最近の ⁹⁶Sr 降下物の起源*

三 宅 泰 雄** 葛 城 幸 雄***

要旨

日本における ⁹⁰Sr 降下量は1963年~1967年まで約1年の半減期で減少, 1967年~1971年は 横ばい状態であり, 1972年には前年に比較して約40%減少した.

東京における ⁹⁰Sr 降下量および ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比の測定結果から、1961年~1962年の米・ソ核実験、中国水 爆実験による ⁹⁰Sr 降下量の全降下量への割合を求めた。

1. はしがき

1962年末にソ連およびアメリカの大規模な核実験が停止された。その後北半球で行われた核実験としては中華人民共和国(以下中国と略称)が15回大気圏内で行ったほか、ソ連、アメリカによる多数の地下核実験がある。

1961年以降現在までに北半球に降下した ⁹⁰Sr 量の大部分は、1961年~1962年の米・ソ核実験および中国核実験に由来するものである。

中国の 核実験の 規模は数十 kT 級の 原爆実験が 6 回 (第 1, 2, 4, 7, 12, 13回),数百 kT 級の大型の原爆実験が 3 回 (第 3, 5, 14回),数 MT 級の水爆実験が 5 回 (第 6, 8, 10, 11, 15 回),地下核実験が 1 回 (第 9 回)でいづれも新疆省ロップ・ノール地区(40°N, 90°E)でおこなわれている。

新らしい核実験による ⁹⁰Sr 降下量が全降下量にしめる割合は半減期のみじかい ⁸⁹Sr (半減期 53 日) と ⁹⁰Sr (半減期28年)との比:(⁸⁹Sr/⁹⁰Sr) と,その時間的変化から求めることができる。このような方法で,1961年から1972年までのそれぞれの核実験による ⁹⁰Sr 降下量の割合を計算した結果について報告する。

2. 1961年以降北半球で行われた核実験

1961年および1962年に行われたソ連およびアメリカの原・水爆実験の総爆発量は337MT でそのうち核分裂量は101MT とされている.

これに対し中国の核実験の規模(アメリカ原子力委員会による推定:kT) と成層圏への 90 Sr 打上げ量を第1表にしめした.****

 90 Sr の放出量から中国の15回におよぶ核実験の総核分裂量は約 10MT と推定される(1 MT の核分裂で約 100kCi の 90 Sr が生成されると仮定). Krey らは中国の水爆実験の総爆発量にしめる核分裂量を 1/2 と推定している。したがって中国核実験の総爆発量は約20MT となる(Krey et~al.~1971).

中国核実験は、1961年~1962年の米・ソの核実験に比較すれば規模は小さい. しかし 1968年以降の 北半球の ⁹⁰Sr 降下量における中国核実験の影響は急激に増加している (三宅ら 1970, 葛城 1971).

3. 日本における 90Sr 降下量

日本の7地点(東京:2地点,札幌,仙台,秋田,大阪,福岡)における ⁹⁰Sr 降下量の経年変化についてはすでにくわしい報告がある (Miyake *et al.* 1963, 葛城 1965, 葛城 1969, 三宅ら 1970, 葛城 1971).

ここでは6地点における1967年から1973年4月までの ⁹⁰Sr 降下量の経年変化をしめした(第1図). 第2表に 1966年以降のこれらの地点における ⁹⁰Sr 年間降下量と 核実験開始以来の積算降下量をしめした。わが国の ⁹⁰Sr 積算降下量は145mCi/km² (秋田) から54mCi/km² (大阪) の範囲にある.

**** フランスは1966年以降多くの核実験を南半球のムルロア環礁,ファンガタフア環礁(22°S)で行なった.このうち1968年8月25日,9月9日および1970年5月31日,7月4日は水爆実験である。南半球での核実験の北半球 9°Sr 降下量に およぼす影響は、水爆実験を除けば無視できる.

Volchok らは水爆実験で南半球成層圏に打上 げられた 90 Sr の約 10% が北半球に降下すると している (Volchok 1969).

^{*} Origin of 90Sr Fallout in Recent Years.

