

核爆発実験による強放射能粒子の γ 線スペクトルと Fractionation Effect について

帯 刀 正*

(昭和46年10月30日受理)

1. ま え が き

核爆発実験によって生成された放射性降下物の γ 線スペクトルは多くの人々により、主として NaI シンチレーション 検出器を用い測定されて来たが、そのエネルギー分解能は近接した γ 線エネルギーを持つ核種のスペクトルを分解するには十分でなく、含有核種を同定するには、ある化学的操作を必要とした。しかるに近年有効体積の大きな Ge(Li) 検出器が開発され、 γ 線に対するエネルギー分解能と検出効率が著しく向上改善されるようになった。筆者は1967年12月24日に行われたと推定される中国第7回核爆発実験による強放射能粒子の γ 線スペクトルを Ge(Li) 検出器で測定し、何等化学的操作を行うことなく、幾つかの核分裂生成核種を検出し、同定することができた。そのうち、おもな核種について fractionation factor を測定したのであわせて報告する。

2. 試 料

今回の核爆発実験で強放射能粒子（いわゆる巨大粒子）を筆者が最初に長野地方で検出したのは1967年12月26日午前6時頃であったが、12月25日午後12時前 GM サーベイメータで探査したときはまだ検出されなかった。従ってこの粒子は12月26日午前0時から午前6時までの間に長野地方の地上に降下したものと思われる。試料およびその採取場所は前報¹⁾と同じく、筆者の自宅（工学部から北東6 km）に設けた採集台上および工学部土木工学科建物屋上で、 γ 線スペクトロメトリー用の試料は次の如きものである。

Table 1. Samples

Sample	Number of highly radioactive particles	Gross β -activity measured on 4 Jan. 1968.
No. 1	1	26,000 $\mu\mu\text{Ci}$
No. 2	7	236,500 $\mu\mu\text{Ci}$

* 応用物理学教室 助教授

3. 測定装置

前報¹⁾と同じく、 γ 線検出器は ORTEC 社製の同軸形の Ge(Li) で、その有効体積は 22cc(33 ϕ ×37mm)にして、 γ 線スペクトロメータを構成する前置増幅器は ORTEC 118 型、主増幅器は ORTEC 410型、バイアス増幅器は ORTEC 408型、検出器用高圧電源は ORTEC 428型である。また多重波高分析器は 800 チャンネルの東芝 EDS-34801 型である。エネルギー分解能は ^{60}Co 1333keV で約 3.5keV (FWHM) であった。

4. 測定

試料はステンレス試料皿に入れ、これを Ge(Li) 検出器のクライオスタットチェンバーにセロテープで固定して測定した。測定は1968年1月6日、1月26日、2月10日、2月19日、および2月29日に各試料について行った。

4.1 γ 線スペクトル

Fig. 1, Fig. 2 はそれぞれ試料 No. 1, No. 2 について1968年1月6日(爆発後13日)に約0.9 MeV までのエネルギー範囲を測定した γ 線スペクトルである。ただし Fig. 2 の示す γ 線スペクトルは東芝製 Ge(Li) 検出器 M-8823 型(検出有効直径:10mm, 検出有効厚:4 mm, ^{137}Cs 662keV で分解能 (FWHM) <7keV) を使用して得たものである。

