

# 金沢大学における原爆中性子誘導核種 $^{152}\text{Eu}$ の測定 (II)

小村和久\*

金沢大学自然計測応用研究センター・低レベル放射能実験施設

はじめに

筆者と原爆中性子誘導核種  $^{152}\text{Eu}$  (半減期 13.542 年) との関わりは 1976 年 8 月の原爆ドーム内での *in situ* 測定による発見に始まり、2002 年 8 月の尾小屋地下測定室での測定までの約四半世紀年にわたる (Table 1)。本稿ではこれらの経緯を含めて記したい。

## 1. *in situ* 線測定による原爆中性子誘導核種の測定

### 1.1 原爆ドーム内での *in situ* 測定による原爆中性子誘導核種 $^{152}\text{Eu}$ の発見

環境放射能の研究を主目的とする我が国の大学で唯一の機関として金沢大学理学部に低レベル放射能実験施設が設置された (1975 年)。前任の東大原子核研究所助手時代に千葉県鋸山の微弱放射能測定孔 (2001 年? に閉鎖) で放射能測定をしていた筆者に、恩師の阪上正信教授から誘いがあり、1976 年 3 月に金沢大に赴任した。最初の研究は可搬型 Ge (Li) 検出器による環境放射能の *in situ* 測定であった。我が国では、原研と理研のグループがいち早くこの技術を導入していたが、実環境での適用は少なかったので、環境放射能の観点から興味深い地点の測定から始めることになり、可搬型 Ge 検出器のテストを兼ねて 3 月末に近畿・中国地方 (玄武洞、鳥取砂丘、三朝温泉、人形峠) 6 月中旬に糸魚川沿いの温泉地域で測定を行なった。

広島での *in situ* 測定 (1976.7.31-8.5) は、原爆投下 30 年後の広島で原爆の痕跡を探ることであっ

Table 1 金沢大学 (低レベル放射能実験施設) と原爆中性子誘導  $^{152}\text{Eu}$  の関わり

年 月	実施項目	備 考
1976.7	<i>in situ</i> 測定 (広島)	$^{152}\text{Eu}$ 発見
1977.7	<i>in situ</i> 測定 (長崎)	
1977.10	放射化学討論会で発表	
1979.8	<i>in situ</i> 測定 (広島)	
1982.11	<i>in situ</i> 測定 (広島)	DS86に向けての測定
1995.5	尾小屋地下測定室(270mwe)稼動	
1998.6	天然の $^{152}\text{Eu}$ , $^{60}\text{Co}$ の発見	
1999.9	JCO臨界事故調査	$^{198}\text{Au}$ 生成量が計算と一致
2001.8-	測定済み広島・長崎試料の再測定	> 1km以遠で検出できず
2001.11	~1kgの花崗岩試料での $^{152}\text{Eu}$ 測定実施	$^{36}\text{Cl}$ との Intercomparison
2002.3	11試料 (4 ブランク) の $^{152}\text{Eu}$ 測定	1.2km 以内の3試料 計算と一致
2002.8	追加7試料の $^{152}\text{Eu}$ 測定	1.4km以内の7試料 計算と一致

\* KOMURA Kazuhisa, Kanazawa University; [komura@yu.incl.ne.jp](mailto:komura@yu.incl.ne.jp)



Photo 1 原爆ドーム内での in situ 測定の様子と木曾義之教授（左）と阪上正信教授

た。「黒い雨」地域、広島大の竹下教授のグループによる測定で  $^{137}\text{Cs}$  濃度が高かった地域を中心に測定を行った。しかし、人工核種では  $^{137}\text{Cs}$  しか検出されず、その値も石川県内での測定値と同等かそれ以下であり、核爆発実験由来のフォールアウトのレベルを超えるものではなかった。調査最終日の8月4日、当時広島大学工学部の木曾義之教授のお世話で原爆ドーム内での「記念」測定が実現した。午後にドーム内に検出器を設置し、夕方から測定を開始した。Photo 1 は8月5日の朝刊に掲載されたもので、可搬型 Ge(Li) 検出器の横で木曾教授（左）と阪上教授（右）が歓談している姿が写っている。

現場でざっとスペクトルを見た限り、原爆由来の放射性核種は見つからず、新聞には「原爆の痕跡出ず」との記事が載っている（「出ず」は「いず」とも読める！）。研究室に帰り注意深く線スペクトルをプロットしたところ、Fig. 1 に示すように122keVと344keVに見えないピークが見つかった。

線エネルギーと原爆投下後30年を経て残存しているのは半減期13.542年の $^{152}\text{Eu}$ 以外にないことから原爆中性子誘導核種 $^{152}\text{Eu}$ と判断した。 $^{152}\text{Eu}$ を使えば原爆爆発時の中性子フルエンスが評価できことに気付いた。 $^{152}\text{Eu}$ の発見は京都大学原子炉実験所の報告書<sup>1)</sup>に簡単に記載されている。

