

^{152}Eu と ^{36}Cl の相互比較測定

星正治*、遠藤暁（広島大学原医研国際放射線情報センター）

石川正純（東京大学原子力研究総合センター）

小村和久（金沢大学自然計測応用研究センター）

長島泰夫（筑波大学 AMS グループ）

福嶋浩人（日本分析センター）

今中哲二（京都大学原子炉実験所）

はじめに

原爆線量評価日米合同 WG では、広島・長崎原爆による中性子放射化量について、実測と計算を比較しながら DS 線量評価システムの妥当性に関する議論を積み重ねてきた。 ^{152}Eu の測定については、広島大の静岡ら、金沢大の中西らや小村らが半導体検出器を用いた線スペクトル分析を担当し、 ^{36}Cl の測定では、米国のストローメら、ドイツのリュームら、さらに筑波大の長島らが、近年開発された加速質量分析 (AMS) による測定を行ってきた。

しかしながら、DS86 に基づく計算とこれらの熱中性子放射化測定データとの間、ならびに測定データどうしの際に“ずれ”があった。その特徴は、

- (1) ^{152}Eu の測定データが 1km 以遠では計算より大きいこと、
- (2) ^{36}Cl の測定データは爆心地近くで計算値や ^{152}Eu のデータと比べて少し小さいことであった (だいたい 30%)。

この違いについては多くの議論がなされてきたが、決着が付かなかった。そこで 2001 年 11 月に広島で開かれた日米ワークショップにおいて、新たに近距離からバックグラウンドの遠距離までの広島花崗岩試料を準備し、各ラボで同一サンプルを測定して比較する、相互比較実験を計画した。

花崗岩試料のほか、広島大学の ^{252}Cf 核分裂中性子源(Hoshi et al. 1988)を使って Eu と Cl の標準溶液を照射した試料についても相互比較測定を実施した。

相互比較測定には、金沢大の小村ら、筑波大の長島ら、ミュンヘン工科大のリュームら、ユタ大のストローメらが参加した。

相互比較のための花崗岩試料の選定

相互比較に供した広島の花崗岩試料を表 1 にまとめた。被爆花崗岩としては、すでに静岡ら (Shizuma et al. 1993) が測定済みのものを選んだ(表 1 の 1 から 9)。試料番号 10 から 16 は、宇宙線由来の中性子の影響があるかどうか、また ^{152}Eu と ^{36}Cl の測定に及ぼすそのほかの影響を見るためのバックグラウンドの試料である。バックグラウンド試料は今回広島市内から新たに収集した。

花崗岩にはいくつかの種類があった。そこで石材工場の職員に、それらの石材が元々どこから採石されたのかを聞いた。表 1 に伊予石(Iyo stone)や大島石(Oshima stone)と書かれているのは、それぞれ四国の伊予や大島で採石されたもので、色は灰色である。11 番は観音寺から譲り受けたもので倉橋島ないし同様の石が採れるところで採掘されたものと判断され、色は白っぽい。地域の石(local

* HOSHI Masaharu, Hiroshima University; mhoshi@hiroshima-u.ac.jp

表1 . Eu と Cl の相互比較測定に用いた花崗岩試料

No.	試料	測定	石の種類	重量(g)	抽出後の重量 (g)	爆心からの距離(m)
1	Motoyasu Bridge. Railing	Eu, Cl		1000	22.1	135
2	Shirakami Shrine Fence	Eu, Cl		340	5.47	504
3	Honkeiji Temple	Eu, Cl		500	10.7	896
4	Myochoji Temple 7	Eu, Cl		800	26.3	639
5	Old Prefectural office	Eu, Cl		1000	19.7	877
6	Enryuuji Temple 5-1	Eu, Cl		440	16.5	925
7	Shingyoji Temple 1	Eu, Cl		600	19.4	915
8	City Office pavement	Eu, Cl		1000	17.2	1022
9	Kozenji Temple 6-1	Eu, Cl		1000	23.1	1177
10	Senngyoji temple	Eu, Cl	Iyo stone	1000	27.8	
11	Kannonji Temple	Eu, Cl		1000	21.0	
12	Senzoubo	Cl	Iyo or Oshima stone			8790*
13	Senzoubo	Cl	Local stone			8790*
14	Senzoubo	Eu, Cl	Local stone	962.1	20.8	8790*
15	Myokenji Temple	Eu, Cl	Local stone	914.6	14.6	7610*
16	Myokenji Temple	Cl	Local stone			7610*
17	Kikkawa Ryokan	Eu, Cl		1300	40.4	1424
18	Surface core of Old Faculty of Hiroshima University (E-building)	Eu, Cl	0cm-5cm depth			1385
	Deeper core of Old Faculty of Hiroshima University (E-building)	Eu, Cl	5cm-15cm depth			1385

