

放射性降下物中の ^{95}Zr と ^{95}Nb の放射能比による 核爆発後の経過時間の推定について

帶 刀 正*

(昭和45年10月31日受理)

1. まえがき

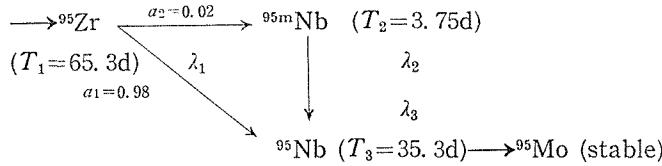
放射性降下物によって、その起爆時を推定するには、従来 (1) 放射性降下物の β 放射能を測定し、その減衰曲線から Hunter-Ballou の法則¹⁾ を用いて推定する方法と (2) 放射性降下物に含まれている核分裂生成物中から適当に選んだ 2 つの核種の放射能比を測定して行う方法 とがあった。しかし放射性降下物にはいわゆる fractionation effect²⁾ を伴い、時には核爆発の場合 ^{239}Np や ^{237}U のような誘導放射性核種が生成されたりして、その起爆時の推定に大きな誤差を伴い易いものである。これに反し、同一の質量数の核種の崩壊系列に属する 2 つの核種の放射能比は、起爆時を起点とする時間の関数として、しかも fractionation effect とは全く無関係に用いることができる。しかしながら今日まで NaI 等の γ 線用検出器では、その分解能が劣るために、例えば質量数 95 に属する 2 つの核種の出す γ 線 ^{95}Zr 724.3keV, ^{95}Zr 756.8keV および ^{95}Nb 765.8keV の如く、そのエネルギー値が接近している γ 線のスペクトルを全く分解することができなかつた。最近分解能の高い γ 線用 Ge(Li) 検出器が開発されて、上記の γ 線スペクトルも容易に分解できるようになり、測定が可能となつた。従ってこれら γ 線の放射能比が起爆時から測定時までの時間の関数で表わされることが実験的に証明されるようになった。すなわち真室ら³⁾ は ^{95}Zr 756.8keV と ^{95}Nb 765.8keV が示す γ 線の光電ピークが完全に分離されたスペクトルにおいて、これら γ 線の放射能比を測定して上記のことを確かめている。また藤井ら⁴⁾ は上記 2 つの γ 線の光電ピークが一部重なっているスペクトルにおいて、その複合した光電ピークを 2 つの成分ピークに分解せずに、 ^{95}Zr 724.3keV と ^{95}Zr 756.8keV + ^{95}Nb 765.8keV の放射能比が起爆後の経過時間の関数であることを実験的に確かめている。筆者は ^{95}Zr 756.8keV と ^{95}Nb 765.8keV の γ 線の光電ピークの一部が互に重なっている場合、その複合した光電ピークを 2 つの成分の光電ピークに分解したものと ^{95}Zr 724.3keV の光電ピークが示す γ 線の間に考えられる 4 通りの放射能比の中で、どの放射能比が起爆後の経過時間を推定するのに最も誤差が少いか、1967年12月24日に行なわれたと推定される中国の核爆発実験に由來する放射性降下物について実験的に明らかにする。

2. 方 法

質量数 95 の崩壊系列は次の通りである⁵⁾.

* 応用物理学教室、助教授

short-lived ^{95}Kr → short-lived ^{95}Rb → 40 sec ^{95}Sr → 10 min ^{95}Y



^{233}U , ^{235}U , ^{239}Pu は熱中性子により、また ^{233}U , ^{235}U , ^{239}U は 14MeV の高速中性子によって核分裂を起すが、その際生ずる核分裂生成物の中で質量数 95 の核種 ^{95}Kr , ^{95}Rb , ^{95}Sr , ^{95}Y , ^{95}Zr の収率 (fission yield) はそれぞれ皆異なるが、これらの収率値に較べると、 ^{95}Nb , ^{95}Mo の収率値は無視できるほど僅少である。一方上記の崩壊系列から明らかのように、 ^{95}Rb , ^{95}Sr , ^{95}Y の半減期は ^{95}Zr のそれに比して遙かに短いので、核爆発時からの経過時間を算定しようとする際には、質量数 95 の系列の中で ^{95}Zr だけが最初存在するものと仮定しても、実際上差し支えないものと考える。