^{**} Y. Miyake 地球化学研究協会

^{***} Y. Katsuragi 気象研究所

⁻⁻⁻¹⁹⁷⁴年3月18日受理---

第1表 中国核実験による総爆発量および ⁹⁰Sr 打 上げ量

回数	核爆発日年月日	総爆発量* (kT)	成層圏への 90Sr 打上げ量** (kCi)
1	1964. 10. 16	20	
2	1965. 5.14	30~50	
3	1966. 5. 9	200	
4	10. 27	20	
5	12. 28	200~300	
6	1967. 6.17	2×10^{3}	170~200
7	12. 24	20	
8	1968. 12. 27	3×10^{3}	110~115
9	1969. 9.23	地下核実験	
10	9. 29	3×10^{3}	150~207
11	1970. 10. 14	3×10^{3}	198~243
12	1971.11.16	20	
13	1972. 1. 7	20	
14	3. 20	200~300	
15	1973. 6.27	3×10^{3}	

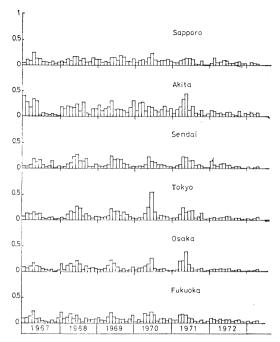
^{*} アメリカ原子委員会による推定

みられない。 1972年になって ⁹⁰Sr 年間降下量は前年に 比較して, 平均約40%減少した.

1967年から1971年までの ⁹⁰Sr 降下量の横ばいは、1967年から1970年まで毎年行われた中国の水爆実験により成層圏に打ち上げられた ⁹⁰Sr の降下が原因である(三宅ら 1970, 葛城 1971).

4. 89Sr/90Sr 比の経年変化

中国の核実験は2ヶ月から1年以上の時間間隔で行な われている。したがって大気中または降下物中の短寿命 と長寿命の2核種の放射能比の時間変化を測定すること



第1図 日本の6地点における ⁹⁰Sr 月間降下量の 経年変化 (単位:mCi/km²)

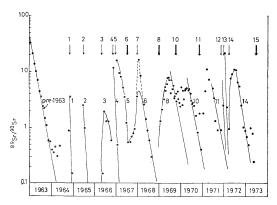
により、特定の核実験で放出された放射性物質の大気中 でのうごきや、割合などを推定することができる.

第2図に東京における月間降下物中の ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比をしめす (黒丸). 同時に英国の Milford・Haven (51.5° N, 0.5° W), Abingdon (51.5° N, 0.1° W) の 2 地点の ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比の平均値 (白丸)をしめした (Cambray et al. 1962, 1963, 1972). 第2図でみられるように東京と英国の ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比の間に顕著な差はみとめられない. 図の中の数字は中国の核実験の回数で、線はそれらの核実験に対応する ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比の時間的変化をしめす.

第2表 7地点における年間降下量および核実験開始以来の 90Sr 積算降下量 (単位:mCi/km²)

年	東 京 気象研究所	東 京 東京管区	札 幌 札幌管区	仙 台 仙台管区	秋 田 秋田地方	大 阪 大阪管区	福 岡 福岡管区
1966	1.8	1.9	2. 3	1.8	4.2	1. 7	1.9
1967	0.8	0.7	1.0	0. 9	1.8	0.8	1.0
1968	1.3	1.3	1.2	1.3	1.9	1.2	1.2
1969	1.2	1.1	1.2	1.1	2.0	0. 9	1.1
1970	1.4	1.2	1.1	0.8	1. 9	0.8	1.1
1971	1.1	1.1	0.8	1.0	1.8	1.2	0.9
1972	0.6	0.5	0.7	0.6	0.8	0.2	0.7
積 算降下量	75		90	80	145	54	84

^{**} Krey らによる観測値



第2図 月間降下物中の ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比 の経年変化. 黒丸:東京 (気象研 究 所), 白丸:英国の Milford・Haven, Abvingdon の 2 地点の ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比の平均値

Sr/*の時間的変化から、中国の核実験を次の3つのグループに分けることができる。

第1のグループは 89 Sr/ 90 Sr 比がほぼ 指数函数的に減少しているもので、これらは数十 kT 級の比較的小型の原爆実験である。第1、2、4、7、12、13回核実験が第1グループに属する。これらの核実験では約3ヶ月後には 89 Sr/ 90 Sr 比が検出限界以下になる。

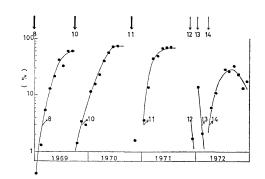
第2のグループは 89 Sr/ 90 Sr 比が核爆発後 増加し、数 ケ月後に極大に達し、その後減少をしめすものである. これらは数百 k T 級の大型の原爆実験 である. 第3、第5、第14回核実験がこれに属する. 半年から約1年間 にわたって核実験の影響がみられる.

