

# 広島大での $^{152}\text{Eu}$ , $^{60}\text{Co}$ の測定

静岡 清\*

広島大学大学院工学研究科

## 1. はじめに

DS86 の最終報告書がまとめられた頃、 $^{152}\text{Eu}$ ,  $^{60}\text{Co}$  の実測データ数はそれほど多くはなかった。中西、阪上らによる  $^{152}\text{Eu}$  データと岡島、宮島らの長崎データはおおまかには DS86 による計算値と一致している<sup>1)</sup>。ただし、橋詰ら<sup>2)</sup>による  $^{60}\text{Co}$  データは計算と系統的にずれることが指摘されていた<sup>1)</sup>。その後、広島、長崎ともに  $^{152}\text{Eu}$  実測データ、 $^{60}\text{Co}$  実測データが蓄積された。この報告では広島グループのデータ収集を紹介し、測定結果と DS86 および DS02 中性子線量にもとづく放射化の計算結果との比較について示す。

## 2. 試料

広島： $^{152}\text{Eu}$  測定試料

広島市の爆心から約 2km 以内において 70 サンプルの被爆試料を収集した<sup>3)</sup>。この他に、対照試料として 2.9km にあった広島商業高校の岩石サンプルを使用した。これらの試料は花崗岩、コンクリート、屋根瓦などで、被爆時の場所がはっきりわかることと、遮蔽されていないで直接被爆していることを条件とした。岩石試料は表面の 10cm × 10cm × 2cm を使用した。この他に、被爆試料収集の過程で広島大学理学部岩石学教室に被爆試料<sup>4)</sup>が保管されていることがわかった。試料の詳細は別にのべる。これらの試料は現在では建物の残っていない爆心地付近の多くの試料が含まれていた。広島市内の岩石試料の採取場所を図 1 に示す。

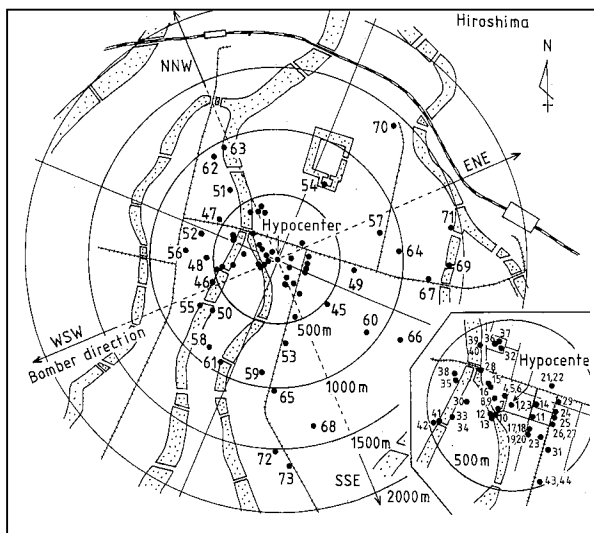


図 1 広島市内の被爆岩石試料の採取場所<sup>3)</sup>

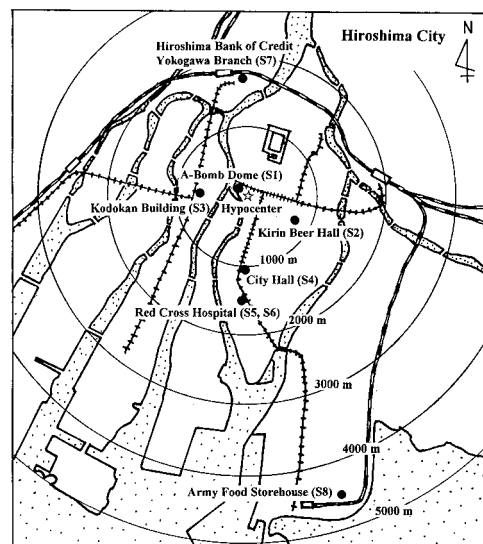


図 2 広島市内の被爆鉄材試料の採取場所<sup>1,2)</sup>

\* SHIZUMA Kiyoshi, Hiroshima University; [shizuma@hiroshima-u.ac.jp](mailto:shizuma@hiroshima-u.ac.jp)