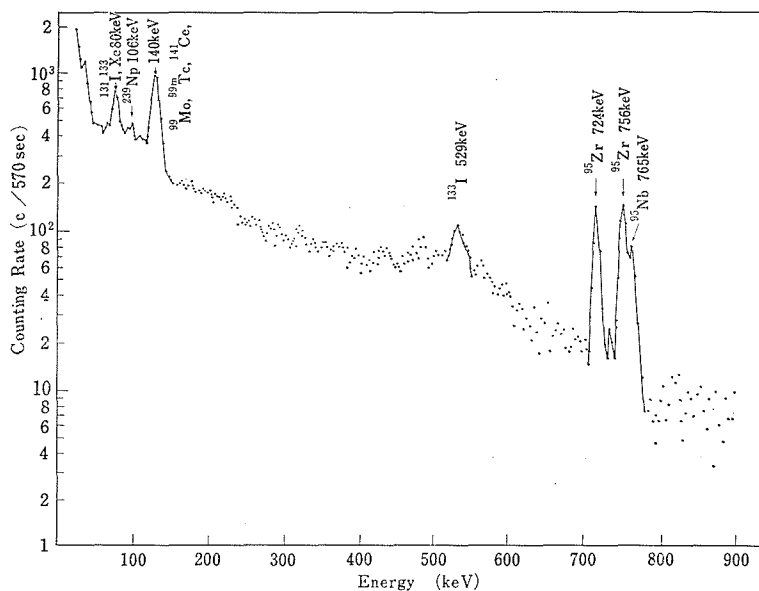


Fig. 1. γ -ray spectrum of radioactive fallout sample No. 1 measured on 6 Jan. 1968, 13 days after the nuclear test explosion.

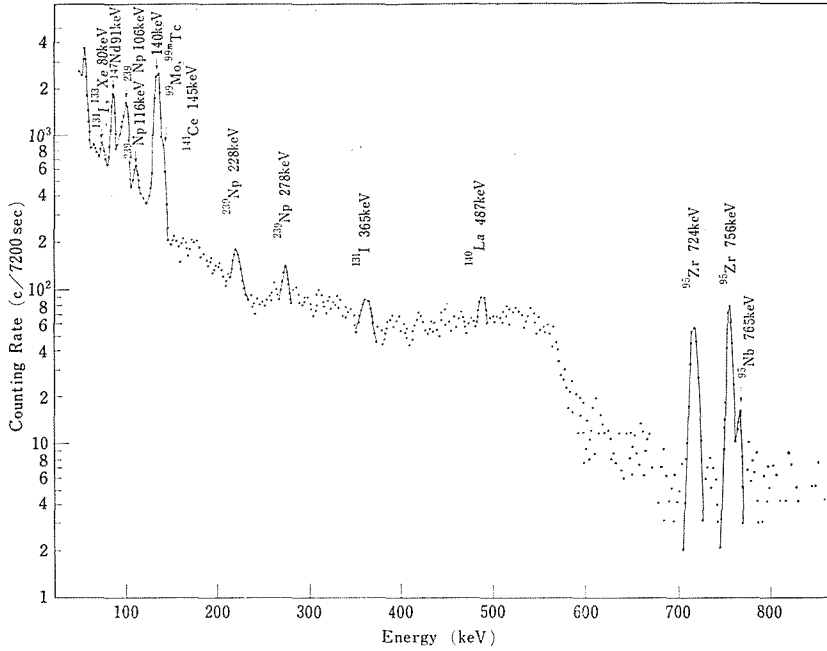


Fig. 2. γ -ray spectrum of radioactive fallout sample No. 2 measured on 6 Jan, 1968, 13 days after the nuclear test explosion.

