

TN 843-74-08

< 技術メモ >

本資料は... 月 日付けて登録区分
2001. 6. - 6
変更する。

[技術情報室]

第15回および第16回中国核爆発実験直後の環境 試料ガンマ線スペクトル測定

Gamma-Ray Spectrum of Environmental Samples
just after the 15th and 16th China Atomic
Bomb Experiments

1974年10月

動力炉・核燃料開発事業団

東海事業所

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)
2001



第15回および第16回中国核爆発実験直後の 環境試料ガンマ線スペクトル測定

報告者 田辺 裕(安全管理部)

堀越 義紀(〃)

中田 啓(〃)

期 間 1973年6月～1974年7月

目 的 核爆発実験直後の環境試料中には平常時とは異なった多くの短半減期核種が含まれる場合が多い。再処理の環境管理をNaI(Tl)ガンマ線スペクトロスコピーで行なう場合、核種を同定するまでの参考資料とする。

要 旨

第15回および第16回中国核爆発実験が、それぞれ昭和48年6月27日、昭和49年6月17日に行なわれたが、その直後に採取した雨水、ダスト、降下物、牧草等の環境試料をNaI(Tl)シンチレーション検出器および多重波高分析装置を用いてガンマ線スペクトルを測定した。推定された核種は、Te-132(I-132), Np-239, Mo-99等で再処理工場から主に放出の予想される核種とは異なる短半減期のものが多く観測された。本資料では、実際に測定を行なった多くのガンマ線スペクトル図を掲載することによって、今後このような核爆発実験が行なわれた場合にも、迅速に核種同定が行なえて、再処理工場による影響とを、区別しやすくするための参考資料とする。

目 次

1 序 論	1
2 使用装置および測定方法	2
2.1 使用装置	2
2.2 測定方法	3
3 測定結果	4
3.1 第15回核実験	4
3.2 第16回核実験	7
4 まとめ	10
参考文献	11
付 図 スペクトル図	12

1 序 論

東海事業所環境安全課では、昭和50年夏の再処理工場ホットランに備え、その環境管理の一つの手段としてNaI(Tl)シンチレーション検出器を使用したガンマ線スペクトロスコピーで行なうよう、現在その分析方法を検討し、これと並行して操業前のバックグラウンド調査を行なっている。

このような目的で環境試料のガンマ線スペクトル測定を行なっている時、中国において2度にわたり核爆発実験が行なわれ、平常時と異なったガンマ線スペクトルが得られた。第15回目の実験は昭和48年6月27日、中国西域のロブノール湖付近で行なわれ、爆発規模はTNT換算で1ないし2メガトンと推定され、中国が核実験開始以来、最大級の威力をもつものであり、以前より3回続いた20キロトンないし200キロトン級実験からメガトン級に変わった事が特徴であるといわれている。第16回目の実験は、それから1年経過した昭和49年6月17日に先と同じロブノール地区で行なわれ、爆発規模は1メガトン程度と推定されている。

NaI(Tl)シンチレーション検出器は、Ge(Li)半導体検出器に比べ分解能が悪く、混在核種の同定は困難を場合が多い。従って再処理の環境管理をNaI(Tl)ガンマ線スペクトロメトリーで行なう上で、今回のようなフォールアウト等による再処理以外の要因による核種の存在を十分に把握しておけば、核種同定が比較的容易に行なわれる場合が多いと思われる。本資料では、核爆発実験直後に採取した環境試料の実際に観測されたガンマ線スペクトル図を中心に紹介する。

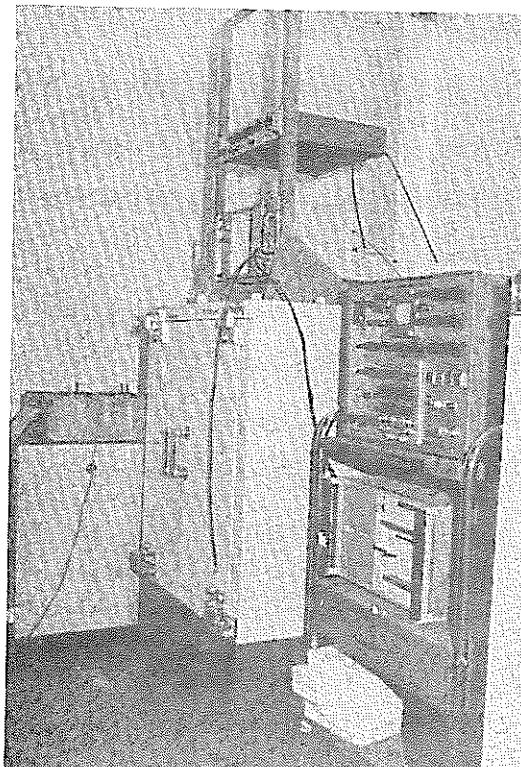
2 使用装置および測定方法

2.1 使用装置

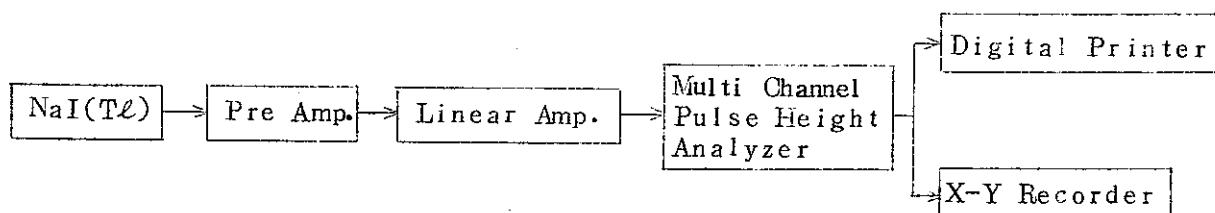
検出器は、 $5'' \phi \times 4''$ 厚および $2'' \phi \times 2''$ 厚NaI(Tl)シンチレーション検出器のいずれかを用いた。検出器はバックグラウンドを少なくするために内容積 $600 \times 600 \times 700 \text{ mm}$, 厚さ 100 mm の鉛遮蔽体の中に入れた。遮蔽体内部は鉛のK-X線の影響を除去するためにそれぞれ 1.0 mm , 0.3 mm および 5 mm のカドミウム, 銅および無色透明塩化ビニールで内張りされている。

測定回路のブロックダイヤグラムを第1図に示す。NaI(Tl)シンチレーション検出器の出力バルスを前置増幅器(Pre Amplifier)および比例増幅器(Linear Amplifier)を用いて波形整形増幅し, その出力を多重波高分析装置(Multi Channel Pulse Height Analyzer)で分析する方法を用いた。

測定系の全景を 第2図に示す。



第2図 測定系の全景



NaI(Tl) Detector $5'' \phi \times 4''$ 厚 又は $2'' \phi \times 2''$ 厚
 Pre Amplifier D-203/2 又は ORTEC-113 又は ORTEC-276
 Linear Amplifier D-102 又は MPS-1226A
 M. C. P. H. A. EDS-34801A 800チャンネル(400チャンネルで使用)
 又は D-161, D-171 256チャンネル

第1図 測定系のブロックダイヤグラム

2.2 測定方法

測定試料は検出器と一定のジオメトリーとなるようにして測定を行なった。

以下に具体的に示す。

雨水……………蒸発乾固（ 25 mm φステンレス皿）又は溶液のままマリネリ型アクリル容器に入れて測定。

ダスト…………… 50 mm φ濾紙を使用したダストサンプラーで集塵し、その濾紙を 50 mm φステンレス皿に入れて測定。

降下物…………… 0.5 m^2 の水盤で採取された溶液試料全量を蒸発乾固し、残渣を 50 mm φステンレス皿に入れて測定。又は、試料の1部を直接マリネリ型アクリル容器に入れて溶液状のままで測定。

牧草、野菜…………… 130 mm φ× 73 mm Hのプラスチック容器に生のまま圧縮して試料を詰めこんで測定。

牛乳、米、麦……………上と同容器を使用して、生のまま測定。

3 測 定 結 果

3.1 第15回核実験

② 降下物

0.5 m²の大きさの水盤を用い、48年6月1日～7月2日の期間サンプリングした試料について測定を行なった。測定は7月12日、7月23日、8月3日の3回行ない、核種の減衰を追った。