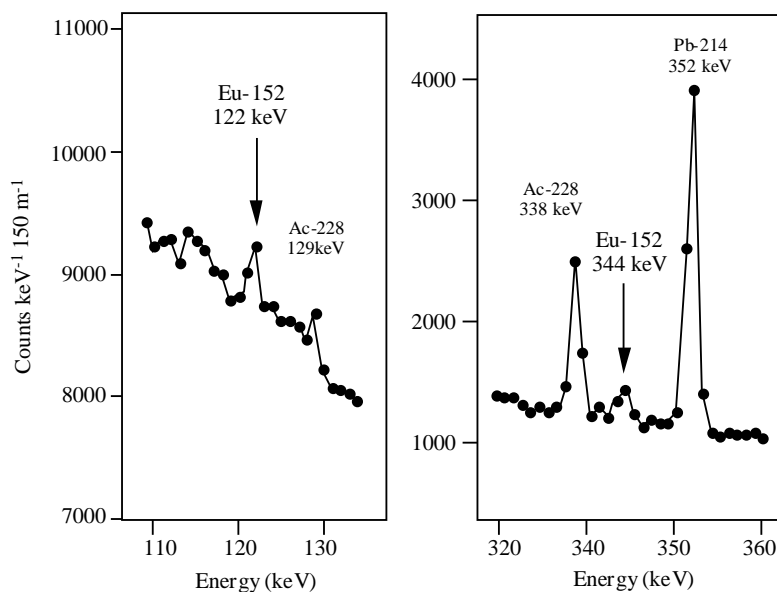


Fig. 1 原爆ドーム内での in situ 測定で発見された  $^{152}\text{Eu}$ （測定時間150分）

## 1.2 長崎における in situ 測定 (1977.8)

広島での *in situ* 測定で  $^{152}\text{Eu}$  が発見されたので、翌 1977 年 7 月の長崎での *in situ* 測定は、 $^{152}\text{Eu}$  の検出と黒い雨が降った西山地区を中心に実施した。爆風で吹き飛んだ浦上天守堂のドーム横、爆風で傾いた旧長崎医大の門柱横、爆心に近い長崎市平和町の高谷家（火球からの推定距離 620m）の庭石上などで測定を行い  $^{152}\text{Eu}$  の存在を確認した。この際に、表面が高温で融解した屋根瓦などの試料を高谷家から頂き、非破壊線測定により  $^{152}\text{Eu}$  (+  $^{154}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ) を測定した。1977 年 10 月に辰口で開催された第 21 回放射化学討論会で測定結果を報告した<sup>2)</sup>。

## 1.3 1979 年 8 月及び 1982 年 11 月の広島での *in situ* 測定

1976 年以降、1979 年 8 月と 1982 年 11 月の 2 回広島で *in situ* 測定を行なった。前者は広島大での集中講義のさいに阪上先生と大学院生の圓尾好宏氏（現核燃料サイクル機構）が元安橋の橋柱に可搬型 Ge-LEPS を向けて測定したもので、 $^{152}\text{Eu}$  の深度分布を指数関数と仮定し 122keV 線のピークを用いて解析した<sup>3)</sup>。後者は、TD65 の見直し作業の一環として、平和公園内の現レストハウス、護国神社の鳥居、ブロンズの狛犬（ $^{63}\text{Cu}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$  反応による  $^{60}\text{Co}$  も検出）と花崗岩の狛犬、広島城石垣等で *in situ* 測定を実施した。レストハウス 1 階のコンクリート壁から直径 10cm、長さ約 15cm の 4 本のコア試料を採取し、 $^{152}\text{E}$  の深度分布を 1cm 間隔で測定した。これらの結果は DS86 報告書の APPENDIX に報告されている<sup>4)</sup>。

広島・長崎における原爆中性子誘導核種  $^{152}\text{Eu}$  の国際誌への最初の報告を Nature に発表した<sup>5)</sup>。

## 2. 実測値と計算値の不一致問題との関わり

DS86 の APPENDIX には金沢大、広島大、長崎大による  $^{152}\text{Eu}$  の測定に関する論文が多数載っている。しかし、その多くは爆心から 500m 以内のものであり、1km 以遠の試料は長崎の 2 試料のみであった<sup>6)</sup>。これら  $^{152}\text{Eu}$  のデータは統計誤差も大きかったので DS86 報告書では APPENDIX 以上の扱いにならなかった。

その後、広島大や金沢大のグループで化学分離・濃縮による遠方試料の  $^{152}\text{Eu}$  と  $^{60}\text{Co}$  のデータが数多く報告された<sup>7,8,9)</sup>。これらの値を総合的に見ると、爆心近傍では DS86 による計算よりやや低いのが 1km までほぼ合っており、1km 以遠で実測値が高くなり、試料によってはその違いが 1 桁以上にもなることが分かった。測定誤差が大きいことを除けば測定上の不備が見つからないので、不一致の原因が計算側にあるのではないかとの見方が強まった。このような背景のもと DS86 の見直しを目的とする日-米ワークショップが 1994 年より定期的にかかれるようになった。

