

日本における Cs-137 および Sr-90 降下について (I)*

葛 城 幸 雄**

要旨: 日本の8地点で月毎に採取された雨水中の Cs-137, Sr-90 の測定を行なった。1964年末までの札幌, 仙台, 秋田, 大阪, 福岡の Sr-90 積算量は各々77, 70, 123, 45, 75 mc/km² となった。6地点の Sr-90 気柱濃度を比較してみると, 一般に日本海側の札幌, 秋田が太平洋側(東京, 仙台, 大阪)より高い値をしめす。

東京における Cs-137/Sr-90 比は2.8で, イギリス, アメリカ, カナダ(1.6~1.7)より高い。しかし日本の6地点については互いによい一致をしめす。日本と他の諸国との間の違いの原因について若干検討を加えた。

1. はしがき

雨水中の人工放射性核種, 特に Cs-137, Sr-90 のように比較的長寿命の核種を測定することは, 第一にそれらの核種の人体におよぼす影響を評価するための基礎的な資料として重要である。しかしそれだけでなく, この問題を地球化学的に考察した場合, これらの核種をトレーサとして大気循環特に成層圏から圏界面を通して地上に落下するまでの機構を解明する一つの手段として重要な資料とすることができるであろう。

気象研究所では1954年のビキニ環礁における水爆実験以来大気中および海水中の人工放射性物質の測定がおこなってきた。1958年から東京以外に5地点で毎月雨水の採取が行われた。更に1959年から秋田, 又1964年から水戸で採取が開始された。これらの試料は放射化学的な分離のち, Cs-137, Sr-90 の測定がなされてきた。ここではこれらの地点の Cs-137, Sr-90 月間降下量の測定結果について報告する。又第2報では Sr-90 月間降下量の変動から, 成層圏内の放射性物質の滞留時間の推定を行った結果について報告する。

2. 現在までの核爆発量と 1961~1962 年核実験の特長

アメリカの原子力委員会¹⁾によれば, 現在までの核爆発量として第1表にしめすような推定値を報告している。1945年に核実験が開始されてから, アメリカ, ソビエト, イギリス, フランスが行った核実験の爆発量総計は, 511MT で, そのうち核分裂量は193MT である。又1961~1962年に全爆発量の約²⁾/₃の337MT, 核分裂量の

約¹⁾/₂の101MT が放出されたことになる。

全地球上に拡がった核分裂量は161MT で(残りの約30MT は局地降下物として地上に降下したものと推定されている)その約²⁾/₃はソヴェトの核実験によって放出されたものと推定されている。

1961~1962年に行われた核実験は, その規模が急激に大きくなったために, 1945~1958年のものに比較してみると, 大約次のような点が変わっている。

(1) 第1に水爆実験が多くなったため, 全爆発量に対する核分裂量の比が減少したことである。1945~1958年までの核実験では, 核分裂と核融合の比はほぼ1:1とされていた。(第1表では各々92MT および82MT である)。

これに対して, 1961, 1962年のソヴェトの核実験では, この比は1:4および1:2で, 1962年のアメリカの核実験では1:1.3と推定されている。三宅³⁾らは東京における, 1958年および1961年の核実験によるCs-90降下量を比較することによって, 1961年のソヴェトの核実験について核分裂と核融合の比を求めた。その結果1:5となり, アメリカの報告とは一致した値となった。

(2) 第2は成層圏(とくに成層圏上部)への核分裂生成物の放出量が増したことである。

第1表でしめされるように, 1958年までは核分裂量の約60%が地上で, 残りの40%が大気中で行われた核実験によって放出されたものである。

放射性降下物は, その放出された高さ, 粒子の大きさによって成層圏, 対流圏, 局地降下物に分けられる。1958年までの降下量をこれらの3つのグループに分けると, 各々50MT, 10MT, 30MTと推定されている。すなわち成層圏に放出された量は全体の60%位であろう。一方第1表(b)でしめされるように1961~1962年核実験ではその大部分が大気中で行われたものであり, その核分裂