推定された核種は、Ba-140 (La-140), Te-132 (I-132), Zr-95 (Nb-95), Cs-137, Ru-103, Ru-106, Be-7, Np-239, Pm-149, Mo-99, Ce-141, Ce-144である。このうち毎月1ヶ月間サンプリングし、測定を行なう平常時と異なる核種、すなわち今回の核爆発実験の影響と思われる核種は、Ba-140 (La-140), Te-132 (I-132), Np-239, Pm-149, Mo-99である。

核種の同定は、これまでの核実験直後の測定データや、核種の減衰の状況をふまえ、核分裂直後に最も多く存在する可能性のある核種に注目して行なった。第3図～第5図を見てもわかるように、経時変化に伴い、短半減期核種であるI-132, Pm-149, Np-239などが観測されなくなっている。サンプリング後、約1か月経過して測定した第5図では、La-140, Te-132を除いて平常時の降下物試料（第6図 参照）と殆んど変わらないパターンとなっていることがわかる。

Np-239およびLa-140について定量したところ以下のとおりであった。

Np-239 7月12日現在, 5×10^3 p c i (0.106 MeV ピークをすべてNp-239であると仮定して計算)

この値を試料採取日の7月2日時点に減衰補正すると, 1×10^5 p c i となり、この時点までの単位面積あたりの降下量は、7月2日までの減衰の補正をせずに単純に計算すると, 0.2 Ci/km²となる。

La-140 7月12日現在, 1×10^3 p c i (1.596 MeV ピークを使用して計算)

⑤ 雨水

核実験後、7月2日と7月8日に降雨があった。7月2日の雨水を翌日の3日に測定したところ、Te-132 (I-132), Np-239が観測されたが、7月8日の雨水（7月10日に測定）については、非常に半減期の短いI-132は観測されなかった。これらのスペクトル図を第7図、第8図に示す。

なお、採取した雨水の量が不明のため、核種の定量はできなかった。

④ ダスト

6月25日から7月2日の1週間にかけて東海事業所構内3か所で集塵したダスト濾紙を3枚重ねて7月2日に測定した。

推定された核種は $\text{Np}-239$ および $\text{Te}-132$ (I-132)であった。

7月2日から7月9日にかけて上記と同様の方法でサンプリングしたダストを7月13日に測定したところ、有意な核種は観測されなかった。これらのスペクトル図を第9図、第10図に示す。

⑤ 牧草、牛乳、野菜

7月17日に勝田市長砂等で採集した牧草について測定を行なった。推定された核種は $\text{La}-140$ ($\text{Ba}-140$)、 $\text{Mo}-99$ 、 $\text{Zr}-95$ ($\text{Nb}-95$)であった。 $\text{Zr}-95$ ($\text{Nb}-95$)以外の短半減期核種については、今回の核爆発実験の影響によるものと思われるが、 $\text{Zr}-95$ ($\text{Nb}-95$)については、従来からの核実験によるフォールアウトによるものと推定される。第11図および第12図にこれらのスペクトル図を示す。 $\text{La}-140$ および $\text{Zr}-95$ ($\text{Nb}-95$ との合計)^{*}の定量値は以下の通りであった。

表1 牧草の定量値 [pci/g・生]

	$\text{La}-140$	$\text{Zr}-95$ ($\text{Nb}-95$)
A-11	1.0 ± 0.5	1.6 ± 0.3
B-14	0.29 ± 0.09	0.09 ± 0.04

(注) 標準偏差は 1σ

測定日現在の放射能値で表示

7月18日に先に述べた同一の牧場で採取したミルク2種類、同日に4か所でサンプリングした野菜については、平常時と異なった有意な核種は検出されなかった。

第13図および第14図にこれらのスペクトル図を示す。

⑥ 米、麦

7月18日に米および麦をそれぞれ異なる地点より2個ずつサンプリングしてきたものを測定した。いずれの試料についても、核実験の影響による核種は検出されなかった。それらのスペクトル図を第15図および第16図に示す。

一連の測定において、推定された核種のリストを表2に示す。

* 0.75 MeV付近のピークは $\text{Zr}-95$ の0.724 MeVおよび0.757 MeVピークと $\text{Nb}-95$ の0.766 MeVピークが重なったものと考えられる。

表2 推定された核種

核種	半減期	主なガンマ線エネルギー(MeV)と放出率
(1) La-140	4.02 H	1.596(0.965), 0.487(0.465), 0.816(0.24) 0.329(0.216)
(2) I-132	2.3 H	0.668(0.98), 0.773(0.75), 0.955(0.167) 0.523(0.156), 0.671(0.06), 1.143(0.014)
(3) Np-239	2.35 D	0.106(0.23), 0.278(0.14), 0.228(0.12) 0.334(0.02)
(4) Pm-149	5.31 H	0.286(0.02), 0.85(0.002)
(5) Te-132	7.8 H	0.228(0.88), 0.117(0.012)
(6) Mo-99	6.7 H	0.141(0.95), 0.740(0.14)
(7) Zr-95	6.5 D	0.724(0.43), 0.757(0.546)
(8) Nb-95	3.5 D	0.766(0.99)
(9) Cs-137	3.0 Y	0.662(0.86)
(10) Ru-103	3.96 D	0.497(0.90)
(11) Ru-106	3.67 D	0.512(0.205), 0.622(0.098)
(12) Be-7	5.3 D	0.477(0.103)
(13) Ce-141	3.3 D	0.1454(0.48)
(14) Ce-144	2.84 D	0.1335(0.108), 0.6964(0.015)
(15) K-40	1.26×10^9 Y	1.460(0.11)

(注) (1)～(6)が核実験直後に観測される特有な核種であり、(7)以降はこれまでに行なわれた核実験による従来からのフォールアウト等によるものである。

3.2 第16回核実験

この核実験直後に測定した試料の種類および測定結果を 表3 に示す。5" $\phi \times 4"$ 厚NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いた測定では、核実験直後に多く観測される可能性のある核種は検出できなかった。しかし、1部の試料についてGe(Li)検出器を用いて測定したところ、昨年の第15回核実験直後の試料についてNaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて推定した核種と同じものが確認された。

降下物については、前回と同様核実験が行なわれてから約2週間経過後に測定しているにかかわらず、核実験直後の特有な核種はLa-140以外は観測されなかった。これは、前回は降下物の全量を測定したのに對し、今回は全降下量の約1/17(NaI(Tl)検出器での測定の場合)しか測定しなかったのが、1つの原因と推定される。

雨水については、丁度梅雨時であって連日いくらかづつ降雨があったので1日区切りでサンプリングし、測定した。6月21日すなわち核実験後4日目から測定開始したが、4日目の雨水から前回観測されたMo-99, Np-239, Te-132(I-132)が検出され、5日目にはその量も減り、6日目からは今回の核実験の影響と思われる核種は検出されなかった。また、今回はI-131も検出された。

ダストについては、前回とほぼ同様のサンプリングおよび測定方法を用いたが、特に有意な核種は検出されなかった。

* 使用したGe(Li)検出器の性能は、効率7.0%(3" $\phi \times 3"$ 厚NaI(Tl)検出器との相対値)、半値巾1.9keV(Co-60, 1332.5keV)、ピーク対コンプトン比29:1である。効率はNaI(Tl)検出器とくらべて1/10以下であるが、分解能は50~60倍良いため、検出限界値は数倍~10倍程度良い。

表3 第16回核実験直後に採取した環境試料測定結果

試料番号	試料名	測定日および測定時間		NaI(Tl)検出器による		Ge(Li)検出器による		備考
		(上段:NaI(Tl),下段:Ge(Li))		推定核種		検出核種		
W-122	降下物 (49年6月分)	7/1~7/2 7/1~7/2	50,000秒 50,000秒	Ru領域(Ru-103, Be-7等) Zr-Nb領域(Zr-95, Nb-95)	Ce-144 Sb-125 Be-7 Ru-103 Ru-106 Os-137 Zr-95 Nb-95 Mn-54	0.72±0.04mci/K ² .月 0.05±0.01 1.56±0.06 0.06±0.01 0.48±0.04 0.12±0.01 0.20±0.02 0.30±0.00 0.01±0.00		水盤法により採取。 総試料量66,450ccを蒸発乾固後, 残渣を測定。
Sp-4	雨水 (6月21日~22日の降雨)	6/22~6/23 6/22~6/23	50,000秒 100,000秒	N. D.	Mo-99 Np-239 Te-132 (I-132) I-131	(1.0±0.2)×10 ⁻⁸ μci/cc (6±1)×10 ⁻⁸ (1.0±0.2)×10 ⁻⁸ (4±2)×10 ⁻⁹	採取した雨水のうち 4,000cc(Ge(Li)検出器の場合は2,000cc) をマリネリ型アクリル容器にとり測定。	
Sp-5	雨水 (6月22日~24日の降雨)	— 6/24~6/25	— 50,000秒	—	Mo-99 Np-239	(5±2)×10 ⁻⁹ (3±1)×10 ⁻⁸	同上	
Sp-6	雨水 (6月24日~25日の降雨)	— 6/26~6/27	— 50,000秒	—	Nb-95	(7±3)×10 ⁻⁹	同上	