筆者はその当時、旧尾小屋鉱山のトンネル内での地下測定室の建設に力を注いでおり、ワークショップに参加できなかった。

## 3. 環境中性子によって生成する $^{152}\text{Eu}$ と $^{60}\text{Co}$ の発見<sup>10)</sup> (1998 年)

環境中性子によって生成する天然の  $^{152}\text{Eu}$  と  $^{60}\text{Co}$  について述べる前に、DS02 作成に重要な役割をした尾小屋地下測定室について簡単に触れておく。

尾小屋地下測定室は旧尾小屋鉱山のトンネル内の水深換算 270m 地点に設置されている。この地点のミュオン強度は地表の約 1/200、中性子強度は約 1/300 である<sup>11)</sup>。季節にもよるが、自然換気率が毎時約 6 回ほどあるので、ラドン濃度は 10~30 Bq m<sup>-3</sup> と低い。1995 年 6 月に 2 台の検出器で始まっ

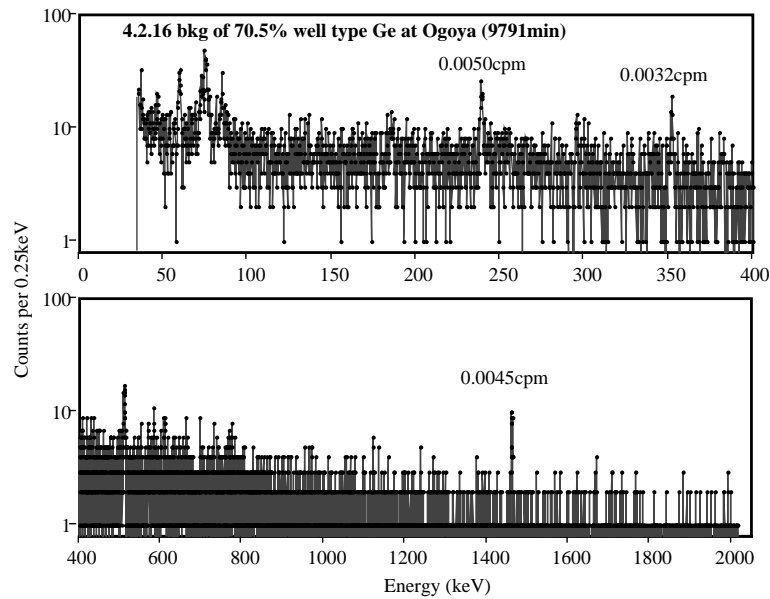


Fig. 2 相対効率 70.5%の井戸型 Ge 検出器のバックグラウンドスペクトル。  
 100 ~ 2000keV のグロスカウントは 1.3cpm、比較的高い 352keV (214Pb) 及び  
 1461keV (40K) でも 0.0032cpm と 0.0045cpm でしかない。

尾小屋地下測定室には 2004 年 7 月現在で 11 台の超低バックグラウンド仕様の Ge 検出器が稼働している。 $^{152}\text{Eu}$  の測定に用いた検出器の一つで相対効率 70.5%の井戸型 Ge 検出器のバックグラウンドスペクトルの詳細を Fig.2 に (測定時間 9791 分  $0.25\text{keV ch}^{-1} \text{h}^{-1}$  で表示) 他機関の検出器と比較したものを Fig. 3 に示す。Fig.3 から分るように尾小屋地下測定室設置の検出器は他機関の検出器よりバックグラウンド計数が約 2 桁低い。どの検出器を使っても 1 日 1 カウント程度のピーク計数があれば検出・定量が可能である。

$^{152}\text{Eu}$  の実測値と計算値の不一致が問題になって以来、環境中性子によって生成する  $^{152}\text{Eu}$  と  $^{60}\text{Co}$  がバックグラウンド成分として寄与しているのではないかと考えていたが、尾小屋測定室が稼働するま

