島根大学論集(自然科学)第14号 1-7頁 9図 昭和39年12月〔SERIHS B〕 Bul Shimane Univ. (Natural Sci.) No. 14, December, 1964.

降水及び落下塵の放射能について*(第一報)

伊藤 一義 ・ 井戸垣正俊 ・ 岡 真弘

(昭和39年9月5日受理)

The Relationship between Precipitation and Radioactive Fallout. I Kazuyoshi Ito,** Masatoshi Idogaki*** and Masahiro Oka**

> **Department of Physics,*** Department of Chemistry, Faculty of Arts and Science, Shimane University

The analysis of the following data has shown that radioactivity of the total fallout is approximately proportional to the amount of rainfall. And yet the activity per unit volume of precipitation decreases with increasing rainfall. This fact suggests that we must fairly consider the contribution of dry deposition. As a result from analysis of gamma-ray spectrum, six photopeaks have been observed evidently. It is estimated that these peaks are due to $^{144}Ce^{-144}Pr$, ^{103}Ru , $^{106}Ru - ^{106}Rh$, $^{95}Zr - ^{95}Nb$ and ^{40}K . The result of total beta-ray measurements was almost the same as that of gamma-rays.

I. は し が き

1954年ビキニの核爆発の実験以来,世界中の環境の人工放射性物質による汚染が問題となっ て来た。吾々も1956年より数年間大気と降水中の放射能について研究を行って来た1)~4)。 1958年末に核爆発の実験は一度停止されたが,1961年秋に再開された実験は翌62年に亘って行 なわれ,その量は核エネルギーに換算して1960年以前に米英ソ三国で行なった全量の約2倍に 達する。この為放射性物質の降下量は急増し1963年6月における東京の値は⁹⁰Srで4.59mC/km² にも達した⁵⁾。1963年7月には核実験停止協停が締結されたが,大気圏に打上げられた放射性 物質は一定時間滞留した後地上に降下するから今後尚放射性物質の降下は相当量に昇り,又地 上への蓄積は年々増大し極大に達した後も相当長期に亘って大きな影響が考えられる⁶⁾。特に 多雨地域では放射性物質の降下量が他に比して大きいので,その影響も更に大となる。放射性 降下物やその蓄積によって環境が汚染され,それによる人体の影響を考察することは極めて大

^{*} 本研究は文部省特定機関研究 ^{*}放射性降下物及びその蓄積の測定、の研究費の一部によって行なわれた ものである。

切な事と考えられる。

2

山陰地方は極めて多雨であり降下物の量も多いので,吾々の属するグループは1963年度より 放射性降下物及び其の蓄積に関する研究一特に環境要因を加味した土壤への実効蓄積線量に重 点を置く一が計画実施されている。吾々は実効蓄積量の知見を更に深める為に全放射性降下物 の測定をし,年間降下率を求め,全地球上及び各地の降下率の実測値及び推定値^{5),6)}との 比較を行ない,松江地方に於ける放射性降下物積分量を求める。即ち降下量に物理的減衰を考 慮した量が地上に蓄積されるものと考えられるが,これと蓄積実測値との比較により環境要因 的減衰の研究をより深めることが出来ると思われる。

この様な目的をもって始めた研究で,測定器の整備を含めて降下物の雨量との相関,及び核 種組成の同定について若干の実験及び考察を試みた。未だ予備的な段階に過ぎないが今迄の結 果について一応報告する。

II. 試料採取,調製,測定

松江市西川津町,島根大学自然科学実験研究室屋上(地上三階の建物の屋上出入口の上,即 ち地上5階に当り地表より16mの位置)に写真(Photo.1)の如き試料採取ポットー鉄製ホーロ ー引きで口径面積1000cm²,深さ60cmーを設置して降水,降下塵の全量を採取した。ポットは 約10日間連続放置し,毎月10日,20日,月末日に採取する。採集の時には蒸留水にて充分ポッ

トを洗滌する。2月上旬~3月上旬は採取し た全試料(ポット洗滌用蒸留水も含めて)の 内から1 $\ell \ \varepsilon \ \beta$ 線測定用に,残りをr線測定 用に,又3月中旬以後は全試料の $1/10 \ \varepsilon \ \beta$ 線 測定用に,残りをr線スペクトロメトリーに 供した。

調製は一般に用いられる方法により蒸発乾 固した。用いた試料皿はステンレススチール 製でr線用には径 50 mn ϕ , β 線測定用には 25 mm ϕ のものを用いた。

測定器は、 β 線測定には G-M計数 装置 Aloka 製 DC-5Cを、GM計数管は GM-2504A、マイカ窓厚 1.2mg/cm²を使用した。 計数効率の決定には RADIUM、D+E 標準 線源(Nuclear-Chicago 製 Model, RT5, SERIAL NO. 13-25)を用いた。

γ線スペクトロメトリーには 東芝製トラン



Photo. 1 Placement of the pot for sampling.

