

広島原爆黒い雨の中の U-235/U-238 比

藤川 陽子* (京都大学原子炉実験所)

静間 清 (広島大学大学院工学研究科)

遠藤 暁 (広島大学原医研国際放射線情報センター)

福井 正美 (京都大学原子炉実験所)

1 はじめに

広島原爆由来のローカルフォールアウトに関する報告は少ない^{1,2}。一方、爆心から3 km以上離れ、直接ガンマ線や中性子線の被ばくの可能性の低い地域で、魚の斃死や住民の下痢等があったとする証言が存在する等、原爆による被害の実像と理論的に推定されうる被害の間には、依然として乖離がある。被害の正当な評価には、放射性降下物の分布も含めた被ばくの全貌の解明が必要である。更に、原爆被ばく者の疫学データは、放射線規制の枠組みを作るうえでの基礎資料となっていることから、放射性降下物の寄与を考慮した正確な線量評価の必要性は高い。例えば爆心3 km圏内で比較的被ばく線量の低かった被ばく者の発ガン率から0.05 - 0.1Sv域線量でのリスクを計算した報告があるが³、放射性降下物による被ばく(広島では集積線量にして最大4レントゲン程度と推定²、わが国での数十年分の自然放射線被ばく線量に相当)を含めてリスクを試算することで更にデータの信頼性を高められる可能性がある。また、この0.05-0.1Svの被ばくレベルは現在の放射線規制で問題にしているレベルに近く、今後の規制のあり方を考えていく上で、そのリスクに関する基礎データの充実は実用的にも重要である。

本研究の概要を図1に示す。広島原爆の放射性降下物は以後の大気中核実験由来の放射性降下物の総和より少ないために、環境試料中の放射能の分析から広島原爆由来のものとそれ以外のものを区別することが難しく、フォールアウトの分布を明らかにする事後調査が困難という問題がある。広島原

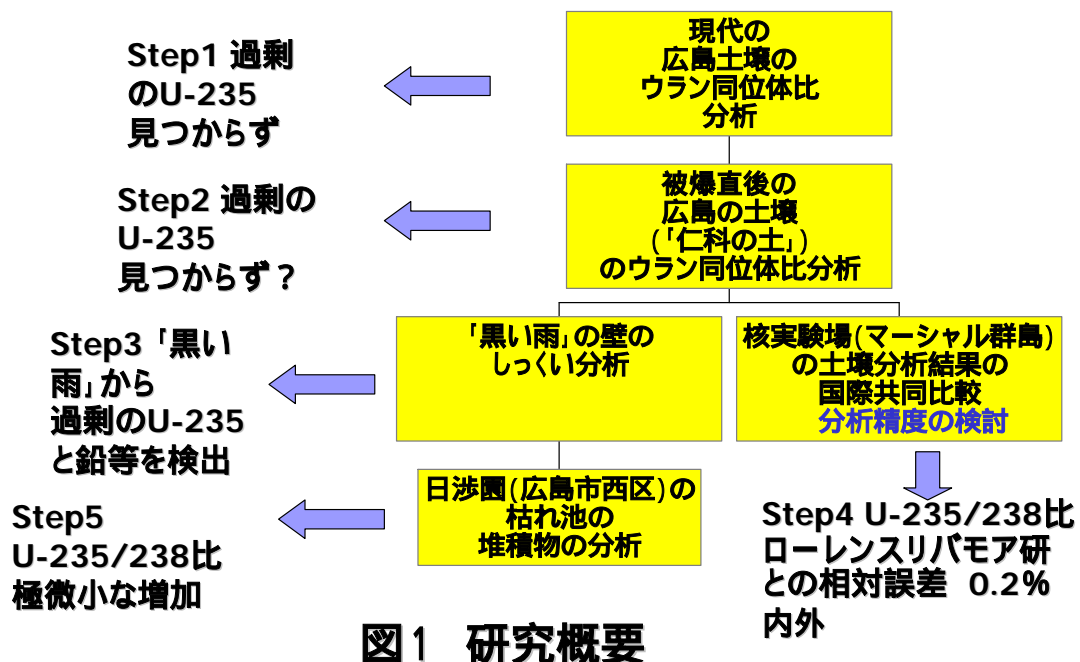


図1 研究概要

* FUJIKAWA Yoko, Kyoto University; fujikawa@rri.kyoto-u.ac.jp

爆は 51.55 kg の U-235 搭載 (U-235 平均濃縮率 80.4 %) のウラン原爆でありそのうち、核分裂に使われた U-235 は 1kg 程度に過ぎない。一方グローバルフォールアウトには過剰のウラン 235 はあまり認められない。そこで、本研究では、原爆由来の放射性降下物等の行方を広島において追跡する指標として U-235/U-238 同位体比を用いることができると考え、過剰のウラン 235 を広島の環境試料中に検出することを目指した。そのため、様々な機関から提供を受けた関連試料を分析するとともに、U-235/U-238 の分析の品質保証も行った。

