

図 7 地形データを透視投影し写真上に合成した結果

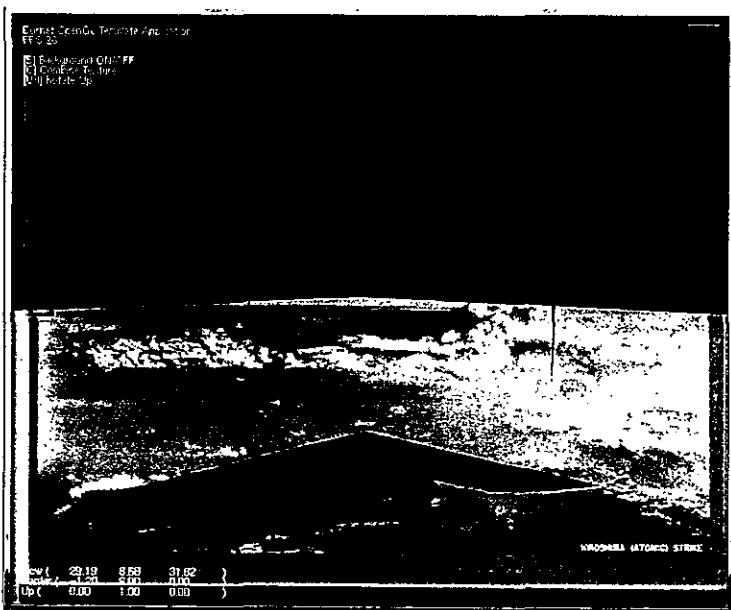


図 8 高さ16 kmの物体を配置し写真と合成した結果

## アンケート調査に基づく黒い雨の時空間分布の推定

大瀧 慈

広島大学原爆放射線医学研究所、計量生物研究分野

### 要約

広島市（一部、広島県による）は、2008年に、原爆投下直後に黒い雨を体験した可能性のある広島市及びその近郊の居住している31598名を対象としたアンケート調査を行った。その調査では、黒い雨を体験したか否かの他、体験者の場合には、その場所（役場や学校など）、雨の降り始めの時刻（時単位）、同降り止んだ時刻（時単位）、雨の強さ、雨の色、飛遊物の目撃の有無について郵送による自記式回答が得られている。各回答者のうち黒い雨体験者に関しては、その場所毎に類別され、それぞれの調査項目について、平均値や比率により要約を行った。さらに、その要約値に対して局所線形回帰モデルに基づいたノンパラメトリック回帰分析を適用し、黒い雨の各特性値に関する1945年8月6日当時の時空間分布を推定した。その結果、広島での黒い雨は午前9時頃広島市西方郊外で降り始め雨域を北西に拡大しながら10時頃沼田・湯来東部付近で最強になりその後衰弱しつつ雨域を縮小しながら北上し午後8時頃加計付近で消滅したことが推測された。また、線形変換による調整後の降雨時間が1時間未満と推定される領域の外縁が、従来からいわれていた宇田雨域よりも広く、現在の広島市域の東側および北東部側を除くほぼ全域と周辺部に及んでいた（場所によってはいわゆる増田雨域の外縁部に近似している）結果が得られた。

### 1. はじめに

黒い雨の雨域に関する調査・研究については、これまでのところ2人の気象学者からの報告が行われている。1953年に宇田らにより107名を対象にした聞き取り調査が行われ、いわゆる「大雨地域」と「小雨地域」が示された<sup>1)</sup>。その後、増田により追加的な聞き取り調査が行われ、小雨地域より広範囲に及ぶ雨域の存在が示唆された<sup>2)</sup>。今回の調査の目的はより多くの人々からの情報に基づいて黒い雨の雨域をより詳細に特定し、それによる放射線被曝の影響の実態を把握しようとするものである。解析対象となったデータは、2008年に広島市内及び周辺部に住み続けているもの31598人に対して実施したアンケート調査により収集されたもので、そのうちの約75%にあたる23780人から得られた自書式回答に基づいている。本調査の目的は、このアンケート調査に基づいて黒い雨の時空間分布を推定することである。

図1は、今回のアンケート調査の対象となった広島市およびその郊外の町村の地図を示す。爆心から10km圏内には、似島、矢野、船越、中山、戸坂、古市、緑井、伴、己斐、石内、八幡、五日市などの町村が位置している。また、爆心から10km～20kmのドーナツ状領域には、呉、深川、志屋、可部、飯室、鈴張、安野、久地、水内、戸山、砂谷、廿日市などの市町村が含まれる。さらに爆心から20km～30kmのドーナツ状領域には、都谷、加計、筒賀などの町村が位置している。

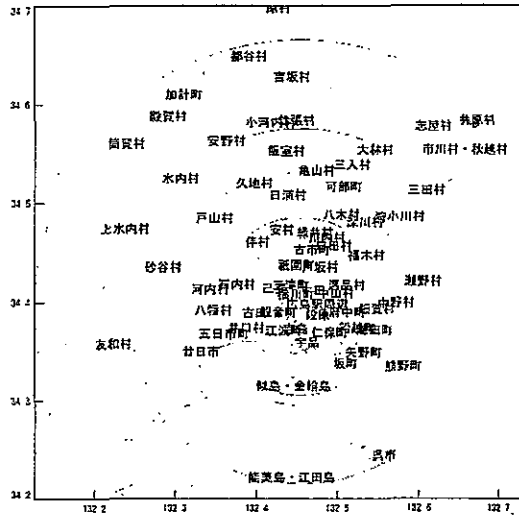


図1. 広島市近郊の町村の位置および原爆の爆心からの距離

2. 調査項目

調査項目は、黒い雨体験の有無、雨の降り始めと降り止んだ時刻(時単位)、雨の強さ(強い、中程度、弱い)、雨の色(真っ黒、黒っぽい、茶色、透明に近い)、飛遊物の目撃の有無などである。なお、本研究では、解析対象を「黒い雨を体験した」と回答した者のうちその場所情報が答えられている者で調査時の年齢が71歳以上の者に限定した。なお、解析に際して、場所情報については、その町村の代表地点(例えば、役場や学校)の位置情報(経度と緯度)に変換を行った。

表1は、黒い雨の降り始めおよび降り止んだ時刻に関する回答形式別の度数分布を示す。雨の降り始めと降り終わりの双方の時刻が回答されている場合をタイプA、降り始めの時刻のみが回答されている(降り止んだ時刻は不明)となっている場合をタイプBと呼ぶことにする。タイプAであるデータは1084件、タイプBであるデータは481件あった。タイプAのデータについて、雨の降り始め時刻別、降り止んだ時刻別の2次元度数を表2に、タイプBのデータの降り始めの時刻別度数を表3に示す。図2は、雨の降り始めの時刻と雨の降り止んだ時刻のヒストグラムを示す。

表1. 回答内容別回答者度数

タイプ	降り始めの時刻(時)	降り止んだ時刻(時)	回答者度数
A	8:00~16:00	8:00~18:00	1084
B	8:00~16:00	不明	481
計	-	-	1565

表2. タイプAデータの黒い雨の降り始めの時刻別降り止んだ時刻別回答者度数

降り始めの時刻(時)	降り止んだ時刻(時)										計	
	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17		18
8	12	110	19	2	8	2	4	2	0	0	0	159
9	0	25	147	52	26	13	4	9	2	2	0	280
10	0	0	13	157	69	32	18	13	2	1	1	306
11	0	0	0	9	62	28	22	10	7	2	0	140
12	0	0	0	0	6	25	9	6	3	1	0	50
13	0	0	0	0	0	1	24	12	4	3	1	45
14	0	0	0	0	0	0	2	39	8	1	2	52
15	0	0	0	0	0	0	0	2	25	13	2	42
16	0	0	0	0	0	0	0	0	0	8	2	10
計	12	135	179	220	171	101	83	93	51	31	8	1084

表3. 降り止んだ時刻が不明の降り始めの時刻別回答者度数

降り始めの時刻(時)									計
8	9	10	11	12	13	14	15	16	
89	138	118	57	18	21	19	17	4	481

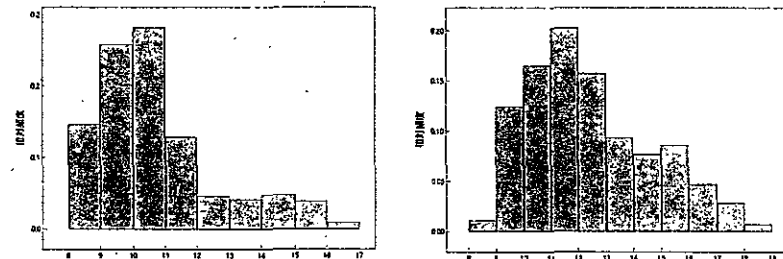


図2. 黒い雨の降り始めの時刻のヒストグラム(左図)と降り止んだ時刻のヒストグラム(右図)