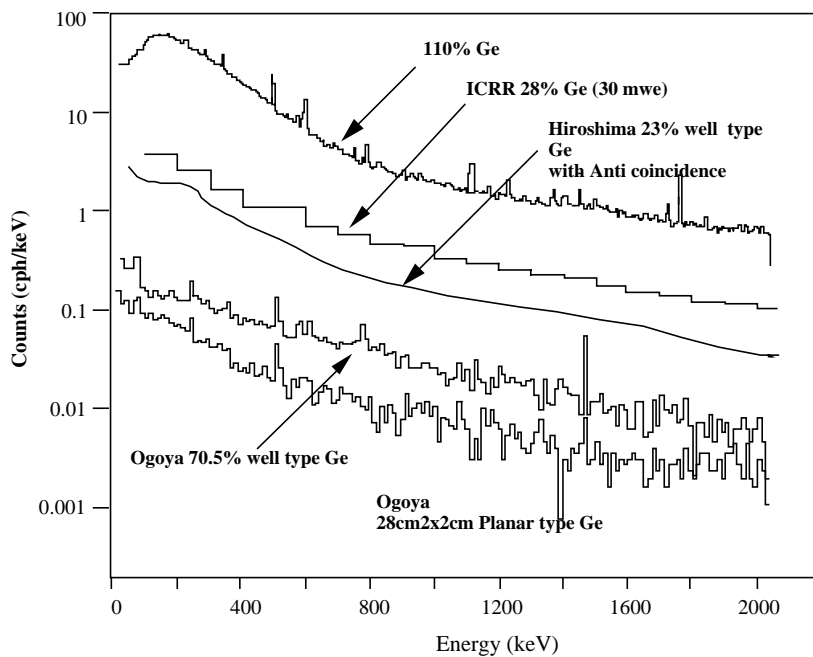


Fig. 3 尾小屋設置の Ge 検出器のバックグラウンドスペクトルと他機関の Ge 検出器の比較 (ICRR のものは、約 40mwe の地下)。比較のために縦軸は  $\text{cph keV}^{-1}$  で表したが、Ge 結晶の質量では規格化していない。

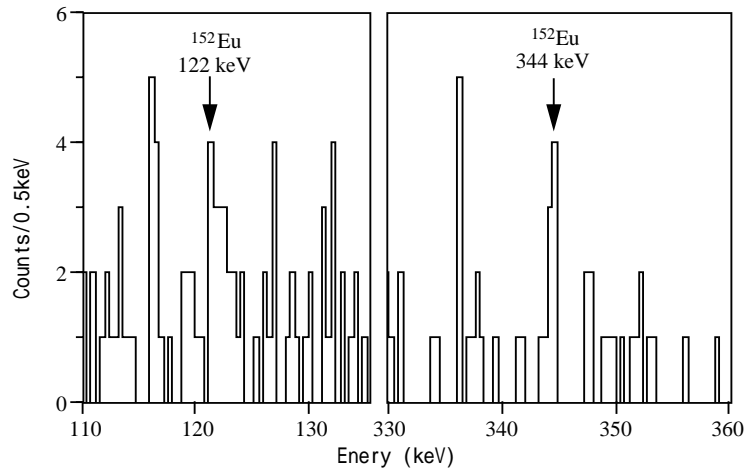


Fig. 4 1gの酸化ユーロピウム試薬の測定による $^{152}\text{Eu}$ の発見

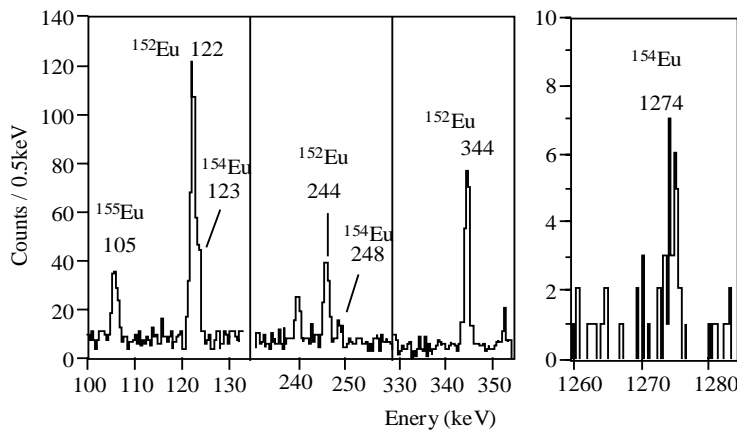


Fig. 5 10gの酸化ユーロピウム試薬中の $^{152}\text{Eu}$   $^{154}\text{Eu}$   $^{155}\text{Eu}$ の検出

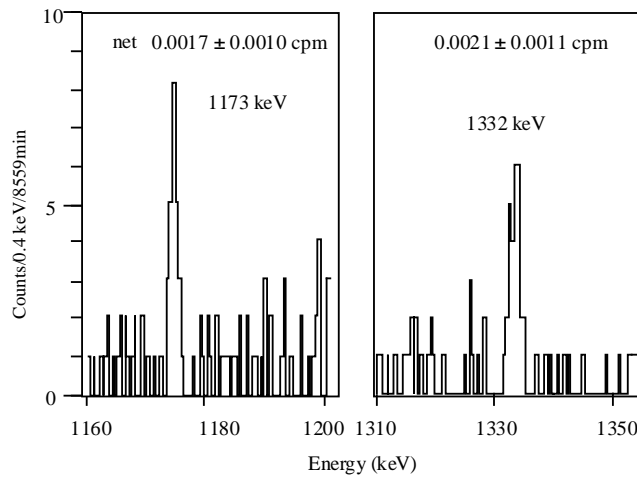


Fig. 6. 製造後50年以上経過した試薬の線スペクトル( $^{60}\text{Co}$ の発見)

