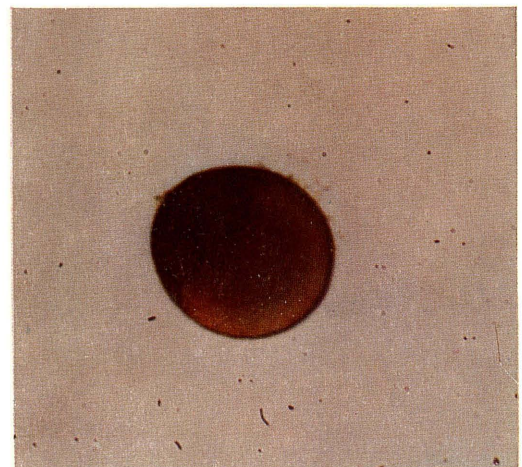


photo 18 5th exp. No. 27

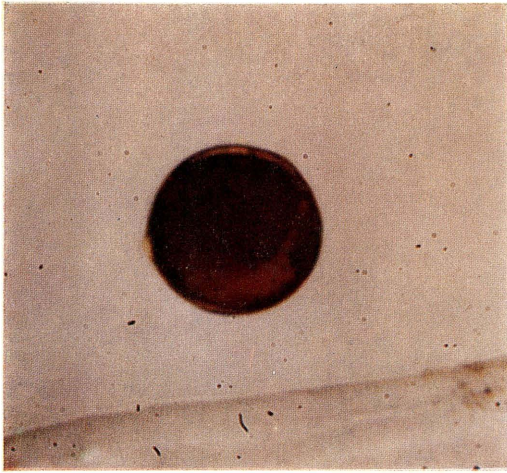


photo 19 5th exp. No. 27



photo 20 5th exp. No. 29

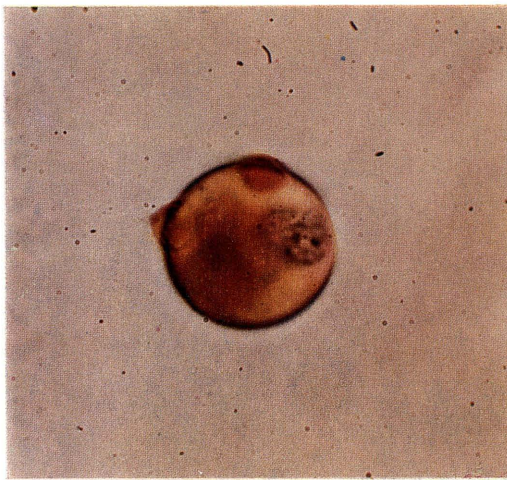


photo 21 5th exp. No. 44

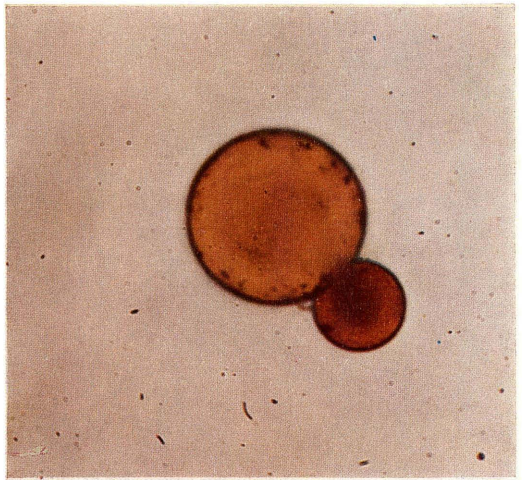


photo 22 5th exp. No. 45

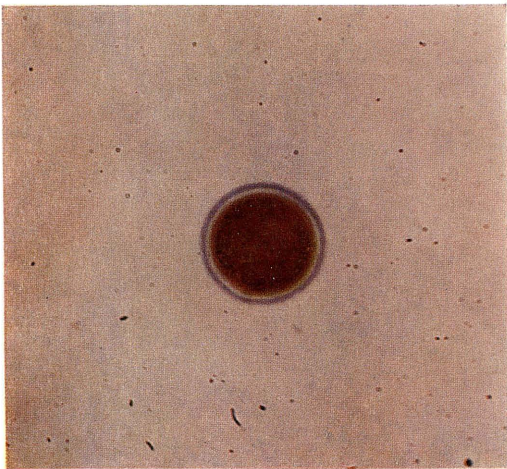


photo 23 5th exp. No. 58

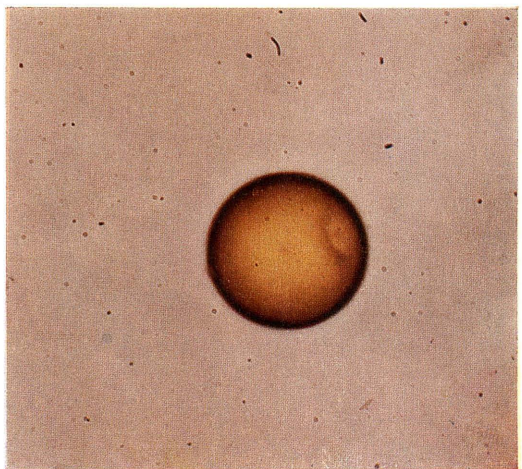


photo 24 5th exp. No. K-3

Table 3 Characteristics of highly radioactive particles from the fourth Chinese explosion