雨の降り止んだ時刻と降り始めの時刻の差により求められた雨の降雨時間について、そのヒス

トグラムを図3に示す。これらの図表より、黒い雨は午前10時辺りをピークに1時間～2時間程度降ったという地点がかなりあることが分かった。

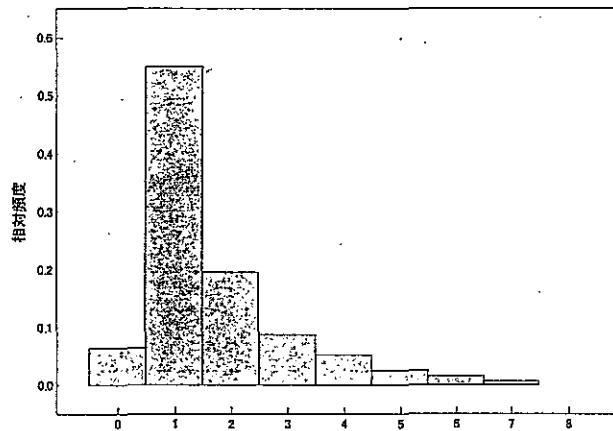


図3. 黒い雨の降雨時間のヒストグラム

図3より、降雨時間が1時間の頻度に比べて0時間の頻度がかなり低くなっていることが示されているが、1時間未満のもののお半が1時間とされたことによる（すなわち、雨の降り止んだ時刻が降り始めの時刻と同一の時刻とされるよりも1時間経った時刻にされた傾向の存在が示唆されている。

## 2. 黒い雨の諸特性値の時空間分布

### 2.1 降雨時間の地理分布

黒い雨の降雨時間の地理分布を推定するために、局所線形モデルに基づくノンパラメトリック平滑化法<sup>3</sup>を適用した。まず、黒い雨の降雨時間は地理的に滑らかな分布を持つことを想定し、降雨時間の定数変換値が地点  $p=(u,v)$  の近傍で、下記の式で近似できるものとした。

$$h_p(x,y) = c_p + a_p \cdot (x-u) + b_p \cdot (y-v).$$

ここで  $a_p$ ,  $b_p$  および  $c_p$  は、 $p=(u,v)$  に関して滑らかな関数である。このとき、 $(a_p, b_p, c_p)$  の重み付き最小自乗推定値は、リッジ回帰分析<sup>4</sup>を用いて、

$$(\hat{a}_p, \hat{b}_p, \hat{c}_p)' = (X_p' W_p X_p + \lambda I)^{-1} X_p' W_p h$$

により記される。ただし、

$$X_p = \begin{pmatrix} 1 & 1 & \dots & 1 \\ x_1-u & x_2-u & \dots & x_{94}-u \\ y_1-v & y_2-v & \dots & y_{94}-v \end{pmatrix},$$

$$h = (h_1, \dots, h_{94})', \quad h_i = \log(1+l_i), \quad i=1, \dots, 94,$$

$l_i$  は地区  $i$  での平均降雨時間であり、 $\lambda$  はリッジ定数である。なお、重みに関しては、

$$w_i^{(p)} \propto n_i e^{-\rho \{(x_i-u)^2 \cos^2(\pi-y_i/180) + (y_i-v)^2\}}, \quad w_i^{(p)} = 0 \text{ if } n_i \leq 9, \quad i=1, \dots, 94,$$

$$W_p = \text{diagonal}(w_1^{(p)}, w_2^{(p)}, \dots, w_{94}^{(p)}),$$

である。ここで、 $\rho$  は近傍の大きさを規定する尺度母数（未知）であり、その値は  $\lambda$  とともにデータに基づいて最適化されるべきものである。そこで、94個の代表点での降雨時間の平均値に対して交差確認法（CV法）<sup>5,6</sup>を用いて、最適化を行った。図4にその結果を示す。

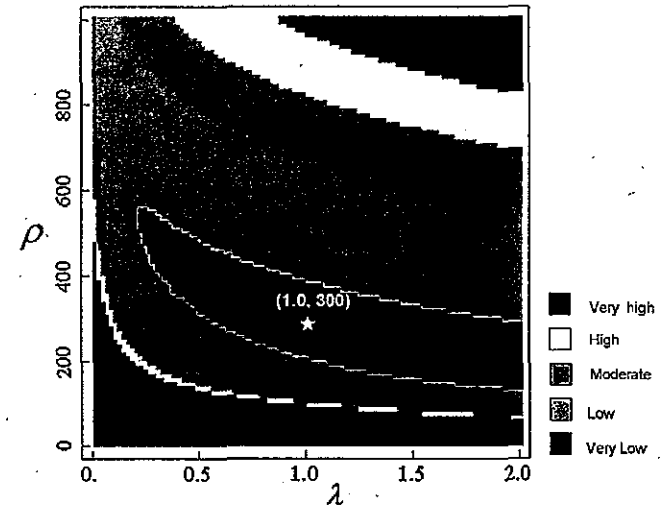


図4. 平滑化母数  $(\lambda, \rho)$  の最適化のためのCV基準量のプロット

この図は、 $(\lambda, \rho)$  に対して実測値と予測値の差の平方和（CV基準量）をプロットしたものであり、 $(\lambda, \rho) = (1, 300)$  の辺りで最もCV基準量の値が小さくなっていることが分かる。

平滑化のための母数  $(\lambda, \rho)$  の値としては、最適化の結果に基づき、 $(\lambda, \rho) = (1, 300)$  を用いた。降雨時間の0時間での低頻度に対して、以下のような線形変換による調整を行った。オリジナルな降雨時間を  $y$ 、調整値を  $y^*$  とするとき、 $y^* = 2(y-1.03)$  とした。図5は、その結果得られた黒い雨の降雨時間の地理分布を示す。上図は、町村毎の降雨時間の平均値を地図にプロットしたものであり、各プロットの大きさは（有効）回答者数を反映したものである。また、赤色のプロットは、2時間以上、黄色は1.5時間以上2.0時間未満、緑色は1.0時間以上1.5時間未満、水色は1.0時間未満の降雨時間であったことを示す。下図は、広島市近郊を含む  $400 \times 400$  の格子点上で表現したものである。これらの図より、黒い雨は、爆心の北西近郊を中心に現広島市の東部を除くほぼ全域で1時間～2時間程度降ったことが示されている。

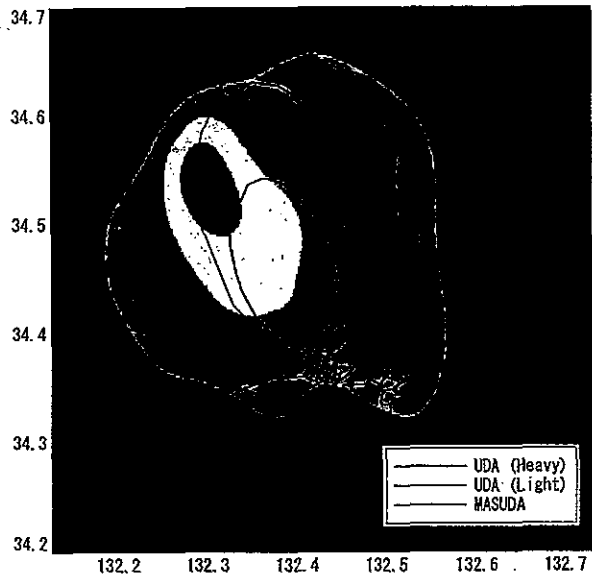
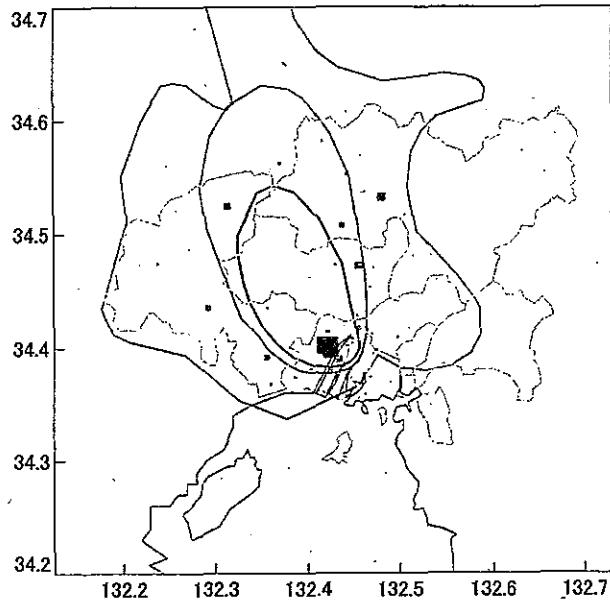


図5. 推定された広島市の黒い雨の降雨時間の地理分布

2.2 黒い雨体験率の時空間分布

本節では、黒い雨の体験率について論ずる。時刻を固定したとき、黒い雨の体験率は、体験者数  $e$  の回答者数  $n$  に対する比率として規定される。我々は、この比率  $e/n$  に対して逆正変換を適用し分散安定化を図った。すなわち、 $n$  が十分大きいとき、漸近的に、

$$\sin^{-1}\left(\sqrt{\frac{e}{n}}\right) \sim N\left(\sin^{-1}(\sqrt{p}), \frac{1}{4n}\right)$$

