

第19回中国核爆発実験による強放射能粒子の Fractionation 効果について

帯 刀 正*

(昭和53年10月31日受理)

Fractionation Effect of Hot Particles from the Nineteenth Chinese Nuclear Test Explosion

Tadashi TATEWAKI

Gamma-ray spectrometric studies were conducted on the radionuclide fractionation appearing in individual hot particles (highly radioactive fallout particles) from the nineteenth Chinese nuclear test explosion on September 26, 1976, which was reported as being in the range of magnitude 20-200 kilotons in the atmosphere. The activities of the fourteen nuclides, ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}I , ^{133}I , ^{140}Ba , ^{141}Ce , ^{143}Ce , ^{144}Ce , ^{147}Nd , ^{237}U and ^{239}Np were determined, and the initial atom numbers of these nuclides contained in each sample were estimated. The fractionation factor defined with respect to ^{95}Zr was calculated in order to express the degree of fractionation. Some pairs of radionuclides were selected for estimation of their respective initial atom number ratios, among which the one of ^{239}Np to ^{237}U was estimated at about 35. The relatively higher concentration of ^{239}Np to ^{237}U in the nineteenth Chinese nuclear test indicates that the thermonuclear reaction did not play a significant role in this test.

1. ま え が き

1976年9月26日に行われた第19回中国核爆発実験は、米国エネルギー研究開発庁 (ERDA)¹⁾ によれば、中国は新疆省ウイグル自治区ロブノール (40°N, 90°E) 地区において、15時 (日本時間) 大気圏内で核爆発実験を行なった。そしてその規模は 20—200kt (TNT) であるとかかなりの中で発表された。一方、長井ら²⁾ は核爆発の際、生成されたフォールアウトを運ぶ高層気流の流跡線の研究より核爆発の規模は 100kt (TNT) と推定している。著者は先に第19回中国核爆発実験による強放射能粒子に含まれる放射性核種について、Ge (Li) γ 線スペクトロメトリーによる定性的分析結果を^{3) 4)} 報告したが、今回は前記強

* 応用物理学教室 教授

放射能粒子に含まれる放射性核種として、 ^{95}Zr , ^{97}Zr , ^{99}Mo , ^{103}Ru , ^{131}I , ^{132}Te , ^{133}Xe , ^{140}Ba , ^{141}Ce , ^{143}Ce , ^{144}Ce , ^{147}Nd および ^{237}U と ^{239}Np の放射能測定を行ない、粒子形成時において、これら核種が強放射能粒子に含有されていた初期原子数を推定し、上記放射性核種間に現われる Fractionation 効果について報告する。

2. 試料および測定結果

試料としては HP-1, HP-2, ……HP-6 と記した単一の強放射能粒子試料 6 個と、単一の強放射能粒子 18 個と 20 個を集め、それぞれ HP-G-1, HP-G-2 と記した強放射能粒子群の試料 2 個よりなる。なお試料 HP-G-1 と HP-G-2 は前回の試料 No. 1 と No. 2 とそれぞれ同一である。これら試料の γ 線スペクトルの光電ピークの面積から上記核種の放射能を求め、これから各試料中に含まれている核種の粒子形成時における初期原子数を算定した。この際の核爆発の時刻は 1976 年 9 月 26 日 15 時 (日本時間) とした。その結果を

Table 1. Initial atom numbers estimated.