* Deposition of Cs-137 and Sr-90 in Japan (I)

** Y. Katsuragi 気象研究所

—1965年9月26日受理—

Table 1 (a) Approximate fission and total yields of nuclear weapon tests. (yield in MT)

	Fission yield		Total yield	
	air	surface	air	surface
1945~1951	0.19	0.52	0.19	0.57
1952~1954	1	37	1	59
1955~1956	5.6	7.5	11	17
1957~1958	31	9	37	28
sub total	37.8	54	69.2	104.6
1961	25		120	
1962	76		217	
sub total	101		337	
total	139	54	406	105

Table 2 (b) Approximate total and fission yield of atmospheric tests (1961 & 1962) (yield in M.T.)

		Stratosphere		Fission yield	Total yield
		Lower	Upper		
1961	USSR	17	8	25	120
1962	USSR	30	30	60	180
	USA	10	1	16	37

生成物の約96%が成層圏に放出され、そのうち39%は上部、57%は下部成層圏に入ったことになる。上部成層圏への放出量が増したことによってこれらの核分裂生成物の成層圏内での平均滞留時間が以前に比較して長くなっていることが、月間 Sr-90 降下率の変動からたしかめられた。これらの点については後節で述べる。

3. 日本における Cs-137 および Sr-90 降下量

1958年1月から、東京(東京管区気台)、札幌、仙台、大阪、福岡の地点で月ごとに大型水盤(受水面積5000cm²、深さ30cm²)による雨水および落下塵の採取が開始された。更に1959年6月から秋田、1964年9月から水戸が新たに加わった。試料の採取は5管区気象台および秋田、水戸の地方気象台が担当し、それらの試料は気象研究所において核種分析がなされ、Cs-137 および Sr-90 の測定を行った。その結果の一部は既に報告した。⁴⁾⁵⁾

第1図(a)は1954年以降の東京における Sr-90 月間降下量をしめす。比較のために、ニューヨーク⁶⁾、新潟(新潟大学理学部、外林、小山^{7a,7b)})の値を全時にしめた。

第1図(b)は日本の6地点(東京は東京管区気象台で採取したもの)の Sr-90 月間降下量をしめた。

1959年7月以降の Cs-137, Sr-90 降下量は、前述のよ

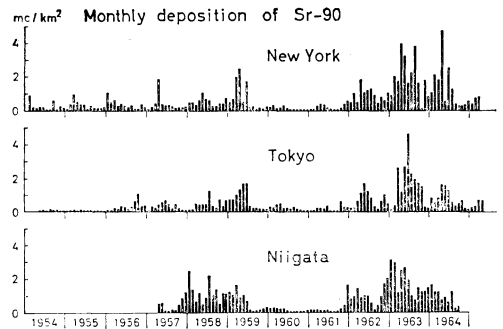


Fig-1 (a)

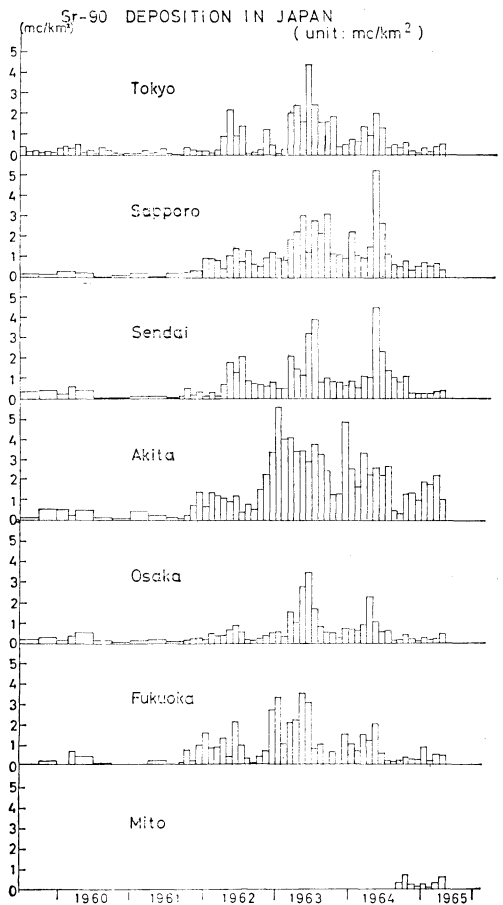


Fig-2 (b)