が成立し、左辺の変換値の分散が真の体験率  $p$  (未知) に依存しなくなり、 $n$  の逆数に比例するようになる。今回の解析対象者は全て「黒い雨を体験した」人であるので、時間を固定しない場合、黒い雨の体験率は 100% になり、その地理分布を求めることはできない。そこで、体験率の地理分布の時間経過の概要を把握するために、時刻を固定したときの条件付体験率を求めることとした。その場合の条件付体験率の分母とすべき時刻別対象者は今回の調査からは把握できないので、今回の解析ではその地点での回答者数を代用している。すなわち、回答者と同数の者がその地点に居たことを仮定したものである。

黒い雨の条件付体験率は地理的に滑らかな分布を持つことを想定し、体験率の分散安定化変換後の値が地点  $p=(u,v)$  の近傍で、下記の式で近似できるものとした、

$$z_p(x,y) = c_p + a_p \cdot (x-u) + b_p \cdot (y-v).$$

このとき、降雨時間分布の推定方法と同様な方法を適用して、 $(a_p, b_p, c_p)$  の重み付き 最小自乗解を以下のように求められる、

$$(\hat{a}_p, \hat{b}_p, \hat{c}_p)' = (X_p' W_p X_p + \lambda I)^{-1} X_p' W_p z$$

ここで、 $z = (z_1, \dots, z_{94})'$

$$z_i = \sin^{-1}\left(\sqrt{\frac{e_i}{n_i}}\right), \quad i=1, \dots, 94,$$

$$X_p = \begin{pmatrix} 1 & 1 & \dots & 1 \\ x_1-u & x_2-u & \dots & x_{94}-u \\ y_1-v & y_2-v & \dots & y_{94}-v \end{pmatrix},$$

$\lambda$  はリッジ母数であり、重みに関しては、

$$w_i^{(p)} \propto n_i e^{-\rho((x_i-u)^2 \cos^2(\pi \cdot y_i/180) + (y_i-v)^2)}, \quad w_i^{(p)} = 0 \text{ if } n_i \leq 9, \quad i=1, \dots, 94,$$

$$W_p = \text{diagonal}(w_1^{(p)}, w_2^{(p)}, \dots, w_{94}^{(p)}),$$

である。平滑化母数  $(\lambda, \rho)$  の値としては、降雨量の場合と同様な手法を用いた最適化による  $(\lambda, \rho) = (1, 400)$  を用いた。

図6は推定された黒い雨の条件付体験率について、午前9時から午後3時の時刻毎の地理分布を示している。黄色の領域は、条件付体験率が50%超を、緑色の領域は30%~49%、水色の領域は10%~29%の領域を表している。この図より、黒い雨は午前9時頃に広島市西方近郊から降り始め、その後北西方向に拡がり、午前10時~11時に最も広い範囲で降り、その後縮み午後3時頃加計付近で消失したことが示唆されている。

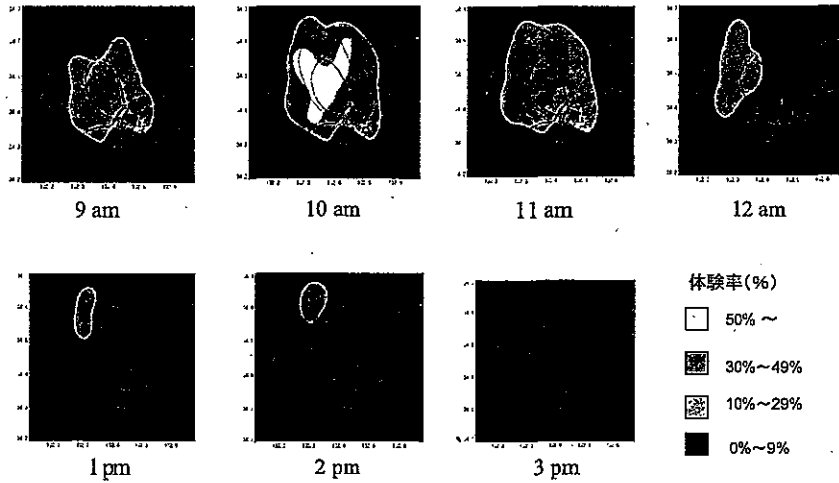


図6. 推定された黒い雨の体験率の時空間分布

### 2.3 黒い雨のその他の特性の時空間分布

体験率の時空間分布の推定方法と同様な方法を用いて、降雨強度、雨の色、飛遊物の目撃の有無に関する時空間分布の推定を行った。地区別の時刻別降雨強度は、その地区で黒い雨を体験した者が10人を超える場合に、申告した降雨強度を、「強い雨」を3、「中程度の雨」を2、「弱い雨」を1、「降雨無し」を0として、算術平均を行い指標化した。図7は、推定された降雨強度の時空間分布を表す。黄色の領域は強い雨、緑色の領域は中程度の雨、水色の領域は弱い雨が降ったと推定される領域を表している。この図より、黒い雨の降雨強度は午前10時頃最強となり、その中心は沼田地区（戸山、伴）に位置していることが示されている。図8は、推定された「黒い雨」の雨の色の時空間分布を表す。黄色の領域は「真っ黒」、緑色の領域は「黒っぽい」、水色の領域は「茶色っぽい」の雨が降ったとされる領域を表している。図9は、推定された（黒い雨に伴う）飛遊物の目撃率の時空間分布を示す。黄色の領域は、目撃率が50%超を、緑色の領域は30%~49%、水色の領域は10%~29%の領域を表している。この図より、飛遊物の目撃率の分布は既述した黒い雨の強度分布や雨の色の分布と比較すると、やや北西方向にずれていることが示唆されている。なお、本来、飛遊物の目撃は降雨に直接随伴する事象ではなく、この解析は、降雨時間帯に飛遊物の目撃があったと想定して行ったものであり、必ずしも正確なものではない。