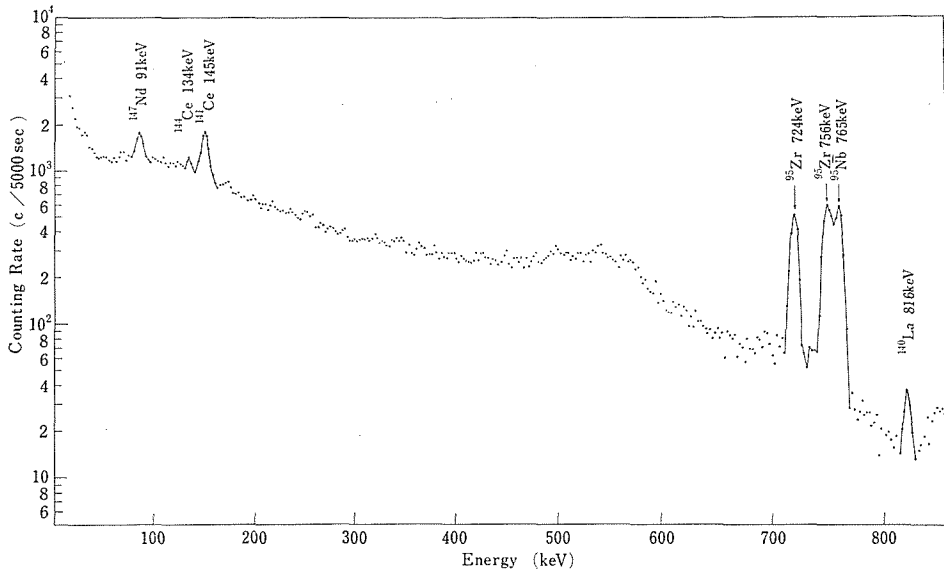


Fig. 3. γ -ray spectrum of radioactive fallout sample No. 1 measured on 26 Jan, 1968, 33 days after the nuclear test explosion.

Fig. 3, Fig. 4 は同じ試料について1月26日(爆発後33日)に測定した γ 線スペクトルで、

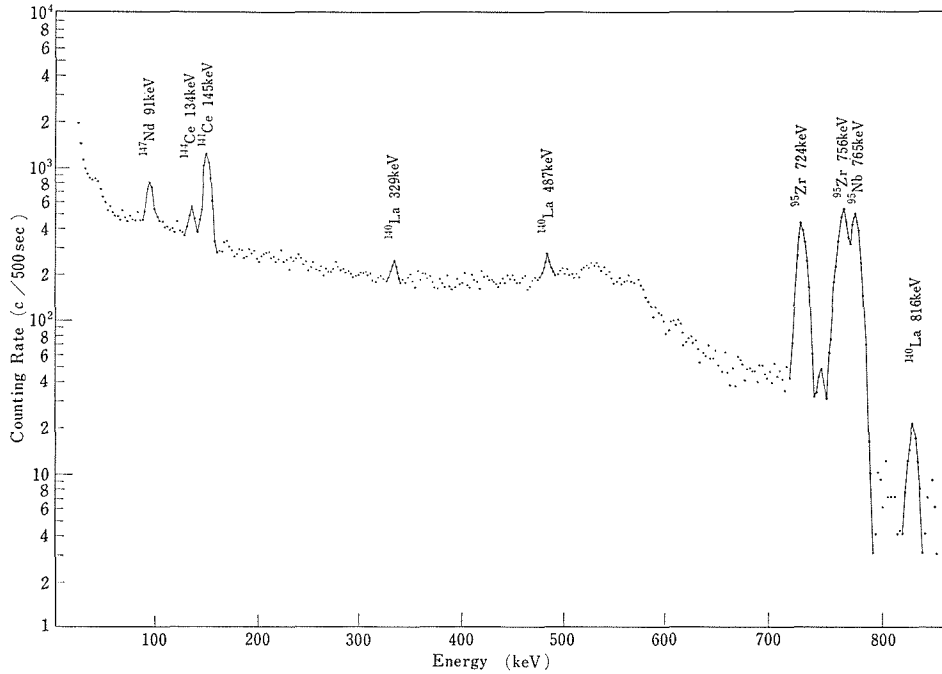


Fig. 4. γ -ray spectrum of radioactive fallout sample No. 2 measured on 26 Jan. 1968, 33 days after the nuclear test explosion.

そのエネルギー範囲は約 0.85 MeV までである。Fig. 5, Fig. 6 の示す γ 線スペクトルは 1 月 26 日にそれぞれ試料 No. 1, No. 2 について 0.8~2.0MeV のエネルギー範囲を測定

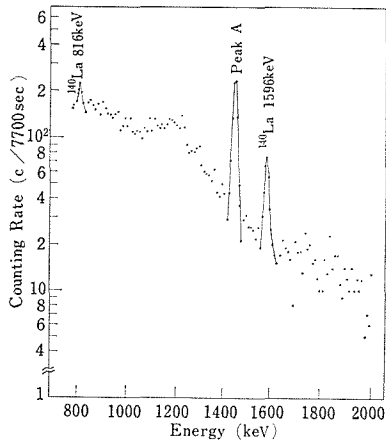


Fig. 5. γ -ray spectrum of radioactive fallout sample No.1 measured on 26 Jan. 1968, 33 days after the nuclear test explosion.

