

# 大気と降水中の放射能について (第2報)

—松江地方に降つたフォールアウトと  $\text{Sr}^{90}$  の寄与量について—

岡崎庶兄・井戸垣正俊

(昭和32年11月16日受理)

Moroe OKAZAKI & Masatoshi IDOGAKI

On the Radioactivity in Air and Rain Water

Part II

## I. は し が き

原水爆実験に起因する放射性降下物(フォールアウト)中で、人体に種々の障害を与えるものとして、さしあたり特に問題になつているのは、 $\text{Sr}^{90}$ 、 $\text{Cs}^{137}$  及び  $\text{Pu}^{239}$  などである。

これらの同位元素の降下量の正確な推定には、多くの技術的困難が伴う。この報告では、とくに  $\text{Sr}^{90}$  のみを取りあげ、普通行われる H・B 表(ハンター・バローの表)からの  $\text{Sr}^{90}$  の寄与量と、実際の量との差違について若干の検討を試みた。この差違は一般に、古い起爆日のもの、特に大型の水爆に起因する成層圏降灰によるバックグラウンドのためと考えられている。この問題に密接な関係があると考えられる降下塵(浮遊塵)の問題についてもふれた。尚この問題の実験的裏附は、化学分析によらねばならない。未だ若干検討を要する点もあるので詳細は次の機会にゆずるが、化学分析の方法などについて簡単に報告する。

## II. 試料の捕集と計測

試料の捕集には第一報で報告したビニール漏斗(直径 60 cm)、ホーローびきポット(直径 35 cm)及びホーローびきバット(30×40 cm<sup>2</sup>)を用いた。あとの二つは水盤として用い、月曜午前九時から一週間の全フォールアウトを捕集、よく攪拌し、全水量に応じ、その 1/2、1/5、1/10 量を濃縮乾固した。ビニール漏斗では、定期的に午前九時と午後五時に、又その間降雨が予想される時はその前に水洗し降下塵の試料とした。夜間の降雨に対してはこの配慮はなされていないので、降雨の始め及び終りの時刻から補正をする必要がある。降雨には 100 cc の定量採水びん 3 本(雨量 1 mm に相当する量)及び溜めを用いた。全寄与量の試料は主としてポットを用い、降下塵及び減衰の測定にはビニール漏斗の試料を用いた。尚電気集塵装置は第一報に報告したもので、空気中塵濃度測定に供した。

集めた月毎の全試料は化学分析に用いる予定で保存してあつたが 9 月の事故で焼失した。

計測装置、G・M カウンターの性能、又計測や試料作成上の注意など凡て第一報通りである

が、9月以降は事故の為測定は県衛生研究所の東芝製品によつている。このため9月の試料は10月始めに全試料の第一回の測定をした。10月の試料は週毎にまとめて計測した。従つて起爆日の推定は困難で、計算には週間隔の減衰から試料全体の推定起爆日を用いた。

### III. 測定の結果

#### i) 全寄与量

図一Iは、6月～7月の二カ月の降下塵、降雨及び全寄与量の日変化を示す。起爆日を推定するための減衰測定は、主として塵の場合ピークの試料を用いた。求められた推定日に最も近い実験日を、そのピークから次のピーク間の試料の起爆日として、H・B表から $Sr^{90}$ の寄与量を求めた。個々の試料の計数値が小さい降下塵などの場合止むを得なかつたが、 $Sr^{90}$ の寄与量を小さく見積る因子となるであろう。事実のちに捕捉した試料の起爆日の方がより早い場合もしばしばあつた。

このようにしてH・B表から求めた $Sr^{90}$ の寄与量は表Iに記した。

表一I 月別フォールアウト寄与量並にH・B表による $Sr^{90}$ 寄与量

捕集期間	全寄与量 $\times 10^4 \text{dpm/m}^2$	H・B表より求めた $Sr^{90}$ の寄与量		平均起爆日
		$\text{dpm/m}^2$	$\text{m}\mu\text{c/m}^2$	
6月1日～7月1日	$1.7 \pm 0.9$	$25.2 \pm 12.7$	0.013	～70日
7月1日～8月5日	$5.4 \pm 1.3$	$45.4 \pm 11.5$	0.021	～45日
8月5日～9月2日	$0.9 \pm 0.07$	$7.6 \pm 0.6$	0.003	～40日
9月2日～9月30日	$1.9 \pm 0.1$	$16.5 \pm 0.8$	0.007	～45日
9月30日～11月4日	$3.7 \pm 0.18$	$45.9 \pm 2.12$	0.021	～66日
合計	13.6	140.6	0.065	