試料番号	試料名	測定日および測定時間		NaI(Tl)検出器による (上段:NaI(Tl), 下段:Ge(Li))	推定核種	Ge(Li)検出器による 検出核種	備考
		—	—				
S p - 9	雨 水	—	—	—	Nb-95 (1.1 ± 0.3) $\times 10^{-8}$ $\mu\text{ci}/\text{cc}$	採取した雨水のうち (6月25日~26日の陣雨) 6/27~6/28 5,000秒	4,000cc (同上 2,000 cc)をマリネリ型アク リル容器にとり測定。
S p - 7	ダスト	—	—	—	Be-7 (5 ± 1) $\times 10^{-14}$ Nb-95 (7 ± 2) $\times 10^{-15}$	東海事業所構内 Pu (6月17日~24日) 6/25~6/26 5,000秒	燃丘で採取。約 $560m^3$ 吸引。 $50mm\phi$ スニファー濾紙使用。
S p - 2	ダスト	6/21~6/22 (6月21日)	50.00秒	N. D.	—	—	スターブレックス(約 $0.675m^3/min$)で1時間 吸引。総吸引量約 $40m^3$
S p - 8	ダスト	6/25 (6月18日~25日)	10,000秒 6/26 25,158秒	N. D.	N. D.	茨城県衛生研究所で 採取。総吸引量約 $530m^3$ $50mm\phi$ スニファー濾紙使用。	

- (注) 1. 核種の定量値は測定日時点の値で、減衰補正はしていない。
 2. 核種定量値の標準偏差は 1σ を使用。
 3. 一印は測定せず。
 4. N. D. (Non Detectable)は、バックグラウンドスペクトルと比べて、有意なピークがない事を示す。

4 まとめ

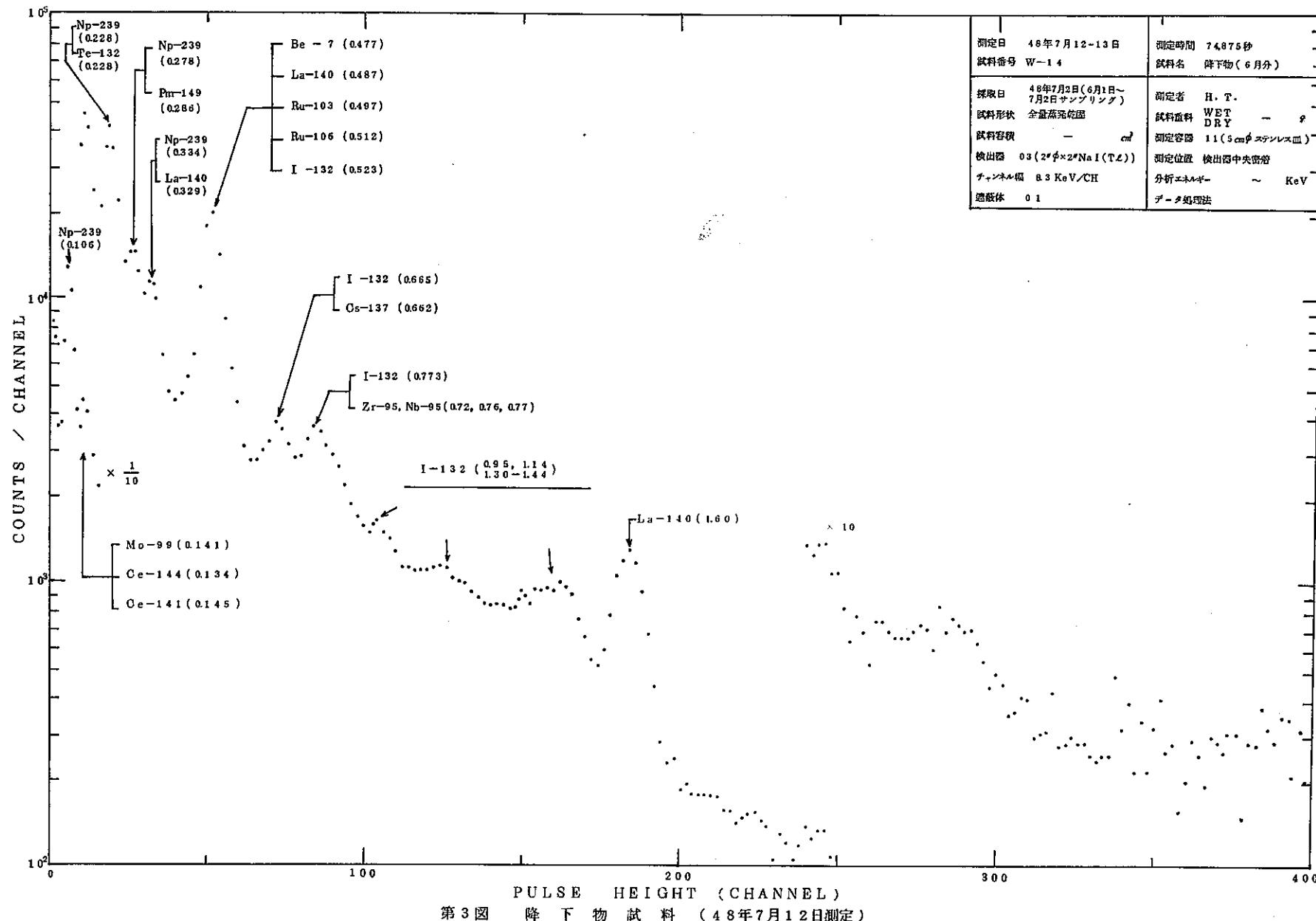
2回にわたる中国の核爆発実験直後の環境試料を測定して以下の事がわかった。

- ① 第15回および第16回核爆発実験直後に共通に検出あるいは推定された核種はMo-99, Np-239, Te-132 (I-132), La-140の短半減期核種である。これらの核種は文献(1)で推定されているものと同一のものである。
- ② 2回の実験とも以前の中国核爆発実験直後に観測された核種と1部同一のものが検出された。(文献(4)～(5))
- ③ 第16回核爆発実験では、降下物試料中に、核実験特有の核種が検出されなかつたのは、測定試料量が第15回の時は全量に対して、第16回の時は全量の1/17しか測定しなかつたのが1つの原因と推定される。従って第15回と第16回の場合の影響を単純には比較できない。
- ④ 第16回の場合、ダスト中には核実験直後の特有な核種が検出されず、雨水中にのみ検出されたのは、当時雨が連日のように降り、その中に溶けこんで降下したものが多かったのではないかと想像される。