いま核爆発の時刻から測って時間 t における ^{95}Zr , ^{95m}Nb , ^{95}Nb の原子数をそれぞれ N_1 , N_2 , N_3 とすると、これらは次式で表わされる

$$\left. \begin{aligned} N_1 &= N_{10} e^{-\lambda_1 t} \\ N_2 &= \frac{a_2 \lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_{10} (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \\ N_3 &= \lambda_1 N_{10} \left\{ \frac{1}{\lambda_3 - \lambda_1} \left(a_1 + \frac{a_2 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) e^{-\lambda_1 t} \right. \\ &\quad \left. - \frac{a_2 \lambda_2}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_2 - \lambda_3)} e^{-\lambda_2 t} - \frac{1}{\lambda_3 - \lambda_1} \left(a_1 + \frac{a_2 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_3} \right) e^{-\lambda_3 t} \right\} \end{aligned} \right\} \quad (1)$$

ここに N_{10} は $t=0$ における ^{95}Zr の原子数、 λ_1 , λ_2 , λ_3 はそれぞれ ^{95}Zr , ^{95m}Nb , ^{95}Nb の崩壊定数、 a_1 , a_2 はそれぞれ $^{95}\text{Zr} \rightarrow ^{95}\text{Nb}$, $^{95}\text{Zr} \rightarrow ^{95m}\text{Nb}$ の場合の分岐比である。

^{95}Zr と ^{95}Nb の放射能比を R_a とすると

$$\begin{aligned} R_a &= \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_3 N_3} = 1 / \left\{ \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_1} \left(a_1 + \frac{a_2 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \right) \right. \\ &\quad \left. - \frac{a_2 \lambda_2 \lambda_3}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_2)} e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} - \frac{\lambda_3}{\lambda_3 - \lambda_1} \left(a_1 + \frac{a_2 \lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_3} \right) e^{-(\lambda_3 - \lambda_1)t} \right\} \quad (2) \end{aligned}$$

(2) 式に $\lambda_i = \ln 2 / T_i$ ($i=1, 2, 3$) を代入すると

$$\begin{aligned} R_a &= 1 / \left\{ \frac{T_1}{T_1 - T_3} \left(a_1 + \frac{a_2 T_1}{T_1 - T_2} \right) - \frac{a_2 T_1 T_2}{(T_1 - T_2)(T_2 - T_3)} e^{-\ln 2 \cdot (T_1 - T_2)t / T_1 T_2} \right. \\ &\quad \left. - \frac{T_1}{T_1 - T_3} \left(a_1 + \frac{a_2 T_3}{T_3 - T_2} \right) e^{-\ln 2 \cdot (T_1 - T_3)t / T_1 T_3} \right\} \quad (3) \end{aligned}$$

(3) 式において、 $T_1 = 65.3$ 日, $T_2 = 3.75$ 日, $T_3 = 35.3$ 日, $a_1 = 0.98$, $a_2 = 0.02$ とおくと、

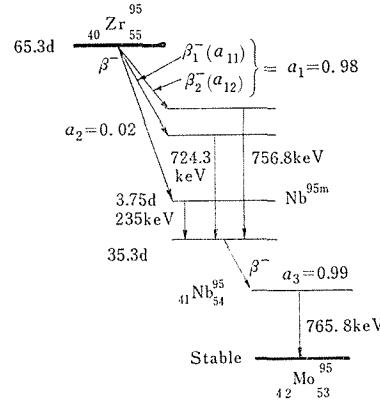
^{95}Zr と ^{95}Nb の放射能比 R_a は核爆発の時刻から測定時までの経過時間 t の関数として、次式で表わされる。

$$R_a = 1/(2.17932 + 0.002522e^{-0.17422t} - 2.1818e^{-0.0090211t}) \quad (4)$$

第1図の ^{95}Zr の崩壊図から分るように、 ^{95}Zr と ^{95}Nb の放射能比 R_a を実測によって求めるには、 $^{95}\text{Zr} \rightarrow ^{95}\text{Nb}$ の場合に放出する