注 平均起爆日とは試料の総合減衰から求めた仮想起爆日翌月始めの第一回目の計測日からはかる。尚全寄与量に対する計測値は翌月始めの第一回目の計数値をとる。

尚、6月～8月の各月の試料については、それ等の総合した減衰が得られるので、それら全体が $t^{-1.2}$ の法則に従うとして、仮想的起爆日を求め、H・B表から $Sr^{90}$ の寄与量を計算すると、個々のピークから求めた値とよい一致を示すことがわかつた。

9月、10月の値はこの方法で求めた。

#### ii) 降下塵と降雨による寄与量

6月から8月までの一カ月毎の降下塵と降雨による寄与量を表2に示す。上述したように捕集方法の不備があるので若干の混合がある筈で将来改良を要する。

フォールアウトの全寄与量は主として降雨量に支配されることがわかる。降下塵に対して降雨による寄与は2～20倍と変化している。

表 2 降下塵及び降雨による寄与量

捕集期間	種類	全計測値 ×10 <sup>4</sup> dpm/m <sup>2</sup>	H.B表によるSr <sup>90</sup> dpm/m <sup>2</sup>	降下塵純降下率 dpm/m <sup>2</sup> ·hr	降雨量 mm	降雨による 平均強度 dpm/m <sup>2</sup> mm
6月1日～7月1日	降雨	1.41 ± 0.79	21.9 ± 12.1	5.3 ± 1.4	167.8	84.0 ± 47.1
	降下塵	0.20 ± 0.09	3.3 ± 1.2			
7月1日～8月5日	降雨	5.10 ± 1.13	43.3 ± 6.5	5.6 ± 2.2	365.4	143.2 ± 31.5
	降下塵	0.26 ± 0.13	2.1 ± 1.1			
8月5日～9月2日	降雨	0.67 ± 0.04	4.8 ± 0.3	7.0 ± 0.9	16.1	416.6 ± 25.0
	降下塵	0.27 ± 0.03	2.8 ± 0.3			
合計	降雨	7.18	70.0			
	降下塵	0.73	8.2			

唯著しいことは、降下塵による一日当りの平均の寄与量は大体一定で 42 cpm/m<sup>2</sup>day (～150 dpm/m<sup>2</sup>day) であつた。勿論これはその間特に大きなピークがなかつたためであるが、図 I からわかるように少ない値も大体一定で 20 cpm/m<sup>2</sup>day (～70 dpm/m<sup>2</sup>day) より少ない日は僅かしかない。これは所謂バックグラウンドの値を示すものであろう。

このことは降雨に対しても云えることで、例えば初期 1 mm 計数値と降下塵の値とは大体平行関係にあり、初期濃度も ～100 cpm/m<sup>2</sup>·2 mm を下回る値は極めて少ない。初期の ～2 mm の雨で空中塵は洗滌されると云う点から考えて、この対応はもつともなことであろう。

#### IV. 実験結果に対する考察

表 I で示されているように、H. B 表から求めた Sr<sup>90</sup> の寄与量は、一般に報告されている<sup>2),3)</sup> 値に比して可なり小さい。即ち 5 カ月の総計 0.065 mc/km<sup>2</sup> でもしこの割合で降るとして、～0.16 mc/km<sup>2</sup>·year になる。所で化学分析によると Sr<sup>90</sup> の寄与量は、H. B 表から求めた値の 1.6 倍<sup>2)</sup> (2 年前)、今日では 2～3 倍<sup>4)</sup> になると云われている。3 倍すると ～0.48 mc/km<sup>2</sup>·year となる。季節的、地域的ふらつきのためと考えられないことはないが、成層圏降灰による Sr<sup>90</sup> のバックグラウンドが既に 2～3 mc/km<sup>2</sup>·year<sup>3)</sup> と云われている点からみても ～1/5 も小さい値である。これについては次のような理由が考えられる。

i) 既に述べたように、比較的計測値の小さい試料については起爆日の正しい決定がなされずピーク値を採用したために、Sr<sup>90</sup> の全体に対する寄与量を過小に見積つていることになる。H. B. 表によると Sr<sup>90</sup> の全体に対する寄与率 (%) は始めの～100 日までは t<sup>2)</sup>, 又～100～1000 日の間では近似的に t<sup>1.6</sup> で増加するので起爆日の推定値は、Sr<sup>90</sup> の寄与量にかなりひびいてくる。しかしこの場合これだけで説明は出来ないであろう。

ii) 当地方の全フォールアウト自体が比較的小さい。表 3 は同じ時期の各地の β のグロスカウンターの比較値である。

表 3 日本各地に於けるフォールアウトの寄与量 ( $\times 10^4$  dpm/m<sup>2</sup>)