Particle No.	Color	Size (μ)	Radioactivity ※ ($m\mu$ Ci)
1	brown	7	0.58
2	—	—	0.63
3	dark brown	5 × 7	0.42
4	"	7	0.83
5	—	—	0.55

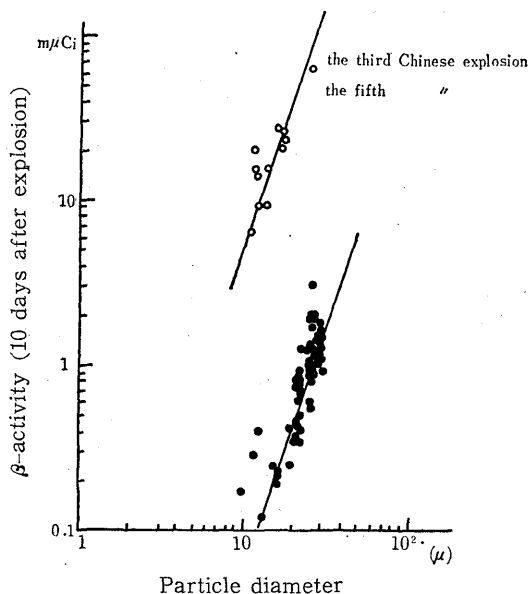


Fig. 12 Diameter and β -activity of highly radioactive fallout particle

成功したもの5~7回の平均値をとった。10個の粒子について密度を測定し4.1~5.9g/cm³の値を得た。これは真室等⁹⁾の第3回中国核実験による粒子についての報告値が5.1~6.3g/cm³である

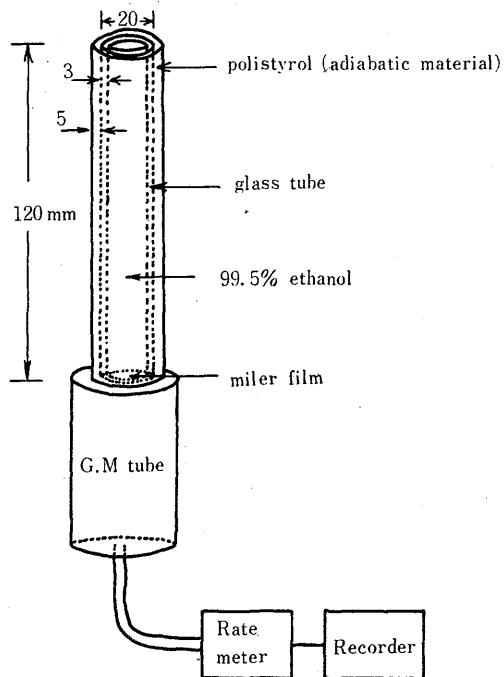


Fig. 13 Arrangement for measurement of density of highly radioactive fallout particle