第3のグループは、 89 Sr/ 90 Sr 比が翌年の春から夏にかけて極大に達し、その後は 89 Sr の減衰曲線に沿って減少するものである。第6,第8,第10,第11回核実験が第3のグループに属する。これらは数 MT 級の水爆実験である。

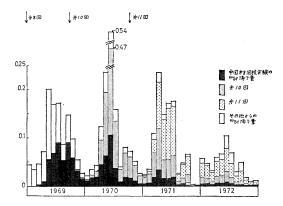
第1のグループは、放射性物質が主として対流圏下部に放出された場合の ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比の時間的変化に相当し、第2のグループは対流圏の上部に放出された場合に相当している。第3のグループの場合は、水爆実験であるため、放射性物質の大部分が成層圏に打ち上げられた場合の ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比の時間的変化に相当している(葛城 1971, Swindle *et al.* 1969).

5. 中国核実験による 90Sr 降下量

中国の核実験に由来する 90 Sr が全降下量 にしめる割合 (α) を,月間降下物中の 89 Sr/ 90 Sr 比から次式を用いて計算した.



第3図 中国核実験に由来する ⁹⁰Sr 降下量の全降 下量に対する割合 (単位%)



第4図 中国水爆実験(第8回, 第10回, 第11回) による ⁹⁰Sr 降下量(単位:mCi/km²)

$$A = \alpha D + (1 - \alpha)C \tag{1}$$

$$\therefore \alpha = (A - C)/(D - C) \tag{2}$$

A は時間 t における降下物中の 89 Sr/ 90 Sr 比,C は以前に行われた核実験による降下物中の 89 Sr/ 90 Sr 比の時間 t における推定値である。D は新らしい核実験からの降下物中の 89 Sr/ 90 Sr 比の時間 t における推定値で,t=0 (爆発時) に D が 170 であるとして計算した。

上式を用いて 1969 年以後の中国の 核実験に 由来する ⁹⁰Sr 降下量の全降下量に対する割合(%)を計算した結果を第3図にしめす.

図でみられるように、前述の第1のグループの原爆実験(第12回、第13回)では、その割合は数ケ月後には1%以下となる。第2のグループの核実験(第14回)では核爆発直後には数%で、時間とともに増加し、5ヶ月後に極大に達したのち次第に減少する。

数 MT 級の水爆実験 (第8, 第10, 第11回) では、 翌年の春から夏にかけてその割合は極大となり、その後 成層圏残存量

合 計

年	⁹⁰ Sr 降下量 実測値	1961年以前 の核実験	1961~62年 核実験	中国原爆実験	中国水爆実験			
					第6回	第8回	第10回	第11回
1961	2. 1	1.4	0. 7					
1962	8. 1	0.6	7.5					
1963	19.1		19.1					
1964	8.6		8.6	(1) 0.02				
1965	4. 3		4.3	(2) 0.02				
1966	1.8		1.8	(3) 0. 02				
1967	0.8		0.7	(5) 0.08				
1968	1.3		0.5	(7) 0.01	0.8			
1969	1.2		0.3		0. 4	0. 5	0.01	
1970	1.4		0.1		0.1	0.4	0.8	
1971	1.1		0.03		0.05	0.1	0.3	0.5
1972	0.6		0.01	(13) 0.09 (14)	0. 02	0.05	0. 1	0. 3

0.24

0.01

43.7

第3表 1961~1962年核実験および中国核実験による 90Sr 降下量 (東京, 単位:mCi/km²)

はほぼ60%くらいの一定の値をしめす。これは新らしい 核実験による ⁹⁰Sr が北半球成層圏内でほぼ 均一に混合 していることをしめしている。

2.0

0.5

50.9

次に第3図の値を用いて、それぞれの中国核実験による 90 Sr 降下量を求めた.