	松 江	高 知	京 都	横 浜	弘 前	米 子
6 月	1.74 $\pm$ 0.25	10.4 $\pm$ 0.2	10.3 $\pm$ 0.4	7.0 $\pm$ 0.4	2.64 $\pm$ 0.15	1.7
7 月	5.36 $\pm$ 1.23	6.72 $\pm$ 0.11	28.9 $\pm$ 2.6	16.0 $\pm$ 2.0	7.52 $\pm$ 0.73	4.8
8 月	0.94 $\pm$ 0.07		4.44 $\pm$ 0.64			0.99
9 月	1.89 $\pm$ 0.09					
10 月	3.7 $\pm$ 0.18					

注 米子の値は cpm/m<sup>2</sup> で発表されているが気象庁での dpm 換算を用いてなをした。  
 他はフォールアウト研究班の発表値。

上表でみられるように京都の値に比して、当地のそれは  $\sim 1/5$  も小さい。米子の値とそれ程差がないことは、気象の関係で山陰地方のフォールアウト自体が小さいことを示しているとみてよい。同じ時期であり大体同じ起爆日のものの対応と考えてよいから、地域的な変動の範囲にあるとしてよいかも知れない。しかし問題は Sr<sup>90</sup> であり、バックグラウンドを考慮する時、尚説明は充分とは云えない。

iii) 従つて問題はバックグラウンドの量にある。

事実既に度々指摘されているように、H. B 表から Sr<sup>90</sup> の寄与量を求める場合、起爆日の古いフォールアウトからの寄与は、その方法上無視される。一方メガトン級の水爆実験では、その 2/3 は成層圏にまで上昇し大体その約 10~20% が毎年徐々に降下すると考えられている。又対流圏降灰に於いても径 1  $\mu$  以下の微小塵の降下は極めてゆるやかである。この様な降灰によるバックグラウンドは既に可なり量のにぼるだろうことが予想されている。このために既に述べたように、H. B 表からの値に対しては、化学分析の方から、その 2~3 倍量の補正が必要であると考えられている。この問題に関し少し立入つて考察してみよう。

例えば、英の Milford Haven に於ける 1954 年 4 月から 1956 年 3 月までの二年間の降灰の化学分析から推定される成層圏降灰による Sr<sup>90</sup> のバックグラウンドは  $\sim 1$  mc/km<sup>2</sup>·year であり、全フォールアウトからの寄与量は 2.3 mc/km<sup>2</sup>·year となつてバックグラウンドは全体の半ばを占めている。1956 年以降の大型水爆の実験を考慮するならば、バックグラウンドは今日ではこの 2 倍以上を占めると推定される。即ちバックグラウンドの Sr<sup>90</sup> だけで、H. B 表から求めたわれわれの値の  $\sim 10$  倍にも達することになる。今日まだ降灰がどのように起つているかについて、正確な知識を吾々はおもっていない。しかし常に何程かの降灰が観測されているのでバックグラウンドがありとすれば、それは降下塵や降雨の放射能の日々の強度変化の低いレベルの平均値として現われてくることが期待される。図—I からわかるように、このような値として降下塵に対して  $\sim 70$  dpm/m<sup>2</sup>·day としてよいであろう。このバックグラウンド ( $\beta$  のグロスカウン트의推定値) には勿論 1 年後の比較的新しいものもあり又 3 年 4 年と古いものも混在しており又その量もかなりまちまちである。仮りにその総体に対する見掛上の平均起爆日を 1.5~2 年前と推定しよう。H. B 表から Sr<sup>90</sup> の寄与量が得られ 2~3 dpm/m<sup>2</sup>·day となる。