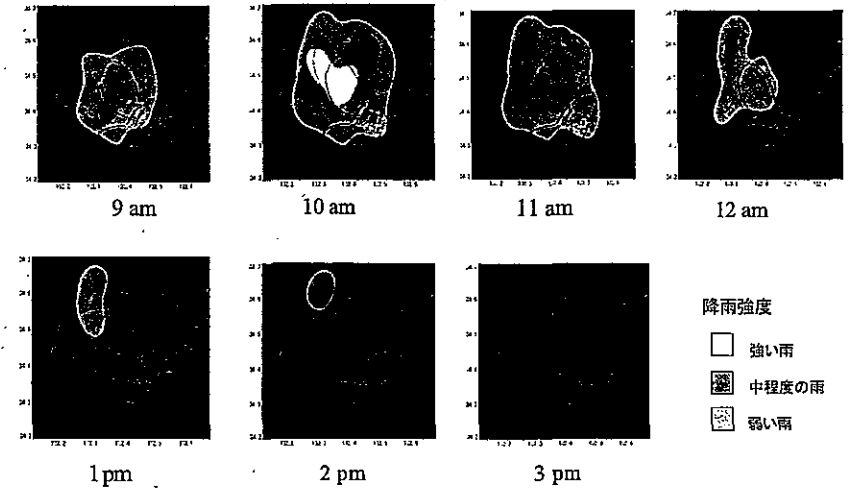


図7. 推定された黒い雨の降雨強度の時空間分布

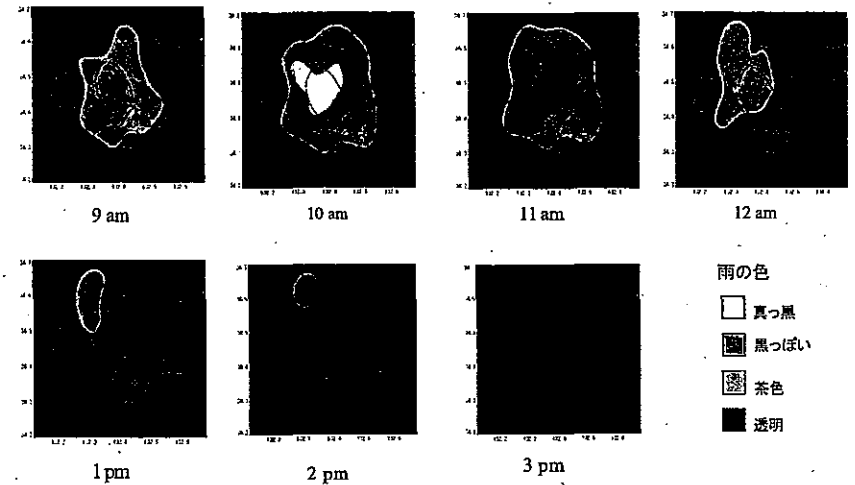


図8. 推定された「黒い雨」の色の時空間分布

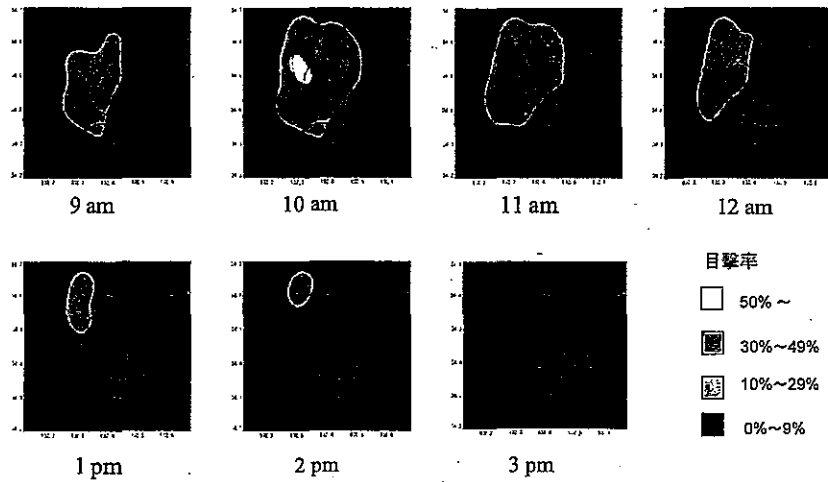


図9. 推定された黒い雨に伴う飛遊物の目撃率の時空間分布

上記の、降雨強度、雨の色、飛遊物の目撃の有無に関する時空間分布の推定結果に基づいて、それらの最大値の地理分布に関して、以下の図10、図11および図12を求めた。図10は、図7の時刻別降雨強度の推定分布を重ね合わせて得られた最大降雨強度の地理分布を示す。図11は、図8の時刻別雨の色の推定分布を重ね合わせて得られた雨の色の黒さの度合いの地理分布を示す。図12は、図9の時刻別飛遊物の目撃率の推定分布を重ね合わせて得られた飛遊物の目撃率の地理分布を示す。

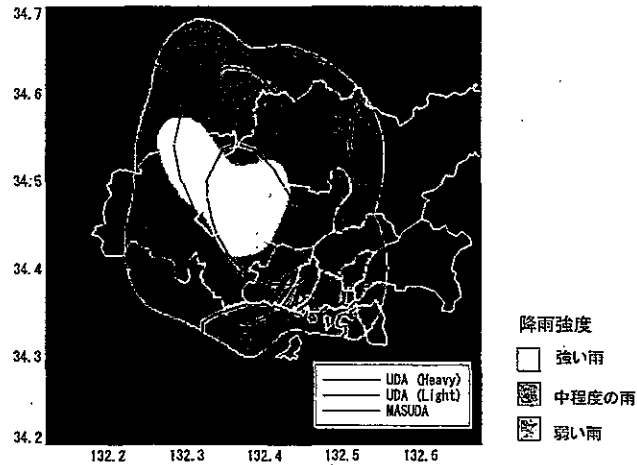


図10. 最大降雨強度の地理分布

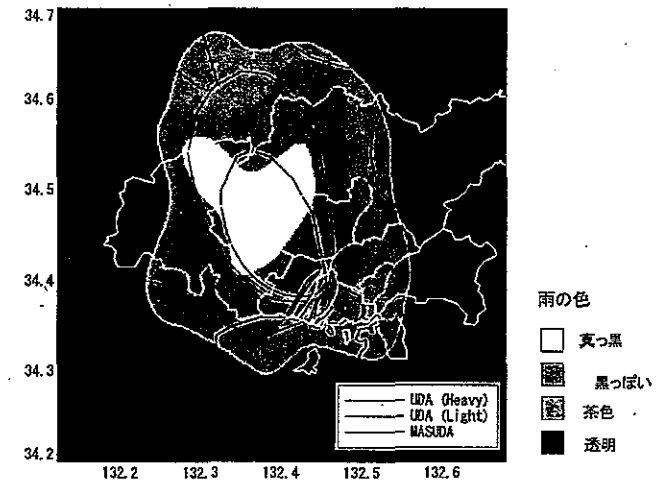


図11. 黒い雨の色の黒さの地理分布

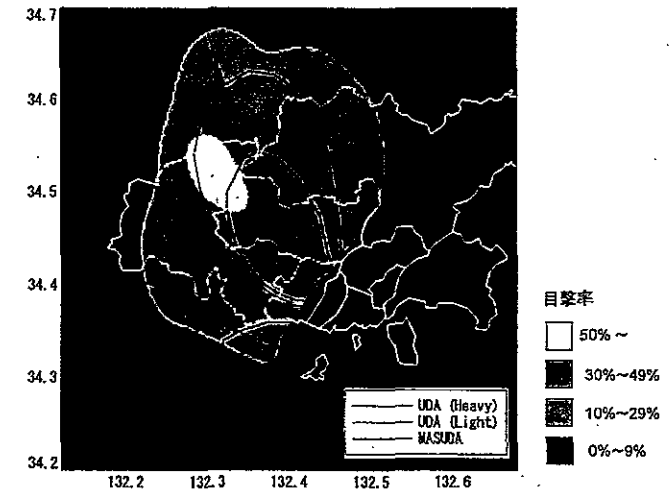


図12. 黒い雨に伴う飛遊物の目撃率の地理分布

### 3. 考察

今回の調査・研究の目的は、広島原爆投下直後において、黒い雨がいつ何処でどのように降ったかを明らかにすることである。実際の解析は、「黒い雨を体験した」という回答に基づいている。よって、黒い雨の体験率は体験した時刻を無視すると、100%となる。そこで、原爆投下当日の午前8時から16時までの8時間を1時間おきに分割し、各時刻での「黒い雨の体験率」を求めた。統計解析の理念からすると、非体験者も含めた無作為抽出による回答に基づくべきであるのだが、現実には、この8時間における回答者の時刻毎の所在地情報が入手できないという事情があり、黒い雨体験者から、雨を体験した時間帯（降り始めの時刻と降り終わりの時刻）の情報を得たにすぎない。時刻を固定したときの、その時刻が降り始めの時刻と降り終わりの時刻に挟まれているならば、その個人は、その時刻で、「黒い雨を体験した」とみなし、そうでなければ、その時刻には、「黒い雨を体験していない」と定めた。従って、標本は「どこかの時点で黒い雨を体験した」という人から得られたものであり、その結果、時刻別の「黒い雨の体験率」が若干過大に見積もられている可能性がある。このことを、数式を使って表現すると以下のようになる。

いま、任意の回答者を1人固定するとき、その回答者が時刻 $t$ で黒い雨を体験した場合を $X_t=1$ , そうでない場合を $X_t=0$ と記すこととする。このとき、時刻 $t$ での黒い雨体験率は $\Pr(X_t=1)$ と表せる。さらに、 $X_t = X_{t_0} + \dots + X_{t_{16}}$ とすると、黒い雨体験者は $X_t \geq 1$ であるので、体験者における時刻 $t$ での体験率は、 $\Pr(X_t=1|X_t \geq 1)$ により表される。条件付き確率の定義により、 $\Pr(X_t=1) = \Pr(X_t=1|X_t \geq 1)\Pr(X_t \geq 1)$ であるので、 $\Pr(X_t \geq 1) \geq 1$ であるときには、 $\Pr(X_t=1) \square \Pr(X_t=1|X_t \geq 1)$ となり、黒い雨体験者における時刻 $t$ での条件付き体験率を時刻 $t$ での体験率への近似として用いることができる。一方、 $\Pr(X_t \geq 1) \leq 0$ の場合は、上記の近似は過大評価することになり偏りが生じる。その偏りは、真の「黒い雨の体験率」が低い地点で大きくなるが、その補正は困難である。また、真の「黒い雨の体験率」が高い地点でも、黒い雨を体験していない時点での所在地が不明であるため、厳密には体験率を規定することはできない。「各回答者は黒い雨を体験した地点で留まっていた」とみなして時刻毎の体験率を算出している。上記のような事情により、今回推定された「黒い雨の条件付体験率の時空間分布」に基づいて「黒い雨の雨域」を特定することは難しいと考えられる。

「黒い雨の降雨時間」については、黒い雨の体験者にとっても降り止んだ時刻が降り始めの時刻と一致する場合（単位を「時」としているため、この状況は生じうる）、降雨時間の長さは0時間となり、黒い雨非体験者にとっても黒い雨の降雨時間（必然的に、それは0時間である）と同じ値となる。雨域と雨域外との境界付近では、降雨時間は0時間に近い値になっているはずであるので、黒い雨の雨域を特定するには、その降雨時間の推定値に基づくことが妥当と考えられる。なお、今回の解析では、線形変換による調整後の降雨時間が1時間未満と推定される領域の外縁が、従来からいわれていた宇田雨域よりも広く、現在の広島市域の東側および北東部側を除くほぼ全域と周辺部に及んでいた（場所によってはいわゆる増田雨域の外縁部に近似している）結果が得られた。

「黒い雨」の強度や雨の色の時空間分布の推定においては、時刻を固定する毎に「雨を体験していない」と答えた人を除外せずに、値として0を付与して地区別平均値を求め、それらの値を基に平滑化処理を行っている。そのため、降雨確率の低い領域では、降雨強度や雨の色の黒さが過小評価されている可能性も存在している。例えば、「煤のような極弱い黒い雨」の場合は、それが降った領域があったとしても、空間分布には反映されない可能性がある。別法として、時刻毎に「雨を体験してい

ない」と答えた人を除外して、地区別平均値を求め平滑処理を行うことも考えられるが、それぞれ長短が想定され、現時点ではとりあえず前者の方法を採用した。今後の検討課題としたい。

### 参考文献

1. 宇田 道隆、菅原 芳生、北 勲：“気象関係の広島原子爆弾被害調査報告書”原子爆弾災害調査報告集、第一分冊理工学編（日本学術振興会、1953）pp.98-135.
2. 増田 善信：広島原爆の黒い雨はどこまで降ったか、天気、35巻(2), 69-79, 1989
3. Jianqing Fan: Local Linear Regression Smoothers and Their Minimax Efficiencies, *The Annals of Statistics*, 21(1), 196-216, 1993.
4. Hoerl AE and Kennard RW: Ridge regression: Application to nonorthogonal problems, *Technometrics*, 12(1), 69-82, 1970.
5. Shao J: Linear model selection by cross-validation, *J. of the American Statistical Association*, 88, 486-494, 1993.
6. Stone M.: Asymptotics for and against cross-validation, *Biometrika*, 64, 29-35, 1977.