* 爆心からの距離はそれぞれ各著者が示した元々の値である。

stones)と書かれているものは非常に古い墓石で、広島市内近くの花崗岩からとってきたものであると考えられる。これらの石の表面は風化していて非常に古い。

試料番号 17 の吉川旅館(Kikkawa Ryokan)試料は、遠距離の被爆試料(1424m)として選定した。試料番号 18 は旧広島大学理学部の建物からとったコアサンプルで、放射能の深さ分布を求めるために採取していたものである。直径 16 cm のコアサンプルは 0-5 cm の表面と 5-15 cm 深さの部分に分割されている。この 18 番試料は ^{152}Eu だけの測定のために使われたが、放射能レベルが低すぎて検出できなかった。

花崗岩試料の処理

すべての花崗岩のサンプルは元の試料を 5 分割した。それぞれのサンプルの大きさは異なっているがほぼ同じ大きさである。このうち 3 つのサンプルは ^{36}Cl の測定のため、ドイツのリュームらのグループ、アメリカのストローメらのグループ、筑波大の長島らのグループへ送った。 ^{152}Eu 測定のためもう一つのサンプルを日本地科学社に送り 100 メッシュ以下に粉碎した。そのサンプルの重量は約 1 kg であった。その粉末サンプルを日本分析センターに送り、そこで化学的に溶解し、ユーロピウムを抽出した。化学的な抽出の方法は静岡ら(Shizuma et al. 1993)に正確に従った。抽出後の重量は 15 から 40 g となった。これらのサンプルは金沢大学の小村らにより、尾小屋のトンネルの中に設置された Ge 検出器を使って超低バックグラウンドの測定が行われた。

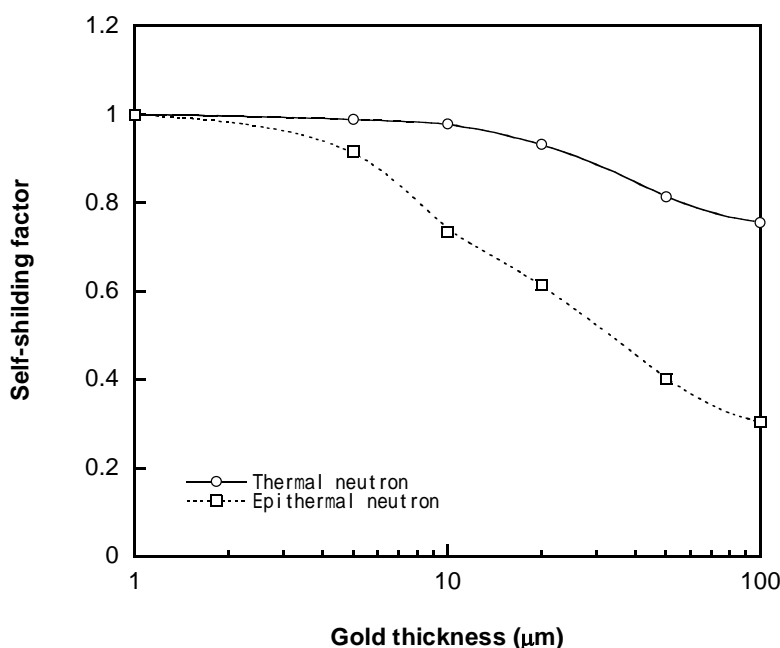


図1 . 金箔の厚さと自己遮蔽係数 . 図に示すとおり自己遮蔽係数は厚さの異なった金箔を使って実験的に求めた . これらの補正係数は $1 \mu\text{m}$ の厚さの金箔のデータに対する $50 \mu\text{m}$ 厚さ金箔のデータの比で、「熱中性子場」と「熱外中性子場」でそれぞれ 0.813 と 0.402 であった .