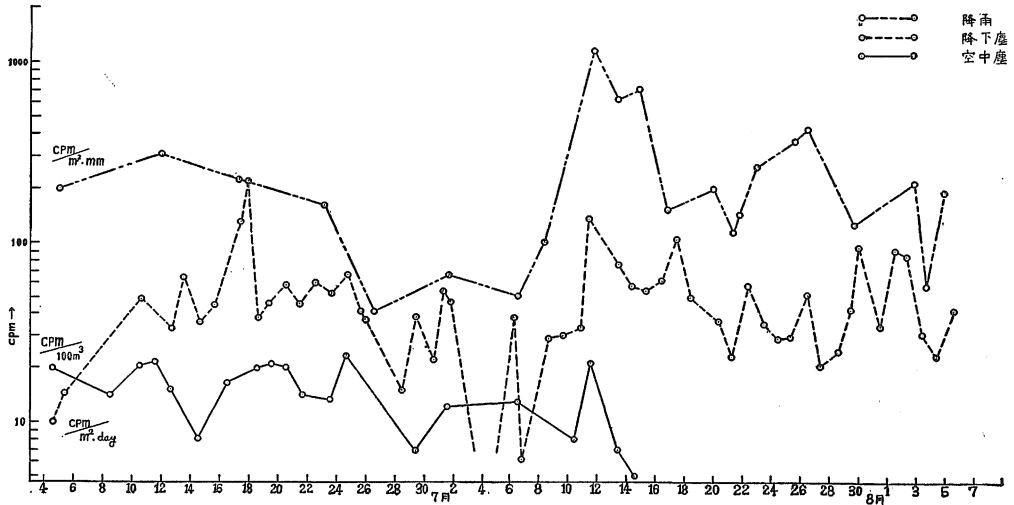


図 I 降雨，降下塵並びに空中塵の放射能強度の日変化

一方電気集塵器より求めた気中放射能の平均濃度は  $0.5 \text{ dpm/m}^3$  でこの半分がバックグラウンドに対応していると考えられる。一雨  $2 \text{ mm}$  以上の降雨に際しては、その成層や、降下に際して  $\sim 5000$  米の上空から捕捉洗滌して落下してくると仮定すれば、そのような一雨がもたらす、バックグラウンドのグロスカウントは、 $1250 \text{ dpm/m}^2$ —雨 ( $>2 \text{ mm}$ )。これが平均として起爆後  $1.5 \sim 2$  年のものであるとすれば、 $\text{Sr}^{90}$  の寄与量は  $\sim 20 \sim 30 \text{ pm/m}^2$ —雨 ( $>2 \text{ mm}$ )、6月～11月始めまで、当地方での  $>2 \text{ mm}$  の雨は都合 64 回あつた故、 $1600 \text{ dpm/m}^2$  の  $\text{Sr}^{90}$  の寄与が 5 カ月間にあつたことになる。大体この割で降雨がある故、年間  $\sim 1.7 \text{ mc/km}^2$  が降雨によりもたらされるバックグラウンドの  $\text{Sr}^{90}$  の寄与量となる。

降下塵を考慮すると  $\sim 2.0 \text{ mc/km}^2$  が得られ、一般に云われるバックグラウンドに近い値が得られることがわかる。バックグラウンドの平均起爆日を色々仮定した場合の降下塵及び降雨による  $\text{Sr}^{90}$  の寄与量を計算したのを表 4 に示した。この様な値が得られる可能性は充分考えられることでバックグラウンドの問題は極めて重要である。

表 4 バックグラウンドからの  $\text{Sr}^{90}$  の寄与量の推定値

平均起爆日 日	$\text{Sr}^{90}$ の寄与率 %	降下塵による寄与 5 カ月間 $\text{mc/km}^2$	降雨による寄与 5 カ月 $\text{mc/km}^2$	$\text{Sr}^{90}$ の全寄与量 5 カ月 $\text{mc/km}^2$	$\text{Sr}^{90}$ の全寄与量 (1 年間) $\text{mc/km}^2 \cdot \text{years}$
300	1.22	0.036	0.45	0.48	1.15
400	1.99	0.06	0.73	0.79	1.89
500	2.66	0.08	0.97	1.05	2.52
550( $\sim 1.5$ 年)	3.00	0.09	1.09	1.18	2.83
720( $\sim 2.0$ 年)	4.60	0.14	1.68	1.82	4.37