で、この仮説を実証する手段がなかったのである。尾小屋での実証実験には、in situ 測定の模擬実験で使い残した酸化ユーロピウム( $\text{Eu}_2\text{O}_3$  1g)を用い、エネルギー分解能の良い planar 型の Ge 検出器で測定した。わずか1gしかないのに、検出されなくてもともと考えていたが、1日後には $^{152}\text{Eu}$ の122keV線の存在を示唆するスペクトルが得られ (Fig. 4)、天然の $^{152}\text{Eu}$ の検出に成功した(1998.6)。精度を高めるために10gの酸化ユーロピウムを測定すると $^{152}\text{Eu}$ のほかに、 $^{154}\text{Eu}$ と $^{155}\text{Eu}$ の存在も確認され (Fig. 5)、これらの濃度は環境中性子による天然放射性核種と考えて矛盾しないことを確認した。

一方、 $^{60}\text{Co}$ の場合、検出されても人工の $^{60}\text{Co}$ による汚染の可能性を否定できないので、50年以上

前に製造されたと考えられる旧金沢工専時代のコバルト試薬を測定した。検出器のバックグラウンドスペクトルにも  $^{60}\text{Co}$  のピークがあらわれるので、慎重にスペクトルを解析し、バックグラウンドを差し引いた正味の計数率は1日当たりわずか1~2カウントではあるが天然の  $^{60}\text{Co}$  の検出にも成功した (Fig. 6)。これらの発見を契機に、尾小屋での極低バックグラウンド測定による環境中性子により誘導核種の探索を行い、 $^{198}\text{Au}$  を含む約20の誘導核種の検出に成功した<sup>12)</sup>。

天然の  $^{152}\text{Eu}$  と  $^{60}\text{Co}$  の寄与は、DS86の計算値と比較して広島爆心から1.5km地点では1%以下及び10%以下にしかならないことが分かり、不一致を説明するためには別の解を探さなければならないことが必要になった。

#### 4. JCO 臨界事故による金の放射化の測定 (1999年)

東海村 JCO の臨界事故のさいに、筆者らは漏えい中性子による金の放射化を利用して中性子フルエンスを評価した。この結果、事故発生地点から1400mまで  $^{198}\text{Au}$  が検出され、その生成量は今中による理論計算とほぼ一致することが分かった<sup>13)</sup>。この事実は、原爆中性子による  $^{152}\text{Eu}$  及び  $^{60}\text{Co}$  の不一致が、これまで考えられていたのとは逆に実測側に原因があることを示唆するものであり、議論は振り出しに戻った。

#### 5. 広島・長崎の測定済み試料の再測定 (2001年)

実測側に不一致の原因があるかも知れないと考えられたので、静岡らによる測定で使用したものと比較して約1/30のバックグラウンド計数と約3倍の検出効率を有する相対効率73.5%と70.5%の2台の井戸型 Ge 検出器を使用して、広島17試料と長崎7試料を再測定した。

Fig. 7(a), (b)に広島県庁(881m)と真行寺(927m)で採取した試料の線スペクトルの例を示す。前者は  $^{223}\text{Ra}$ ( $^{227}\text{Ac}$ )由来の線(342.7keV)の妨害が比較的小さいので  $^{152}\text{Eu}$  の存在を確認できたが、後者は妨害が大きいため、確認は困難であった。他の試料も同様な状況であり  $^{227}\text{Ac}$  の妨害と  $^{152}\text{Eu}$  濃度が低いため、広島では1km以遠、長崎では600m以遠の試料では  $^{152}\text{Eu}$  を検出することができなかった。 $^{152}\text{Eu}$  を検出するには、もっと多量の試料の分析が必要であるという結論に至った。