うにその大部分が成層圏から降下したものと推定される。

1964年12月までの東京における Cs-137 および Sr-90 積算量は、168mc/km² および 63mc/km² である(ただし両核種とも減衰は考慮していない)。

著者らは東京の値を基にして、他の5地点における Sr-90 積算量の推定を次のような方法で行った。

Table 2 Total amount of precipitation (1953-1959) (unit: mm)

Location	mm	Location	mm
Tokyo	11.432	Akita	12.861
Sapporo	8.412	Osaka	10.718
Sendai	9.130	Fukuoka	13.432

1959年6月までの東京(気象研究所)における Sr-90 積算量は 21mc/km² である。又6地点における 1953年~1959年間の総降水量は第2表に示した。1959年6月の東京における Sr-90 積算量 (F_d) および総降水量 (P) から1953年から1959年までの間の平均 Sr-90 気柱濃度を計算すれば約 31μmc/m² となる。但し気柱濃度 C は次式より求めた。

$$F_d = C(1 - e^{-\beta P} + KP)$$

$$\left. \begin{matrix} \beta = 0.2 \\ K = 0.09 \end{matrix} \right\} \text{定数}$$

この気柱濃度 (C) を用いて、逆に1959年6月までの5地点の Sr-90 積算量を上式より計算すると第3表に示す値となる。

Table 3 Cumulative amount of Sr-90 (Fd) at June 1959

Location	(Fd)	
	(a)	(b)
Sapporo	15.6	22.0
Sendai	17.0	20.7
Akita	23.9	37.8
Osaka	19.9	14.3
Fukuoka	24.9	26.6

第3表で(a)で示したのは、5地点における1953年から1959年間の平均 Sr-90 気柱濃度は東京と等しいと仮定して計算した場合で、又(b)は1953年~1959年間の東京と他の5地点との気柱濃度の比が1959年7月~1963年12月間の比に等しいものと仮定して計算した場合の値である。

二つの方法によって求めた計算結果を現在までの Sr-90 積算量の値と比較すれば、その差は10%前後である。

第4表(a)に H.L. Volchok⁸⁾ による全地球上の年間 Sr-90 降下量、東京(気象研究所:但し1954年5月から1957年3月までの間は、三宅等⁹⁾ が全 β 放射能値より

1965年10月

Table 4 (a) Annual Sr-90 deposition (Fr) and integrated amount of Sr-90 (unit: mc/km²)

	world wide MC	Tokyo		Niigata		New York		Milford Haven	
		Fr	Fd	Fr	Fd	Fr	Fd	Fr	Fd
1954	0.35	1.1	1.1			3.1	3.1	(2.0)	
1955	0.60	0.7	1.8			3.6	6.7	2.4	4.4
1956	0.55	3.8	5.6			4.4	11.1	2.5	6.9
1957	0.50	3.4	9.0	(6)	11.2	4.4	15.5	2.6	9.5
1958	0.85	5.3	14.3	14.1	25.3	6.2	21.7	5.4	14.9
1959	1.17	8.1	22.4	7.4	32.6	8.7	30.4	5.7	20.3
1960	0.36	2.4	24.8	1.7	34.3	1.6	32.0	1.8	22.4
1961	0.45	2.1	26.8	3.0	37.3	2.4	34.4	2.5	24.8
1962	1.27	8.1	34.9	11.7	48.9	11.1	45.5	9.3	34.2
1963	2.51	19.1	54.0	21.2	70.1	23.9	69.3		
1964		8.3	62.3						