# Thermal ionization mass spectrometry measurement for uranium isotopes in Hiroshima soil samples

Sarata Kumar Sahoo<sup>1</sup>, Hidenori Yonehara<sup>1</sup>, Tetsuji Imanaka<sup>2</sup>, Satoru Endo<sup>3</sup> and Masaharu Hoshi<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Research Centre for Radiation Protection, National Institute of Radiological Sciences, 4-9-1 Anagawa, Inage-ku, Chiba 263-8555, Japan

<sup>2</sup>Research Reactor Institute, Kyoto University, Osaka, Japan,

<sup>3</sup>Graduate School of Engineering, Hiroshima University, Hiroshima, Japan,

<sup>4</sup>Research Institute for Radiation Biology and Medicine, Hiroshima University, Japan

## Introduction

On August 6, 1945 "Little Boy" the <sup>235</sup>U bomb was exploded above Hiroshima and about twenty to thirty minutes after the explosion, there was "black-rain" in a wide area that extended outside Hiroshima city extending to more than 30 km to the north-west direction from the hypocenter. Subsequently, there were two reports summarised in Dosimetry System 1986 and Dosimetry System 2002 based on the radiation dose estimation due to gamma rays and neutrons received by survivors of the Hiroshima A-bomb. There is less information on the distribution of radioactive fallout in the case of Hiroshima A-bomb (Little Boy) compared to the Nagasaki A-bomb. The amounts of fission product (FP) generated by Little Boy were much smaller than those deposited in Hiroshima from other atmospheric nuclear test explosions and analysis of FP contents in soil samples do not show the distribution of bomb fallout. According to some reports, about 51Kg of <sup>235</sup>U was loaded in the Hiroshima bomb of which about 912g was consumed by the 16-kt explosion. It can be interpreted that one of the potential nuclides that was unique to the Hiroshima A-bomb was <sup>235</sup>U. There are various assumptions about enriched <sup>235</sup>U present in the A-bomb.

Uranium has three long-lived isotopes of masses 234, 235 and 238 with average abundances of 0.0054%, 0.720% and 99.275%, respectively. The principal isotopes e.g. <sup>235</sup>U and <sup>238</sup>U are of primordial origin and <sup>234</sup>U is present in radioactive equilibrium with <sup>238</sup>U. <sup>236</sup>U occurs in nature at ultra trace concentrations with a <sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U atom ratio of 10<sup>-14</sup>. Anthropogenic uranium also contains small amount of <sup>236</sup>U, formed by neutron capture of <sup>235</sup>U in nuclear industrial processes and to a lesser extent, the alpha decay of <sup>240</sup>Pu. Some <sup>236</sup>U has only been found in geological samples specimens (e.g. samples from the Oklo reactor) which can be explained due to higher neutron fluxes in uranium ores. <sup>235</sup>U is a potentially "fingerprint" for the presence of uranium originating from a nuclear reactor in the environment. The abundance of long-lived radionuclides and their decay products provide information on the chemical evolution of the system of their origin. In case of environmental sciences, soil and sediments are the most suitable materials that would be likely to preserve any remains of anthropogenically altered uranium. Natural isotopic composition of <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U = 0.00725. However, there are no two isotopes of uranium which are in secular equilibrium and not affected by any possible contamination. Therefore, determination

of U isotopes in soil samples is expected to provide us with information to evaluate the possible contamination of uranium.

Inductively coupled plasma mass spectrometry (ICP-MS) and thermal ionization mass spectrometry (TIMS) have been used for determining total concentration of uranium and isotopic measurement of uranium from soil samples respectively. TIMS provides highest precision (normally 0.2% at the 95% uncertainty level compared with approximately 1-2% for ICP-MS. The advancement of thermal ionization mass spectrometry with high abundance sensitivity enabled us to measure directly all possible uranium isotopes. TIMS measurements produced data with much better precision than conventional alpha counting methods and reduced the sample amount as well as time required for measurements. The purpose of our study is to make clear the distribution of uranium as well as precise measurement of <sup>234</sup>U/<sup>238</sup>U, <sup>235</sup>U/<sup>238</sup>U and <sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U ratios of uranium chemically separated from soil samples around Hiroshima hypocenter using a thermal ionization mass spectrometry equipped with a WARP filter to detect trace levels of nuclide contamination by artificially produced uranium isotope.

## 2. Materials and methods

### 2.1 Samples

A standard reference material NBS U010 was used to check the reproducibility of the calibration of TIMS. Eleven soil samples were selected for this study: sediment reference material supplied by Geological Survey of Japan (JLK-1) and surface (0-10 cm) soil samples collected at a distance from 2 to 30 km from Hiroshima hypocentre in 1976 under the auspices of a project sponsored by the Ministry of health and welfare, Japan. The samples were dried at 110 °C then crushed and sieved through a nylon sieve.

### 2.2 Chemical procedures

Digestion with an acid bomb was performed in a closed vessel (PTFE vessels) microwave unit (MLS 1200 mega, Italy) using a mixture of HNO<sub>3</sub>-HF-HClO<sub>4</sub> for sediment sample, JLK-1 and soil samples. After digestion, samples were evaporated to dryness on a hot plate. Then the residue was dissolved in 8M HNO<sub>3</sub> to yield a sample solution.

### 2.3 Chemical separation

Three columns were prepared for each sample. Eichrom UTEVA resin in prepacked columns with 2 ml resin was placed immediately below the second column containing a strong anion exchange resin Biorad Dowex 1X-8 (200-400 mesh, Cl<sup>-</sup> form). Both columns were conditioned with 8 M HNO<sub>3</sub>. The sample was transferred to the anion exchange column and eluent passed directly onto the UTEVA column. The two columns were eluted with 10 ml of 8M HNO<sub>3</sub>, followed by 20 ml of 3M HNO<sub>3</sub>. Uranium was eluted from UTEVA column using 5 ml of 0.02 M HCl. Concentration of eluent was adjusted to 9 M HCl. The resulting solution was loaded onto an anion exchange column preconditioned with 9 M HCl and washed with 10 ml of 9 M HCl. Finally, U was eluted with 10 ml of 0.02 M HCl and the eluent was evaporated to yield a small drop in a Teflon beaker prior to TIMS filament loading.



## 2.4 Mass spectrometry

The isotopic analyses of uranium were performed on a single focussing VG (Micromass) Sector 54-30 thermal ionization mass spectrometer (TIMS) at National Institute of Radiological Sciences and is equipped with nine Faraday collectors and a Daly ion-counting system detector positioned behind axial Faraday and wide aperture retardation potential (WARP) energy filter. The large ratios between decay constants result in extreme isotope ratios in secular equilibrium, the analysis of which requires high abundance sensitivity. This has been achieved with introduction of wide aperture retardation potential (WARP) energy filter. Very high abundance sensitivity, high transmission, and high stability ion optics, extremely low dark noise level, high linearity of the detection system and sophisticated sample preparation techniques to minimize molecular interferences and contaminations of the sample are essential to achieve the ultimate precision and accuracy in TIMS measurements of very large isotope ratios. A triple filament assembly was used for the thermal ionization of uranium isotopes. Uranium isotopes 234, 235, 236 and 238 were measured dynamically using the Daly-ion counting system and three Faraday cups with mass jumps.

## 3. Results and discussion

Concentrations of uranium measured by ICP-MS in different soil samples are summarized in Table 1. We have studied the total concentration of U from soil samples. The mean concentration of U varied from 2.61 to 4.8 ppm. Taking into account natural uranium concentration, it is difficult to examine the possibility of contamination due to uranium. (Wedepohl has reported U in the earth's crust as 1.7 ppm.)

We have carried out the isotopic measurement of uranium from soil samples around the hypocenter with the objective of detecting the presence and potential source of anthropogenic uranium. A representative duplicate set of samples is given in Table 1. Samples from location station ESE fall in the range expected for natural uranium. However, samples collected from other places show a spread in uranium isotope ratio well outside the 99.7% confidence limit, showing a little enrichment of  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ .

Table 1

Sample No	Distance* (km)	Soil density (kg/l)	$^{238}\text{U}$ Concentration (ppm)	$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$
ESE	4	1.21	4.01	5.51E-05	0.007258
ESE	6	1.33	2.63	5.48E-05	0.007269
N	4	1.15	2.61	5.56E-05	0.007278
N	8	1.13	2.91	5.61E-05	0.007279
N	10	1.24	4.85	5.53E-05	0.007271
NWN	4	1.13	2.74	5.72E-05	0.007368
NWN	6	0.86	3.78	5.63E-05	0.007349
NWN	8	1.14	3.41	5.50E-05	0.007238
W	4	1.16	3.35	5.48E-05	0.007306
W	6	0.94	4.46	5.49E-05	0.007266

ESE-East-southeast, N-North, NWN-North west north, W—West \* : Distance from hypocentre

This indicates heterogeneity in the distribution of isotopically enriched U within the soil. Data from duplicate runs of each sample, one can confirm that such deviations from natural ratios were readily reproducible at statistical levels predicted by standard measurements. Therefore, we thought it worthwhile to discuss  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  as well as  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  ratios.

When we use  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  ratio, disequilibrium ratio varies from lowest i.e. 1.005 to the highest 1.117 at sampling point - which is within 10 km radius from the hypocenter. In case of secular equilibrium,  $^{238}\text{U}$ , with a half-life of  $4.47 \times 10^9$  years would be in secular equilibrium with all its daughters, including  $^{234}\text{U}$ , with half-life of  $2.45 \times 10^5$  years. Therefore,  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  atomic abundance ratio would be  $2.45 \times 10^5 / 4.47 \times 10^9 = 54.8 \times 10^{-6}$  (or 54.8 ppm) which is the expected ratio. This indicates about ~1% of enrichment of  $^{234}\text{U}$  is present in soil samples. The results reported here are comparable with Takada et al., whose data was obtained with an alpha-spectrometer.

$^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  ratio in the soil samples varied between  $(1.1-4.6) \times 10^{-8}$ . The presence of  $^{236}\text{U}$  in the soil samples can be attributed to some nuclear fallout from some nuclear accident (global fallout) or may be due to contamination in the black rain. Therefore, it still remains as a problem to be studied to estimate neutron fluence quantitatively based on the data from soil samples to investigate the presence of  $^{236}\text{U}$  in detail.

All these studies are preliminary and joint efforts have been taken to assess doses to Hiroshima residents due to the "black rain". One of the main problems relating to dose assessment is estimation of qualitative and quantitative composition of fallout deposition. In case of  $^{236}\text{U}$  measurement, since there are no international standards available, it will be desirable to calibrate TIMS measurement with accelerator mass spectrometry (AMS). This will result in more accurate determination of  $^{236}\text{U}/^{235}\text{U}$  ratio in soil samples and will be helpful for the assessment of external doses due to radionuclides deposited on the ground in the "black rain area".

## Literature cited

1. J. Takada, M. Hoshi, S. Sawada and M. Sakanoue, J. Radiat. Res., 24, 229-236, 1986.
2. Y. Fujikawa, K. Shizuma, S. Endo and M. Fukui, Health Physics, 84, 155-162, 2003.
3. S.K. Sahoo, H. Yonehara, M. Hoshi et al. 51<sup>st</sup> Annual Meeting of the Japan Radiation Research Society. Kitakyushu, November 2008.
4. O.J. Marsden, F.R. Livens, J.P. Day, L.K. Fifield and P.S. Goodall, Analyst, 126, 633-636, 2001.
5. S.K. Sahoo, Y. Nakamura, K. Shiraishi and A. Masuda, Intern. J. Environ. Anal. Chem., 84, 919-926, 2004.

# 広島原爆由来フォールアウトの降下量・分布評価の試み — 土壌中の<sup>236</sup>Uを利用して —

坂口 綾<sup>1</sup>, 川合健太<sup>2</sup>, P. Steier<sup>3</sup>, 今中哲二<sup>4</sup>, 星 正治<sup>5</sup>, 遠藤 暁<sup>6</sup>,  
K. Zhumadilov<sup>5</sup>, 山本政儀<sup>2</sup>

<sup>1</sup> 広島大学 理学研究科 地球惑星システム学専攻

<sup>2</sup> 金沢大学 環日本海域環境研究センター 低レベル放射能実験施設

<sup>3</sup> VERA-Laboratory, Fakultät für Physik - Isotopenforschung, Universität Wien

<sup>4</sup> 京都大学 原子炉実験所

<sup>5</sup> 広島大学 原爆放射線医科学研究所

<sup>6</sup> 広島大学 工学研究科機械システム工学専攻

## 1. はじめに

原爆投下 20-30 分後に、爆心地から北西方向の地域十数キロの範囲で数時間の降雨があった。これは「黒い雨」と呼ばれ、地上に原爆組成物質や核分裂生成核種をもたらし、その後の人体被曝に影響を与えたのではないかと考えられている。この黒い雨の正確な降雨範囲および人体影響は、戦後 65 年経過した今日でさえ明らかになっておらず、現在一般的に利用されている「広島・長崎原爆被曝線量評価システム DS02」(Young and Kerr, 2005)にもその影響は考慮されていない。1976 年と 1978 年に、当時の厚生省による広島市内および周辺地域の大規模土壌調査が行われ、107 地点から 1000 個以上にもわたる表層土壌試料が採取された(日本公衆衛生協会, 1976, 1978)。採取した表層土壌試料中に含まれる核分裂生成核種(<sup>137</sup>Cs)や原爆材料であるウラン同位体(<sup>234,235,238</sup>U)を測定することで、黒い雨地域の特定を試みたが、1960 年代の大気核実験によるグローバルフォールアウト核種や土壌中に大量に含まれる天然放射性核種の影響により、広島原爆由来の核種識別は困難であった(日本公衆衛生協会, 1976, 1978; Takada et al., 1983)。

広島原爆では、大気圏内核実験で使用された原爆の材料としては希である濃縮 <sup>235</sup>U が使用されており、<sup>235</sup>U の核分裂以外に、核反応 <sup>235</sup>U(n, γ)により <sup>236</sup>U ( $T_{1/2} = 2.342 \times 10^7$  y, α-decay) が生成される。この核種も黒い雨と共に降下したと考えられ、<sup>137</sup>Cs にかわりうる有用なツールとなる可能性がある。従来の放射線測定技術では <sup>236</sup>U 測定は非常に困難であったが、測定技術の進歩にともない表面電離型質量分析装置 (TIMS) や加速器質量分析装置 (AMS) などの分析機器により、環境中の極微量 <sup>236</sup>U も測定可能になりつつある。

ここでは (1) グローバルフォールアウト <sup>236</sup>U 量を <sup>137</sup>Cs や <sup>239+240</sup>Pu と共に石川県で採取した土壌コア試料中の蓄積量や深度分布で明らかにし (2) それらの結果と広島市内およびその周辺で採取した土壌コア試料中の <sup>236</sup>U 蓄積量・空間分布、さらに <sup>236</sup>U/<sup>137</sup>Cs や <sup>236</sup>U/<sup>239+240</sup>Pu と比較することで、広島原爆・黒い雨によるフォールアウトレベルやその分布を明らかにすることを目的として行った結果を報告する。

## 2. 試料採取および分析

### 2.1 土壌試料

グローバルフォールアウト <sup>236</sup>U 降下量を評価するために石川県能美市に位置する金沢大学・低レベル放射能実験施設の裏山にて 2008 年 8 月に、直径 4.7 cm、深さ 10、20 および 30 cm の土壌コアサンプルを合わせて 8 本採取した。この地点はすでに我々の研究グループによって長年 <sup>137</sup>Cs、Pu 同位体、<sup>241</sup>Am や <sup>237</sup>Np がモニタリングされており、グローバルフォールアウト以外の人工的な放射能汚染は受けていないということが明確になっている場所である。これら土壌コア中の <sup>236</sup>U、<sup>137</sup>Cs、<sup>239+240</sup>Pu 測定結果はすでに報告した (Sakaguchi et al, 2009)。この場所で、<sup>137</sup>Cs、<sup>239+240</sup>Pu、<sup>236</sup>U 濃度の詳細な深度分布を検討するために 2009 年 2 月に、同径の 30 cm 土壌試料を採取した。土壌コアは 5 cm ごとに切断して風乾後、2 mm の篩いかけ、グラインダーで均一化したものを分析試料とした。

同様な深さ 30 cm の土壌コアを、2009 年 1 月に広島市周辺の図 1 に示す地点において採取した。採取場所は 1976 年に採取した試料中の <sup>137</sup>Cs 降下パターンを参考にして選定した。それぞれの土壌コア試料を 10 cm ごとに分画し上記の石川県試料と同様に前処理を行った。

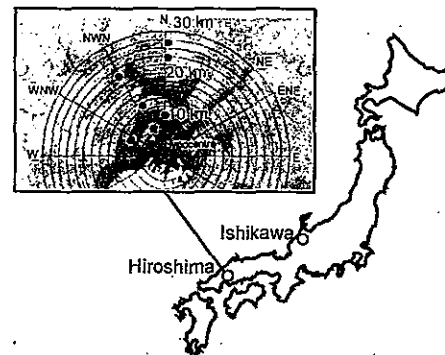


図 1 石川および広島での試料採取地点。星印は爆心地を示す。

### 2.2 放射能測定

#### 2.2.1 <sup>137</sup>Cs および Pu 同位体測定

それぞれの土壌試料を直径 6 cm、高さ 2 cm のプラスチック容器に詰めてガンマ線測定試料とした。ゲルマニウム半導体検出器(Princeton Gamma Tech, 相対効率 40%)にて約 172000 秒測定することで <sup>137</sup>Cs 濃度を求めた。キャリブレーションには New Brunswick Laboratory (NBL) reference materials No. 42-1 (4.04 % uranium) と高純度 KCl を用いた。<sup>137</sup>Cs (662 keV) の測定効率は 4.8 % であった。