Table 5 Fractionation factors measured on highly radioactive fallout particles from the Chinese explosion

the third Chinese explosion						the fifth Chinese explosion					
Sample	¹³¹ I	¹⁰³ Ru	¹³² I	¹⁴⁰ Ba + ¹⁴⁰ La	day after explosion	Sample	¹³¹ I	¹⁰³ Ru	¹³² I	¹⁴⁰ Ba + ¹⁴⁰ La	day after explosion
air-borne dust highly radioactive fallout particle (1)	—	0.19	0	—	12	air-borne dust highly radioactive fallout particle (7)	—	1.13	0.52	—	12
	—	0.16	0	—		(8)	0.97	0.11	—	0.08	
						(9)	2.67	0.16	—	0.14	
						(10)	5.22	4.20	—	0.08	
air-borne dust highly radioactive fallout particle (2)	0	0.04	—	0.02	38	air-borne dust	0.12	1.52	—	0.19	38
(3)	—	0.53	—	—							
(4)	—	0.56	—	—							
	—	0.63	—	—							
highly radioactive fallout particle (5)	—	1.08	—	—	42	highly radioactive fallout particle (11)	—	4.39	—	—	50

るのと比較して一般に小さいことが分る。粒子の密度と放射能の関係を両対数グラフで Fig. 14 に示したが体積と放射能の間にみられたような相関は認められなかった。

3.4.3 強放射能粒子の減衰特性

第5回核実験後に採取した強放射能粒子についてその色調別で放射能の減衰を観察してみた。Fig. 15 にその結果を両対数グラフで示した。これによると強放射能粒子の中で無色、黄金色、薄茶色等の比較的うすい色の粒子についてはその減衰曲線は大体 1.6~2.4 の勾配を、色の濃い褐色、黒色等の粒子はやや勾配が小さく 1.0~1.3 であった。このことからうすい色の粒子は濃い色の粒子に比べて半減期の短い核種が多いのではないかと考えられる。

3.4.4 強放射能粒子の γ 線スペクトル

Fig. 5, Fig. 8, Fig. 9, Fig. 11 に第3回および第5回核実験による強放射能粒子の γ 線スペクトルを示しているがすでに 3.3 で記載したようにそれぞれ爆発条件の相違による γ 線スペクトルの特徴が認められた。

3.4.5 強放射能粒子における放射化学的分画

放射性降下物についてその radiochemical fractionation の程度を表わすのに Edvarson 等¹⁰⁾ は次式に示す fractionation factor (f) を用いた。

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

N(A) : 核種 A の放射能

N(⁹⁵Zr + ⁹⁵Nb) : ⁹⁵Zr + ⁹⁵Nb の放射能

exp. theo : 括弧内の値が実験および理論的に求めた値

われわれもこれに従って第3回および第5回核実験の試料について fractionation factor (f) を計算してみた。Table 5 にその結果を示す。既に Edvarson 等¹⁰⁾ も指摘しているように強放射能粒子の形成が高空爆発であるほど Mass-chain 103, 131 などの核種が強放射能粒子中で少くなるが、Table 5 の結果から第3回核実験の方が第5回核実験よりもより高空で爆発が行われたものといえる。

3.4.6 強放射能粒子の β 線による局所被曝線量

単離した強放射能粒子について Al 吸収板による最大飛程の測定からその β 線の平均エネルギー E(Mev) を推定し、その放射能が A(μ Ci) で、時間 t (day) に対して -1.6 のべき指数をもって放射能が減衰するような強放射能粒子 1 個が皮膚表面に附着したと仮定

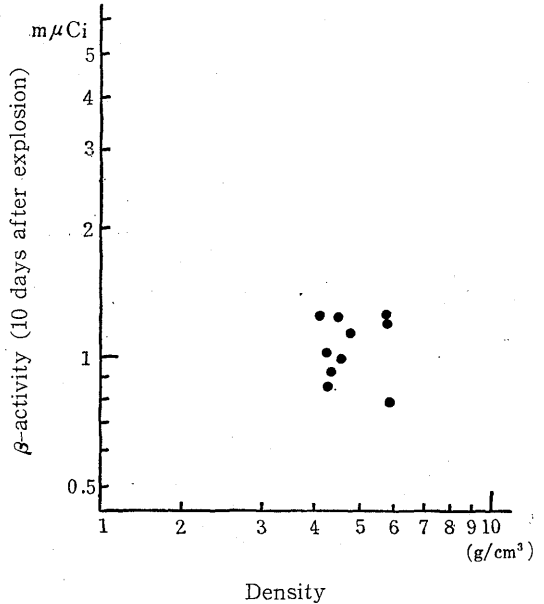


Fig. 14 Density and β -activity of highly radioactive fallout particles from the fifth Chinese explosion