(b)

	world wide MC	Sapporo		Sendai		Akita		Osaka		Fukuoka	
		Fr	Fd	Fr	Fd	Fr	Fd	Fr	Fd	Fr	Fd
up to											
1959		(23.0)		(22.8)		(39.7)		(15.6)		(27.3)	
1960	0.36	2.0	25.0	2.5	25.4	3.1	42.9	2.1	17.7	2.6	29.9
1961	0.45	2.2	27.2	1.9	27.3	3.2	46.7	1.1	18.8	2.8	32.7
1962	1.27	10.6	37.8	10.1	37.4	14.6	61.3	4.4	23.1	12.4	45.0
1963	2.51	21.3	59.1	17.0	54.4	40.3	101.6	13.8	36.9	20.0	65.0
1964		17.4	76.5	15.1	69.5	21.3	122.8	7.6	44.6	8.7	73.7

計算した値)、新潟(外林、小山^{7(a), 7(b)})、ニューヨーク⁶⁾、ミルフォード・ヘブン¹⁰⁾(イギリス)における Sr-90 年間降下量および積算量 (Sr-90 の減衰を考慮していない) を示した。

又第4表(b)には日本の5地点の Sr-90 年間降下量および積算量を示した。但し積算量の計算には第3表(b)の値を用いた。

第2図に日本の6地点における Sr-90 積算量の変動を示した。

W.R. Collins¹¹⁾ によれば、1961年から1963年までの北緯 30°~40° および 40°~50° の10度巾の平均年間 Sr-90 降下量として次の値を報告している。

	(単位) mc/km ²		
	1961	1962	1963
30°~40°	1.6	6.7	10.9
40°~50°	2.0	8.6	16.3

第4表の日本、アメリカ、イギリスにおける Sr-90 年

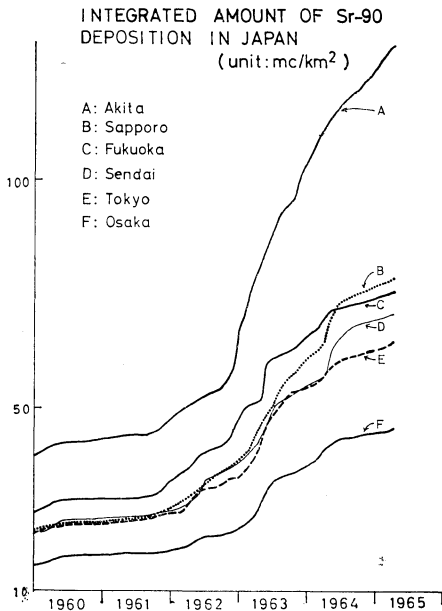


Fig-2

間降下量は(1961年, 1962年の大阪を除く), いづれも Collins の報告した 10° 度巾の平均 Sr-90 降下量より高い値をしめす. これはこれらの地点の降水量が 10° 度巾の平均降水量より多いことが第一の原因であろう.

1964年末までの Sr-90 積算量を比較すると, 日本の6地点の間では秋田が $123\text{mc}/\text{km}^2$ で最も大きく, 大阪が $45\text{mc}/\text{km}^2$ で最も小さい. 大阪の降下量が小さい原因は明らかではないがおそらく局地的な気象条件の相違によるものと思われる. 6地点を平均すると $74\text{mc}/\text{km}^2$ となりニューヨークにおける積算量とほぼ等しい.

1958年末に核実験が一旦停止され, 約3年後(フランスのサハラ砂漠における原爆実験を除く)の1961年8月にソヴィエトによって再開されている.

一方1962年末以降(1964年10月および1965年5月の中共の原爆実験を除く)大規模な核実験は行われていない.

したがって1961年, 1962年核実験による1963年以降の Sr-90 降下量と, 1957年, 1958年核実験による1959年~1961年7月迄の降下量とを比較することは, これらの2つの期間の成層圏内の放射性物質の平均滞留時間の相違を研究する上に興味のある問題である.

第4表にしめされるように, 日本, アメリカ, イギリスにおける1962年の Sr-90 降下量は, 1959年とほぼ等しく, 又1963年には1959, 1962年のほぼ2倍前後の Sr-90

降下量があった.