724.3keV, 756.8keV, 235keV のエネルギーの γ 線の放射能と、 $^{95}\text{Nb} \rightarrow ^{95}\text{Mo}$ のときに出す γ 線 765.8keV の放射能を測定する必要がある。しかし ^{95}Zr の 235keV の γ 線の強さはきわめて弱く、低エネルギー側の γ 線スペクトルのバックグラウンドに隠されて測定にかからない。従って ^{95}Zr の 235keV の γ 線を除いて、 ^{95}Zr の 724.3keV と 756.8keV の γ 線の放射能と ^{95}Nb の出す 765.8keV の γ 線の放射能との比 R_b を R_a の代りに用いた。 R_b と R_a の関係は $a_1 = 0.98$, $a_3 = 0.99$ とすると、

$$R_b = \frac{a_1}{a_3} R_a = \frac{0.98}{0.99} R_a \quad (5)$$

第1図 ^{95}Zr の崩壊図

で示される。

この外 ^{95}Zr 724.8keV/ ^{95}Nb 765.8keV, ^{95}Zr 756.8keV/ ^{95}Nb 765.8keV および ^{95}Zr 724.8keV/[^{95}Zr 756.8keV+ ^{95}Nb 765.8keV] の放射能比が考えられ、これらの放射能比をそれぞれ R_c , R_d , R_e とすれば、これらは次式で与えられる。

$$R_c = \frac{a_{11} \cdot \lambda_1 N_1}{a_3 \cdot \lambda_3 N_3} = \frac{a_{11}}{a_3} R_a \quad (6)$$

$$R_d = \frac{a_{12} \cdot \lambda_1 N_1}{a_3 \cdot \lambda_3 N_3} = \frac{a_{12}}{a_3} R_a \quad (7)$$

$$R_e = \frac{a_{11} \cdot \lambda_1 N_1}{a_{12} \cdot \lambda_1 N_1 + a_3 \cdot \lambda_3 N_3} = \frac{a_{11} R_a}{a_{12} R_a + a_3} \quad (8)$$

R_a , R_b はそれぞれ(4), (5)式を用い、また R_c , R_d , R_e は $a_3 = 0.99$ とし、分岐比 a_{11} , a_{12} をパラメーターとしてそれぞれ(6), (7), (8)式を用いて、その理論値を電子計算機によって計算し数表を作製した。その中 R_b は第4表に、 R_c , R_d , R_e の一部をそれぞれ第5表、第6表、第7表に示す。

3. 試料および測定

3.1 試 料

試料は1967年12月24日に行われたと推定される中国の核爆発実験によって生じた放射性生成物のうち、ジェット気流に乗って長野地方へ飛来して落下した強放射能粒子である。試料の採取は同年12月26日から28日にわたり、主として本工学部内土木工学科建物の屋上と一部は筆者の自宅（工学部から北東6km）に設けた採集台上で行った。検出は端窓形GMサーベーメータで屋上および台上を走査し、約40個の強放射能粒子を検出した。検出された強放射能粒子はセロテープに付着させて採取し、GMサーベーメータをたよりにそのセロテープができるだけ小さく細分して、これをステンレス製試料皿上に固定した。その中で γ 線スペクトロメトリー用の試料として次のように選んだ。

第 1 表

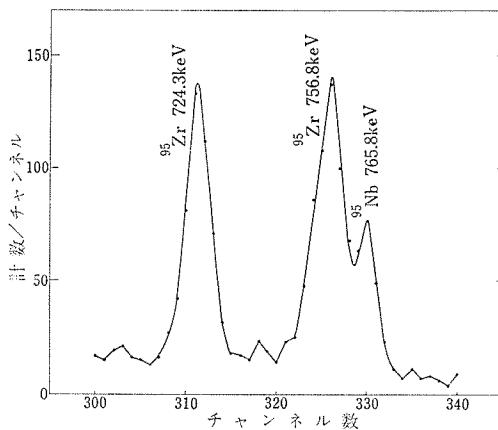
試 料	強 放 射 能 粒 子	β 放 射 能 (1968年1月4日測定)
No. 1	1 個	約 $26000\mu\mu\text{Ci}$
No. 2	7 個	約 $236500\mu\mu\text{Ci}$