2 黒い雨の壁の分析 - ウラン 235 は広島に降下した

広島平和記念資料館より、展示資料である黒い雨の痕跡の残る壁の一部の提供を受け、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) を適用し、試料中のウラン同位体比等の分析を行った結果を表 1 に示す。表から明らかなように、黒い雨の痕跡のあるしっくいからは U-235/U-238 天然同位体比 0.00726 (原子数比) を上回る値がえられ、被爆時にウラン 235 が降下したことは疑いない、という結果が得られた。U-235 が検出された箇所では表 2 に示すように Cs-137 も検出された (静間らのデータによる)。まだ、同時に、黒い雨には鉛なども高濃度に含まれていることも明らかになった⁴。白もしくは赤茶

表1 黒い雨試料中のU-235/U-238比 分析結果
「黒い雨」試料中 U-235/U-238 (原子数比) >0.00726
黒い部分は広島原爆由来のU-235含む

	試料		U-235/U-238原子数比		試料中ウラン量 ng
No. 3	黒い雨	硝酸抽出	0.00762	± *1	3.9
No. 3	黒い雨	硝酸抽出後、フッ酸抽出	N. D.	± N. D.	N. D.
No. 5	黒い雨	硝酸抽出	0.00741	± 0.00010	2.4
No. 5	黒い雨	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00765	± 0.00017	0.6
No. 6	黒い雨	硝酸抽出	0.00743	± 0.00004	7.9
No. 6	黒い雨	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00779	± 0.00006	2.1
No. 3	しっくい	硝酸抽出	0.00738	± 0.00000	2.1
No. 3	しっくい	硝酸抽出後、フッ酸抽出	N. D.	± N. D.	N. D.
No. 4	しっくい	硝酸抽出	0.00724	± 0.00000	6.6
No. 4	しっくい	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00726	± 0.00004	29.2
No. 5	しっくい	硝酸抽出	0.00722	± 0.00003	6.0
No. 5	しっくい	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00720	± 0.00018	1.6
No. 6	しっくい	硝酸抽出	0.00722	± 0.00002	45.0
No. 6	しっくい	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00731	± 0.00001	34.7
	ブランク	硝酸抽出	N. D.	± N. D.	N. D.
	ブランク	硝酸抽出後、フッ酸抽出	N. D.	± N. D.	0.3
*1 試料不足のため測定回数1回(通常3回)					

表2 黒い雨の壁のU-235およびCs-137の分布

壁試料	壁面積 (cm ²)	壁試料量 (mg)	原爆由来の ²³⁵ U (μ Bq/cm ²)		Cs-137 (mBq/cm ² 壁)
No.3 黒	0.25	6.39	0.455	± 0.010	25.6 ± 0.9
No.5 黒	0.13	4.67	0.390	± 0.174	84.9 ± 18.6
No.6 黒	0.55	19.36	0.366	± 0.052	34.0 ± 4.9
ブランク		0	検出限界以下		

表3 仁科の土の分析結果
U-234/U-238同位体比:高い地点があるが抽出法によるartifactと判定

U-234/U-238 放射能比			U-234/U-238 放射能比		
Hiroshima2	0.95	± 0.03	Hiroshima16	1.11	± 0.01
Hiroshima3	0.86	± 0.01	Hiroshima18	1.10	± 0.03
Hiroshima4	1.15	± 0.02	Hiroshima19	1.02	± 0.01
Hiroshima5	1.21	± 0.07	Hiroshima20	0.99	± 0.02
Hiroshima6	0.85	± 0.42	Hiroshima21	1.06	± 0.01
Hiroshima7	1.11	± 0.00	Hiroshima22	1.11	± 0.02
Hiroshima8	1.16	± 0.04	Hiroshima23	1.06	± 0.02
Hiroshima11	1.10	± 0.02	Hiroshima24	1.01	± 0.01
Hiroshima12	0.98	± 0.02	Hiroshima25	0.91	± 0.02
Hiroshima13	0.84	± 0.01	Hiroshima26	1.08	± 0.03
Hiroshima14	0.90	± 0.01	Hiroshima27	1.02	± 0.03