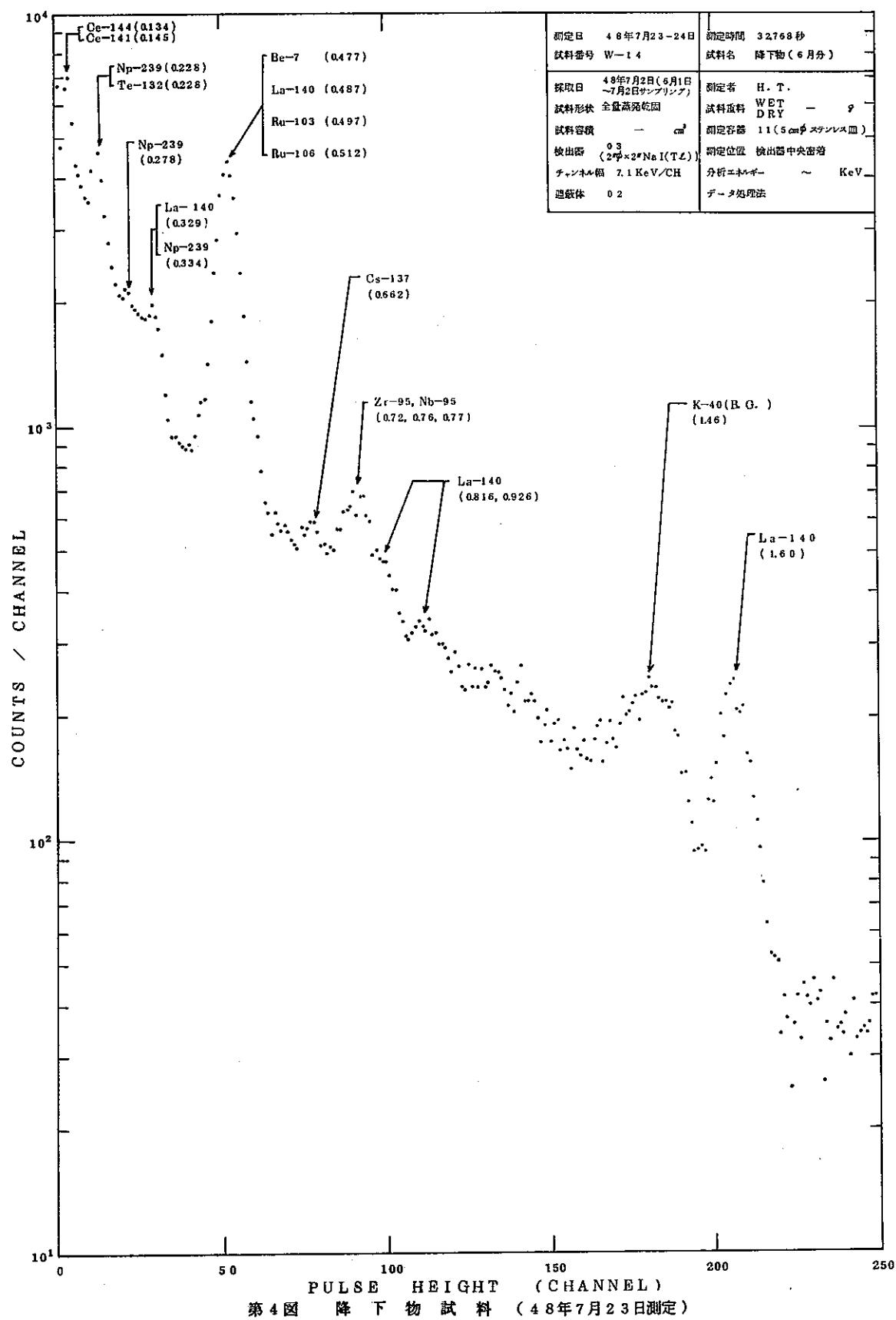
いずれの試料についても、データの不備等のため、核種定量はあまりできなかつたが、スペクトル図のパターンを知る事によって、本資料が、今後環境管理を行なう上での参考となれば幸いと考える。

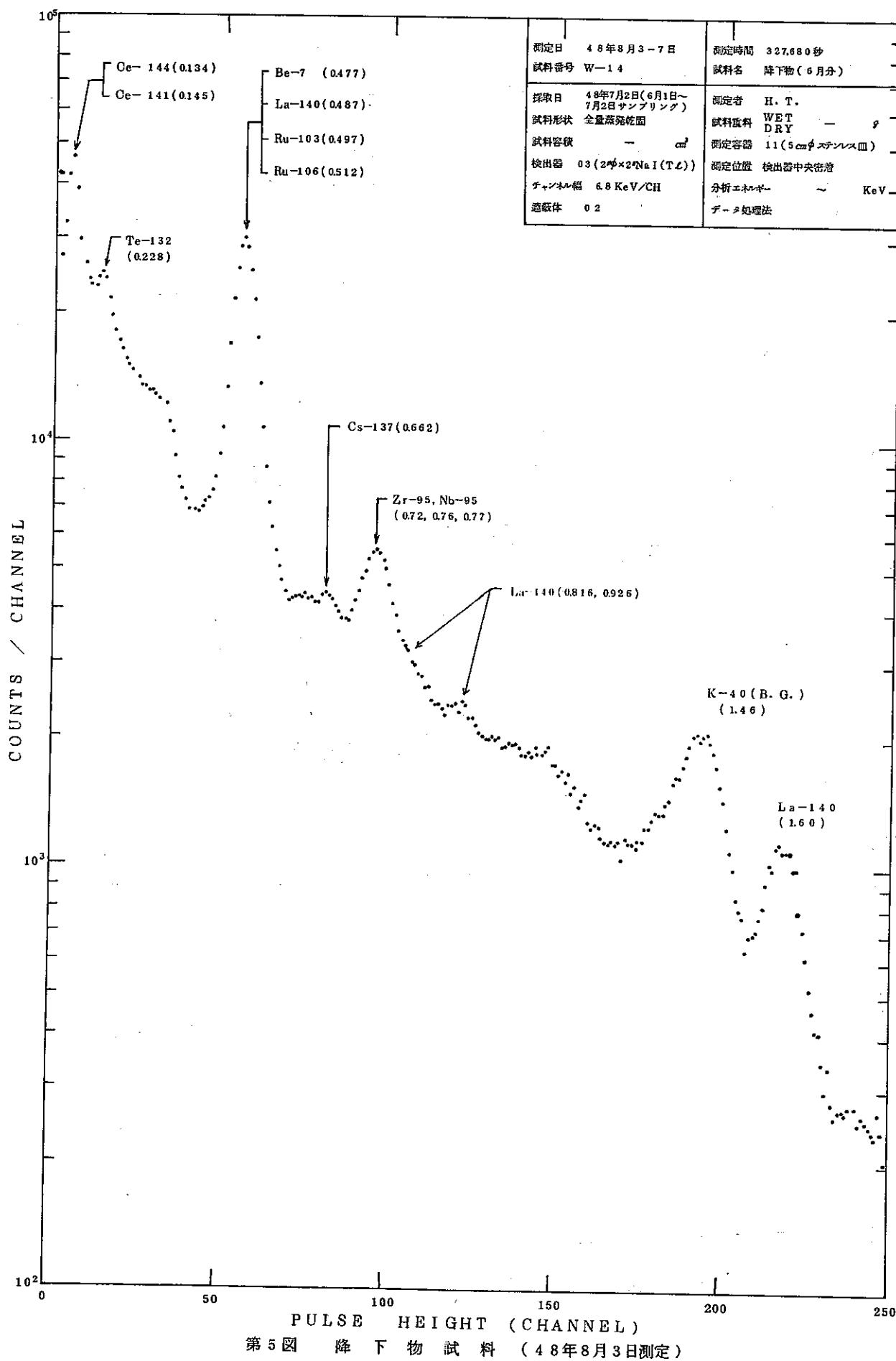
参考文献

- (1) 放射化学要覧 金沢大学理学部放射化学研究室編
- (2) 第2回中国核爆発実験による放射能の影響について 1965年, 茨城県衛生研究所
- (3) 第3回中国核爆発実験の影響 小池 亮治他 茨城県衛生研究所年報第5号 1968 別冊
- (4) 第4回, 第5回中国核爆発実験の影響 小池 亮治他
茨城県衛生研究所年報第5号 1968 別冊
- (5) 第6回, 第7回中国核爆発実験の影響 小池 亮治他
茨城県衛生研究所年報第6号 1969 別冊