核実験が終わってから時間的にほぼ同じ条件と考えられる1960年, 1959年の降下量の比と, 1964年, 1963年の降下量の比とを比較すれば次のようになる.

1960年, 1959年の降下量の比については, 東京では0.3, アメリカの11地点について平均すると0.27となる. イギリスのミルフォードヘブン¹⁰⁾, アビングドン¹⁰⁾の2地点を平均すると0.31となる.

Collins¹¹⁾により報告された北半球全体の1960年, 1959年の Sr-90 降下量の比をとれば, 0.25となる. これらの値はいづれも0.3前後である.

一方1964年, 1963年の降下量の比をみると, 日本の6地点では平均して0.6である(東京0.45, 札幌0.82, 仙台0.89, 秋田0.53, 福岡0.44). ニューヨークではこの比は0.66となる. アメリカの29地点について1964年, 1963年の前半の降下量について比を求めこれを平均すれば0.81となる.

国連科学委員会1964年報告¹²⁾によれば, 1964年の Sr-90 降下量は1963年の約 $\frac{2}{3}$ であろうと推定している. 上述のように日本およびアメリカの測定結果はこの推定とほぼ一致している. すなわち1959年~1960年についてみればその半減滞留時間は6~7ヶ月であるのに対して, 1963年~1964年にはこれが1年~3年と長くなっていることが明らかである.

次に Sr-90 月間降下量の季節変化についてみれば, 第1図(a)でしめされるようにニューヨークにおいては1954年以降毎年春に極大(いわゆるスプリング・ピーク)がみとめられる. 東京では1959年以前には春の極大は明瞭ではないが, しかし1959年以降は毎年春に極大をしめている.

一方日本海側の秋田, 新潟では冬(11月頃から翌年2月頃)に極大になることが多い. これは日本海側では冬に降水量の多いことが大きな原因となっている. 札幌, 仙台, 大阪, 福岡では東京と同様春に極大がみられる.

三宅等^{2,3,4,13,14)}は放射性物質の降下量と500mbあるいはそれ以上の高さの気圧の谷(トラフ)と, ジェット流の位置との間により相関があることを見出し, このことから春の極大を説明した.

4. Cs-137/Sr-90 について

第5表に日本の7地点における Cs-137/Sr-90 比の平均値および測定値の範囲をしめた.

表でみられるように測定値の範囲は, 1.0~6.3の広い範囲にわたっている. しかしこれらの7地点の Cs-137

Table 5 Cs-137/Sr-90 in precipitation
(July, 1959 Dec. 1963)

Station	Ratio	Range
Tokyo (Met. Res. Inst.) 35°42'N 139°39'E	2.8	1.0—6.0
Tokyo (Japan Met. Agen.) 35°41'N 139°46'E	2.8	1.2—6.3
Sapporo 43°03'N 141°20'E	2.3	1.2—4.2
Sendai 38°16'N 140°54'E	2.7	1.3—4.5
Akita 39°43'N 140°06'E	2.9	1.4—5.7
Osaka 34°39'N 135°32'E	3.0	1.2—6.0
Fukuoka 33°35'N 130°23'E	2.4	1.1—5.1
Average	2.7±0.3	

および Sr-90 の積算量の比は比較的良好一致をしめし、平均すれば、2.7である。

1961年核実験再開後の東京における Cs-137/Sr-90 比を、1957~1958年の核実験の場合と比較すれば第6表のようになる。

Table 6 Annual variation of Cs-137/Sr-90 in Tokyo

		Cs-137/Sr-90	Cs-137/Sr-90
Apr.-Dec.	1957	3.2	
	1958	2.2	1962 2.7
	1959	2.9	1963 2.7
	1960	2.6	1964 1.9
Jan.-July	1961	1.8	

国連科学委員会 1964年報告¹²⁾によれば、1961年核実験再開以前の大気中の Cs-137/Sr-90 比が1.7であったのに対して、再開後はこの値が1.4に減少したことが報告されている。しかし東京における雨水中の Cs-137/Sr-90 比にはこの傾向はみられなかった。第6表でみられるように一般に核実験中あるいは核実験のすぐ後の年にはこの比が高く、又偏差も大きい、時間と共にこの比が低くなる傾向がある。しかしこの原因については明らかではない。