広島：<sup>60</sup>Co 測定試料

被爆鉄材は岩石試料に比べてそれほど多く残存していなかった。橋詰らの<sup>60</sup>Co 測定ではコンクリート中の表面から 8cm の深さの鉄材<sup>2)</sup>と建物屋上にあった鉄リング<sup>5)</sup>が使用されたが、本研究では建物屋上の避雷針、手すり、はしごなどが集められた。また、対照試料として約 4.5km にあった旧陸軍の建物の窓の鉄板を使用した。広島市内の被爆鉄材試料の採取場所を図 2 に示す。

長崎：<sup>152</sup>Eu 測定試料

長崎においては広島の場合よりも<sup>152</sup>Eu の比放射能が低ので(地上距離 GR=500m で広島の約 1/5)爆心から約 1km の範囲内で写真や資料<sup>6, 7)</sup>をもとに被爆が確実な試料を採取した。その結果、9ヶ所からの岩石サンプルと対照試料として爆心から 2.8km にあった丸尾町の石垣を収集した。9 サンプルの位置を図 3 に示す。

長崎：<sup>60</sup>Co 測定試料

被爆鉄材は長崎大のグループ<sup>8)</sup>および RERF で採取された試料を使用した。これらの試料はコンクリート中 1~5cm の深さにあった鉄筋：高谷家 (NS1, GR=290m)、城山小学校 (NS2, GR=540m)、本木橋 (NS4, GR=780m) および表面にあった鉄材：長崎大学病院てすり (NS3, GR=653m)、三菱製鋼 (NS5, GR=935m) である。試料の採取位置を図 4 に示す。