238放射能比1.0は原子数比の0.0000541に相当

色の雨の筋のあった部分からは過剰の U-235 は検出されず Cs-137 もわずかしが含まれなかったことから (静岡他、公表準備中) U-235 は「黒い」雨に限って含まれていたことが推定される。

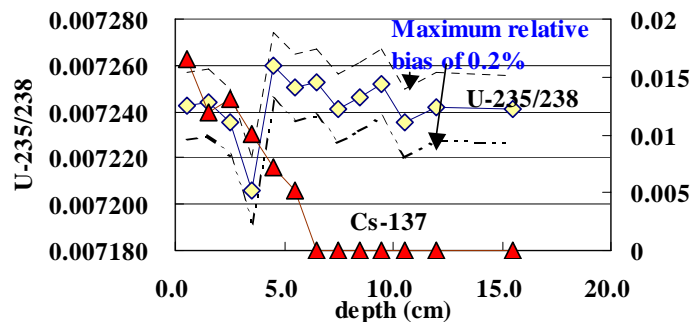
3 「仁科の土」の分析

広島市の被爆直後に理化学研究所のグループにより収集された土(「仁科の土」と略称)は静岡ら²によって広島原爆のフォールアウト

Cs-137 を含むことが証明された。意外なことに土壌の硝酸抽出物のウラン 235/238 同位体についての分析結果は、過剰のウラン 235 の存在を必ずしも示さなかった⁵。最近の広島市の土についても同様であった (Step1 の分析)。仁科の土の硝酸抽出物の U-234 は U-238 に比して高く放射非平衡を示した (表 3)。しかし、原爆の影響を受けていない熊取地区の土壌等の分析結果から、硝酸抽出操作により土壌では U-234 は U-238 に比して高い値を示しやすいことがわかり、過剰の U-234 は必ずしも原爆の影響とは判定できなかった⁵。

4 日渉園の分析結果

もと広島藩の薬草園で、戦後、私有地として非公開であった日渉園では、被爆当時に黒い雨がふり、園内の枯れ池に流れ込んだことが知られてい



Profile of U-235/238 and Cs-137 at station No.2

図2 乱されていない土壌コアのU-235/238 および Cs-137 の深さ方向分布 (地点2)
U-235/238 比は深い層(1960年代以前?)でわずかに高い しかし、期待されたほどではない。

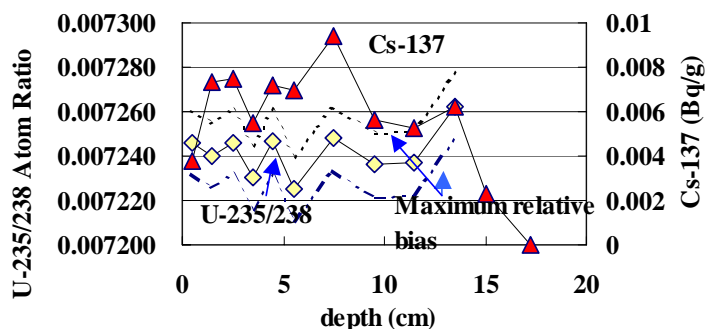


Fig. Profile of U-235/238 and Cs-137 at station No.4

図3 擾乱のある土壌コアのU-235/238 および Cs-137 の深さ方向分布 (地点4)
U-235/238、Cs-137 の分布 共に擾乱

る。この池底の土壌から柱状試料を採取し、分析した（分析手法については6番の文献を参照）。擾乱されないコア試料と擾乱されたコア試料についての結果を図2および図3に示す。擾乱されないコアでは1960年以前と見られる深さでU-235/U-238比にわずかながら上昇が認められた。しかし、その上昇程度はわずかであった⁷。原爆に搭載された約50kgのU-235（大部分が核分裂せずに残った）が半径5kmに均等分布して降下すれば、土壌中のU-235/U-238比の数割アップが期待できるはずである。このようにわずかなU-235しか検出できなかった原因については、現段階では確定できないものの幾つかの可能性が考えられる。すなわち(1)日渉園に降った雨は本当の（U-235の多い）黒い雨ではなかった、(2)広島に局地的に降下したU-235は爆弾の搭載していたU-235のうちごく一部で、そのため原爆のウランは土壌の天然ウランにより「希釈」されてしまった、(3)原爆と共に降下したU-235は土壌に吸着保持されずその後の降雨などにより流れてしまった、等である。現時点では(1)および(2)が原因の可能性が高い。(3)については、ウラン自体は酸性で有機物の多い土壌（日渉園の池の土やわが国の天然土壌）によく吸着することが一般に知られており、粒子状のウランもろ過効果で土壌に捕捉されることが考えられることから、やや可能性が低い。(3)が起こるとすれば、ウランの雨中での化学的存在形態が特殊なものであったことが考えられる。