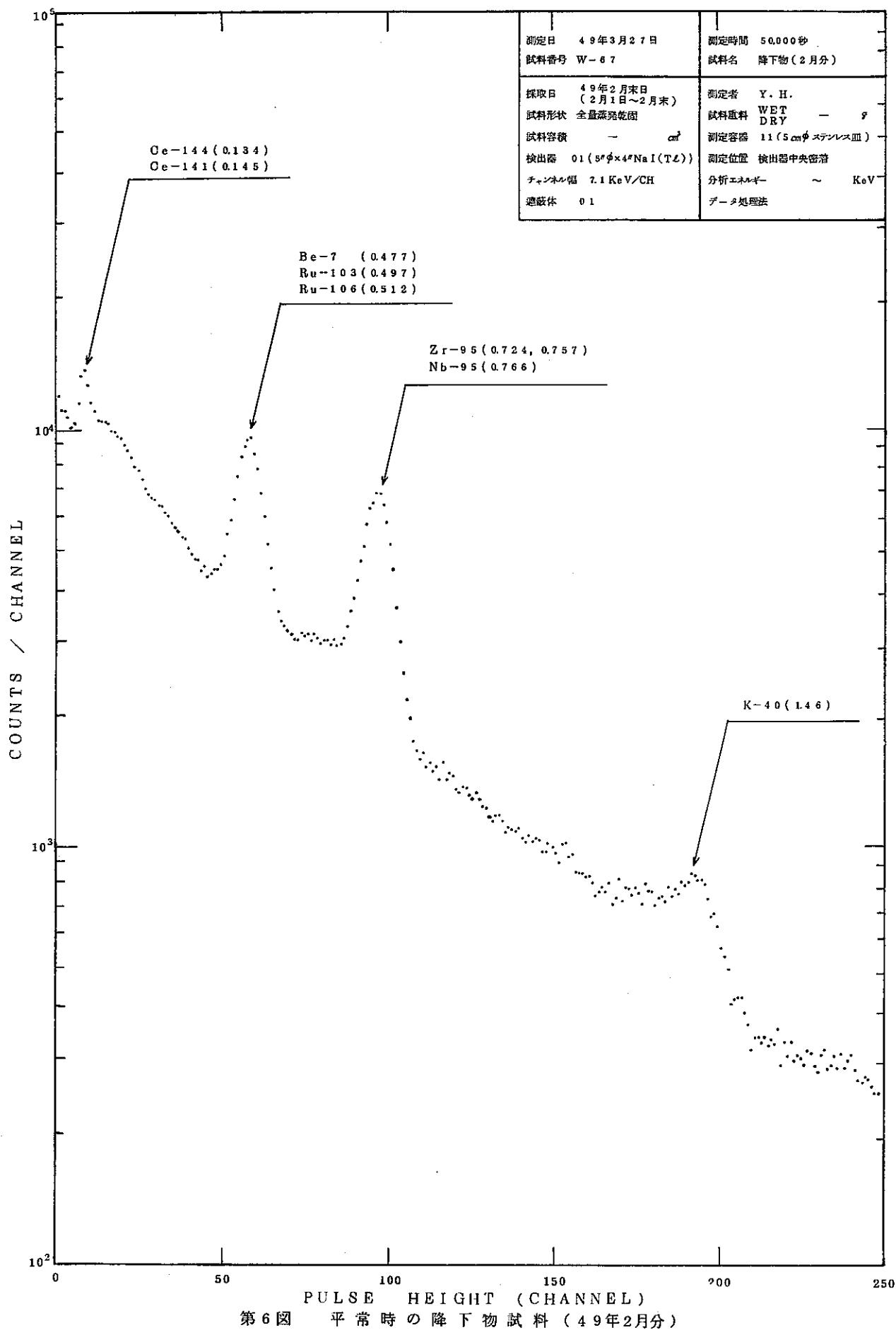


第3図 降下物試料(48年7月12日測定)

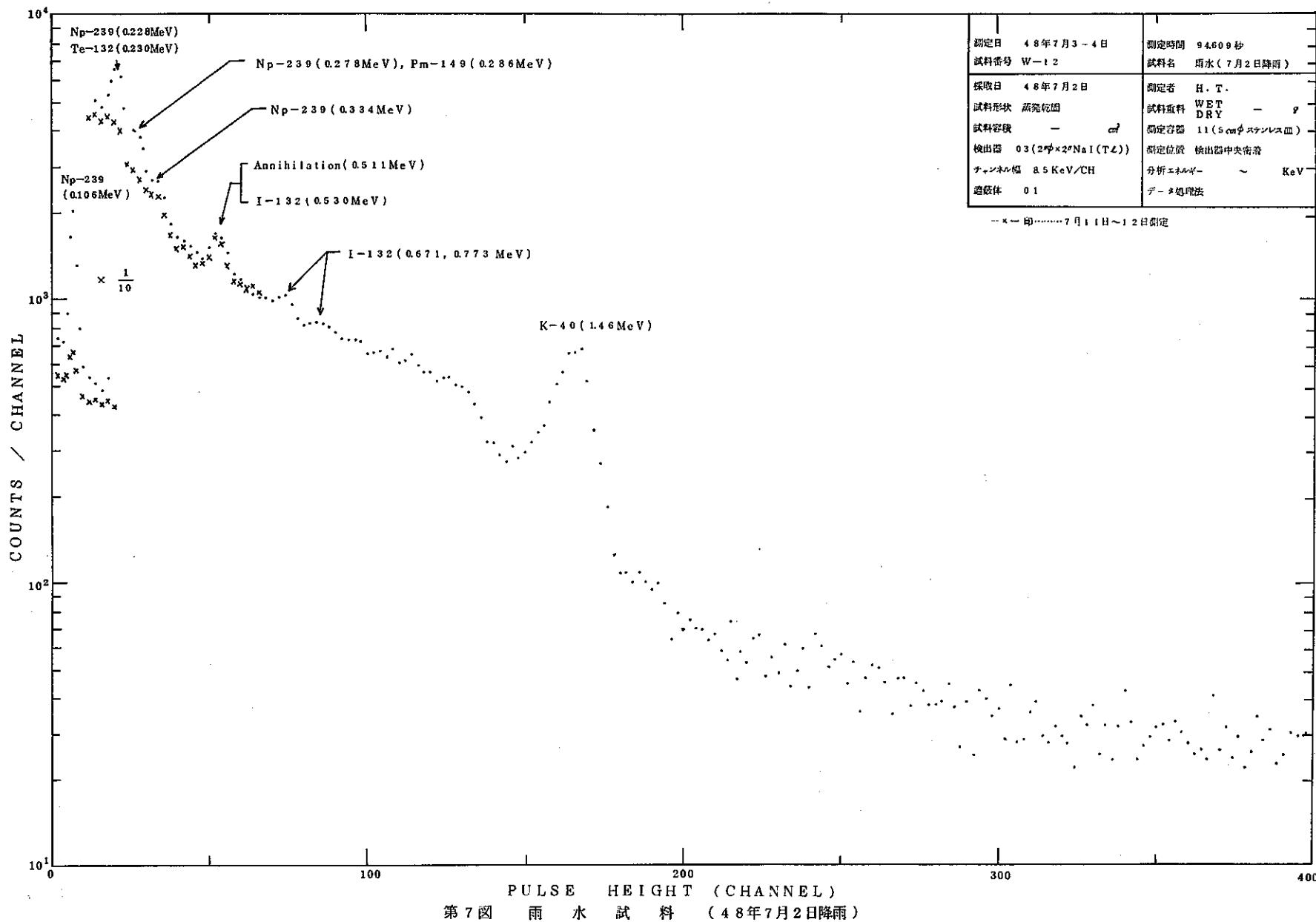




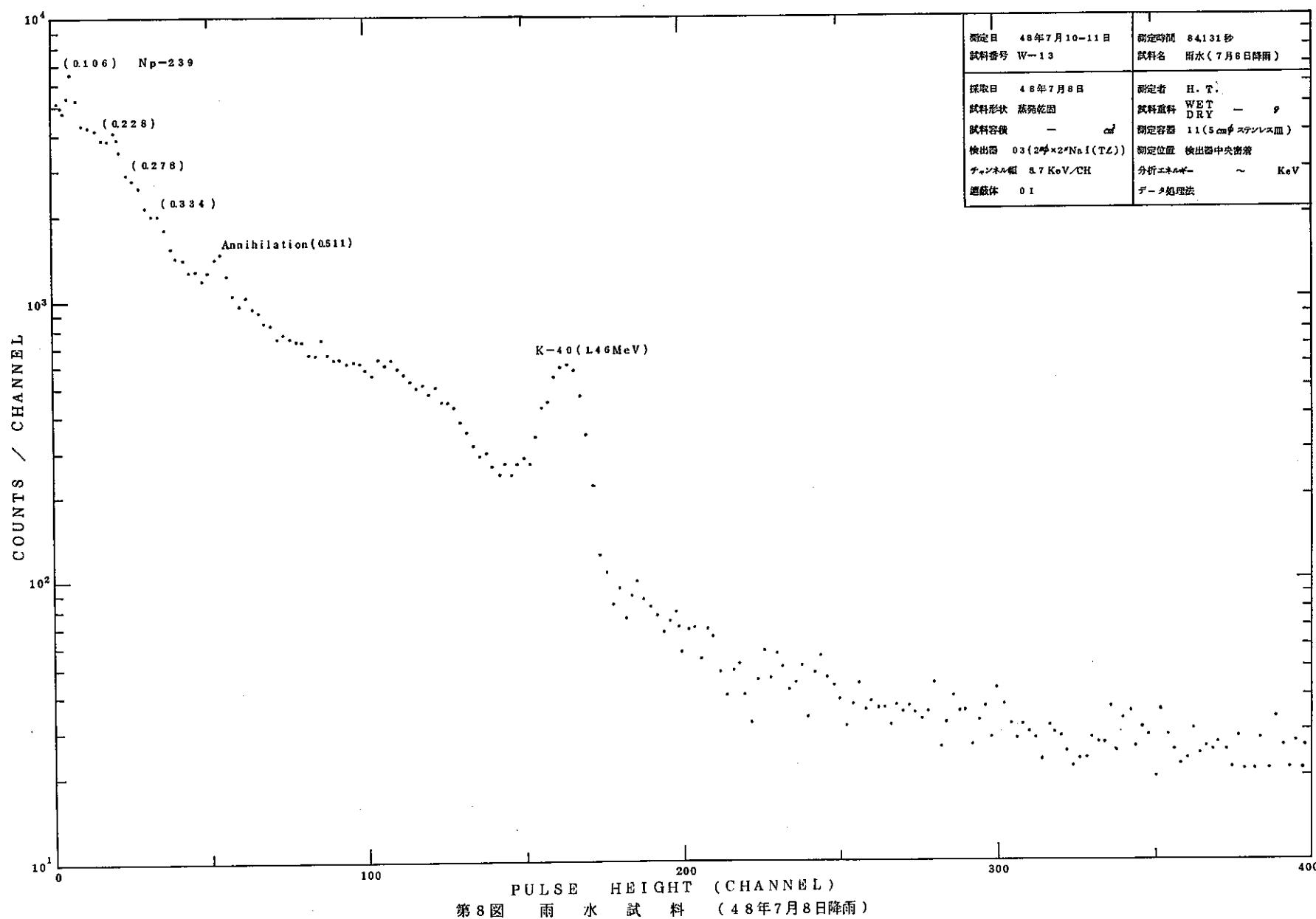
第5図 降下物試料 (48年8月3日測定)