ユーロピウムと塩素の混合標準溶液の作成と中性子照射

ユーロピウムの標準溶液には、原子吸光分析用の 1000 ppm 溶液（和光化学）を用いた。塩素の標準溶液には、イオンクロマトグラフィ用の $10,000 \text{ ppm}$ 溶液（岸田化学社）を用いた。これらの標準溶液からそれぞれ 1 ml を取り混合して 2 ml とし、プラスチック製の試験管に入れ照射した。

中性子照射には広島大学の ^{252}Cf 核分裂中性子源(Hoshi et al. 1988)を使用し、2種類の中性子場を作った。その一つは、試験管を 5cm の厚さのナイロン板で挟んで照射した。中性子源に面した前面は1枚で 5cm とし、後方は2枚で 10cm とした。もう一つは同様な形式でニューライト(Newlite plate: polyethylene with 3.7% boron: Hoshi et al. 1992) 3枚を使用して照射した。前者を“熱中性子場”と呼び、後者を“熱外中性子場”と呼んでいる。

2ml の標準液を入れた試験管5本を同時に照射し、中性子のフルエンスは、 $50 \mu\text{m}$ の金箔をそのままとカドミウムの板で挟んだもの両方を使ってモニターした。金箔の自己遮蔽係数補正は実験的に行った。補正実験は“熱中性子場”と“熱外中性子場”の両方で行い、その結果を図1に示す。

照射に用いた熱中性子と熱外中性子のフルエンスは、“熱中性子場”でそれぞれ 3.19×10^{11} と $1.76 \times 10^{10} \text{ (n/cm}^2\text{)}$ 、“熱外中性子場”で 1.13×10^{10} と $3.25 \times 10^{10} \text{ (n/cm}^2\text{)}$ と評価された。これら2つの中性子場での照射には前者が約6日、後者が約数週間かかった。同時に5本照射し、“熱中性子場”と“熱外中性子場”で照射した試験管1ずつをペアとしそれぞれ、アメリカ、ドイツ、筑波へ送り ^{36}Cl を測定した。また、照射した溶液の一部を金沢大学へ送り尾小屋の地下測定室 ^{152}Eu を測定した。

結果と考察

今回の被爆花崗岩中の ^{152}Eu と ^{36}Cl の測定結果を、DS02と比較し表2と図2に示す。今回の新しい ^{152}Eu の結果のうち 900m より遠距離ではDS02よりやや高い傾向がある。しかしながら全体としてDS02とはよく合っているといえる。新しい ^{152}Eu と ^{36}Cl の結果は 1100m の範囲ではDS02と良く合っていることが示されている。

表 2 . 被爆花崗岩試料の相互比較測定結果 . 透過係数で補正していないデータ .

試料	GR (m)*	GR		$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$			$^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$ (Bq/mg)	
		DS02	長島	ストローメ	リューム	DS02	小村	
Motoyasu	135	2.15E-10	1.89E-10 ± 1.30E-11	1.67E-10 ± 1.00E-12	1.67E-10 ± 1.20E-11	110.58	99.4 ± 5.5	
Shirakami	504	3.64E-11	2.22E-11 ± 1.80E-12	2.18E-11 ± 3.70E-12	1.88E-11 ± 1.50E-12	18.699	15.2 ± 0.89	
Honkeiji	896	2.03E-12	1.43E-12 ± 1.00E-13	1.39E-12 ± 3.00E-14	1.77E-12 ± 2.00E-13	1.0446	0.99 ± 0.07	
Myochoji	639	1.42E-11	1.07E-11 ± 9.90E-13	9.72E-12 ± 2.60E-13	1.14E-11 ± 1.00E-12	7.3105	6.2 ± 0.38	
Old Prefect.	877	2.34E-12	2.45E-12 ± 1.50E-13	4.15E-12 ± 7.00E-14	2.21E-12 ± 2.10E-13	1.2071	1.57 ± 0.10	
Enryuuj	925	1.63E-12	1.78E-12 ± 2.60E-13	1.33E-12 ± 4.00E-14	1.68E-12 ± 2.10E-13	0.83356	1.06 ± 0.09	
Shingyoji	915	1.75E-12	1.17E-12 ± 1.60E-13	1.32E-12 ± 3.00E-14	9.90E-13 ± 1.10E-13	0.90098	0.78 ± 0.06	
City Office	1022	7.62E-13	3.98E-13 ± 3.20E-14	-	3.30E-13 ± 4.00E-14	0.39094	0.27 ± 0.09	
Kozenji	1177	2.31E-13	2.13E-13 ± 4.20E-14	4.35E-13 ± 1.70E-14	2.20E-13 ± 4.00E-14	0.11865	0.15 ± 0.03	