但 5 カ月間  $2 \text{ mm}$  以上の降雨の日 64 回、あとは降下塵の寄与と考へた。

年間値は昨年 10 月から本年 10 月までの  $2 \text{ mm}$  以上の降雨日数を考慮した。

ところで所謂バックグラウンドの  $\text{Sr}^{90}$  の上方から地表への移動について、次のようなことも考えられる。これらの降下率  $\sim 70 \text{ dpm/m}^2 \cdot \text{day}$  と、気中濃度  $0.25 \text{ dpm/m}^3$  から  $\sim 280 \text{ m/day}$  の移動速度が得られる。これは密度 1 で径が数  $\mu$  の微粒の自然落下の速度にほぼ等しい。放射能強度の高さに対する濃度分布の調査によると、0~10 km まではほぼ一様で 12~15 km の所謂逆転層附近で急増<sup>2)</sup>している。即ち対流圏では一様な混合状態にあるとも考えられる。

地表附近では一種の対流により下方に運ばれた放射能塵が、降下塵として自然落下で降つて来ていると考えてもよい。従つて上のような移動速度が考えられるが、古いバックグラウンドの塵としては大き過ぎる値のようだ。径  $1 \mu$  以上の降下塵と、より微粒(径  $1 \mu$  以下)の浮遊塵とを併せて考慮する必要があるように考えられる。

以上  $\text{Sr}^{90}$  の量の推定には、バックグラウンドの問題が極めて重要であるが、成層圏降灰や浮遊塵の問題は未だ不明な点が多い。

従つて  $\text{Sr}^{90}$  の絶対量を求めるにも又上述の種々の問題を調べる上にも、化学分析が重要な意味をもつことが期待される。

## V. 化学分析について

既に述べたように、相当量の  $\text{Sr}^{90}$  のバックグラウンドが期待されるが、もし事実そうであるなら一二月間の降下塵から化学分析により、 $\text{Sr}^{90}$  を検出出来るであろう。われわれの分析方法は次のような考え方に基づいている。

普通、フォールアウトの化学分析から得られる放射性ストロンチウムは  $\text{Sr}^{89}$  と  $\text{Sr}^{90}$  の混合したものである。特に新しい起爆日のものでは  $\text{Sr}^{89}$  が大部分を占める。したがつて  $\text{Sr}^{89}$  と  $\text{Sr}^{90}$  の量を別々に決定する方法が問題になる。 $\text{Sr}^{90}$  は半減期 28 年で娘核  $\text{Y}^{90}$  に崩壊し、これは半減期 64 時間で安定核  $\text{Zr}^{90}$  になる。これら  $\text{Sr}^{90}$  と娘核  $\text{Y}^{90}$  は  $\sim 15$  日もたてば一種の放射平衡に達する。そこで先ず試料中の他の核種からストロンチウムを分離しなければならない。この試料の放射強度は初期値 ( $\text{Sr}^{89} + \text{Sr}^{90}$  の放射強度) から、 $\text{Sr}^{90}$  の崩壊に伴い出来る娘核  $\text{Y}^{90}$  の崩壊分を加えてその強度は日と共に増加し、 $\sim 15$  日で殆んど飽和値に達するであろう。次に尚以上の関係を確めるため、二回目の分離を行い  $\text{Y}^{90}$  のみを分離し、雨試料について  $\text{Y}^{90}$  はその減衰曲線を  $\text{Sr}^{89} + \text{Sr}^{90}$  の試料は前と同様に生成曲線を調べ、この両者から  $\text{Sr}^{90}$  の量が確認出来ることになる。従つて又  $\text{Sr}^{89}$  の量も求められる。H. B 表と照し合せて試料の古さ、即ち起爆日も推定されよう。この方法は同じような関係にある核種の定量に利用することが出来る。

この方法が有効に利用されるためには、分離が出来るだけ純粋に、且損失なく行われる必要がある、又  $\text{Sr}^{90}$  の量が充分検出可能な程に存在しなくてはならない。又一方相対的に  $\text{Sr}^{89}$  の少ないことが望ましい。普通端に窓型 G. M カウンターの場合数拾カウントは必要で、もし  $\text{Sr}^{89}$  がなければ  $\sim 10$  カウント以下でも様子はわかる。