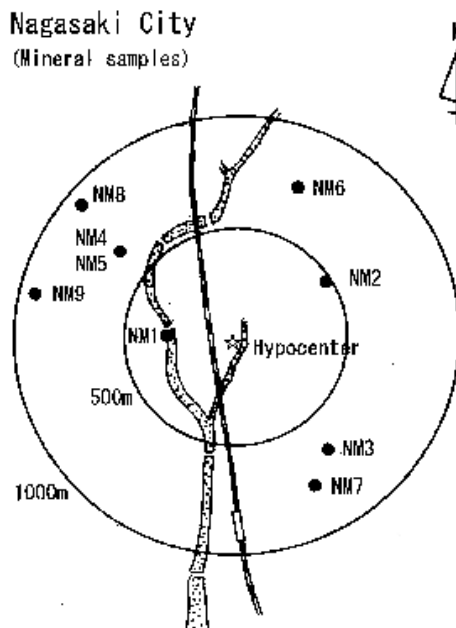


図 3 長崎市内の被爆岩石試料の採取場所

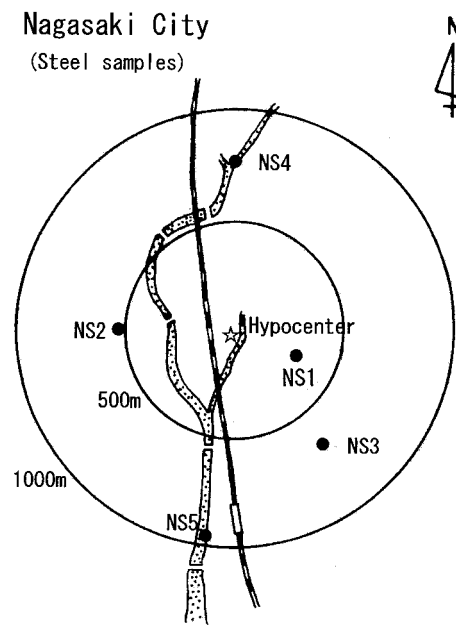


図 4 長崎市内の被爆鉄材試料の採取場所

### 3. 試料処理

#### $^{152}\text{Eu}$ 測定のための試料

広島の場合、1985年頃において爆心から約500m以内のサンプルは化学処理なしで直接 $^{152}\text{Eu}$ を測定することが可能であった。これらの試料は100メッシュ(149 $\mu\text{m}$ )以下に粉末化したのち、プラスチック容器に詰めて測定用試料とした。その後、近距離試料を含めて500m以遠のサンプルについて化学処理を行い、Eu濃縮試料を作成した。化学処理の方法は中西ら<sup>9)</sup>の方法を簡略化した方法で行った。化学処理の過程では岩石に含まれるウラン系列、トリウム系列核種も一緒に濃縮されるので $\text{BaSO}_4$ による共沈法でこれらを除いた。最終的に得られた数グラムの濃縮試料をポリプロピレン試験管に詰めて井戸型Ge検出器の測定用試料とした。使用した原試料重量は近距離で100gから遠距離では500g程度であった。通常、岩石試料に含まれるEu含有量は1ppm程度であるのに対して、化学処理により10-20ppmに濃縮できた。

#### $^{60}\text{Co}$ 測定のための試料

$^{60}\text{Co}$ の測定には主として被爆鉄材を使用した。岩石中にも約30ppmの割合でCoが含まれている。従って、爆心近くの岩石からは1990年当時でも濃縮分離処理を行わなくても $^{60}\text{Co}$ が検出できた。爆心から250m付近までの6サンプル(島病院、広島郵便局、西向寺、日本生命ビル、忠霊塔、安田生命ビル)について粉末試料から $^{60}\text{Co}$ を直接測定した<sup>3)</sup>。鉄材の化学分離のために、まず鉄材をフライスを用いて小片チップの切断したのち、熱HClに溶かした。主成分である鉄成分はイソプロピルエーテルによる溶媒抽出<sup>10)</sup>を繰返して除いた。その後、陰イオン交換樹脂を通してNi、Co、Feその他に分離したのち、Coフラクションを取りだした。試料調整に使用した鉄材は近距離1km以内では約800g、1km以遠では1200~1500kgを使用した。

### 4. 測定装置

化学処理を行わない試料は約30gの粉末をプラスチック容器(54mm x 60mm)に詰めて、有感体積124 $\text{cm}^3$ の低バックグラウンドGe検出器<sup>11)</sup>(鉛遮蔽20cm)でガンマ線の測定を行った。化学処理を行った濃縮試料は数グラムの濃縮試料をポリプロピレン管に入れ、井戸型Ge検出器<sup>11)</sup>で測定した。この測定系は宇宙線バックグラウンドを低減するために逆同時計数回路が付属している。また、試料の一部は $^{252}\text{Cf}$ 中性子照射装置を利用して安定Euの分析を行った。Co濃縮試料についてもポリプロピレン管に入れ井戸型Ge検出器で測定した。

### 5. 結果と考察

広島の $^{152}\text{Eu}$ <sup>3)</sup>および $^{60}\text{Co}$ の結果<sup>12)</sup>を図5, 6に示す。長崎の $^{152}\text{Eu}$ <sup>13)</sup>、 $^{60}\text{Co}$ <sup>14)</sup>の結果を図7, 8に示す。自然界には主として宇宙線起源の中性子が存在している。これらの中性子により被爆試料内に $^{152}\text{Eu}$ 、 $^{60}\text{Co}$ が生成されている可能性がある。実際に数グラムのEuやCo(被爆試料ではなく購入された試薬)をGe検出器で測定すると $^{152}\text{Eu}$ 、 $^{60}\text{Co}$ <sup>14)</sup>が測定できることを確かめることができた。しかしながら、原爆被爆試料から化学処理により調整した濃縮試料に含まれるEuは数マイクログラム、Coは数ミリグラムであるので、原爆中性子により生成された放射化量に比べて無視できる程度であると( $<10^{-3}$ )といえる。

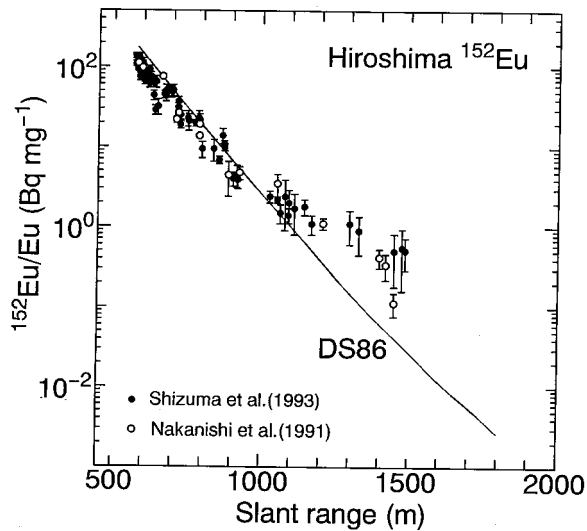


図5 広島 の  $^{152}\text{Eu}$  測定結果 (文献3)