第4 図に東京における全 ⁹⁰Sr 降下量および第8回, 第10回, 第11回核実験による ⁹⁰Sr 降下量をしめす. 第 8 回核実験は1968年12月に行われたが, それに由来する ⁹⁰Sr 降下量は1969年8月を過ぎて極大となっているため, 1969年の ⁹⁰Sr 年間降下量は比較的少なく, 1970年のそれとほぼ等しい. 第8回核実験に由来する ⁹⁰Sr 降下量は1970年以降は約1年の半減期で減少している.

第10回,第11回の核実験は1969年 9 月および1970年10 月に行われ,これらの核実験に由来する 90 Sr 降下量の全降下量にしめる割合が一定になったのは,それぞれ1970年 6 月および1971年 5 月である(第 3 図).

中国の水爆実験に由来する ⁹⁰Sr 降下量の 割合は、それがいつたん一定となったのち、その後はほぼ 1 年の半減期で ⁹⁰Sr 降下量は減少する.

第3表に1961年以降の米、ソ、中国の核実験による ⁹⁰Sr 降下量(東京)を計算した結果をしめす。ただし 1961年から 1969年 までの東京における 月間降下物中の ⁸⁹Sr/⁹⁰Sr 比は、Milford・Haven、Abingdon の 2 地点 の平均値に等しいものと仮定して計算した。

第4表 アメリカ,ソ連,中国の核実験による 90Sr 降下量の全降下量への割合(単位:%)

0.05

1.1

0.02

1.4

0.1

1.3

0.3

1.1

年	1961~62 年核実験	中 国	中国水爆実験				
		原爆実験	第6回	第8回	第10回	第11回	
1963	100						
1964	99.8	(1) 0.2					
1965	99.6	(2) 0.4					
1966	98. 5	(3) (4) 1.5					
1967	90	(5) 9	0. 5				
1968	38	(7) 0.8	61				
1969	23		36	41	0.6		
1970	6		10	26	58	0.1	
1971	3	(12) 0.03	5	13	32	48	
1972	2	(13) (14) 16	3	9	32	48	

成層圏降下物の成層圏内における半減期は約1年であるから、1973年以降の ⁹⁰Sr 降下量は1972年の降下量にほぼ等しいであろう。これを加えて、東京における ⁹⁰Sr 全降下量を求めることができる。1961年から1972年までの東京における ⁹⁰Sr 全降下量は 50.9mCi/km² である(第3表)。このうち1961~1962年の米・ソの核実験に由来するものが43.7mCi/km², 1967年からはじめられた中国の水爆実験(第6,8,10,11回)に由来するもの

第5表 東京における ⁹⁰Sr 年間降下量 (f) と北半 球における ⁹⁰Sr 年間降下量 (F) およびそ の比 (f/F)

年	90Sr 年間降下量 東京(気象研究 所)(f) mCi/km ²	北半球 ⁹⁰ Sr 降下量 (F) MCi	f/F 比 mCi/km²/MCi
1963	19. 1	2. 62	7. 3
1964	8.6	1.66	5.2
1965	4.3	0.77	5.5
1966	1.8	0. 33	5.4
1967	0.8	0.17	4.8
1968	1.3	0. 20	6.6
1969	1.2	0.15	7. 9
1970	1.4	0. 21	7. 0
1971	1.1	0.19	5. 6
合 計	39. 5	6. 3	平均 6.2±1.1

は、それぞれ 1.4、1.1、1.3 および 1.1mCi/km² で計 4.9mCi/km² である。 中国の 原爆実験に 由来する 90 Sr 降下量は計約 0.24mCi/km² である。したがって1961年以降の全 90 Sr 降下量の割合は、1961~1962年の米・ソ核実験によるものが約86%、中国水爆実験と原爆実験によるものが,それぞれ 10%と 0.5%であると推定される(残りの約 4%は1961年以前の核実験から由来する)。

第4表に 90 Sr の全降下量にしめるそれぞれの 核実験からの 90 Sr 降下量の割合 (%) をしめした。表でみられるように、1963年から1966年までは98%以上、1967年では90%以上が $1961\sim1962$ 年の米・ソ核実験に由来している。しかし米・ソの大気圏内の核実験停止により1968年からは、その前年に行われた中国の水爆実験の影響が顕著になってきた。すなわち第6、8、10、11回の核実験による 90 Sr 降下量は、それぞれ 翌年 の全 90 Sr 降下量の61%、41%,58%,48%となっている。