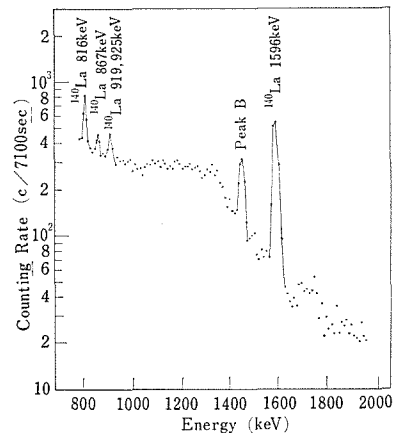


Fig. 6. γ -ray spectrum of radioactive fallout sample No. 2 measured on 26 Jan. 1968, 33 days after the nuclear test explosion.

したものである。Fig. 7 は2月19日(爆発後57日)に試料 No. 2 について、Fig. 8 は2月29日(爆発後67日)に試料 No. 1 について測定したもので、エネルギー範囲はいずれも0~0.85 MeV までの γ 線スペクトルを示すものである。

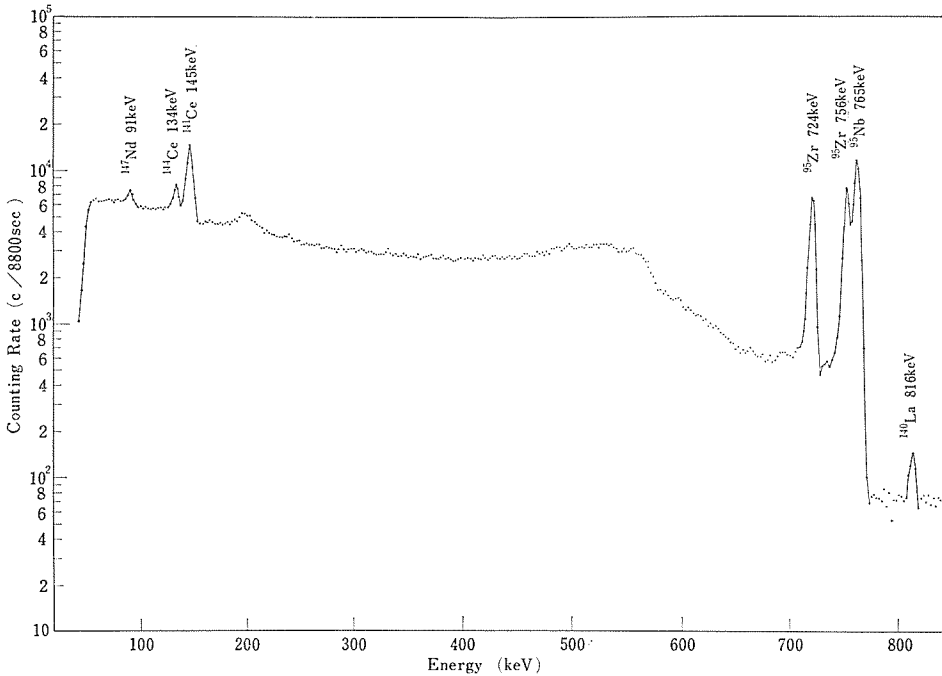


Fig. 7. γ -ray spectrum of radioactive fallout sample No. 2 measured on 19 Feb. 1968, 56 days after the nuclear test explosion.