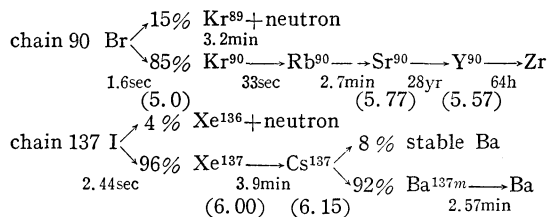
日本の7地点の値は伊沢等¹⁵⁾の値とよい一致をしめす(伊沢等の1957年~1960年の Cs-137/Sr-90 比の平均は2.8、測定値の範囲は1.0~8.7)。しかしながら日本の値は、アメリカ、イギリス、カナダにおける雨水中の値(平均1.6~1.7)より高く約1.5倍である。又これらの諸国の測定値の偏差は小さい。例えばイギリス(7地点)の1958年~1963年間の測定値の範囲は0.8~3.9であった。

両核種の分析誤差は10%以内であり、測定誤差は数%である。したがってこれらの誤差からは日本と諸外国の間の大きな差を説明することはできない。むしろこの原因としては次のようなことが考えられる。

第7表に U-235, U-238, Pu-239, Th-232 の Cs-137 および Sr-90 の核分裂収率¹⁶⁾および Cs-137/Sr-90 比をしめす。この表でみられるように Cs-137/Sr-90 比は核分裂物質の種類によって0.93~3.05の範囲で変化する。このことが雨水中の Cs-137/Sr-90 比を変動させる一つの原因であろう。Sr-90 および Cs-137 の親核種は Kr-90

Table 7 Fission yield (%)

	U-235 thermal	U-235 fast	Pu-239 fast	U-238 fast	Th-232 fast
Sr-90	5.77	4.38	2.23	3.2	6.8
Cs-137	6.15	6.18	6.8	6.2	6.3
Cs-137/Sr-90	1.07	1.41	3.05	1.94	0.93



Xe-137 であるが(共に希ガス元素)、これらの半減期は各々33秒と3.9分である。半減期のみじかい Kr-90 はかなりの部分が核爆発の際の火球が成層圏に達する前に Sr-90 になるのに対して、Xe-137 の多くはガス状のまま成層圏に入るであろう。したがって成層圏では Cs-137/Sr-90 比は高くなり、局地降下物では逆にこの比は低くなることが予想される。

第7表でしめした U-238 の速中中性子による核分裂生成物中の Cs-137/Sr-90 比の1.94が正しいものとすれば、前述の見地から成層圏では当然 Cs-137/Sr-90 比が平均して2以上になるであろう。

第8表に Lockhart¹⁷⁾の地上附近の大気中の Cs-137/Sr-90 比、Ash Can Project¹⁸⁾、HASP¹⁹⁾(High Altitude Sampling Program の略称)による成層圏大気中の Cs-137/Sr-90 比の平均および測定値の範囲をしめす。

放射性粒子が成層圏から対流圏に入った場合、これらの粒子は約1ヶ月の滞留時間で、じん埃や雨によって捕集されて地上に降下する。日本では放射性物質の90%以上が雨によって捕集される。この雨による捕集の過程で

Table 8 Cs-137/Sr-90 in the stratosphere and in the air near the ground

	NRL		Ash can project (San Angels, USA)		HASP	
	Av.	range	Av.	range	Av.	range
1957						
1958	2.3	1.9—2.7	2.5	0.6—39.6	1.7	0.4—5.0
1959	2.3	1.7—2.5				
1960	1.8	1.6—2.1	2.0	1.2—4.4	(Nov. 1957- Mar. 1960)	
1961	1.8	1.2—2.2	1.8	1.2—3.4		
1962	1.7	0.9—2.3	1.5	1.0—3.9		
1963			1.6	1.2—3.0		