ジスタ式128チャンネルパルス波高分析器 (PHA) EDS-34203 形を用い, ADOX のプリンタ ーに記録した。用いたディテクターはハーショー製 2″×2″ NaI (Tl) シンチレーターヘッド である。試料皿はシンチレーター上部に置き,常に幾何学的に同一条件を保ってある。

III. 測定結果及び考察

1. 放射性降下物の r 線スペクトル分析

1.1 測定条件及びバックグラウンド

この測定に用いた 128 チャンネル PHA の分解能を調べるため、単一ピークをもつ校正用線 源 ¹³⁷Cs を100秒間測定した。このピークの半値幅は13チャンネルであったので、分解能は4.53 %である。

Fig.1のAは鉛遮蔽なしでバックグラ ウンドを5時間測定したものである。計 数率は 9957cpm であった。 図より明ら かなように大きなピークが 122 チャンネ ルにみられる。これは 1.46MeV に近い ので40Kが存在するものと考えられる。 鉛で遮蔽してバックグラウンドを測定し たものが Fig.1のBである。全チャンネ ルの計数率は365cpm となり、遮蔽を施 さない場合の1/27に減じているので、鉛 遮蔽の効果は十分に認められた。用いた 鉛レンガの厚みは 10cm であり, シンチ レーターを含むプローベ全体を遮蔽した。 しかし^{40K}によると思われるピークは依 然としてみられるので、このピークを確 めるために KCl 500 g を 3 時間測定して みた。バックグラウンドと比較して全チ ャンネルの放射能が増しているが, 1.46



inch NaI (T1) crystal when unshielded (A) and when shielded with 10-cm thick Pb (B).

MeV のピークが 一層高くなってきている。 即ちバックグラウンドの測定におけるエネルギー の高い方の大きなピークは ⁴⁰K によるものであることが確められた。

遮蔽に依って下げられるバックグラウンドは宇宙線軟成分及び周囲の建造物,土壤,大気中の放射性物質からの r 線である。しかし,遮蔽材や検出器自身のもつ放射能は除くことができない。即ち NaI やシンチレーターの窓や増倍管のガラスの中の40Kからの r 線が問題になる7)。 そこで,バックグラウンド中で 40K の影響によると思われる成分を調べるため, KCl を用いて 定量分析を試みた。そして,粗い計算をした結果,バックグラウンド:448cpmの中に 40 Kの寄与によるものが112cpmであり、これは 7.87×10^{-6} gの 40 Kに相当する。但し、これは検出器自身にこれだけの 40 Kを含有しているという意味ではなくて、測定状態に置いた時の 40 Kの量に相当する。

1.2 全降下物のr線測定

長期間に亘って測定する迄に至っていないので,r線の計数率の季節的な変動を見ることはで



Fig. 2 The relationship between precipitation and fallout deposition.



Fig. 3 Some nuclide concentration in precipitation as a function of amount of precipitation.

きないが,2月から6月にかけて各月 の上,中,下旬の全降下物中の計数率 と降水量との関係を調べた(Fig.2)。 図には月々の降水量の変化している様 子が示されているが,特に5月中旬が 非常に少いことが目立っている。それ ぞれの期間に採集した全降下物の放射 能(cpm)は雨量の変化とは,ほぼ比 例しながら推移している。

この事実は当然のことではあるが, 降水量が増せば,それに吸着している 全放射性粒子の数が多くなることを示 している。ところが一見,計数率は降 雨量に比例しているので,その単位体 積当りの放射能(cpm/l)をとれば 一定になることが推測されるにも拘ら ず,図示の如く大きく変動している。 降雨量の少い3月上旬(24.4mm),3 月下旬(26.8mm),5月中旬(3.9mm) 等では,単位体積当りの放射能は逆に 非常に高く,就中,最底の降雨量であ る5月中旬では最も顕著で379cpm/l にも達している。

降水量に対して全降下物1 ℓ 中の放 射能をプロットすると, Fig. 3 の点線 で示したものになる。そしてこのデー タから予測されることは, 10日間の雨 量が70mm 以下の範囲では, 降水量の 増加につれて単位体積当りの放射能は減少しており、雨量がそれ以上になれば、降水の影響が 殆どなくなる。この現象は Edward P. Hardy 等⁸) に依れば、乾燥した大気中では、雨が降る のには多くの量の大気が必要であり、従ってこのような状態で降って来た雨には放射性粒子が 多く濃縮される故、比放射能が高くなると説明されている。又、雨滴の洗滌効果により降り始め の雨には単位体積当りの放射能が高い故¹⁾、雨量が少い時や降雨回数によりこの様になること は当然と考えられる。

雨の累加量とそれに蓄積された全降下 物の放射能の間の比例関係が Fig.4 に示 されている。この直線の途中から傾斜が 変っているのは,試料の採集方法が3月 中旬から変ったことか,或は季節的な変 動による影響かのいずれかと考えられる。 詳細の研究は続報に譲ることとして,勾 配の緩い方の直線を用いて外挿法に依り, この直線を延長して縦軸を切る点を考え てみる。即ち,この点は雨の蓄積量零に 於ける放射能を示している。換言すれば, 降雨に依らない乾いた落下塵の放射能が 約500cpm である事が推定される。