5 U-235/U-238 同位体比分析の相互比較

ローレンスリバモア研究所との間で、マーシャル群島の土壌を用い、ウラン235/238および234/238同位体測定の間際比較を行った。京大炉側の装置は四重極型の普及型ICP-MS、リバモア側の装置は同位体比測定精度と感度に優れたマルチコレクター型のICP-MSであった。土壌を受領後、試料前処理・分析方法に関する打ち合わせを一切行わず、互いに目隠し状態で分析を行った。京大炉側とリバモア側の分析値はU-235/U-238比については相対誤差で0.2%、U-234/U-238比については相対誤差で2%以内の差におさまり、京大炉の装置によっても広島原爆の試料の分析に支障ないことが確認できた⁸（図4、図5）。

図4 U-235/238比の分析値比較

図5 U-234/238比の分析値比較

6 まとめ

- 1) 広島原爆の黒い雨には、核分裂生成物の Cs-137、天然存在比に比べて過剰の U-235、鉛等の重金属が含まれていた。ただし、白い雨、赤い雨には Cs-137 は少なく、U-235 は検出されなかった。
- 2) 被爆直後に採取された広島 of 土壌 (硝酸抽出画分) からは、ほぼ天然比の U-235 が検出された。本当は過剰の U-235 が検出されるはずであったので意外な結果であった。
- 3) 被爆直後に採取された広島 of 土壌 (硝酸抽出画分) からは、過剰の U-234 が検出された。ただし抽出方法の artifact の可能性が高い。
- 4) 現代の広島 of 土壌 (日涉園) からは極微量の過剰の U-235 の存在の可能性が示唆された。
- 5) しかし日涉園で発見された U-235 は期待された量より少なかった (50kg U-235/半径 5 km 均等分布で、U-235/U-238 比の数割アップが期待できる)。
- 6) U-235/238 同位体比測定精度は、ICP-QMS (四重極 MS、京大側) と MC-ICP-MS (マルチコレクター ICP-MS、ローレンスリバモア研) との相対誤差にして 0.2% 内外に収まり、広島原爆関連の試料については京大炉の装置で支障なく分析できることが確認できた。

謝辞

本研究の分析試料については、広島平和記念資料館、および広島大学・原田前学長から提供を受けた。また、研究経費については科学研究費補助金によって執行した。ここに記して感謝します。

参考文献

1. Okajima S, Fujita S, Harly JH, Radiation doses from residual radioactivity. In: Roesch, WC ed. U. S. – Japan joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki Final report Vol. 1. Radiation Effects Research Foundation; 1987: 205 – 226.
2. Shizuma K, Iwatani K, Hasai H, Hoshi M, Oka T, Okano M., ¹³⁷Cs concentration in soil samples from an early survey of Hiroshima atomic bomb and cumulative dose estimation from the fallout. Health Physics 71 (1996) 340-346.
3. Pierce D A., Preston D L, Radiation-related cancer risk at low doses among atomic bomb survivors. Radiation Research, 154 (2000) 178-186.
4. Fujikawa Y, Shizuma K, Endo S, Fukui M, Anomalous ²³⁵U/²³⁸U Ratios and metal elements detected in the Black Rain from the Hiroshima A-bomb. Health Physics, 84 (2003) 155-162.
5. Fujikawa Y, Shizuma K., Ikeda E, Baba T, Fukui M *et al.*, Uranium and plutonium isotope ratio measurement as a tool for environmental monitoring - Experiences in Osaka, Gifu and Hiroshima, Japan. Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 3 (2002) 564-567
6. Fujikawa Y, Sugahara M, Ikeda E, Fukui M, Analysis of trace actinide elements in soil organic matter - Optimization of sample processing to improve chemical separation of U and Pu. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 252 (2002) 399-405.
7. Fujikawa Y, Shizuma K., Endo S, Ikeda E., Fukui M. Uranium isotope analyses of soil samples collected from Nisshoen, Hiroshima – Implication on the fate of U-235 discharged from the Hiroshima A-bomb. JAERI-conf 2003-10, (2003) 314-319
8. Hamilton T, Fujikawa Y, Williams R. et al., Comparative measurements of ²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴U (and ²³⁶U) in soil samples from the Marshall Islands using Inductively Coupled Plasma- Mass Spectrometry. Proc. MARCVI Conference (submitted to Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry) (2004).