3.2 測 定

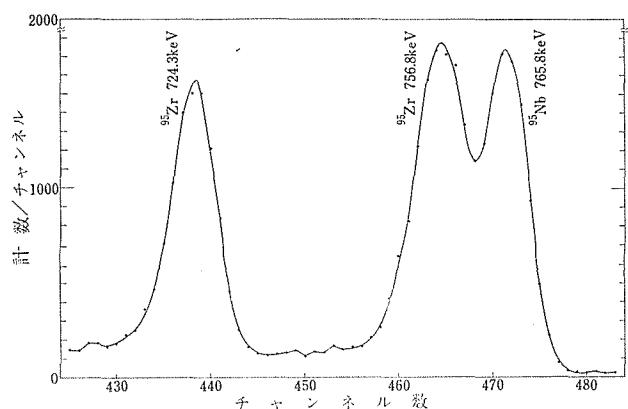
測定装置のうち γ 線検出器は同軸形のGe(Li)でその有効体積は22ccにして、 γ 線スペクトロメータの前置増幅器、主増幅器、バイアス増幅器、検出器用高圧電源等はいずれもORTEC社製で、多重波高分析器は800チャンネルの東芝製である、測定は東芝中央研究所で行った。

4. 測定結果およびその考察

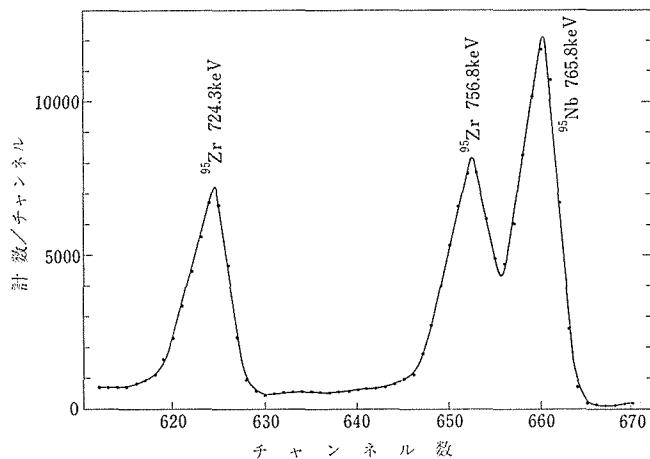
測定した強放射能粒子の γ 線スペクトルを第2図、第3図、第4図、第5図に示す。これらの図において、 ^{95}Zr 724.3keVはよく分離された単一の光電ピークを示すが、



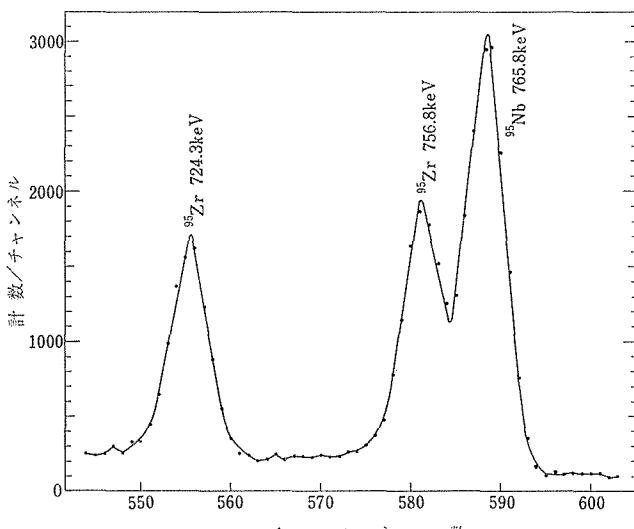
第2図 試料No.1の γ 線スペクトル (1968年1月6日測定)



第3図 試料No.2の γ 線スペクトル (1968年1月26日測定)



第4図 試料No.2の γ 線スペクトル (1968年2月19日測定)



第5図 試料No.1の γ 線スペクトル (1968年2月29日測定)

^{95}Zr 756.8keV と ^{95}Nb 765.8keV の光電ピークは完全には分離せず、それぞれの光電ピークの右側と左側の一部が互に重なり合って複合光電ピークを示している。 ^{95}Zr 724.3keV の示す単一光電ピークの真の面積を A_1 , ^{95}Zr 756.8keV と ^{95}Nb 765.8keV との複合光電ピークにおける各成分ピークの真の面積をそれぞれ A_2 , A_3 とし、またこれら γ 線の計数効率を等しいとみると、これら γ 線の放射能の強さはそれぞれの光電ピークの面積 A_1 , A_2 , A_3 に比例する。各光電ピークの真の面積は C. L. Carnahan の方法によって求め、その値を第2表に示す。従って放射能比 R_b , R_c , R_d , R_e の実験値はそれぞれ次式によつて求められる。