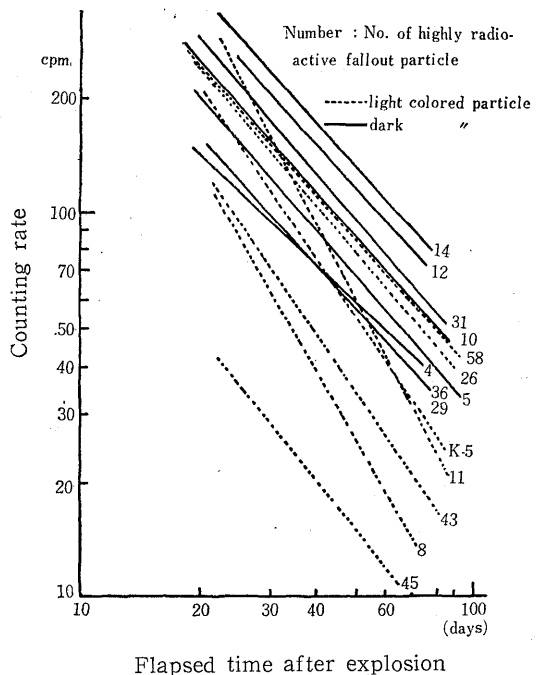


Fig. 15 Decay curves of highly radioactive fallout particle

Table 4 Characteristics of highly radioactive particles from the fifth Chinese explosion

Particle No.	Color	Size (μ)	Radioactivity ($m\mu$ Ci) ※	Particle No.	Color	Size (μ)	Radioactivity ($m\mu$ Ci) ※
1	brown	28	1.149	35	golden	30	1.024
2	black	23	0.930	36	reddish black	27	1.026
3	brown	28	1.255	37	golden	10	0.169
4	black	28	1.074	38	brown	22	0.374
5	reddish brown	27	1.693	39	black	27	0.910
6	dark brown	12	0.283	40	brown	27	1.301
7	reddish brown	23	0.496	41	light brown	27	0.568
8	golden	29	1.482	42	golden	30	1.000
9	dark brown	29	1.488	43	light brown	27×37	0.914
10	brown	27	1.680	44	brown	30	1.461
11	golden	28	2.053	45	light brown	27	1.065
12	reddish brown	28	1.981	46	dark brown	30	1.280
13	light brown	20	0.253	47	colorless	20×23	0.345
14	black	26	1.921	48	brown	20	0.406
15	brown	23	0.665	49	dark brown	28	0.894
16	//	26	0.973	50	golden	28	0.797
17	//	23	0.760	51	brown	30	1.485
18	//	30	1.082	52	reddish brown	27	0.937
19	//	30	1.387	53	brown	27	0.856
20	golden	22	0.441	54	reddish brown	17	0.217
21	light brown	13	0.400	55	brown	17	0.189
22	brown	17	0.245	56	light brown	23	0.597
23	//	24	1.252	57	brown	28	0.972
24	black	27	1.953	58	light brown	28	1.322
25	brown	23	0.395	59	brown	30	1.172
26	golden	27	1.818	60	//	23	1.262
27	brown	29	1.406	61	dark brown	23	0.725
28	black	10×17	0.123				
29	//	26	1.052	K-1	brown	27	0.600
30	brown	28	0.918	K-2	colorless	23	0.729
31	reddish black	27	1.458	K-3	light golden	17	0.224
32	brown	23	0.798	K-4	brown	23	0.337
33	golden	23	0.846	K-5	golden	25	3.056
34	dark brown	22	0.447				

No. 1~61 Kinki University

K-1~5 Kawasaki, Kanagawa Pref.

して β 線の飛程 r (cm) を半径とする球状体積の組織がうける局所被曝線量は次の数式で計算することができる。

$$D(\text{rad}) = \frac{A \times E \times 1.6 \times 10^{-6} \times 2.22 \times 10^6 \times 1440}{\frac{4}{3} \pi r^3 \times 100}$$

$$\int_{t_1}^{t_2} t^{-1.6} dt$$

A : 放射能粒子の放射能(μ Ci)

E : 放射能粒子1個当りの β 線の平均エネルギー (Mev) であるが、簡単のため上式では吸収エネルギーも E(Mev) とした。

r : 照射される半径 (cm)
組織の比重は1とした。

第3回核実験による粒子について爆発後1日目の放射能を 0.65μ Ci, その β 線の平均エネルギーを 0.3 Mev として爆発後2日目に粒子が皮膚表面に付着し