4.2 核種分析

γ 線エネルギー較正用の標準線源としては ^{57}Co (121.9keV, 136.3keV), ^{137}Cs (661.6 keV), ^{22}Na (511.0keV, 1274.6keV), ^{60}Co (1173.2KeV, 1332.5keV) を用いた。得られたエネルギー較正曲線は、ほとんど完全な直線に近く、光電ピークの中心を示すチャンネルとそれに対応するエネルギー値との間の直線性は常に確認された。なおこのエネルギー較正曲線は最小二乗法によって定め、較正されたチャンネル対エネルギー値の数表を電子計算機によって作製した。この数表を用い、光電ピークのエネルギー値を定めた。このようにして定めた光電ピークのエネルギー値と、その光電ピークの減衰の様相から Hunter and Ballou,²⁾ 服部の図表³⁾ および Takayanagi,⁴⁾ Crouthamel ら⁵⁾ の Ge(Li) 検出器による核分裂生成物の γ 線スペクトルなどを参照し、次の結果を得た。

(i) 強放射能粒子中に含まれる誘導放射性核種として、 ^{239}Np の存在が1月6日測定の名試料の γ 線スペクトル Fig. 1, Fig. 2 から確認された。試料 No. 1 には ^{239}Np の光電ピークは 106keV しか見られないが、試料 No. 2 には 106keV, 116keV, 228keV, 278keV の4つの光電ピークが見られる。またこれら試料から γ 線スペクトロメトリーに

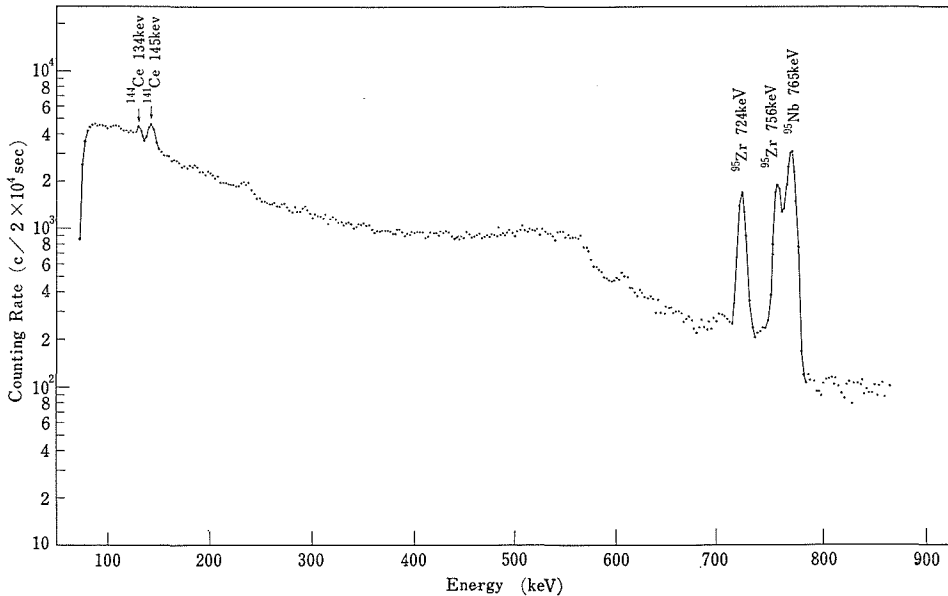


Fig. 8. γ -ray spectrum of radioactive fallout sample No. 1 measured on 29 Feb. 1968, 67 days after the nuclear test explosion.