* GR (m) は DS02 での爆心からの距離で、新しく決めた爆心からの距離である。

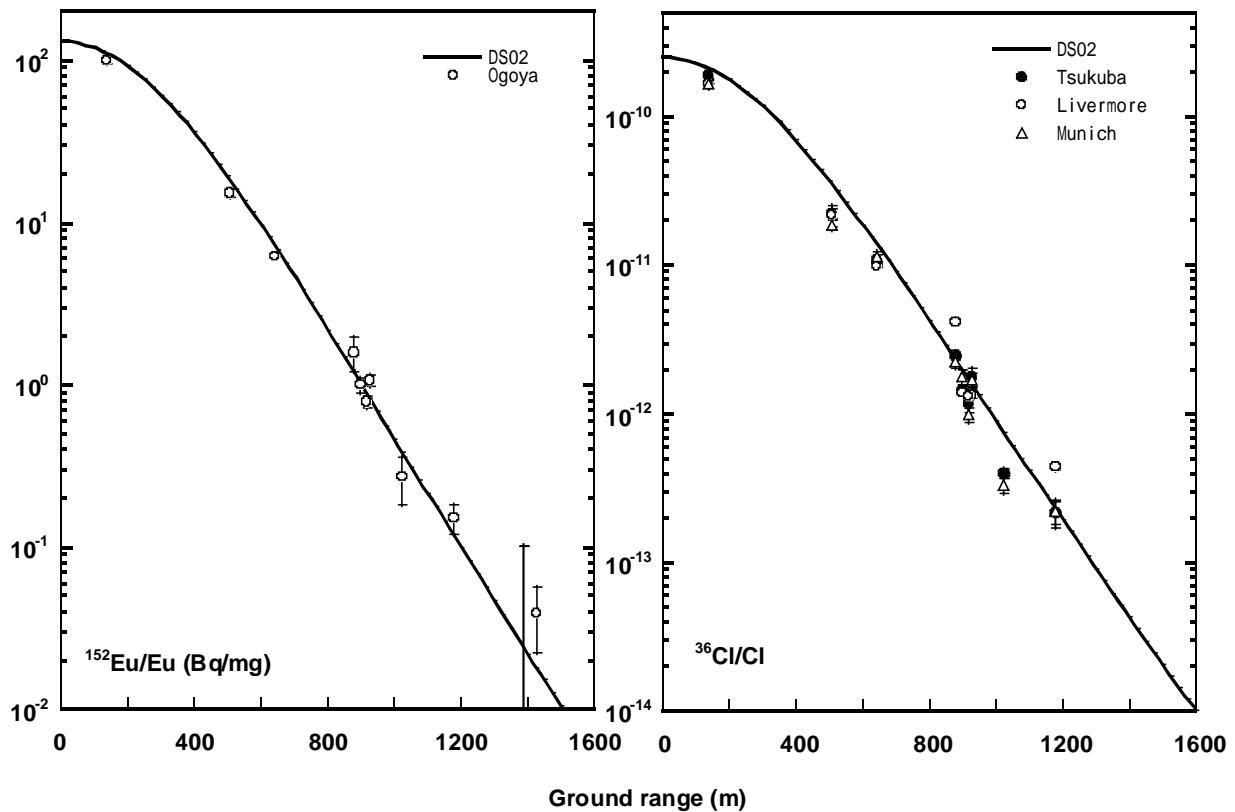


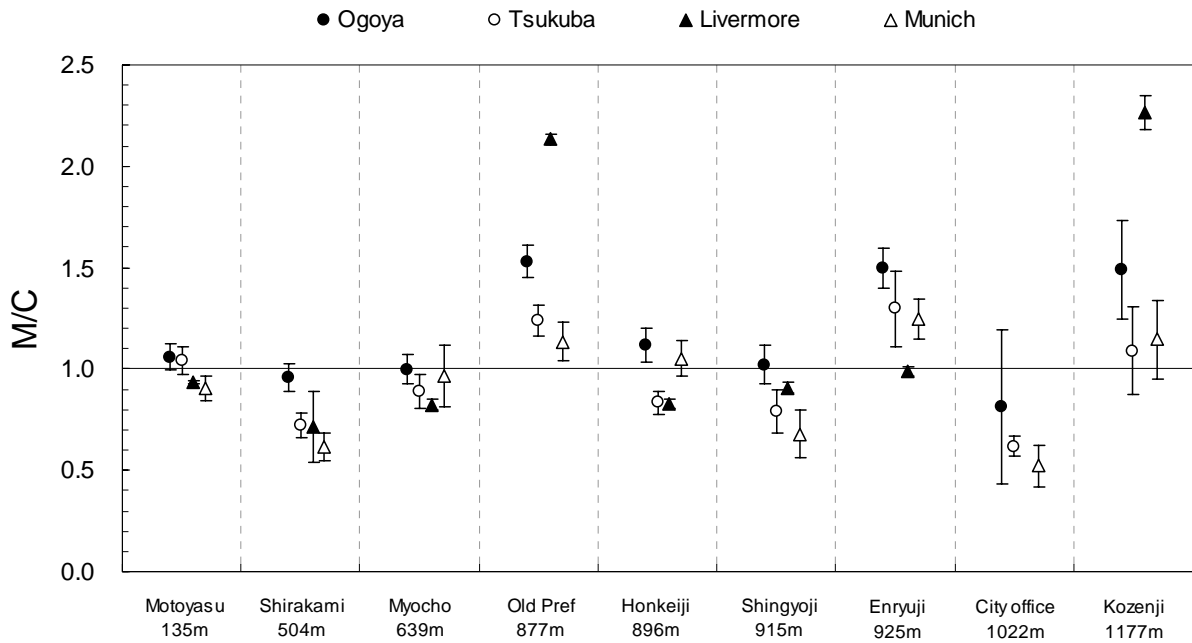
図 2 . DS02 と比較した ^{152}Eu と ^{36}Cl の測定結果 . (a) は ^{152}Eu で (b)は ^{36}Cl . これらの測定結果は透過係数で補正していない .

図 3 は相互比較のサンプルについて測定値と計算値の比 (M/C) (表 3) をプロットしたものである。測定値は、ストローメら、リュームら、長島らによる $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 測定データと小村らによる $^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$ 測定データ (表 2) を、米国 WG の Egbert が計算した、サンプル位置での中性子透過係数 (TF) で割って自由空气中に変換した値である。図 3 に見られるように、これらのすべての比は 1 という値の前後にデータが散らばっている。注意深く ^{36}Cl のデータを見ると、ストローメらの旧県庁と興禅寺のデータがそれ以外のデータより高い事以外は、お互いに良く合っている。それから白神社と市役

表 3 . 測定と DS02 に基づく計算値との比 . 測定データを試料位置での透過係数で補正し地表 1 m 値に換算した後に比を求めた .

試料	GR	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$			$^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$