これらの事実から,降雨と全降下物の 放射能とはほぼ比例するが,単位体積当 りの放射能(cpm/l)は雨量の増加と共 に減少し,乾燥した落下塵の影響を可成 り考慮しなければならないことが分った。

1.3 放射性核種の同定

Fig. 5 は 4 月に採集した試料を 5 時間 測定して作った r線スペクトルグラフで ある。全チャンネルの計数率は 699cpm で割合に放射能が高く,更に明瞭なピー クが 6 つ観測された。それらのピークは, 144Ce-144Pr, 103Ru, 106Ru-106Rh, 95Zr -95Nb と 40Kの光電ピークに依るものと 思われる 9)~12)。これらの中, 95 Zr -95Nb のピークは 双峰性で 0.76 MeV と







0.72MeV の山と考えられるが、雨の採集料が少ないと消失してしまうことが多かった。

採集した時期と採集した雨1ℓ中の¹⁰⁶Ru-¹⁰⁶Rh, ¹⁰³Ru 及び0.37MeV の核種の放射能との 関係を示したのが Fig.6 であり,同じ核種の放射能と降水量の関係を示したものが Fig.3 であ



Fig. 6 The relationship between precipitation and some nuclide deposition.

2. 放射性降下物の全 β 線測定

る。これらは前節の全r放射体の場合の データと同じ結果を示しているが、核種 に依って雨に吸着している割合が違って いることが見られる。即ち、0.37 MeV の核種、 106 Ru - 106 Rh, 103 Ru の順に単位 体積当りの放射能が高くなっている。但 し、ここでいうピークは多少のチャンネ ルの変動を考慮に入れて、最高点を中心 に5 チャンネルの幅をとって、各々のデ ータ処理に供した。従って、核種毎に示 している放射能は何ら絶対的な値でない。 137 Cs のピーク(0.66 MeV)はその近傍 のピークである 95 Zr - 95 Nb(0.75 MeV) や 106 Rh(0.624 MeV) のピークにマスク されてわからない。

r線測定の場合と全く同様な方法で試料を調製して G-M 計数装置により全 β 放射能測定 を行なった。



放射能量は標準試料と比較して絶対測定を行なった。Fig.7にこの値を用いた旬間降下量の



Fig. 7 Monthly deposition of fallout (mc/km²) by means of total beta-ray measurement.



推移を示した。

次に r 線測定の場合と全く同様なデータ処理を行なった所,傾向としては全く類似のグラフ を得ることができた(Fig. 8)。従って, β ,r測定値の信頼を確めた以外,それに対する考察 は r 線測定の場合と何ら変る所はない。

Ⅳ む す び

以上,現在までの観測結果についての概略を述べた。詳細な検討は今後の研究をまたねばな らない。或は,誤った解釈をしている点があるかも知れないので,大方の叱正を願えれば幸い である。この研究は昭和38,39年度文部省科学研究費(特定機関研究)の一部を受けた事を記 して謝意を表する。また,山本作次郎教授を担当者とする機関研究のグループの皆様の御配慮 に対して謝意を表する。面倒な測定に終始協力を惜しまなかった学生,槇原昇,末芳寛,中村 恵の諸君,試料の採取,調製に協力された椎木勝,西尾彰宣の諸君にも深く感謝する。

文 献

- 1) 井戸垣正俊, 岡崎庶兄, 岡真弘: 島大論集(自然) 第7号, (1957) 40.
- 2) 岡崎庶兄,井戸垣正俊:島大論集(自然)第8号,(1958)25.
- 8) 岡崎庶兄:島大論集(自然)第9号,(1959)23.
- 4) 寺中正彦: 島大論集(自然)第11号,(1962)83.
- 5) 田島英三, 市川龍資: 自然 2月号, (1964) 106.
- 6) 三宅泰雄, 葛城幸雄, 金沢照子: 科学 34, (1964) No.3, 142.
- 7) C. H. Miller, et al. : I. R. E. Trans., NS-3, (1956) 90
- E. P. Hardy Jr. and L. T. Alexander : Radioactive Fallout from Nuclear Weapons Tests, Proceedings of a Conference Held in Germantown, Maryland (U. S. A. E. Commission), TID-7632. (1961) p 287.
- 9) P. F. Gustafson and S. S. Brar : Radioactive Fallout from Nuclear Weapons Tests, Proceedings of a Conference Held in Germantown, Maryland (U. S. A. E. Commission), TID-7632. (1961) p 60.
- 10) 竹内柾,他:文部省研究報告集録(昭和38年度)
- 11) 渡辺博信,他:第四回放射能調査研究成果発表集(昭和37年)
- 12) 山県登, 岩島清: 第四回放射能調查研究成果発表会論文集(昭和37年)