よっては、 ^{238}U をタンパーとして使用した場合、核爆発反応によって生ずる ^{237}U の存在は確認できなかった。

(ii) 核分裂生成物の核種としては、Fig. 1~Fig. 8 より ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{99}Mo , $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}I , ^{133}I , ^{133}Xe , ^{140}La , ^{141}Ce , ^{144}Ce および ^{147}Nd を同定することができた。次に試料 No. 1, No. 2 において、これら核分裂生成物の核種の消長が時間の経過とともに、どのように変わったかを調べる。1月6日の測定では Fig. 1, Fig. 2 より ^{147}Nd 91keV, ^{131}I 365 keV, ^{140}La 487keV の各光電ピークは、試料 No. 1 には見られないが、試料 No. 2 には明らかに見られる。これに反し ^{133}I 529keV の光電ピークは試料 No. 1 にあるが、試料 No. 2 にはない。両試料に共通に見られる光電ピークは ^{131}I 80keV, ^{133}Xe 81keV, ^{99}Mo - $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 140keV, ^{141}Ce 145keV, ^{95}Zr 724keV, 756keV, ^{95}Nb 765keV である。次に1月26日の測定では、Fig. 3, Fig. 4 より ^{147}Nd 91 keV の光電ピークが試料 No. 1 にも見られるが、1月6日の同試料の測定では見られなかったのは、測定時間が短いためと思われる。また ^{140}La 329keV, 487keV の各光電ピークは試料 No. 2 にはあるが、試料 No. 1 にはなく ^{133}I 529keV の光電ピークも試料 No. 1 より消失している。Fig. 3, Fig. 4 より両試料に共通に見られる核分裂生成核種の光電ピークとしては、 ^{147}Nd 91keV, ^{144}Ce 134 keV, ^{141}Ce 145keV, ^{95}Zr 724keV, 756keV, ^{95}Nb 765keV および ^{140}La 816keV である。次に Fig. 5, Fig. 6 が示すように、両試料には ^{140}La 1596keV の光電ピークが見えるが、試料 No. 2 にはそのほか ^{140}La 867keV, 919keV, 925keV の光電ピークが見えるのに、試料 No. 1 には見えない。なお Fig. 5, Fig. 6 において核種未定の光電ピーク A, B が ^{140}La 1596keV より低い同一のエネルギー値 (チャンネル) の位置に見られ

る。Fig. 5 において光電ピーク A は ^{140}La 1596keV の光電ピークより高いが、Fig. 6 における光電ピーク B は ^{140}La 1596keV の示す光電ピークより低いのが注目される。ピーク A, B の示すエネルギー値はエネルギー較正における多少のシフトを考慮して、およそ 1455~1485keV の範囲にあるものと考えられる。いまこれらピークが ^{140}La 2502keV の double escape の ^{140}La 1480keV とすると、 ^{140}La の少い試料 No. 1 のピーク A の高さが、同じスペクトル (Fig. 5) 中の ^{140}La 1596keV のピークに較べて高いのに、 ^{140}La の多い試料 No. 2 のピーク B が、同じスペクトル (Fig. 6) 中の ^{140}La 1596keV のピークより低いことが説明できない。また ^{140}La 1480keV の強度は ^{140}La 1596keV よりも強いことはない。次にピーク A, B を ^{144}Ce から生れる娘核種 ^{144}Pr の出す 1488keV とすると、試料 No. 1 の ^{144}Ce が出す 134keV の γ 線強度は試料 No. 2 のそれより大でなければならないのに、光電ピークの面積から測定して見ると逆である。さらにピーク A と B がそのエネルギー値から ^{40}K の 1460keV に該当するとして、試料 No. 1 が No. 2 より ^{40}K が多いものと考えれば、スペクトルの説明は容易につく。しかし 1月26日より約20日後に測定したピーク A, B の強度は約 $1/2$ 以下に減衰していることなどから考えると、半減期の極めて長い ^{40}K の 1460keV と簡単にさめるわけにはいかない。以上 γ 線スペクトロメトリーだけではピーク A と B はいずれの核種の光電ピークに該当するものか、いまのところ決定し兼ねる。

次に 2月19日に測定した試料 No. 2 と 2月29日に測定した試料 No. 1 の γ 線スペクトルを見ると、試料 No. 1 には ^{147}Nd 91keV と ^{140}La 816keV の光電ピークが消えているが、No. 2 には残っている。 ^{144}Ce 134keV, ^{141}Ce 145keV, ^{95}Zr 724keV, 756keV および ^{95}Nb 765keV の光電ピークがともに両試料に残り、中でも質量数95の光電ピークが優勢である。

Table 2. Assigned nuclides from the γ -ray spectra measured on 6 Jan. 1968.