分析にはイオン交換樹脂によるのが最もよいであろうが、事情で吾々は試みとして、普通の

分析方法によらざるを得なかつた。先ず、試料から第二族のアルカリ土類金属を分離した。

$\text{Sr}^{89}$  や放射性 Ba の影響を出来るだけ避けるため、分析は試料捕集後250日を経て行つた。

しかしその他の放射性核種が存在しないかどうかは確認し得なかつた。アルカリ土類金属の放射性核種はストロンチウムのみと考えた。第二段の  $\text{Y}^{90}$  の分離は共沈法を用いた。試料は昨年9月から10月始めの一か月間のフォールアウトの一部  $0.68 \times 10^4 \text{dpm}$  を用いた。7月末まで都合三回の分析を試みた。結果の一部を図 II に示す。始めの分析で得たものが純粋のストロンチウムであるとし、且損失はないとして試料中の  $\text{Sr}^{90}$  の量は  $\sim 110 \text{dpm}$  となつた。この値は試料が凡て昨年8月末から9月始めにかけてのソ連の核実験のものであるとして、H. B 表から求めた  $\text{Sr}^{90}$  の値の20~30倍も大きい。

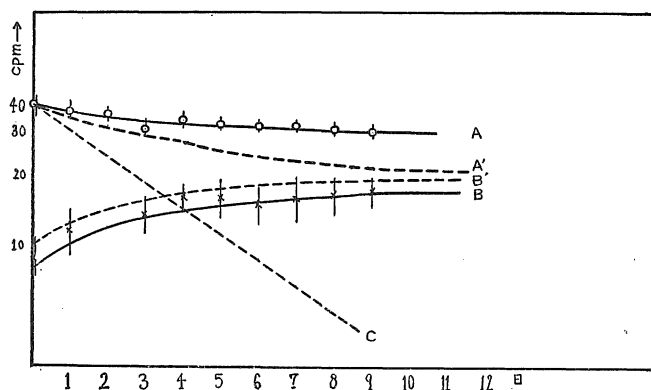


図 II 共沈法による  $\text{Sr}^{90}$  と  $\text{Y}^{90}$  の分離物質の放射能変化

- A. 沈澱物の強度変化曲線 ( $\text{Sr}^{90}$  (15 cpm) +  $\text{Y}^{90}$  (25 cpm) と仮定した場合)
- A'. // ( $\text{Sr}^{90}$  (10 cpm) +  $\text{Y}^{90}$  (30 cpm) // )
- B. 分離液の強度変化曲線 ( $\text{Sr}^{90}$  より  $\text{Y}^{90}$  の生成曲線で  $\text{Sr}^{90}$  8 cpm と仮定)
- B'. // ( //  $\text{Sr}^{90}$  10 cpm と仮定)
- C. 純粋のイットリウム-90 の減衰曲線

微量な他の放射性核種、特に稀土類元素の混在の可能性について、必しも完全に否定し得る程検討は充分ではない。しかし同じ頃新潟大学や東京の予防衛生研究所等での分析結果から判断して、これはあり得べからざる値とは言えない。色々追試もし、バックグラウンドの問題を検討する為化学分析を行う予定で試料を集めて来たが、事故のため中止せざるを得なくなつた。化学分析については今後を俟ちたい。

## VI. む す び

以上の如く6月~10月の5か月間の全フォールアウト並に  $\text{Sr}^{90}$  の寄与量は比較的少ない。

今日の如く日々の降灰に古い起爆日のものが相当量混在して来ている現状では、単に物理的測定だけからは、 $\text{Sr}^{90}$  の寄与量の推定に正確を期し難い。又将来の蓄積量を問題にする場合、成層圏降灰や浮遊塵に由来するバックグラウンドに関しより正確な知識を必要とする。その為

には生のフォールアウトや気中の放射強度の測定は勿論であるが、これと平行して化学分析をも強力に進めてゆく必要がある。

途中思わざる事故もあり、研究も途中で、何等見るべき結果も得られていないが、今後の研究課題やその方法を考える上に、必要と思われる点など一応まとめて、中間報告とする。

この研究は文部省総合科学研究費におつている。尚この研究に種々の便宜を与えて下つた県衛生研究所の岡林技官に深く感謝し、又試料の作成や測定に協力してくれた化学教室の学生諸君に厚く謝意を表す。

— 文 け ん —

- 1) 井戸垣, 岡崎, 岡: 島根大学論集(自然科学)第7号, 昭和32年3月, 43 p.
- 2), 4) 大田正次: 天気, 4, 5 (217~219) 1957  
人工放射能塵についての研究のすう勢(3), ——国連第2回放射能影響調査科学委員会経過報告——
- 3) 道家忠義: 自然, 12, 4, 1957
- 5) 化学の領域委員会: アイソトープ実験技術 I, 236 p.