	(m)*	長島	ストローメ	リューム	小村
Motoyasu	135	1.041 ± 0.072	0.933 ± 0.006	0.904 ± 0.075	1.058 ± 0.065
Shirakami	504	0.721 ± 0.058	0.712 ± 0.192	0.614 ± 0.078	0.956 ± 0.069
Honkeiji	896	0.834 ± 0.058	0.825 ± 0.027	1.051 ± 0.177	1.115 ± 0.082
Myochoji	639	0.890 ± 0.082	0.823 ± 0.029	0.965 ± 0.113	0.998 ± 0.072
Old Prefect.	877	1.237 ± 0.076	2.133 ± 0.035	1.136 ± 0.104	1.530 ± 0.078
Enryuuji	925	1.296 ± 0.189	0.986 ± 0.027	1.245 ± 0.142	1.496 ± 0.095
Shingyoji	915	0.789 ± 0.108	0.907 ± 0.031	0.680 ± 0.113	1.018 ± 0.096
City Office	1022	0.618 ± 0.050	-	0.522 ± 0.118	0.813 ± 0.379
Kozenji	1177	1.090 ± 0.215	2.266 ± 0.096	1.146 ± 0.226	1.487 ± 0.244

* GR (m)は DS02 での爆心からの距離を示す。この爆心は新しく定めた爆心である。



M/C values of Intercomparison samples

図 3 . 測定値と DS02 で計算した結果の比(M/C) . 測定値は、透過係数で補正したが、自然に存在するバックグラウンドは差し引いていない .