γ -ray energy (keV)	Assigned Nuclide	Sample	
		No. 1	No. 2
80	$^{131}\text{I}, ^{133}\text{Xe}$	+	+
91	^{147}Nd	-	+
106	^{239}Np	+	+
116	^{239}Np	-	+
140	$^{90}\text{Mo}, ^{90m}\text{Tc}$	+	+
145	^{141}Ce	+	+
228	^{239}Np	-	+
278	^{239}Np	-	+
365	^{131}I	-	+
487	^{140}La	-	+
529	^{133}I	+	-
724	^{95}Zr	+	+
756	^{95}Zr	+	+
765	^{95}Nb	+	+

試料 No. 1, 試料 No. 2 について、各測定日における同定された核種とその γ 線エネルギー値を Table 2, 3, 4 にまとめた。

4.3 Fractionation factor

4.2 において、強放射能粒子によって、その含有放射性核種には相異があることを述べたが、一般に核爆発に伴なう高温のために、フォールアウト粒子によって放射性核種の含有率が異なってくる現象を fractionation effect (分別効果) と呼んでいる。しかして fractionation effect の程度を表わすために、fractionation factor (分別係数)

Table 3. Assigned nuclides from the γ -ray spectra measured on 26 Jan. 1968.

γ -ray energy (keV)	Assigned Nuclide	Sample	
		No. 1	No. 2
91	^{147}Nd	+	+
134	^{144}Ce	+	+
145	^{141}Ce	+	+
329	^{140}La	-	+
487	^{140}La	-	+
529	^{133}I	-	-
724	^{95}Zr	+	+
756	^{95}Zr	+	+
765	^{95}Nb	+	+
816	^{140}La	+	+
867	^{140}La	-	+
919	^{140}La	-	+
		-	+
925	^{140}La	-	+
1596	^{142}La	+	+

Table 4. Assigned nuclides from the γ -ray spectra of No. 1 and No. 2 measured on 29, Feb. and on 19, Feb. 1968 respectively.

γ -ray energy (keV)	Assigned Nuclide	Sample	
		No. 1	No. 2
91	^{147}Nd	-	+
134	^{144}Ce	+	+
145	^{141}Ce	+	+
724	^{95}Zr	+	+
756	^{95}Zr	+	+
765	^{95}Nb	+	+
816	^{140}La	-	+

f なる量が考えられているが、これは Edvarson⁶⁾ らによれば次式で定義されるものである。

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

ここで、 $N(A)$ は問題としている核種 A の放射能、 $N(^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb})$ は $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ の放射能にして添字 exp. および theor. はそれぞれ括弧内の値が実験的および理論的に求められた値であることを示すものである。ただし理論的な値としては、今回の核爆発が ^{235}U を用いた熱中性子反応であったと仮定し、Table 5 に掲げた核分裂収率値を用いて計算した。

Table 5. Assumed fission yield values⁷⁾

Mass number	Yield (%)
95	6.2
140	6.35
141	6.0
144	6.0
147	2.7

なお起爆日は1967年12月24日とした。いま試料 No. 1, No. 2 のうちおもな核種について fractionation factor の値を計算し Table 6 に掲げる。

核種 $^{140}\text{Ba} + ^{140}\text{La}$, ^{141}Ce , ^{144}Ce および ^{147}Nd の fractionation factor の値を比較すると、いずれも試料 No. 2 の各核種の f の値は、 ^{147}Nd を除き試料 No. 1 の f の値より若干大きい。これに反し ^{147}Nd の f の値は、試料 No. 1 の方が試料

Table 6. Fractionation factors

Sample	Fractionation factor f				$\left(\frac{^{239}\text{Np}}{^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}}\right)^*$
	$^{140}\text{Ba} + ^{140}\text{La}$	^{141}Ce	^{144}Ce	^{147}Nd	
No. 1	0.02	0.05	0.21	0.17	1
No. 2	0.05	0.06	0.23	0.04	54

* Relative activity ratio of ^{239}Np to $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$, where the value of sample No. 1 is settled to be unity.