ガンマ線測定後の試料から 20-30 g 分取し、電気炉で 3-5 時間 450°C で加熱後、収率トレーサーとして <sup>242</sup>Pu を既知量加え 8M HNO<sub>3</sub> 約 300 ml で 3-5 時間 Pu を加熱抽出した。抽出された Pu は、イオン交換カラム分離操作を主とする Yamamoto et al. (2002, 2008) の方法で Pu の精製を行った。精製した Pu はステンレス板に電着し、その放射能を α スペクトロメトリーにて約 480000 秒測定し濃度を定量した。

#### 2.2.2 ウラン同位体分析

ガンマ線測定した土壌試料から一部(3-5 g)を分取し、電気炉で 3-5 時間 450°C の加熱後、約 50 ml の 8M HNO<sub>3</sub> で 3-5 時間抽出した溶液を U 同位体 <sup>238</sup>U、<sup>236</sup>U 分析用試料とした。この抽出方法は、簡便かつ全ての <sup>236</sup>U を土壌から抽出できる方法として Sakaguchi et al. (2009) においてすでに確認済みである。抽出溶液の 2/3 を α スペクトロメトリーによる <sup>238</sup>U 測定用、残りを AMS による <sup>236</sup>U/<sup>238</sup>U 原子

数比測定用として分取した。αスペクトロメトリ用試料に収率トレーサーとして既知量の  $^{232}\text{U}$  を添加後、それぞれ分取した抽出溶液中のウランを Sakaguchi et al. (2004) により精製した。αスペクトロメトリ用精製ウランは Pu 同様にステンレス板に電着したものを線源とした。測定時間はそれぞれ約 320000 秒とした。 $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  原子数比測定用のウランは 3 mg の水酸化鉄で供沈し、乾燥後 800 度で約 3 時間加熱することにより鉄酸化物化した。鉄酸化物試料をケトルに詰めたものを  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U}$  測定用カンードとした。今回使用した AMS のアパングンス感度は  $^{236}\text{U}/^{238}\text{U} = 10^{-13}$  である。AMS 測定の詳細は Steier et al. (2009) や Sakaguchi et al. (in prep.) を参照されたい。

### 3. 結果と考察

#### 3.1 バックグラウンド土壌試料-石川県能美市-

石川県能美市で採取した土壌中の  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$  および  $^{236}\text{U}$  の各層の蓄積量 (インベントリー) の深度分布をそれらの比も併せて図 2 に示す。いずれの核種も 5-10 cm で最大インベントリーを示し、それ以深では急激に減少する。 $^{236}\text{U}$  と  $^{239+240}\text{Pu}$  は 25-30 cm の深度においても検出された。表層 0-10 cm の  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 $^{236}\text{U}$  インベントリーはそれぞれ全インベントリーの約 80%、62%、58% を占めており、25 cm の深度までは 100%、98%、98% が蓄積している。これらの結果より、年間 2000 mm を超えるような降水量の多い石川県においても、土壌深度 30 cm までにグローバルフォールアウトによりもたらされたこれら放射性核種は殆ど 100% 保持されていることが明らかになった。また、 $^{236}\text{U}/^{137}\text{Cs}$  や  $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$  比の深度分布から、土壌中の  $^{236}\text{U}$  は  $^{137}\text{Cs}$  よりも  $^{239+240}\text{Pu}$  と見かけ上同様な挙動をしていることが明らかになった。

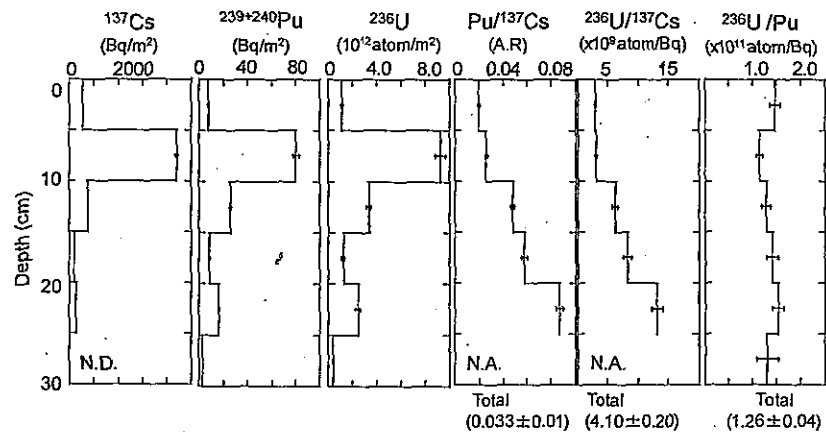


図 2 石川県で採取した 30 cm 土壌コア試料中の  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 $^{236}\text{U}$  深度分布とそれら放射性核種の比。N.D.: 検出限界以下 N.A.: 未解析

#### 3.2 広島土壌試料

30 cm 土壌コアの分析結果から得た深度分布の例を図 3 に示す。爆心地から北北西 4 km 地点 (NWN4-2) の試料以外は、表層 0-10 cm の土壌中に全インベントリーの 70-95% の  $^{137}\text{Cs}$ 、60-95% の  $^{239+240}\text{Pu}$  および  $^{236}\text{U}$  が見いだされた。広島土壌試料の分析結果からも、石川県で採取した土壌試料と同様に  $^{137}\text{Cs}$  が他の核種に比べてより表層土壌に保持されており、さらに  $^{236}\text{U}$  は  $^{239+240}\text{Pu}$  と同様の深度分布であることが明らかになった。表層土壌中では、Cs はアルカリ金属として粘土層中の K と交換反応を起こし下方への移行が制限されている、と報告されている (たとえば Bunzel et al., 1998; Lee and Lee, 2000; Seaman et al., 2001; Everett et al., 2008)。一方、Pu は粒子吸着性の元素と考えられているが、グローバルフォールアウト由来の Pu 同位体は土壌中の有機物と錯形成し移行しやすい状態であると報告されている (たとえば Bunzel et al., 1998; Lee and Lee, 2000; Seaman et al., 2001)。図 3 に示すように、 $^{236}\text{U}/^{239+240}\text{Pu}$  値 (atom Bq<sup>-1</sup>) が深度を通してほぼ一定の値であることなどからも、表層土壌中ではおそらく  $^{236}\text{U}$  も Pu 同位体と同様に有機物錯体を形成しているのではないかと考えられる。

$^{137}\text{Cs}$  と  $^{239+240}\text{Pu}$  のインベントリーはそれぞれ 1,100-2,500 および 36-77 Bq m<sup>-2</sup> の範囲であり、平均 1,790、59 Bq m<sup>-2</sup> と試算された。これらのインベントリーは、これまでに報告されている北緯 30°-40° におけるグローバルフォールアウトレベル (e.g. Hardy, 1973; Yamamoto et al., 1983; Aoyama et al., 2006) の範囲内であった。 $^{236}\text{U}$  インベントリーは  $4.30 \times 10^{12}$ - $1.14 \times 10^{13}$  atoms m<sup>-2</sup> の範囲で見いだされ、平均  $7.44 \times 10^{12}$  atoms m<sup>-2</sup> であった。これらの値は石川県で採取された土壌試料から得たインベントリ

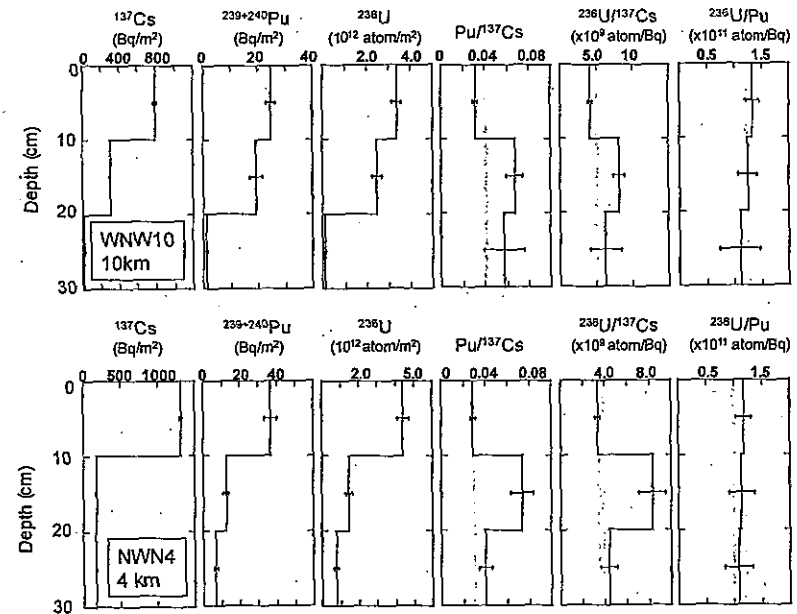


図 3 広島市内およびその周辺で採取した 30 cm 土壌コア試料中の  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{239+240}\text{Pu}$ 、 $^{236}\text{U}$  深度分布とそれら放射性核種の比。WNW10: 爆心地から北北西に 10 km 地点。NWN4: 爆心地から北北西に 4 km 地点