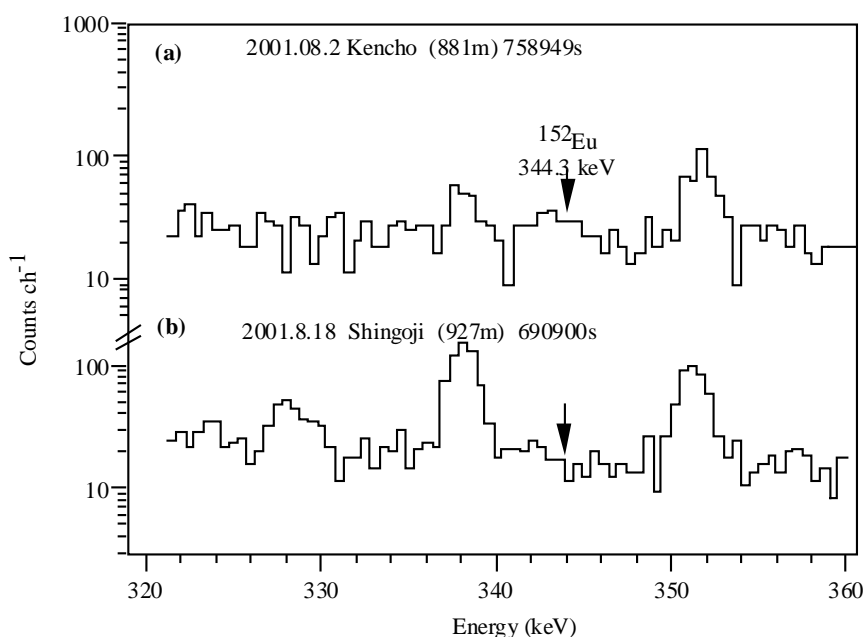


Fig. 7 (a) 広島県庁(881m)と(b)真行寺の被ばく花崗岩試料の線スペクトル

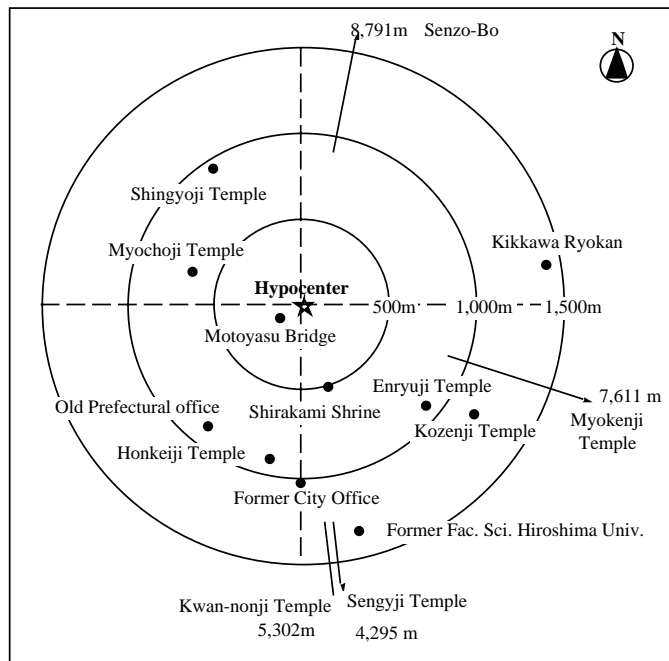


Fig. 8 Intercomparison で測定した花崗岩試料の採取地点

この結果を 2001 年 11 月に広島で開催された日米ワークショップで報告し、kg 量の試料を使えば 1km 以遠の  $^{152}\text{Eu}$  の検出が可能と考えられるので、不一致問題の解決には kg 量の試料を使って再測定することを提案した。この提案が採用され、1.4km 以内の 13 試料と、3km 以遠の 4 試料(ブランク試料)で新しい測定を実施することになった。各試料は、表層 5cm を切り取り、その大部分(0.34~2kg)を  $^{152}\text{Eu}$  測定に、残りを Utah 大学(米)、Ludwich Maximilian 大学(独)及び筑波大学の 3 機関で AMS 法により  $^{36}\text{Cl}$  を測定し相互比較することになった。これがいわゆる Intercomparison プロジェクトである。新たに測定した試料のサンプリング地点を Fig. 8 に示す。

大量の花崗岩中に ppm レベルしか含まれていない Eu を短期間に分離濃縮する作業は大学では困難との判断から化学処理は日本分析センターで行われた。Eu 濃縮試料が研究室に届いたのは 2002 年 1 月末であった。Eu の化学収率は 65~85% で濃縮は約 40 倍であった。さらに減容するために、450 で加熱して水分を除き、油圧器により直径 19mm の測定線源を作成した。線測定の結果から、化学処理による U 系列、Th 系列核種および K の除染係数はそれぞれ約 2000, 100 及び 10000 と判断された。化学的性質が Eu に極めて類似している上に線エネルギーが  $^{152}\text{Eu}$  の 344keV に近接した 342.7keV の線を放出する  $^{227}\text{Ac}$  の除染は悪くて、良好な試料で約 50、悪い試料で僅か 5 であった。このため、1km 以遠の試料の  $^{152}\text{Eu}$  の測定には長時間を要しスペクトル解析も大変であった。Fig. 9 (a), (b), (c), (d) に新しく測定した試料の線スペクトルの例を示す。