Cs と Sr との化学的性質の相違から分別作用が起ることが考えられる。又放射性物質が成層圏から対流圏に入る場所と、採取地点の相対的な位置の違いによっても Cs-137/Sr-90 比は変動するであろう。

以上の見地から日本で観測された Cs-137/Sr-90 比が高く、しかもその値が広い範囲にわたっていることはむしる当然であり、今後気象学的な見地からこの問題を検討する必要があるように思われる。

終りに本研究について終始御指導を賜った地球化学研究部長三宅泰雄博士および種々御討論、助言を与えられた地球化学研究部の方々に厚く感謝いたします。

本研究には新潟大学理学部 小山誠太郎教授、外林武氏の資料を引用させて頂きました。又雨水試料の採取には東京、札幌、仙台、大阪、福岡の各管区气象台、秋田、水戸の各地方气象台の観測課、技術課の方々の御尽力を頂きました。以上の方々に厚く感謝いたします。

参考文献

- 1) Hearing before the Subcommittee on Research, Development, and Radiation of the joint Committee on Atomic Energy Congress of the United States; 88 th Congress First Session on Fallout, Radiation Standard, and Countermeasures, June 3, 4, and 6 (1963).
- 2) Y. Miyake, K. Saruhashi, Y. Katsuragi, T. Kanazawa, and S. Tsunogai (1963) Deposition of Sr-90 and Cs-137 in Tokyo through the end of July 1963; Pap. Met. Geophys. **14** 58~65.
- 3) 三宅泰雄, 葛城幸雄, 金沢照子 (1964) 放射性降下物の現状と将来, 科学 **34** 142~148.
- 4) Y. Miyake, K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa (1962) Radioactive fallout in

Japan and its bearings on meteorological conditions. Pap. Met. Geophys. **11** 151~158.

- 5) 大気放射能観測成績 (1963) **33** 99~100.
- 6) Report of Health and Safety Laboratory; USAEC HASL-161 (1965).
- 7a) T. Sotobayashi, and S. Koyama (1962) Deposition of nuclear debris and atmospheric condition. Journal of the Faculty of Science Niigata University **3** 83.
- 7b); *ibid.*, **3**. 103 (1962).
- 8) H.L. Volchok (1964) Strontium-90 estimation of world wide deposition. Science **145** 1451.
- 9) Y. Miyake, Y. Sugiura, K. Saruhashi, and T. Kanazawa (1957) The estimation of the amount of Sr-90 deposition and the external infinite gamma dose in Japan due to man-made radioactivity. Pap. Met., Geophys. **8** 222~231.
- 10) R.S. Cambray, Miss E.M.R. Fisher, G.S. Spicer., C.G. Wallace, T.J. Webber (1963) Radioactive fallout in air and rain results to the middle of 1963; AERER 4392.
- 11) W.R. Collins, Report of Health and Safety Laboratory US AEC HASL 131 (1962) 140 (1963) 146 (1964).
- 12) UNSCEAR Report (1964) Report of the United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation.
- 13) 三宅泰雄 (1962) フォールアウトの気象学的側面. 天気 **9** 1~6.
- 14) Y. Miyake, K. Saruhashi, Y. Katsuragi and T. Kanazawa (1962) Seasonal variation of radioactive fallout. J. Geophys., Res. **67** 189~193.
- 15) M. Izawa, H. Tsubota, and T. Nagai, (1961) Strontium 90 and cesium 137 in fallout deposits and implication of their ratio. J. Rad. Res. **2** 29~41.
- 16) S. Katcoff (1960) Fission product yield from neutron induced fission. Nucleonics, **18** 201~208.
- 17) L. B. Lockhart Report of Health and Safety Laboratory. HASL 95 (1960), 115 (1961), 131 (1962), 144 (1964),
- 18) Ash Can Project Health and Safety Laboratory HASL 88 (1960), 95 (1960), 105 (1961), 127 (1962), 135 (1963), 138 (1963), 140 (1963), 144 (1964), 155 (1965).
- 19) High Altitude Sampling Program (1961) edited by J.P. Friend Defense Atomic Support Agency, **3** 1961.