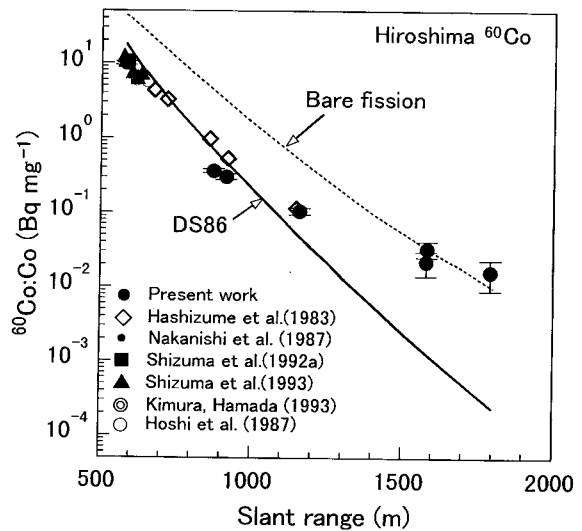


図6 広島 の  $^{60}\text{Co}$  測定結果 (文献12)

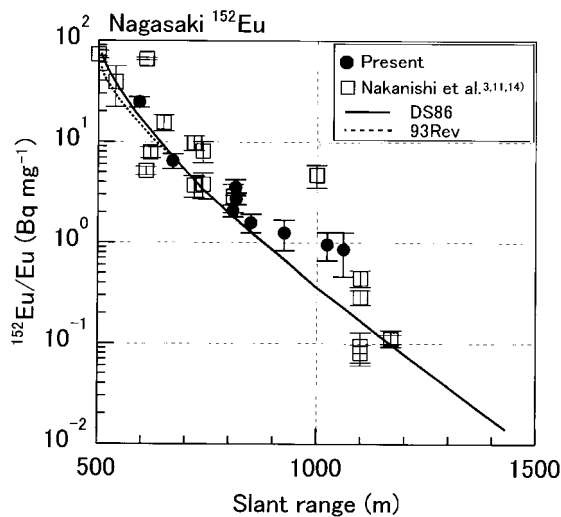


図7 長崎 の  $^{152}\text{Eu}$  測定結果 (文献13)

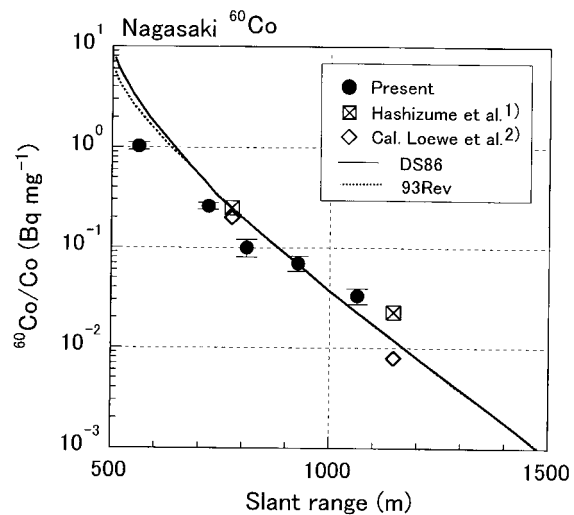


図8 長崎 の  $^{60}\text{Co}$  測定結果 (文献14)

図5においては爆心から Slant range で 1488 m までの結果を示したが、実際にはガンマ線が微弱になると検出限界が問題となる。広島および長崎のサンプルについて実測された計数率と検出ここで、検出限界<sup>15)</sup>は  $n^* = 2.33 \cdot b$  ( $b$  はガンマ線ピーク領域のバックグラウンド計数率)として限界を比較した。表1<sup>13)</sup>において  $n_0$  は測定した計数率で、 $n^*$  は検出限界に相当する計数率を示す。