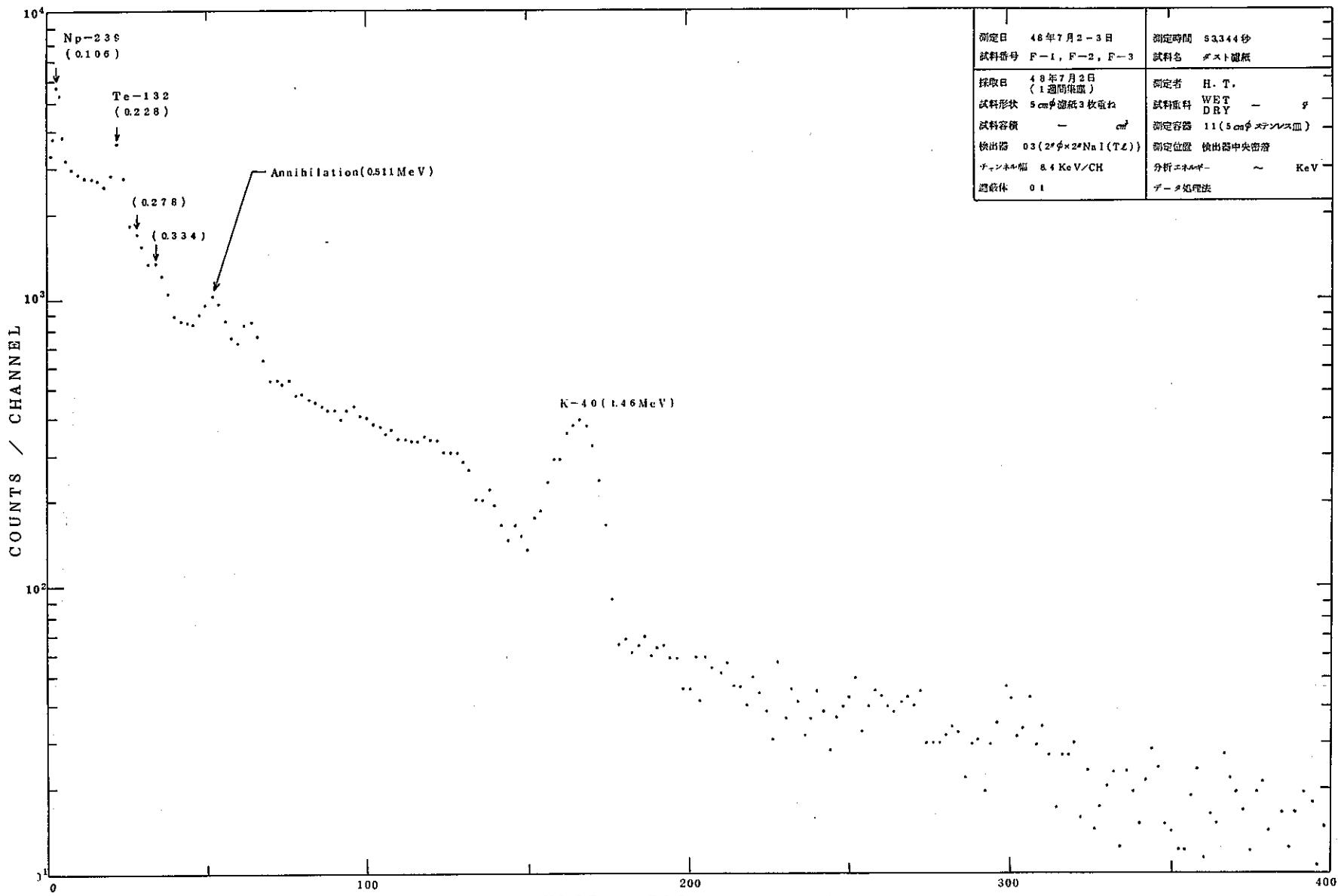


第6図 平常時の降下物試料(49年2月分)

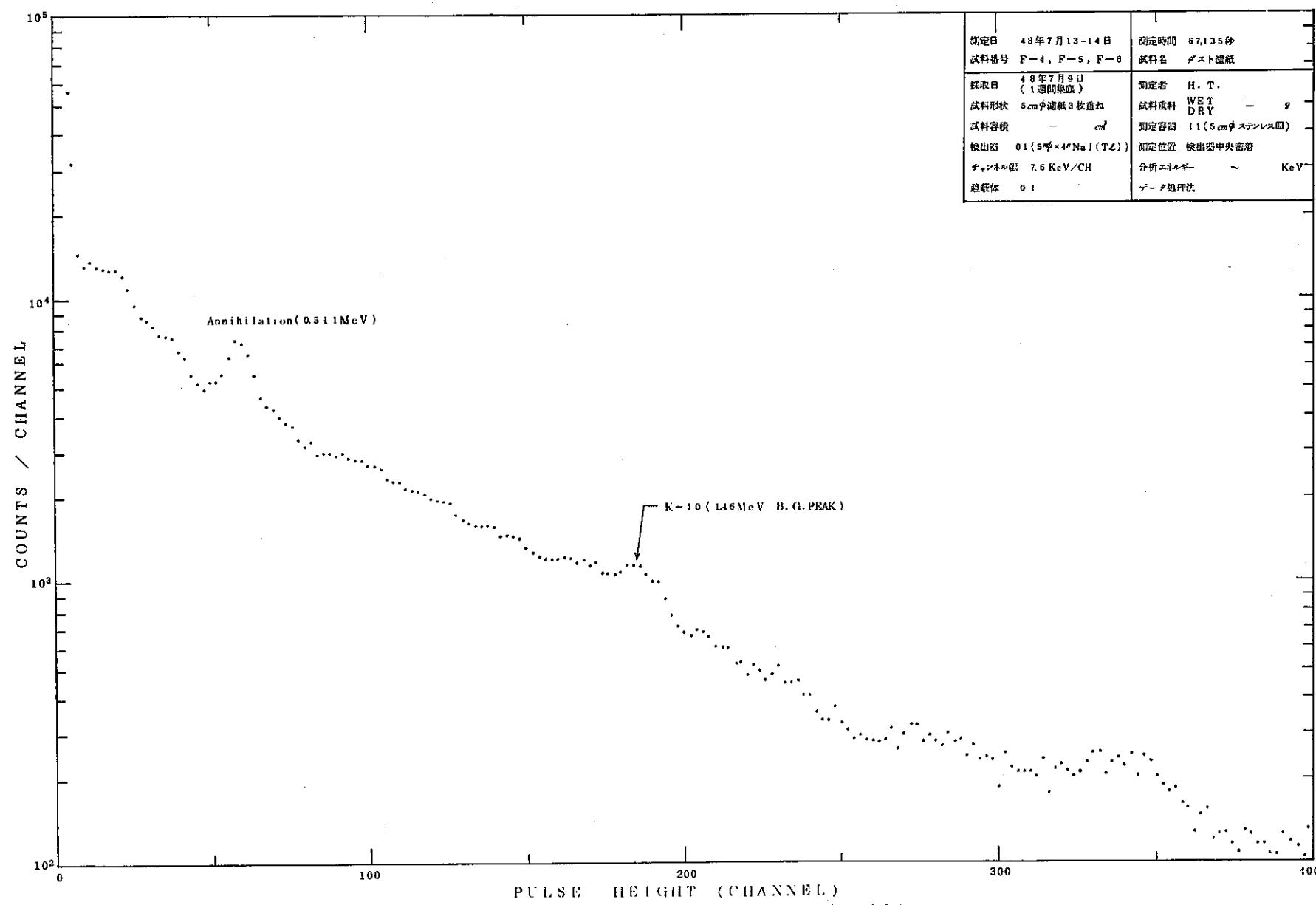


第7図 雨水試料 (48年7月2日降雨)