No. 2 のそれよりも大きい。次に試料 No. 1 の放射能比 $^{239}\text{Np}/[^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}]$ を 1 としたとき、試料 No. 2 のその相対放射能比は 54 となって著しく大きい。このことから試料 No. 2 は試料 No. 1 より ^{239}Np の量が多いことが分る。またこの値は試料 No. 2 を構成する個々の強放射能粒子の平均相対放射能比にほぼ等しいから、試料 No. 2 の各粒子の ^{239}Np の量は平均的に試料 No. 1 のそれよりも多いことになる。従って今回の核爆発実験によって生じた ^{239}Np は個々のフォールアウト粒子によって著しく異なることを示している。

5. ま と め

1967年12月24日に行われたと推定される中国核爆発実験に由来する強放射能粒子の γ 線スペクトルを、Ge(Li) 検出器を用いて測定した。何等化学的操作を用いることなく、 γ 線スペクトルから多くの核種を同定することができた。核分裂生成物の核種として、 ^{95}Zr 、 ^{95}Nb 、 ^{99}Mo — $^{99\text{m}}\text{Tc}$ 、 ^{131}I 、 ^{133}I 、 ^{133}Xe 、 ^{140}La 、 ^{141}Ce 、 ^{144}Ce および ^{147}Nd を同定することができた。 ^{238}U から生成される誘導放射性核種として ^{239}Np は同定できたが、 ^{237}U は同定できなかった。また相対放射能比 $^{239}\text{Np}/[^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}]$ を測ることにより ^{239}Np の量は粒子により著しく異なることが分った。

終りに本研究に対して終始変らざるご指導と激励をいただいた本学名誉教授、長野工業高等専門学校長森本彌三八先生に対し、また測定に多大の便宜を与えられた現東芝総合研究所員藤井勲博士および小野寺浩一氏並びに前東芝中央研究員高柳誠一氏に対し、深い感謝の意を表します。

文 献

- 1) 帯刀 正：信州大学工学部紀要 第29号 p.4 (1970).
- 2) H. F. Hunter, N. E. Ballou : Nucleonics, 9, No. 5, C-2 (1951).
- 3) 服部一郎：日本原子力学会誌 3, 93 (1961).
- 4) S. Takayanagi *et al* : J. Nucl. Sci. Technol., 3, 200~207 (1966).
- 5) C. E. Crouthamel, F. Adams and R. Dams : Applied Gamma-Ray Spectrometry, 2nd edition, Pergamon Press (1970).
- 6) K. Edvarson, K. Löw and J. Sisefsky : Nature, Lond. 184, 1771 (1959).
- 7) S. Katcoff : Nucleonics, 18 (11) 205 (1960).

Summary

Gamma-Ray Spectra and Fractionation Effect of the Highly Radioactive Fallout due to the Nuclear Test Explosion

Tadashi TATEWAKI

(Institute of Physics, Faculty of Engineering)

The gamma-ray spectra from the highly radioactive fallout particles due to the nuclear test explosion in China on 24, Dec. 1967 were measured by a Ge (Li) detector with high resolution. Many nuclides were identified in the gamma-ray spectra without any chemical processing. The nuclides of the fission products as ^{95}Zr , ^{95}Nb , ^{99}Mo — $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{131}I , ^{133}I , ^{133}Xe , ^{140}La , ^{141}Ce , ^{144}Ce and ^{147}Nd were identified. Among the induced radioactive nuclides produced from ^{238}U , ^{239}Np was also identified, but ^{237}U was not done. The fractionation factors of the nuclides $^{140}\text{Ba} + ^{140}\text{La}$, ^{141}Ce , ^{144}Ce and ^{147}Nd in the highly radioactive fallout particles were calculated respectively. It was found that the values of the relative activity ratio of ^{239}Np to $^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$ of a single particle were very different from one another.