Sample	Atom number						
	mass 95	mass 97	mass 99	mass 103	mass 131	mass 132	mass 133
HP-1	7.4×10^8		4.3×10^8		2.4×10^7		
HP-2	1.3×10^9		3.7×10^8		1.2×10^7		
HP-3	4.8×10^8		3.8×10^8		5.9×10^7		
HP-4	1.1×10^9		5.7×10^8		3.2×10^7		
HP-5	6.4×10^8		3.1×10^8		5.9×10^7		
HP-6	8.1×10^8		5.7×10^8		1.3×10^7		
HP-G-1	9.7×10^9	5.5×10^9	2.9×10^9	2.1×10^8	3.3×10^8	2.5×10^8	2.9×10^8
HP-G-2	1.6×10^9		5.8×10^9	4.3×10^8	8.7×10^8	5.2×10^8	9.3×10^8

Sample	Atom number						
	mass 140	mass 141	mass 143	mass 144	mass 147	^{237}U	^{239}Np
HP-1	6.5×10^7	1.9×10^8			3.1×10^8		
HP-2	1.3×10^8	2.7×10^8			4.4×10^8		
HP-3	1.2×10^8	2.4×10^8			1.9×10^8		1.0×10^9
HP-4	1.1×10^8	2.3×10^8			3.5×10^8		1.4×10^9
HP-5	8.2×10^7	1.7×10^8			2.4×10^8		1.3×10^9
HP-6	8.1×10^7	2.5×10^8			2.9×10^8		
HP-G-1	7.7×10^8	2.8×10^9	5.9×10^9	6.6×10^9	2.2×10^9		3.4×10^9
HP-G-2	1.4×10^9	5.1×10^9		1.2×10^{10}	3.8×10^9	2.1×10^8	7.5×10^9

Table 1 示す。またこれより ^{95}Zr に対する fractionation factor を計算した。ただし今回の核爆発の規模と下に示すように、 ^{239}Np と ^{237}U の初期原子数比の値から、爆発の種類は熱核反応を主としない可能性が大であると考えられるので 14-MeV 高速中性子による核分裂は除外し、核爆発は fission spectrum neutron による ^{235}U , ^{238}U , ^{239}Pu のいずれかの核分裂によるものと仮定し、Table 2 に掲げる核分裂収率値⁵⁾を用いて計算した fractionation factor を Table 3, Table 4 および Table 5 に掲げる。また初期原子数比 $^{99}\text{Mo}/^{140}\text{Ba}$, $^{141}\text{Ce}/^{140}\text{Ba}$, $^{239}\text{Np}/^{95}\text{Zr}$, $^{239}\text{Np}/^{140}\text{Ba}$, $^{237}\text{U}/^{140}\text{Ba}$ および $^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$

Table 2. Assumed fission yield values for fission neutron fissions of ^{235}U , ^{238}U and ^{239}Pu .

Mass chain	Yield (%)		
	^{235}U	^{238}U	^{239}Pu
95	6.27	5.52	4.31
97	6.14	5.94	5.27
99	6.20	6.09	6.10
103	2.94	6.38	6.35
131	3.66	3.10	4.57
132	5.04	4.55	5.20
133	5.54	5.33	5.74
140	5.94	5.51	5.08
141	5.85	5.46	4.51
143	5.35	4.84	3.61
144	5.09	4.36	3.20
147	2.34	2.51	2.05

Table 3. Fractionation factors calculated from fission yield values for fission neutron fission of ^{235}U .

Sample	Fractionation factor										
	^{97}Zr	^{99}Mo	^{103}Ru	^{131}I	^{132}Te	^{133}Xe	^{140}Ba	^{141}Ce	^{143}Ce	^{144}Ce	^{147}Nd
HP-1		0.59		0.06			0.09	0.28			1.12
HP-2		0.29		0.02			0.11	0.22			0.91
HP-3		0.80		0.21			0.26	0.54			1.06
HP-4		0.52		0.05			0.11	0.22			0.85
HP-5		0.49		0.16			0.14	0.28			1.00
HP-6		0.71		0.03			0.11	0.33			0.96
HP-G-1	0.58	0.30	0.05	0.06	0.03	0.03	0.08	0.31	0.71	0.84	0.61
HP-G-2		0.37	0.06	0.09	0.04	0.07	0.09	0.34		0.92	0.64

Table 4. Fractionation factors calculated from fission yield values for fission neutron fission of ^{235}U .