$$R_b = \frac{A_1 + A_2}{A_3} \quad (9)$$

$$R_c = \frac{A_1}{A_3} \quad (10)$$

$$R_d = \frac{A_2}{A_3} \quad (11)$$

$$R_e = \frac{A_1}{A_2 + A_3} \quad (12)$$

第2表にかかげた A_1 , A_2 , A_3 の値を(9), (10), (11), (12)に代入して各放射能比の実験値を求め、これらと(6), (7), (8), (9)の各式より求めた理論値の数表とをそれぞれ対比して核爆発後の経過時間 t を求めたものを第3表に示す。また分岐比 (a_{11}/a_{12}) をパラメーターとし、 $a_8=0.99$ として、(5), (6), (7), (8) の各式から計算によって得られた R_b , R_c , R_d , R_e の理論曲線と第3表の実験結果をそれぞれ第6図と第7図に示す。

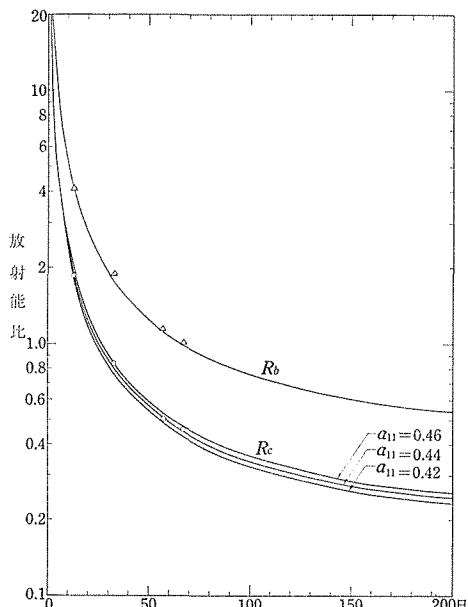
第3表から試料 No. 1 を1968年1月6日に測定した結果についてみると、分岐比 $a_{11}/a_{12}=0.45/0.53$ とした場合、放射能比 R_b , R_c , R_d , R_e がそれぞれ示す核爆発後の経過時間 t の値 13.2日, 13.3日, 13.1日, 13.5日は真の値13日とよく合い、バラツキが最も少ない。次に試料 No. 2 を1968年1月26日に測定したものについては、分岐比 (a_{11}/a_{12}) を 0.46/0.52 とした場合、 R_c の示す t の値が真の値33日に最も近いが、 R_d , R_e から求めると t の値はそれぞれ28.6日, 37.5日となりバラツキが最も多い。 R_b , R_c , R_d , R_e から求めた t の値が最もバラツキの少ない場合は、分岐比 (a_{11}/a_{12}) を 0.43/0.55 とした場合である。同じ試料 No. 2 を1968年2月19日に測定した結果については分岐比 (a_{11}/a_{12}) を

第 2 表

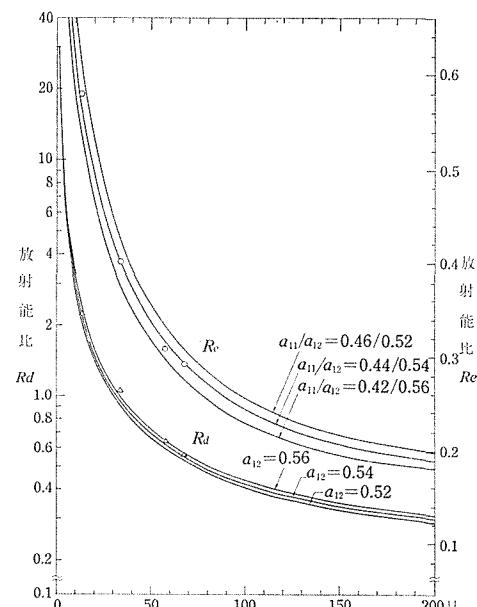
試 料	測 定 日	光 電 ピーク の 面 積		
		A_1 (^{95}Zr 724.3keV)	A_2 (^{95}Zr 756.8keV)	A_3 (^{95}Nb 765.8keV)
No. 1	1968. 1. 6	401	476	215
No. 2	1968. 1. 26	8,294	10,583	9,939
No. 2	1968. 2. 19	33,081	42,085	65,587
No. 1	1968. 2. 29	7,205	8,923	15,835