そのまま24時間付着していたとすると上記の計算式からその付着局所の皮膚は約 1,300 rad 程度の被曝が考えられる。

4. む す び

1966年に行われた中国第3回, 第4回, 第5回核実験による放射性降下物について落下塵埃の放射能の変動, 全 β 放射能の減衰特性, γ 線スペクトルなどの諸特性とともにさらに単離した強放射能粒子について (1) 大きさ, 色調, 放射能強度, (2) 密度, (3) 放射能減衰特性, (4) γ 線スペクトル, (5) 放射化学的分画, などの諸特性を主として爆発条件との関連において考察した。また強放射能粒子が皮膚表面に付着した場合の局所被曝線量についても考察した。

文 献

- 1) 河合広, 本田嘉秀, 森嶋弥重, 古賀妙子, 木村雄一郎, 西脇安: 近畿大学原子力研究所年報, **4**, 15, (1966)
- 2) Y. NISHIWAKI: Annual report of Nuclear Reactor Laboratory Kinki University, **1**, 88 (1961)
- 3) 真室哲雄, 吉川和子, 藤田晃, 松並忠男: 日本原子力学会誌, **8**, 5, 242, (1966)
- 4) 真室哲雄, 吉川和子, 藤田晃, 松並忠男: 日本原子力学会誌, **4**, 11, 766, (1962)
- 5) 真室哲雄, 吉川和子, 藤田晃, 松並忠男: 日本原子力学会誌, **4**, 12, 860 (1962)
- 6) 真室哲雄, 吉川和子, 藤田晃, 松並忠男: 日本原子力学会誌, **7**, 9, 485 (1965)
- 7) G. R. CROCKER et al.: Health Phys., **12**, 1099 (1966)
- 8) T. MAMURO, K. YOSHIKAWA et al.: Nature, Lond., **196**, 529 (1962)
- 9) 真室哲雄, 吉川和子, 藤田晃, 松並忠男: 第8回放射能調査研究成果発表会 (1966. 11)
- 10) K. EDVARSON, K. LOEW and J. SIOEFSKY: Nature Lond., **184**, 1771 (1959)
- 11) T. MAMURO, K. YOSHIKAWA, T. MATUNAMI and A. FUJITA: Health Phys. **12**, 757 (1966)

正 誤 表

頁	行	誤	正	頁	行	誤	正
9	左 4	調	滑	50	左 14	2 0	2 1
"	右 5	態	態	50	Table 2	Particles	particles
11	左 11	"	"	"	写真	photo 18 5th	photo 18. 5th
"	左 13	"	"	"	"	exp. No. 27	exp. No. 26
"	左 14	"	"	53	Table 4	No 3. 1,255	1.255
"	左 16	"	"	54	文献 1)	4, 15, (1966)	4, 5, 39, (1965,6)
"	左 17	"	"	"	文献 10)	Nature Lond.,	Nature, Lond.,
"	右 9	"	"	96	四	保安規定改良後	保安規定改正後
"	右 15	"	"	97	8	沈泥	沈泥,
"	右 16	"	"	108	第 15 表	乾燥土	乾燥沈泥
"	右 18	"	"	113	右 9	これらの	これらの
"	右 19	"	"	117	Fig 1	platinum	platinum
12	左 1	"	"	118	左 19	(4)	(2)
"	左 2	"	"	119	左 2	5.0V, とした	5.0v とした
42	Fig10-1	7 days	7 days	"	左 5	して	し
43	右 13	原子力研究学所	原子力研究所	"	Fig 4	G M counting	β counting
47	Fig 6-1	$^{97}\text{Zr} + ^{97}\text{Nb}$	$^{97}\text{Zr} + ^{97}\text{Nb}$	121	左 5	電解開始圧	電解開始電圧
		\downarrow ^{143}Ce	^{143}Ce	"	左 7	pH 7.0	7.0
		\downarrow ^{132}I	^{132}I	"	Table 5	Recovery	Recovery (%)
"	"	132	^{132}I	"	Fig 16	Uranium	Uranium in sol- ution
48	Table 1	1 4	1.4				
49	中の 12	Ru	^{103}Ru	122	左 1	蓚酸アンモニウ溶液	蓚酸アンモニウム溶液
"	Fig 9	^{99}Mo	^{99}Mo	"	右 2)	1149	1149-
"	"	$^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$	$^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$	"	" 4)	project	Project