ここで、検出限界<sup>15)</sup>は  $n^* = 2.33 \cdot b$  ( $b$  はガンマ線ピーク領域のバックグラウンド計数率)として計算した。広島約 1200m 以遠では検出限界以下となる。長崎の 1061m までの範囲では検出限界以下となることはなかった。

同様に  $^{60}\text{Co}$  について実際の計数率と検出限界を比較した結果を表2に示す。 $^{60}\text{Co}$  の場合には計数率はすべての試料について検出限界以下となることはなかった。長崎の  $^{60}\text{Co}$  の結果は計算とほぼあっているとみなされる。広島約 1500m 以遠で計算より高くなるが、この原因が何によるものかは不明である。

Table 1 長崎・広島の  $^{152}\text{Eu}$  測定の検出限界 (文献 13)

Sample No.	Place	Slant range (m)	Measurement		Peak counts (344keV)		Background		d.m.c <sup>a</sup>	$n_0 / n^*$
			Date	time T (s)	$N_0$	$n_0(\text{cps})$	$N_b$	$b$	$n^* (\text{cps})$	
Nagasaki										
NM1	Yana bridge	594	990908	515690	465 ± 32	9.0×10 <sup>-4</sup>	325	18	8.1×10 <sup>-5</sup>	11
NM2	Ukrakami church	677	940906	670720	127 ± 27	1.9×10 <sup>-4</sup>	380	19	6.8×10 <sup>-5</sup>	2.8
NM3	Nagasaki Univ. hospital	653	940917	770110	178 ± 29	2.3×10 <sup>-4</sup>	560	24	7.3×10 <sup>-5</sup>	3.2
NM4	Gokoku shrine-A	815	991026	1178360	285 ± 59	2.4×10 <sup>-4</sup>	725	27	3.7×10 <sup>-5</sup>	4.6
NM5	Gokoku shrine-B	816	991012	1201000	178 ± 31	1.5×10 <sup>-4</sup>	550	23	4.5×10 <sup>-5</sup>	3.3
NM6	Nanzan school-A	850	990922	1717590	119 ± 34	6.9×10 <sup>-5</sup>	985	31	4.2×10 <sup>-5</sup>	1.6
NM7	Shimoda house	926	991207	1201650	64 ± 37	5.3×10 <sup>-5</sup>	560	23	1.9×10 <sup>-5</sup>	2.8
NM8	Prefectural gymnasium	1024	991221	1116340	69 ± 33	6.2×10 <sup>-5</sup>	520	23	4.8×10 <sup>-5</sup>	1.3
NM9	St. Maria school	1061	000430	1551170	99 ± 31	6.4×10 <sup>-5</sup>	800	28	4.2×10 <sup>-5</sup>	1.5
NM11	Maruocho (control)	2889	990601	895430	-	-	664	26	6.8×10 <sup>-5</sup>	-
Hiroshima										
1	Shima hospital	579	910117	81130	254 ± 20	3.1×10 <sup>-3</sup>	50	7	2.0×10 <sup>-4</sup>	25
45	Naka telephone office	774	901114	139970	263 ± 28	1.9×10 <sup>-3</sup>	250	16	2.6×10 <sup>-4</sup>	12
52	Myochgoji	873	900926	378200	175 ± 27	4.6×10 <sup>-4</sup>	260	16	9.9×10 <sup>-5</sup>	7.7
60	Enryuji	1081	910227	220400	31 ± 18	9.5×10 <sup>-5</sup>	270	16	6.9×10 <sup>-5</sup>	1.3
63	Teramachi stone wall	1112	910114	200240	35 ± 19	1.7×10 <sup>-4</sup>	120	11	1.3×10 <sup>-4</sup>	1.4
66	Kozenji	1299	910720	550680	31 ± 18	3.4×10 <sup>-4</sup>	300	17	7.2×10 <sup>-5</sup>	0.5
68	Primary school	1450	901119	425730	24 ± 17	5.6×10 <sup>-5</sup>	300	17	9.5×10 <sup>-5</sup>	1.0
70	Communication hospital	1488	910722	747820	62 ± 40	8.3×10 <sup>-5</sup>	1100	33	1.0×10 <sup>-4</sup>	0.8
Control	Comercial high school	2928	000713	1270310	-	-	700	27	4.7×10 <sup>-5</sup>	-