Sample	Fractionation factor										
	^{97}Zr	^{99}Mo	^{103}Ru	^{131}I	^{132}Te	^{133}Xe	^{140}Ba	^{141}Ce	^{143}Ce	^{144}Ce	^{147}Nd
HP-1		0.54		0.06			0.09	0.26			0.92
HP-2		0.26		0.02			0.10	0.21			0.74
HP-3		0.72		0.22			0.25	0.51			0.87
HP-4		0.47		0.05			0.10	0.21			0.70
HP-5		0.44		0.16			0.13	0.27			0.82
HP-6		0.64		0.03			0.10	0.31			0.79
HP-G-1	0.53	0.27	0.02	0.06	0.03	0.03	0.08	0.29	0.69	0.86	0.50
HP-G-2		0.33	0.02	0.10	0.04	0.06	0.09	0.32		0.95	0.52

Table 5. Fractionation factors calculated from fission yield values for fission neutron fission of ^{239}Pu .

Sample	Fractionation factor										
	^{97}Zr	^{99}Mo	^{103}Ru	^{131}I	^{132}Te	^{133}Xe	^{140}Ba	^{141}Ce	^{143}Ce	^{144}Ce	^{147}Nd
HP-1		0.41		0.03			0.07	0.25			0.88
HP-2		0.20		0.01			0.08	0.20			0.71
HP-3		0.56		0.12			0.21	0.48			0.83
HP-4		0.37		0.03			0.08	0.20			0.67
HP-5		0.34		0.09			0.11	0.25			0.79
HP-6		0.50		0.02			0.08	0.29			0.75
HP-G-1	0.46	0.21	0.01	0.03	0.02	0.02	0.07	0.28	0.73	0.92	0.48
HP-G-2		0.26	0.02	0.05	0.03	0.04	0.07	0.30		1.01	0.50

を Table 6 に掲げる。

さて fractionation の程度を示す fractionation factor $f(A)$ として Edvarson ら⁶⁾ は次の如く定義した式を用いた。すなわち

$$f(A) = \left[\frac{N(A)}{N(^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb})} \right]_{\text{exp.}} \times \left[\frac{N(^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb})}{N(A)} \right]_{\text{theor.}} \quad (1)$$

ここに $N(A)$ は核種 A の放射能を表わし、第 1 の括弧内は実験的に得られた値を、第 2 の括弧内は試料の年齢すなわち爆発時刻から測定時までの時間が既知であるならば、核分

Table 6. Initial atom number ratios of selected pairs of radionuclides contained in hot particles.

Sample	Initial atom number ratio					
	$^{99}\text{Mo}/^{140}\text{Ba}$	$^{141}\text{Ce}/^{140}\text{Ba}$	$^{239}\text{Np}/^{95}\text{Zr}$	$^{239}\text{Np}/^{140}\text{Ba}$	$^{237}\text{U}/^{140}\text{Ba}$	$^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$
HP-1	6.6	2.9				
HP-2	2.9	2.1				
HP-3	3.2	2.0	2.1	8.3		
HP-4	5.2	2.1	1.3	12.7		
HP-5	3.8	2.1	2.0	15.8		
HP-6	7.0	3.1				
HP-G-1	3.8	3.6	0.35	4.4		
HP-G-2	4.1	3.6	4.7	5.4	0.15	35

裂収率値を用い、計算によって得られる値を表わしている。一方、真室ら⁷⁾は Edvarson らの定義した fractionation factor $f(A)$ を次のように書き改めている。

$$f(A) = \frac{A \text{ を含む mass chain の原子数}}{\text{mass-95 の原子数}} \times \frac{\text{mass-95 の収率値}}{A \text{ を含む mass chain の収率値}} \quad (2)$$

なお Edvarson らと真室らによって定義された fractionation factor を表わす式(1)と式(2)は同じ意味を有しているが、式(2)で計算する方が便利なのでこの式を用いた。