一と比較すると約半分であった。これは主に石川県(2,200 mm y<sup>-1</sup>)と広島県(1,500 mm y<sup>-1</sup>)での降水量の違いや、Yamamoto et al. (2006)に示されるような地理的条件や地上にもたらされる降下条件の違いなどに起因すると考えられる。<sup>239+240</sup>Pu/<sup>137</sup>Cs 放射能比は 0.030-0.042 (平均 0.033) であり、これまで Yamamoto et al. (1983)、UNSCEAR(2000)、Ohtsuka et al. (2004)で報告されているグローバルフォールアウトの比の範囲内にあった。<sup>236</sup>U/<sup>137</sup>Cs および <sup>236</sup>U/<sup>239+240</sup>Pu 比は 3.40×10<sup>9</sup>-5.34×10<sup>9</sup> atoms Bq<sup>-1</sup>、1.10×10<sup>11</sup>-1.48×10<sup>11</sup> atoms Bq<sup>-1</sup> の範囲内であり平均はそれぞれ(4.18±0.69)×10<sup>9</sup> atoms Bq<sup>-1</sup>、(1.25±0.12)×10<sup>11</sup> atoms Bq<sup>-1</sup> であった。これらの値は石川県で採取した土壤中放射性核種の比および Sakaguchi et al. (2009)に報告されている比と同程度であった。これらの結果より、広島市周辺で採取した土壌試料中の <sup>236</sup>U の大部分はグローバルフォールアウト起源だと考えられる。

### 3.3 原爆フォールアウト地域再現における <sup>236</sup>U の利用可能性

広島原爆投下から 20-30 分後、広島市内および周辺地域に降雨があった。この雨は“黒い雨”と呼ばれ原爆材料や核分裂生成核種を地上にもたらし、残留放射能による被曝に寄与したと考えられている。宇田(1953)によると、この降雨範囲は図 4 の白線に示すように、爆心地から北西方向に 11×19 km (66 km<sup>2</sup>)であったと報告されており、これが現在一般的に言われている“黒い雨”の範囲である。また、増田(1989)の調査結果では、降雨地域は図 4 の黄色線で示すさらに広い範囲であると報告されている。2009 年の広島市による大規模聞き取り調査の結果からも、これまでの降雨範囲よりもかなり広い範囲で降雨が確認されている(大瀧ら, 2010:本報告書)。

広島原爆由来の <sup>236</sup>U は主として <sup>235</sup>U(n, γ)反応により生成される。広島原爆の組成や威力についての詳細は明らかでないが、64.15 kg の 80%濃縮ウランが使用され (Coster-Mullen, 2008)、TNT にして 16 kton の爆発威力であった(Young and Kerr, 2005)と仮定すると、広島原爆では 910 g の <sup>235</sup>U が核分裂し

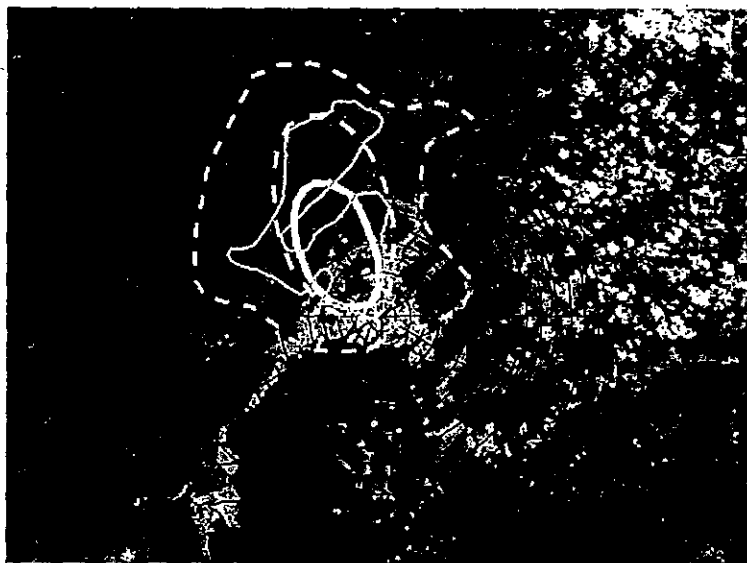


図 4 宇田(1953)、増田(1989)による黒い雨降雨地域。太実線：宇田降雨地域大点線：宇田小雨地域、細実線：増田降雨地域、小点線：増田小雨地域

たと試算される(1 kton の収率のためには 57 g の核分裂物質が消費される (Glasstone and Dolan, 1977))。 <sup>235</sup>U(n, γ)反応により生成する <sup>236</sup>U は、<sup>235</sup>U(n, fission)に対する <sup>235</sup>U(n, γ)反応の反応断面積の比を用いることにより計算できる。JENDL3.3 neutron cross section library (Shibata et al., 2002)に示される <sup>235</sup>U(n, γ) <sup>236</sup>U と <sup>235</sup>U(n, fission)のクロスセクションはそれぞれ 0.091 barn および 1.2 であることから、広島原爆により生成された <sup>236</sup>U は 69 g と見積もられる。

仮にこの <sup>236</sup>U の全量が、現在報告されている 66 km<sup>2</sup>の降雨範囲に沈着したとすると、土壌中のインベントリーは 1 μg m<sup>-2</sup> または 2.7×10<sup>15</sup> atoms m<sup>-2</sup> と試算され、グローバルフォールアウトの 10<sup>12</sup>-10<sup>13</sup> atoms m<sup>-2</sup> より遙かに大きな値となる。

しかし今回得た広島土壌中の <sup>236</sup>U インベントリーは、上記計算値よりも二桁も少ない。これにより、広島原爆由来の <sup>236</sup>U は生成量の 1-数%も満たない程度の降下量であったと考えられる。さらに、広島市内の土壌中 <sup>236</sup>U/<sup>239+240</sup>Pu 比が石川で採取した土壌中の比とほぼ等しいことから、グローバルフォールアウトに比べて広島原爆黒い雨による降下量の寄与は非常に少ないと推測できる。今後、原爆後および大気核実験が始まる前に建てられた民家の床下から得た土壌試料を分析するなどさらなる研究が必要である。

### 4. 結語

広島原爆の原料として使用された <sup>235</sup>U の <sup>235</sup>U(n, γ)反応により生成される <sup>236</sup>U 蓄積量・深度分布および空間分布を <sup>137</sup>Cs や <sup>239+240</sup>Pu も併せて明らかにし、石川県で採取した土壌中のこれら放射性核種の測定結果と比較することで、黒い雨降雨地域特定の可能性を考察した。結果、石川および広島の両地点においても <sup>137</sup>Cs、<sup>239+240</sup>Pu および <sup>236</sup>U の何れの核種ともに表層 30 cm 以浅に蓄積していることがわかった。<sup>236</sup>U/<sup>137</sup>Cs および <sup>236</sup>U/<sup>239+240</sup>Pu 深度分布から表層土壌中における <sup>236</sup>U の挙動は <sup>239+240</sup>Pu に類似していることがわかった。広島市内およびその周辺から採取した合計 7 試料の土壌コアサンプル(0-30 cm)中の <sup>137</sup>Cs、<sup>239+240</sup>Pu、<sup>236</sup>U 測定結果および石川県の土壌測定の結果との比較から、黒い雨によってもたらされた広島原爆由来の <sup>236</sup>U 降下量はグローバルフォールアウトによる <sup>236</sup>U 降下量に比べて非常に少ないものと考えられ、黒い雨の放射能実態の解明には今後グローバルフォールアウトの影響の少ない試料を用いてのさらなる検討が必要であると考えている。

本稿の内容は暫定的なものであり、最終的な結果は学術誌に報告する予定である。測定結果などの引用にあたっては事前に著者に連絡されたい。

\*Corresponding author: e-mail: ayaskgc@hiroshima-u.ac.jp,

Tel: +81-82-424-7463, Fax: +81-82-424-0735,

### References

- Aoyama M, Hirose K, Igarashi Y, Re-construction and updating our understanding on the global weapons tests <sup>137</sup>Cs fallout, J Environ Monit 2006;8:431-438.
- Bunzl K, Kracke W, Schimmack W, Zelles S., Forms of Fallout <sup>137</sup>Cs and <sup>239+240</sup>Pu in Horizons of a Forest Soil Successive, J Environ Radioact 1998;39:55-68.
- Everett SE, Tims SG, Hancock GJ, Bartley R, Fifield LK, Comparison of Pu and <sup>137</sup>Cs as tracers of soil and sediment transport in a terrestrial environment, J Environ Radioact 2008;99:383-393.
- Glasstone S, Dolan PI. The Effects of Nuclear Weapons, United States Department of Defense and the Energy Research and Development Administration 1977; p13.