第 3 表

試料	測定日	放射能比(実測値)				a_{11}/a_{12}	核爆発後の経過時間 t (日)						
		R_b	R_c	R_d	R_e		R_b	R_c	R_d	R_e	平均 値	標準 偏差	真値
No. 1	1968. 1. 6	4.079	1.8651	2.2127	0.5803	①0.42/0.56		12.4	13.9	8.8	12.08	1.14	13
						②0.43/0.55		12.6	13.6	10.3	12.43	0.73	
						③0.44/0.54	13.2	12.9	13.4	12.0	12.88	0.31	
						④0.45/0.53		13.3	13.1	13.5	13.28	0.06	
						⑤0.46/0.52		13.6	12.8	15.1	13.68	0.05	
No. 2	1968. 1. 26	1.8993	0.8345	1.0647	0.4042	①0.42/0.56		29.6	31.1	28.0	29.78	0.65	33
						②0.43/0.55		30.4	30.4	30.3	30.38	0.03	
						③0.44/0.54	30.4	31.2	29.8	32.7	31.03	0.63	
						④0.45/0.53		32.0	29.2	35.1	31.68	1.29	
						⑤0.46/0.56		32.8	28.6	37.5	32.33	1.93	
No. 2	1968. 2. 19	1.1461	0.5044	0.6416	0.3072	①0.42/0.56		54.2	57.6	52.0	54.98	1.21	57
						②0.43/0.55		55.8	56.0	55.6	55.88	0.11	
						③0.44/0.54	56.1	57.5	55.0	59.2	56.45	0.91	
						④0.45/0.53		59.2	53.7	63.0	58.00	2.01	
						⑤0.46/0.52		61.0	52.4	67.0	59.13	3.04	
No. 1	1968. 2. 29	1.0185	0.4550	0.5634	0.2910	①0.42/0.56		62.0	68.5	58.5	63.65	2.13	67
						②0.43/0.55		64.0	66.9	62.4	64.73	0.87	
						③0.44/0.54	65.6	66.0	65.2	66.5	65.83	0.21	
						④0.45/0.53		68.1	63.6	70.7	67.00	1.54	
						⑤0.46/0.52		70.2	62.0	75.1	68.23	2.84	



第 6 図



第 7 図

0.43/0.55とした場合で、試料 No. 1 を同年 2月29日に測定した結果については分岐比 (a_{11}/a_{12}) を 0.44/0.54 とした場合に、 R_b , R_c , R_d , R_e から求めた t の値が最もバラツキが少ないことが分る。以上のことから部分放射能比 R_c , R_d , R_e から核爆発後の経過時間 t を推定する際には、分岐比 (a_{11}/a_{12}) の値によってかなりの誤差がはいるおそれが多くあることが分る。これに反し分岐比に無関係な放射能比 R_b から求めた t の値は 30.4 日を除き、13.2 日, 56.1 日, 65.6 日は最もバラツキの少ない分岐比の場合において R_b , R_c , R_d , R_e から求めた t の値の平均値に最も近いことを示している。また 30.4 日は真の値と 3 日以内の誤差範囲で一致し、他の値は理論値と実験誤差の範囲内でよく合っていることを示している。従って分岐比の影響を受けない放射能比 R_b を用いて、核爆発時から測定時までの経過時間 t を算定するのが、最も誤差の少いものと考える。核爆発後 15 日以内は一般に揮発性核種の ^{132}I 773keV の γ 線によって、 ^{95}Nb 765.8keV のスペクトルが妨害を受けて、本方法を適用するのに注意³⁾ が必要であると言われているが、第 2 図から分るように 1968 年 1 月 6 日測定の試料 No. 1 の γ 線スペクトルには上記の影響が見られないで、15 日より短い経過時間 13 日を推定することができた。一方核爆発後の経過時間が 150 日以後になると放射能比を示す数表からも、または放射能比の減衰曲線の勾配からも分るように、経過時間の算定に大きな誤差が入って来る。また ^{95}Zr 756.8keV と ^{95}Nb 765.8keV の γ 線スペクトルの光電ピークが完全には分離していないので、分解能のより高い Ge(Li) 検出器を用いて、完全に両光電ピークを分離し得た場合に比較して、成分光電ピークに分解する分析上の誤差と若干の繁雑さはまぬかれないが、注意深くこれを行えば実験誤差の範囲内で理論値とよく一致する結果が得られることが分る。