$^{152}\text{Eu}$  濃度が比較的高い試料のスペクトル解析には自作の最小二乗フィッティングプログラムを使用した。1km 以遠の  $^{152}\text{Eu}$  の濃度の低いものは最小二乗法による解析に適さない。ほぼ同一条件で測定した各成分(放射平衡にある NBL 42-1 標準ウラン、Th 濃度の高いモナザイト、KCl 及び  $^{227}\text{Ac}$ ) で得たスペクトルを参照して Peeling Off 法で  $^{152}\text{Eu}$  のピーク面積を求めた。ピーク計数率から濃度への換算は以下に示す標準的な手法によった。

344keV 線の計数率(cpm)と各試料に対する検出効率、線の放出を用いて測定時点の  $^{152}\text{Eu}$  放射能( $\text{Bq mg}^{-1}$ )をまず求めた。この値から環境中性子によって生成した  $^{152}\text{Eu}$  をブランク値として差引き、原爆投下時の放射能を算出した。環境中性子による  $^{152}\text{Eu}$  のブランク値としては中性子フラックス

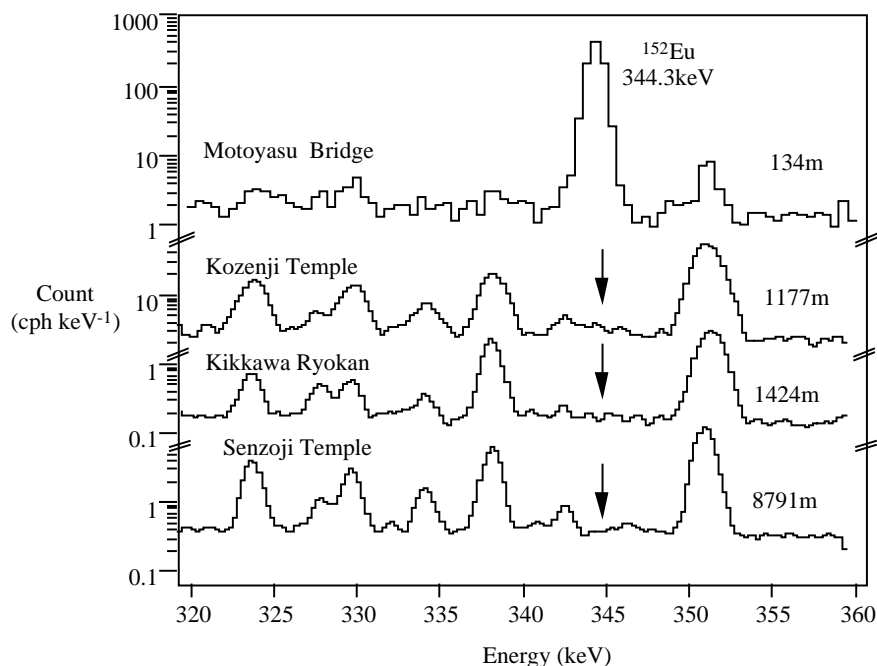


Fig. 9 極低バックグラウンド井戸型 Ge 検出器で測定した(a)元安橋(134m)、(b)白神神社(504m)、(c) 広禅寺(1177m)及び(d)ブランク試料の線スペクトル。

( $8 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ )の1/3が $^{152}\text{Eu}$ の生成に寄与するものと仮定した。この値は、金をターゲットに用いて求めた広島と長崎のいくつかの建物のコンクリート屋上で測定した(熱)中性子フラックスの約2倍にあたるので、引き過ぎかも知れないが、1400m地点でさえ実測値測定値の数%以下であるため、原爆投下直後の $^{152}\text{Eu}$ の値への影響はほとんどない。

このようにして求めた原爆爆発時の $^{152}\text{Eu}$ の放射能をTable 2に示し、距離の関数としてプロットしたものをFig. 10に示す。図中の実線はDS02による計算値で、は以前の測定値、は新しい測定値である。測定誤差は化学分離、線測定の統計誤差及び検出効率測定の系統誤差を考慮した標準偏差

Table 2.花崗岩試料の測定で得た $^{152}\text{Eu}$ 生成量

試料番号	採取地点	爆心からの距離 (m)	$^{152}\text{Eu}$ 放射能(Bq/mg-Eu)
1	元安橋	146	99.4 ± 5.5
2	護国神社	496	15.2 ± 0.89
4	妙長寺	654	6.2 ± 0.38
5	元県庁	881	1.57 ± 0.1
3	本願寺	893	0.99 ± 0.07
6	円隆寺	912	1.06 ± 0.09
7	真行寺	927	0.78 ± 0.10
8	旧市役所	1016	0.27 ± 0.09
9	広禅寺	1163	0.15 ± 0.03
18A	旧広島大"E"棟-1	1374	< 0.1
18B	旧広島大"E"棟-2	1374	< 0.1
17	吉川旅館	1411	0.038 ± 0.019
10	専行寺	4295	ND
11	観音寺	5302	ND
14	千蔵坊	8791	ND
15	妙願寺7	7611	ND