<sup>a</sup> Detectable minimum counting rate :  $n^* = 2.33 \cdot b \cdot T^{-1}$

Table 2 長崎・広島の  $^{60}\text{Co}$  測定の検出限界 (文献 14)

No.	Place	Measuring time T (s)	Peak counts (1173+1332) $N_S(\text{counts})$	Peak counting rate $n_0(\text{counts s}^{-1})$	Background counts		d.m.c <sup>a</sup>	Ratio $n_0 / n^*$
					$N_B$	$b$	$n^* (\text{counts s}^{-1})$	
[Nagasaki]								
NS1	Takatani	267020	199 ± 17	7.5 × 10 <sup>-4</sup>	50	7.0	6.1 × 10 <sup>-5</sup>	12
NS2	Shiroyama	455450	300 ± 23	6.6 × 10 <sup>-4</sup>	160	12.6	6.4 × 10 <sup>-5</sup>	10
NS3	Nagasaki Univ.	739200	75 ± 15	1.0 × 10 <sup>-4</sup>	100	10.0	3.2 × 10 <sup>-5</sup>	3.2
NS4	Motoki Bridge	1165860	140 ± 22	1.2 × 10 <sup>-4</sup>	280	16.7	3.3 × 10 <sup>-5</sup>	3.6
NS5	Mitsubishi Steel	1265260	143 ± 24	1.1 × 10 <sup>-4</sup>	300	17.3	3.2 × 10 <sup>-5</sup>	3.6
[Hiroshima]								
S1	A-Bomb Dome	269150	2901 ± 54	10.8 × 10 <sup>-3</sup>	44	6.6	5.7 × 10 <sup>-5</sup>	188
S2	Kirin Beer Hall	278530	580 ± 27	2.1 × 10 <sup>-3</sup>	58	7.6	6.4 × 10 <sup>-5</sup>	33
S3	Kodokan Building	607140	353 ± 21	5.8 × 10 <sup>-4</sup>	101	10	3.9 × 10 <sup>-5</sup>	15
S4	City Hall	611420	275 ± 24	4.5 × 10 <sup>-4</sup>	102	10.1	3.8 × 10 <sup>-5</sup>	12
S5	Red Cross Hospital (pipe)	823710	79 ± 21	0.96 × 10 <sup>-4</sup>	148	12.2	3.4 × 10 <sup>-5</sup>	2.8
S6	Red Cross Hospital (ladder)	938660	122 ± 18	1.3 × 10 <sup>-4</sup>	168	13.0	3.2 × 10 <sup>-5</sup>	4.0
S7	Hiroshima Back of Credit	1313690	151 ± 21	1.1 × 10 <sup>-4</sup>	221	14.9	2.6 × 10 <sup>-5</sup>	4.1
S8	Army Foods Storehouse	1288030	-	-	230	15.2	2.7 × 10 <sup>-5</sup>	-

<sup>a</sup> Detectable minimum counting rate  $n^* = 2.326 \cdot b / T$

広島については 1000m までで議論することが日米 WG で合意された。1000m までの範囲では DS86 では爆心から約 800m まで計算値が過剰である。DS02 では新たに、爆発高度の変更と爆発威力が見直されて、 $^{152}\text{Eu}$ 、 $^{60}\text{Co}$  の放射化量も再計算された。その結果、爆心近くではずれはかなり改善され、1000m 付近までの範囲でほぼあっていると見える。広島における  $^{152}\text{Eu}$  および  $^{60}\text{Co}$  の測定値と DS02 中性子線量に基づく計算値との比較を図 9、図 10 に示す。