5. む す び

核爆発によって生成された強放射能粒子中の ^{95}Zr と ^{95}Nb の各種放射能比を Ge(Li) 検出器によって測定し、核爆発後の経過時間を算定して、理論値とよく一致する結果を得た。その中でも放射能比 $R_b([^{95}\text{Zr}724.3\text{keV} + ^{95}\text{Zr}756.8\text{keV}]/[^{95}\text{Nb}765.8\text{keV}])$ によって算定された核爆発後の経過時間は、次の 3 種の放射能比 $R_c(^{95}\text{Zr}724.3\text{keV}/^{95}\text{Nb}765.8\text{keV})$, $R_d(^{95}\text{Zr}756.8\text{keV}/^{95}\text{Nb}765.8\text{keV})$, $R_e(^{95}\text{Zr}724.3\text{keV}/[^{95}\text{Zr}756.8\text{keV} + ^{95}\text{Nb}765.8\text{keV}])$ によって算定された経過時間に比較して分岐比の影響を全く受けることがなく、最も誤差が少いことが分った。

終りに本研究に対して終始変わらざるご指導と激励をいただいた長野工業高等専門学校長(前本学教授)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氏および小野寺浩一氏に深い感謝の意を表します。

文 獻

- 1) H. F. Hunter, N. E. Ballou : Nucleonics, 9, No. 5, C-2 (1951).
- 2) T. Mamuro, K. Yoshikawa, N. Maki : Health Physics, 11, 199 (1965).
- 3) T. Mamuro, Y. Matsuda : Ann. Rep. Rad. Cent. Osaka Pref., 9, 5 (1968).
- 4) I. Fujii, K. Onodera : J. Inorg. Nucl. Chem. 31, No. 7, 1907 (1969).
- 5) S. Katcoff : Nucleonics, 18, 201 (1960).
- 6) C. L. Carnahan : Nucl. Instr. Methods, 30, 165 (1964).

Summary

Estimation of the Elapsed Time after Nuclear Explosion by the Activity Ratio of ^{95}Zr to ^{95}Nb in the Radioactive Fallout

Tadashi TATEWEKI

(Laboratory of Applied Physics, Faculty of Engineering)

An estimation of the elapsed time after nuclear explosion was made by measuring the activity ratios of ^{95}Zr to ^{95}Nb in the radioactive fallout. By means of a Ge(Li) γ -ray detector with high resolution, the photopeaks due to ^{95}Zr 724.3 keV γ -rays and ^{95}Zr 756.8 keV γ -rays were resolved clearly from each other, while those due to ^{95}Zr 756.8 keV γ -rays and ^{95}Nb 765.8 keV γ -rays belonging to the same decay chain (mass=95) were not completely resolved but took the form of complex photopeaks as shown in Fig. 2~Fig. 5. The area of each complex photopeak was resolved into two component peak areas by the two-component separation procedure¹⁾. The activities of the γ -rays were measured from the resolved photopeak areas, and the activity ratios R_b , R_c , R_d and R_e were calculated, which represent the activity ratios of the γ -rays, $[^{95}\text{Zr} 724.3 \text{ keV} + ^{95}\text{Zr} 756.8 \text{ keV}] / ^{95}\text{Nb} 765.8 \text{ keV}$, $^{95}\text{Zr} 724.3 \text{ keV} / ^{95}\text{Nb} 765.8 \text{ keV}$, $^{95}\text{Zr} 756.8 \text{ keV} / ^{95}\text{Nb} 765.8 \text{ keV}$, and $^{95}\text{Zr} 724.3 \text{ keV} / [^{95}\text{Zr} 756.8 \text{ keV} + ^{95}\text{Nb} 765.8 \text{ keV}]$, respectively. The numerical tables for the activity ratios R_b , R_c , R_d and R_e expressed by the functions of the elapsed time after nuclear explosion were obtained by using an electronic computer (Table 4~Table 7). The experimental values of the elapsed time obtained from highly radioactive fallout particles due to the nuclear explosion in China on December 24, 1967 were in good agreement with the theoretical values obtained from calculation. It was found that the error of the elapsed time after nuclear explosion estimated from the activity ratio R_b independent of the branching ratio was smaller than those obtained from the other activity ratios R_c , R_d and R_e .

1) C. L. CARNAHAN : Nucl. Inst. Methods, 30, 165 (1964).