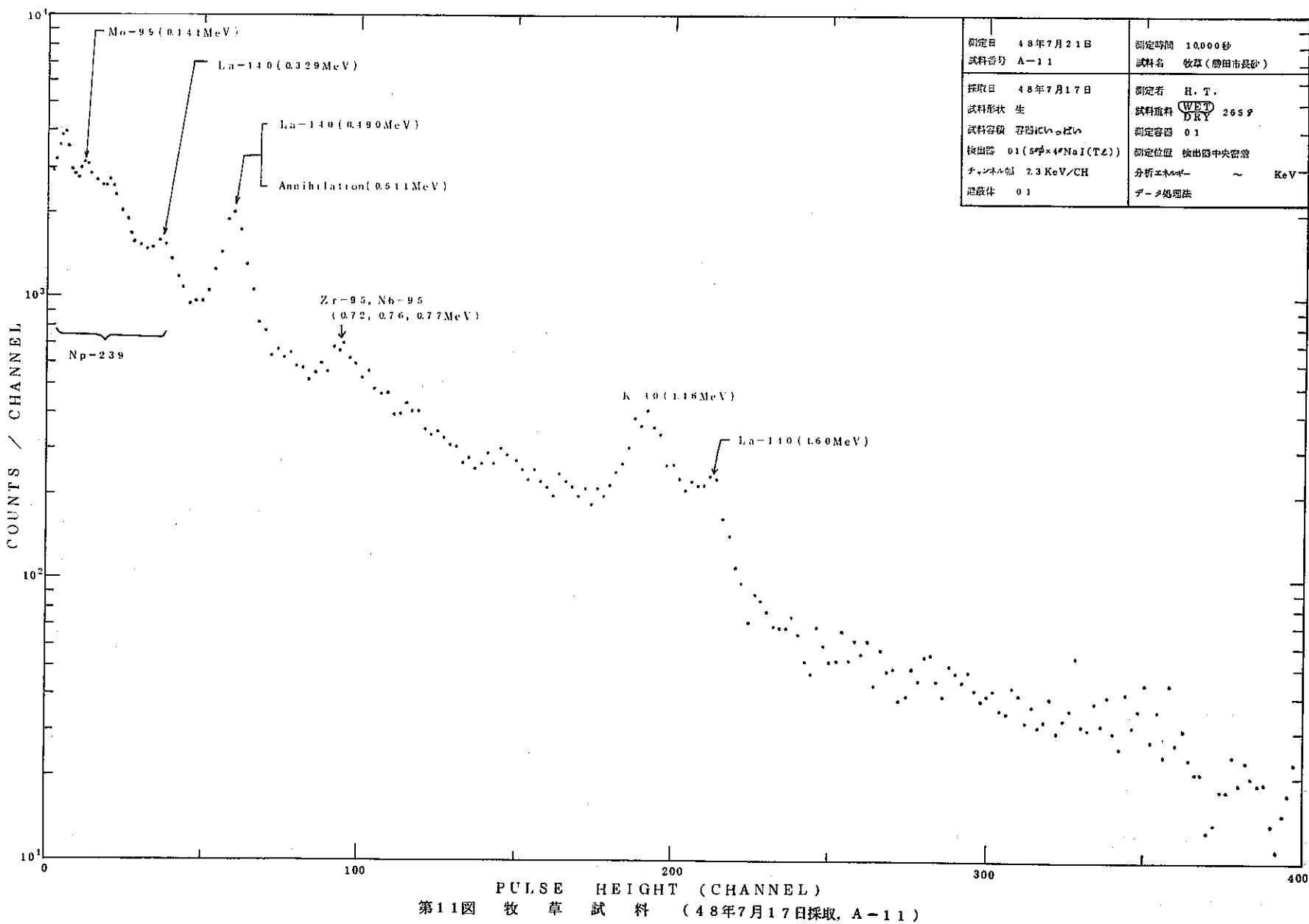




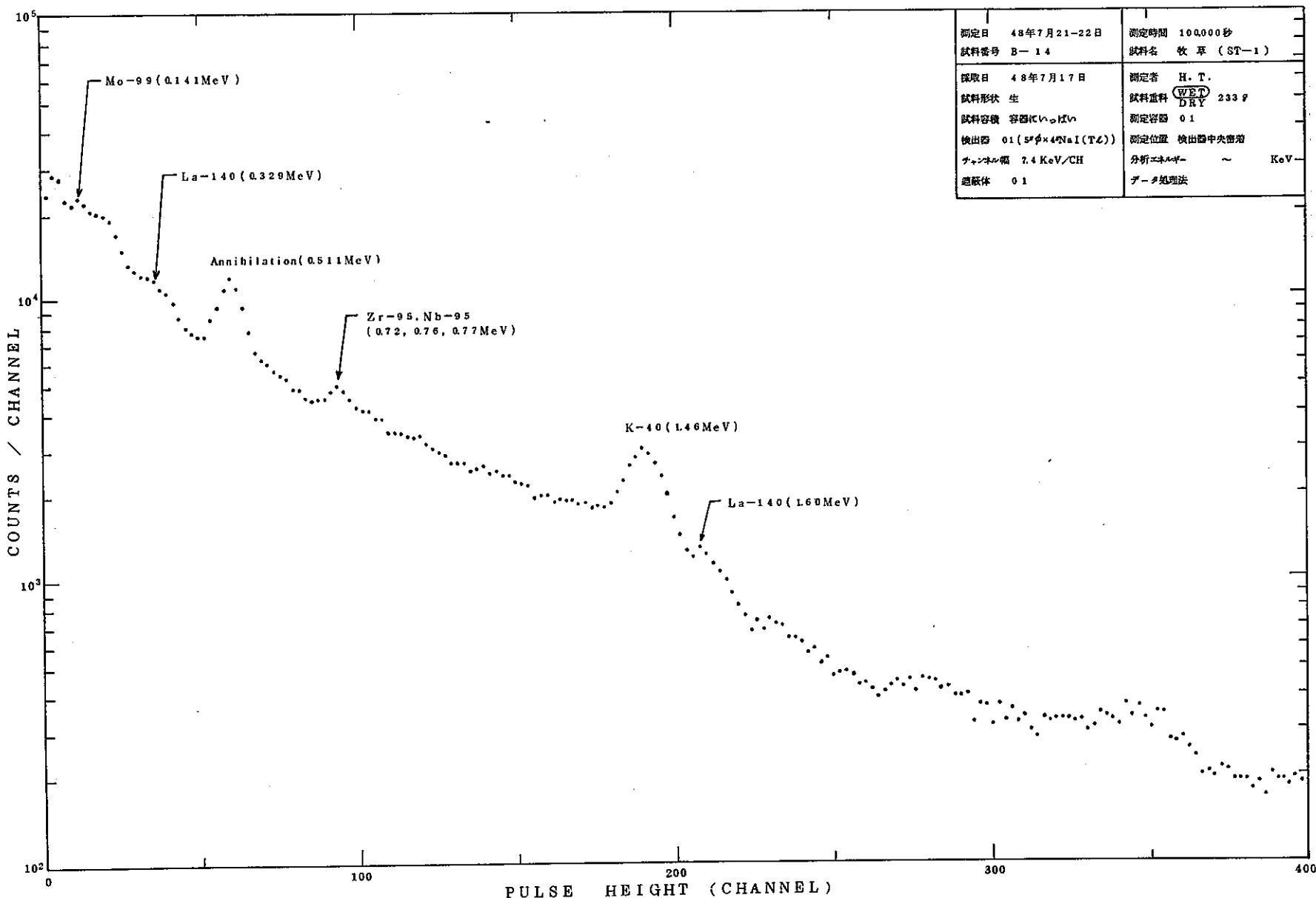
第9図 ダスト試料 (48年6月25日~7月2日集団)