前述のように成層圏からの降下は約1年の半減期で減少するが、中国水爆実験による降下量もほぼこの減少率にしたがって減少する。これが1967年から1971年までの90Sr年間降下量が横ばい状態になった原因である。

1971年には中国は水爆実験を行わなかったので、1972年の 90 Sr 降下量は 前年度より 約 40% 減少した。また 1972年に行われた 2 回の原爆実験(第13,第14回)による 90 Sr 降下量は全体の約16%であった。

成層圏内の ⁹⁰Sr 量の観測結果 (Krey *et al.* 1972) によれば, 1967年6月に第6回中国核実験が行われる直前

第6表 中国の水爆実験で成層圏に打上げられた ⁹⁰Sr 量と打上げ量から求められた東京の ⁹⁰Sr 降下量

	北半球成層圏 への ⁹⁰ Sr 打 上量 (kCi)	⁹⁰ Sr 打上量か ら求めた ⁹⁰ Sr 降下量(東京) mCi/km ²	⁹⁰ Sr 降下量か ら求めた値。 mCi/km
第 6 回 (1967. 6.17)	170~200	1.1~1.3	1.4
第 8 回 (1968.12.27)	110~115	0. 7	1.1
第10回 (1969. 9.29)	150~207	0.9~1.3	1.3
第11回 (1970.10.14)	198~243	1.2~1.5	1.1

までは、北半球成層圏内の ⁹⁰Sr 量は約10ヶ月の半減期で減少していた。その後4回行われた中国水爆実験により北半球成層圏内の ⁹⁰Sr 量に顕著な増加がみられた。それぞれの水爆実験によって ⁹⁰Sr が補充されるため、核実験直後の成層圏内の ⁹⁰Sr 量は、ほぼ等しくなっている。成層圏内の ⁹⁰Sr 量の観測結果は ⁹⁰Sr 降下量の観測結果とも良く一致している。

6. 北半球における 90Sr の収支

1960年から1968年までの日本の6地点と北半球全 ⁹⁰Sr 降下量 (Volchok, 1969) との間には良い比例関係があ る (三宅ら, 1970)

第5表に東京における 90 Sr 年間降下量 ($f: mCi/km^2$) と北半球における 90 Sr 年間降下量 (F: MCi) およびその比 (f/F) をしめした。f/F 比は 4.8 から 7.9 の範囲で平均値は 6.2 であった。標準偏差は ± 1.1 である。積算量からの計算値は 6.3 であった。このことは,f および F にはそれぞれ数 +% のゆらぎがあるにもかかわらず, $\pm 20\%$ くらいのたしかさで,一方の値から他を推定することが可能であることをしめす。

中国の第6, 8, 10, 11回核実験によって北半球成層 圏に打上げられた ⁹⁰Sr 量の観測値を第6表にしめす (Krey 1968, Telegadas 1969, Krey *et al.* 1969, 1970, 1971a, 1971b, 1972).

同表には 90 Sr の成層圏への打上げ量と f/F 比から,東京における 90 Sr 降下量を求めた結果もしめしてある. これらの推定値は, 直接東京における 90 Sr 降下量から求めた前述の値にほぼ近い.

1961年および1962年の米・ソの核実験についても同様にして 90Sr の収支量の検討を行なうことができる.

1961~1962年核実験による核分裂量の総計は前述のと

おり 101MT で, これは 10MCi の ⁹⁰Sr 放出量に相当し, 成層圏に打上げられたのは 約 9 MCi であろう. このうち南・北両半球成層圏の大気の交換により南半球成層圏に約1. 4MCi 移流したと推定されるので, 北半球に降下した ⁹⁰Sr 量は 7.5MCi 前後とみられる(三宅ら, 1970).

Volchok らによれば 1961 年からの11年間に 北半球での 90 Sr 積算降下量は 8.1MCi であった。前述のように $1961\sim1962$ 年核実験に由来する 90 Sr の全体への割合は,東京では86%であった。この値が北半球全体にも適用されるとすれば $1961\sim1962$ 年核実験による 北半球 90 Sr 降下量は約7 MCi となる。これは 90 Sr 打上げ量から推定した値(7.5MCi)とほぼ一致する。

これらの値から東京における 90 Sr 降下量を計算する と $45\sim47$ mCi/km² となり、観測値(44mCi/km²)とほぼ一致する.