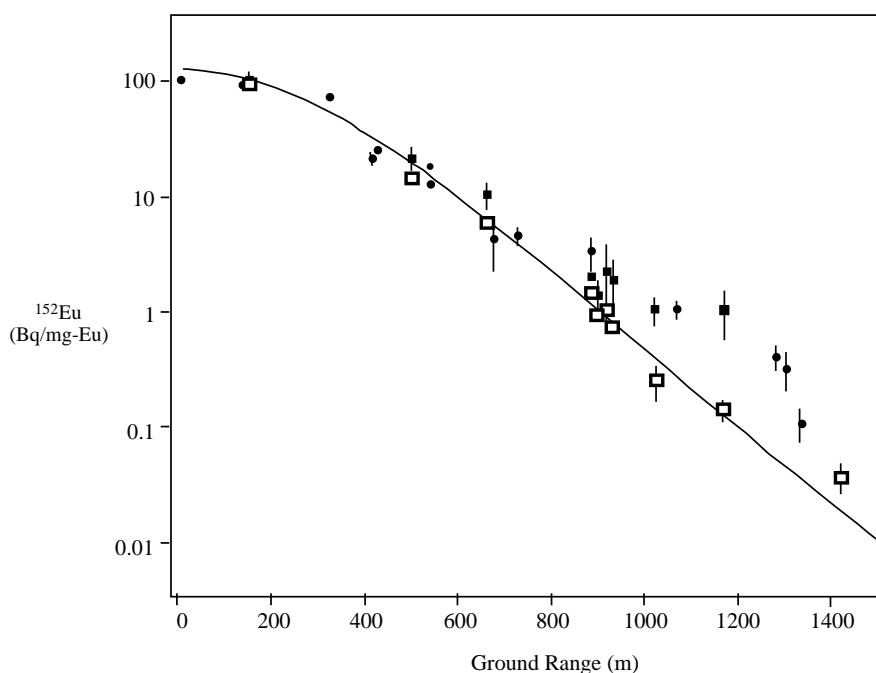


Fig. 10  $^{152}\text{Eu}$  生成量と DS02 及び以前の測定との比較

1 である。

図 10 からわかるように、kg レベルの多量の試料を使って得た  $^{152}\text{Eu}$  の測定値は 1km を超えた地点においても DS02 による計算値とほぼ一致している。過去 20 数年にわたって議論されてきた実測と計算の不一致問題はこのような測定によって解決されたものと考えられる。

おわりに

従来の測定より 2 桁以上良い条件で測定して得られた  $^{152}\text{Eu}$  の値は、新しい原爆放射線被ばく線量評価システム DS02 による計算値と爆心から 1.4km の範囲においてはよく一致することが分かった。さらに遠方について評価するには  $^{227}\text{Ac}$  による汚染を 1 桁以上低減することが必要である。化学処理に多大な時間と労力を必要とするため、この課題は今後に残すこととしたい。

参考文献

1. 阪上正信、小村和久：昭和 51 年度文部省科学研究費総合研究(A)報告、KURRI-TR-155, pp. 20-34 (1977).
2. 小村和久、中西孝、森本朋子、阪上正信：第 21 回放射化学討論会講演要旨集, pp. 82-83 (1977).
3. M. Sakanoue, et al.: in Int. Symp. Methods Low-Level Counting and Spectrometry, Vienna: International Atomic Energy Agency, publication IAEA STI/PUB/592. pp. 105-124 (1981).
4. M. Sakanoue et al.: DS86 (Dosimetry System 1986, Vol. 2, pp. 261-265
5. T. Nakanishi et al.: Nature 302, 132-133 (1983).
6. T. Nakanishi et al.: DS86 pp. 310-319 (1987); S. Okajima and J. Miyajima: *ibid*, pp. 256-260 (1987); H. Hasai et al.: DS86 (Dosimetry System 1986, Vol. 2, pp. 295-309 (1987).
7. H. Hasai et al.: Health Phys., 53 (3), 227-239 (1987).
8. K. Shizuma et al.: Health Phys., 75, 1-7 (1998).
9. T. Nakanishi et al. Journal of Radiation Research, 32 (suppl.), 69-82 (1991).

10. K. Komura and A. M. Yousef: Proc. International Workshop on Distribution and Speciation of Radionuclides in the Environment (Ed. J. Nanba, S. Hisamatsu & Y. Otsuka), Rokkasho, Aomori, Japan, October 11-13, 2000,. pp. 210-217 (2000).
11. 山西弘城、三宅均山崎 直、小村和久：トンネルを利用した TLD とガラス線量計の自己線量の測定、保健物理 **38** (1), 45-49 (2003)
12. K. Komura, in The Royal Society of Chemistry 2003, Special Publication 291, 53-59 (2003).
13. K. Komura et al.: Journal Environmental Radioactivity, 50 (1,2), 77-82 (2000).