所の塩素のデータは少し DS02 より低く出ている。Eu のデータの場合、M/C 比は旧県庁、円隆寺、興禅寺が 1.5 位の所にあるが、そのほかの値は 1 に近い値となっている。このことは DS02 とよく合っている事を意味している。

図 4 a に、ストローメら、リュームら、長島らにより測定された $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ 比を、それに対応する小村による $^{152}\text{Eu}/^{151}\text{Eu}$ 測定値で割って、さらにそれぞれ対応する(n,γ)断面積の比 $^{35}\text{Cl}(n,\gamma)/^{36}\text{Cl}$ を 43.6 b とし、 $^{151}\text{Eu}(n,\gamma)/^{152}\text{Eu}$ を 5900 b としその比)で割った値を示す。この図 4 a にみられるとおりこれらの値は 1 の周り誤差の範囲で散らばっている。このことは ^{36}Cl と ^{152}Eu の結果には良い一致があ

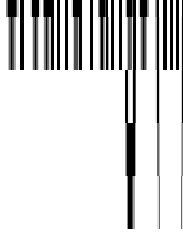


図 4 . Eu 測定値に対する Cl 測定値の比 .

^{36}Cl と ^{152}Eu について比放射能の測定値の比を、対応する熱中性子の断面積の比で割ってプロットしてある . 図の(a)は広島の花崗岩試料についてであり、(b)は Eu-Cl の標準液を ^{252}Cf 線源による熱中性子場と熱外中性子の場で照射した試料についての同様な結果を示す . 「Epithermal」の方は 3.7%の硼素を含むニューライトで標準液を挟んで作った熱中性子場で、「thermal」はナイロンで挟んで作った熱中性子場での照射による .

ることを示している . 例外は市役所のデータで、長島ら、リュームらの ^{36}Cl のデータは小村の ^{152}Eu のデータに比べて低い . 他で合っていないデータは、ストローメらによる旧県庁と興禅寺の ^{36}Cl の結果で、長島らやリュームらの結果及び小村の ^{152}Eu のデータと比べてずっと高い . 図 4 a の値を平均すると 0.87 ± 0.03 となり、高い 2 つのデータをとって平均すると 0.86 ± 0.03 となる .

図 4 b にはユーロピウムと塩素を含む標準溶液についての同様の結果を示す . それぞれ “熱中性子場” と “熱外中性子場” での照射の結果である . これらの値は図 4 a で示した値よりもより 1 に近くなっている . Cl/Eu 比について平均すると “熱中性子場” の照射で 1.08 ± 0.05 となり “熱外中性子場” で 0.91 ± 0.05 となる . これらの比は、相互比較した 4 つの研究室間の結果はお互いに矛盾なく一致したものであることを示している .

結論

原爆熱中性子による放射化測定データの信頼性を確認するため、 ^{152}Eu と ^{36}Cl の測定に関する相互比較研究を実施した . 広島 1200m 以内で被曝した 9 つの花崗岩サンプルと Eu と Cl の標準液を “熱中性子場” と “熱外中性子場” 照射したサンプルを相互比較に使用した . ^{152}Eu の測定は、金沢大学の小村らが尾小屋地下測定室の極低バックグラウンド Ge 測定器で行い、 ^{36}Cl の測定は、アメリカ・ユタ大学のストローメら、ドイツ・ミュンヘンのリュームら、ならびに筑波大学の長島らが AMS によって実施した . 相互比較の結果、 ^{152}Eu と ^{36}Cl データはお互いに合っているだけでなく DS02 計算値ともよい一致を示した . ただし、ストローメらによる旧県庁と興禅寺のデータは DS02 との一致が良くなかった . また、Eu データは、全体として少しだけ (14%) Cl データより大きい傾向があった . この理由については将来散乱断面積など各種の要因を検討しチェックする必要がある .

参考文献

Hoshi, M., S. Takeoka, T. Tsujimura, T. Kuroda, M. Kawami and S. Sawada: Dosimetric evaluation of ^{252}Cf beam for use in radiobiology studies at Hiroshima university; *Phys. Med. Biol.* 33:473-480; 1988.

Hoshi, M., M. Hiraoka, N. Hayakawa, S. Sawada, M. Munaka, A. Kuramoto, T. Oka, K. Iwatani, K. Shizuma, H. Hasai and T. Kobayashi: Benchmark test of transport calculations of gold and nickel activation with implications for neutron kerma at Hiroshima. *Health Phys.* 65:532-542; 1992.

Shizuma, K., K. Iwatani, H. Hasai, M. Hoshi, T. Oka and H. Morishima: Residual ^{152}Eu and ^{60}Co activities induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb. *Health Phys.* 65:272-282;1993.