おわりに

水爆実験で成層圏に打上げられた放射性物質は全地球的な規模で地上に降下するが、これらの降下量にはあきらかに地域的な差や緯度変化や時間的変化がみられる。しかし特定の地点の放射性物質の降下量(f)と北半球全降下量(F)との間にはかなり良い比例関係がある。その比(f/F)の値はその地点の緯度、気象条件に依存する。

東京と北半球全降下量との f/F 比の値は 6.2 で,標準偏差は $\pm 20\%$ である。このことから東京における 90 Sr 降下量と 89 Sr/ 90 Sr 比の測定結果から,特定の核実験からの放射性物質の降下率や全降下量にしめる割合などを求めることができた.

研究の結果は1961年以降現在までの 90 Sr 降下量の約86%が1961~1962年の米・ソ核実験によるものであった。また1968年以降中国水爆実験による影響が次第に大きくなり、現在ではそれらが 90 Sr 降下量の大部分をしめていることがわかった。

おわりに種々御討論を頂いた気象研究所地球化学研究 部の方々と、降水試料の採取に御尽力頂いた東京、札 幌、仙台、大阪、福岡の各管区気象台、秋田地方気象台 の観測課、技術課の方々に厚く感謝いたします.

文 献

Cambray, R.S., Miss E.M.R. Fisher, G.S. Spicer, C.G. Wallace and T.J. Webber, 1962: Radioactive fallout in air and rain; Results to the middle of 1962, AERE-R 4094.

- Cambray, R.S., Miss E.M.R. Fisher, G.S. Spicer, C.G. Wallace and T.J. Webber, 1963: Radioactive fallout in air and rain; Results to the middle of 1963, AERE-R 4392.
- Cambray, R.S., Miss E.M.R. Fisher, D.H. Peirson and A. Parker, 1972: Radioactive fallout in air and rain; Results to the middle of 1972, AERE-R 7245.
- 葛城幸雄, 1965:日本における Cs-137 および Sr -90降下について 天気, **12**, 323-328, 377-384.
- 葛城幸雄,1969:大気化学:人工放射性物質.化学 の領域,**23**,380-389.
- 葛城幸雄,1971:人工放射能による大気汚染. 気象 研究ノート,**107**,84-108.
- Krey, P.W., 1968: Stratospheric inventories, 1967 -1968. USAEC Reports HASL-197.
- Krey, P.W., M. Kleinman and B Krajewski, 1969: Sr-90 stratospheric inventories, 1967-1968, USAEC Reports HASL-210.
- Krey, P.W., M.T. Kleinman and B.T. Krajewski, 1970: Sr-90, Zr-95 and Pu-238 stratospheric inventories 1967-1968, USAEC Reports HASL -224
- Krey, P. and B. Krajewski, 1971a: Updating stratospheric inventories to January 1970, USAEC Report HASL-239.
- Krey, P.W. and B.T. Krajewski, 1971b: Updating stratospheric inventories to February 1971, USAEC Reports HASL-245.
- Krey, P.W. and B.T. Krajewski, 1972: Updating stratospheric inventories to July 1971, USAEC Reports HASL-257.
- Miyake, Y., 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.
- 三宅泰雄, 葛城幸雄, 1970: 最近の日本における放 射性塵の降下, 天気, **17**, 593-598.
- Swindle, D.L. and P.K. Kuroda, 1969: Variation of the Sr-89/Sr-90 ratio in rain caused by the Chinese nuclear explosions of December 28, 1966 and June 17 1967, J. Geophys. Res., 74, 2136-2140.
- Telegadas, K., 1969: The seasonal stratospheric distribution of plutonium-238 and Strontium-90, March through November 1967, USAEC Reports HASL-204 I-2-16.
- Volchok, H.L., 1969: Worldwide deposition of Sr-90 through 1968, USAEC Reports HASL-210.
- Volchok, H.L. and M.T. Kleinman, 1971: Global Sr-90 fallout and precipitation. Summary of the data by 10 degree bands of latitude, USAEC Reports HASL-245.