3. 考 察

Table 3, Table 4 および Table 5 から、単一の強放射能粒子の試料 HP-1, HP-2, …… HP-6 および強放射能粒子群の試料 HP-G-1, HP-G-2 に含まれる各核種の fractionation factor の値は皆それぞれ異なっていることが分る。また核分裂中性子(高速中性子)による ^{235}U , ^{238}U および ^{239}Pu の核分裂の場合、対応核種の fractionation factor の値は大体似た値で余り著しい差異は見受けられない。なお一般的傾向として、核種別に fractionation factor $f(A)$ の値を大小順に配列すると、 $f(^{131}\text{I})$ および $f(^{140}\text{Ba}) < f(^{141}\text{Ce}) < f(^{99}\text{Mo}) < f(^{147}\text{Nd})$ になることが観察される。

次に各種初期原子数比を見ると $^{237}\text{U}/^{140}\text{Ba}$ の算定値として 0.15 を得た。これは初期に行われた中国核爆発実験のうち、分裂によるものについて、Mishra ら⁸⁾ の得た $^{237}\text{U}/^{140}\text{Ba}$ の初期放射能比データより算出した初期原子数比 0.02—0.12 に近い値である。一方、中国核爆発実験において、熱核反応による場合の $^{237}\text{U}/^{140}\text{Ba}$ の初期原子数比が 0.83—4.1 であることと比較して、今回の爆発は熱核反応が主役ではないように思われる。さらに各種初期原子数比のうちで、 $^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$ の初期原子数比は熱核反応対核分裂反応の相対的割合を示す指標と考えられ、また ^{239}Np と ^{237}U は粒子生成時には共に U の状態にあるの

で fractionation の影響を受けることがない。今回の核爆発実験では、試料 HP-G-2 より $^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$ の初期原子数比が35と算定された。この算定値から ^{237}U に比較して ^{239}Np の量が相対的に多いことが分る。従って ^{237}U を生成する核反応 $^{238}\text{U}(n, 2n) ^{237}\text{U}$ よりも $^{238}\text{U}(n, \gamma) ^{239}\text{U} \xrightarrow{\beta^-} ^{239}\text{Np}$ の核反応の方がより多く起っているものと考えられる。このことは今回の核爆発では熱核反応が主要な役を担っていないことを示すものと思われる。これは高木ら⁹⁾ の得た $^{239}\text{Np}/^{237}\text{U}$ の初期原子数比の算定値28およびこれより導いた推論ともよく一致する。

終りに試料の測定に際し、多大の便宜とご協力を頂いた第二精工舎科学機器部技術課の佐藤康彦氏に対し深甚なる感謝の意を表したい。

文 献

- 1) Radioactivity Survey Data No.42 (Apr. 1977)
- 2) 長井達夫, 本多正, 今井俊男: 天気 第24巻5月号21-26 (1977)
- 3) 帯刀 正: 信州大学工学部紀要 第43号11-46 (1977)
- 4) 帯刀 正: 信州大学工学部紀要 第44号15-31 (1978)
- 5) L. E. Weaver, et al.: USNRDL-TR-633 (1963)
- 6) K. Edvarson, et al.: Nature, 184, 1771-1774 (1959)
- 7) 真室哲雄, 松並忠男, 藤田晃: 日本原子力学会誌 Vol.9, No.11, 646-655 (1967)
- 8) 真室哲雄, 松並忠男, 藤田晃, 吉川和子: 日本原子力学会誌 Vol.10, No.11, 618-625 (1968)
- 9) T. Mamuro et al.: J. Geophys. Res., 74, No.6 1374-1387 (1969)
- 10) U. C. Mishra et al.: J. Sci. Ind. Res., 33, 216-221 (1974)
- 11) 高木伸司 外: 電力中央研究所報告277011 環境放射能測定法に関する研究(その5) フォールアウト核種の測定(昭和53年2月)