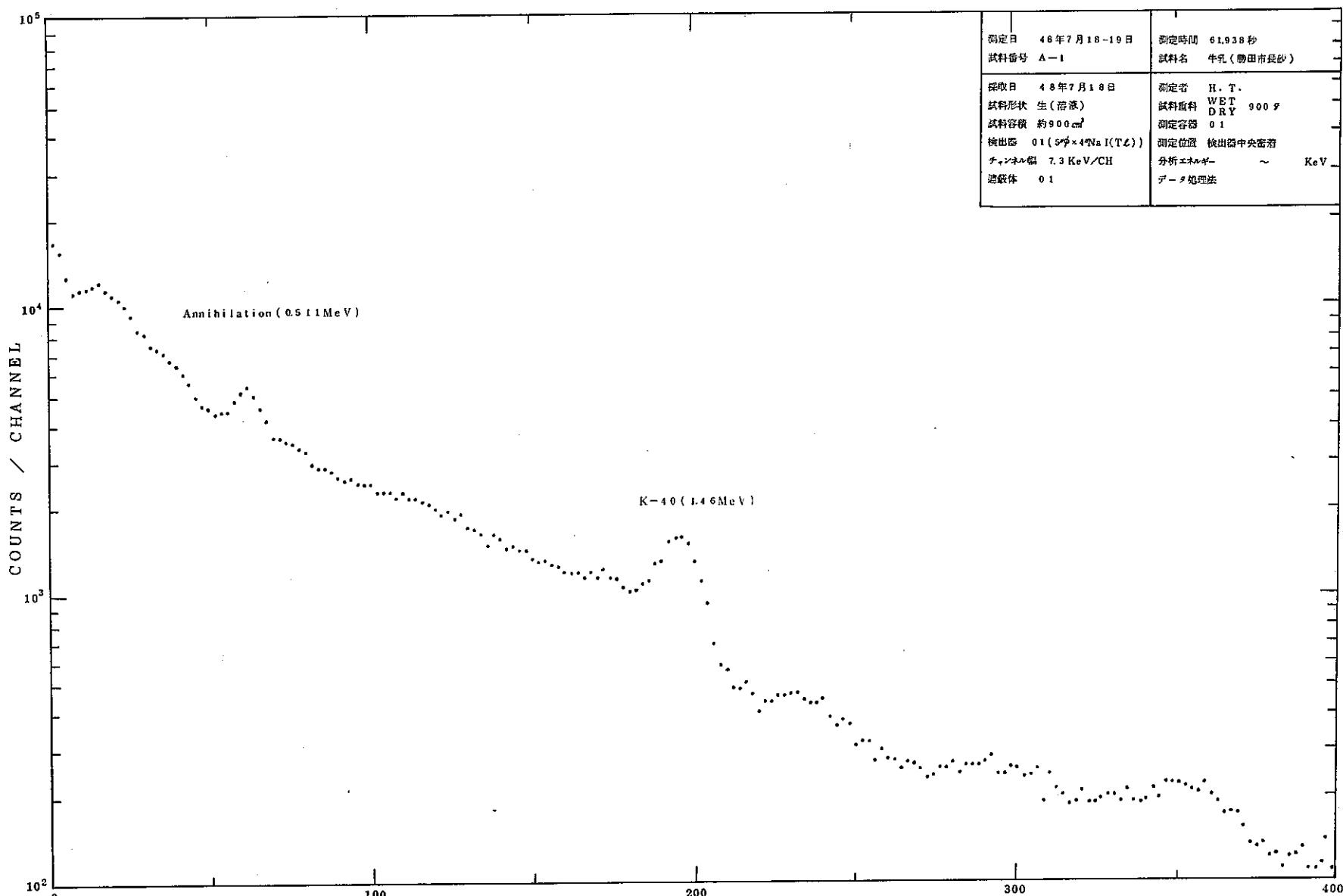
第10図 ダスト試料 (48年7月2日~7月9日集塵)



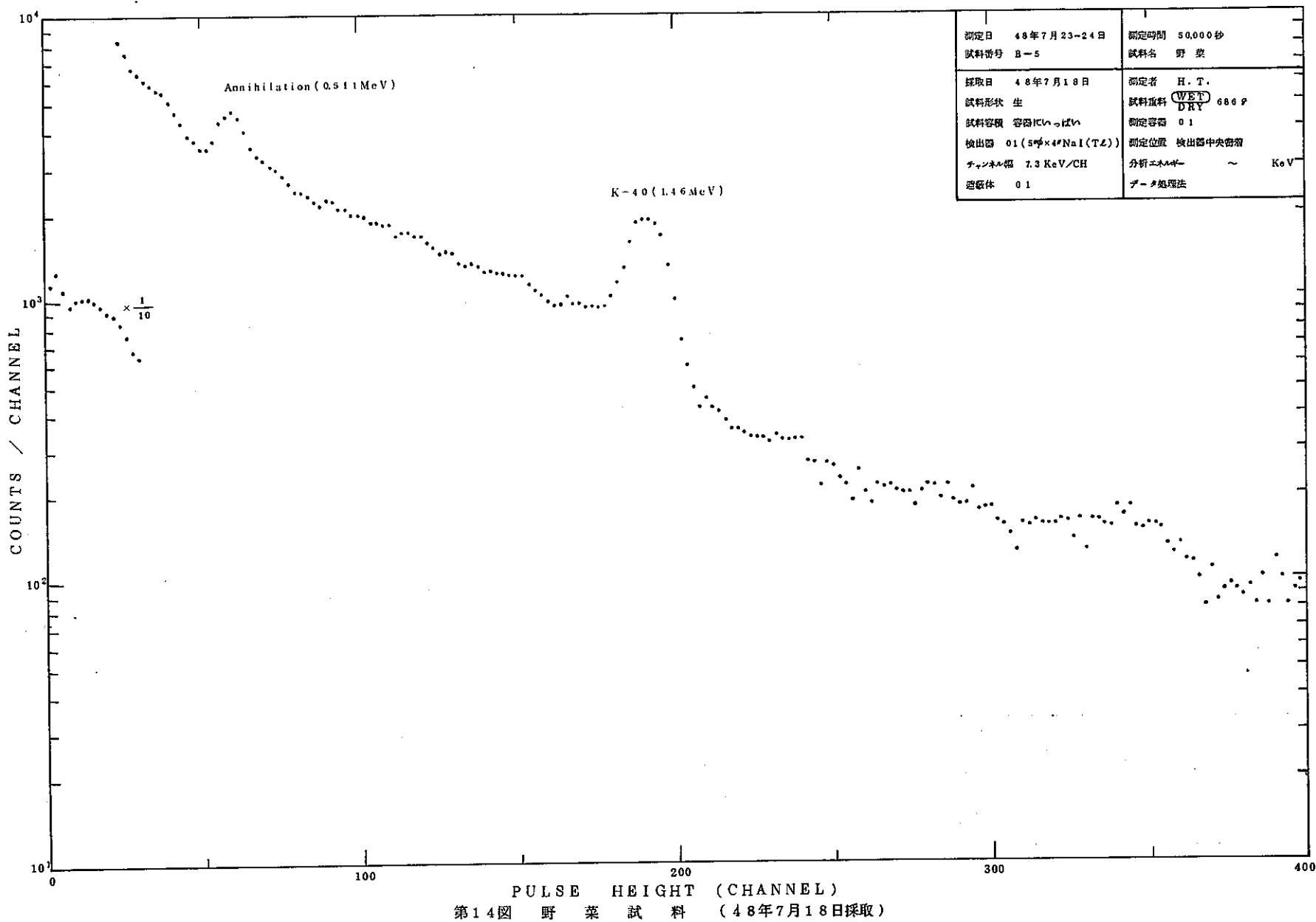
第11図 牧 草 試 料 (48年7月17日採取, A-11)



第12図 牧草試料 (48年7月17日採取, B-14)



第13図 牛乳試料 (48年7月18日採取)



N 843-74-08