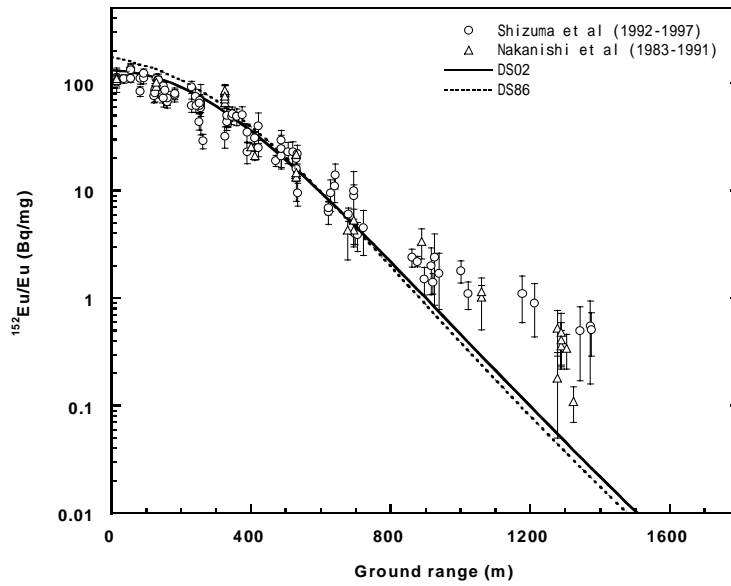


図9 広島における  $^{152}\text{Eu}$  測定値と DS02 中性子に基づく計算値の比較

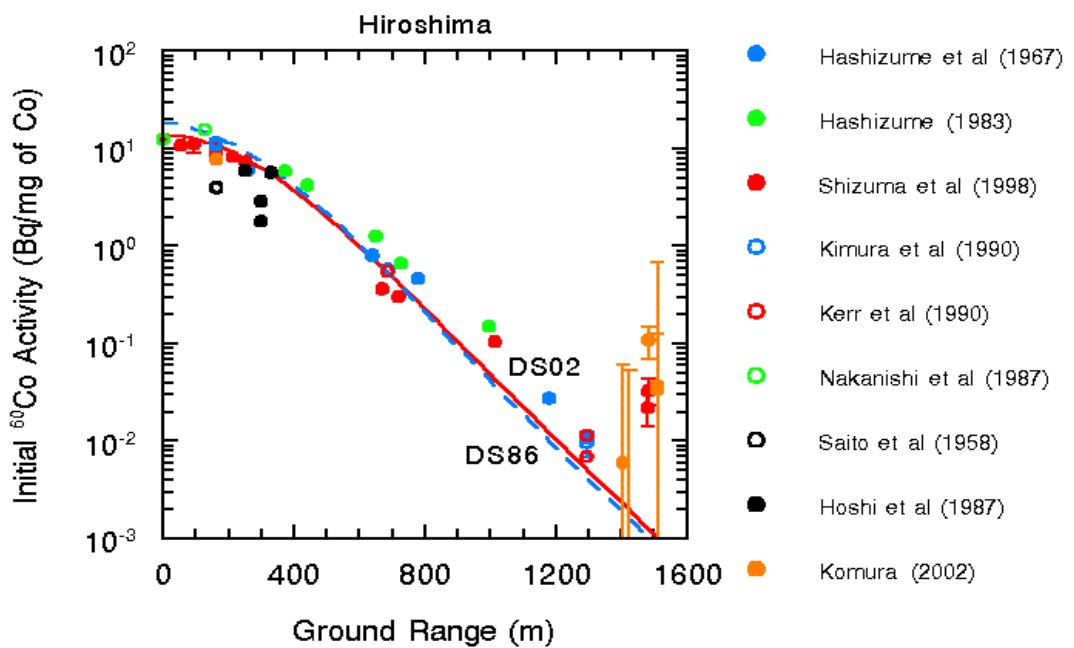


図10 広島における  $^{60}\text{Co}$  測定値と DS02 中性子に基づく計算値の比較

参考文献

1) Loewe, W.E., Mendelsohn, E., Hamada, T., Maruyama, T., Okajima, S., Pace, J.V., Sakanoue, M., Kondo, S., Hashizume, T., Marcum, J., Woolson, W.A.(1987) Measurements of neutron fluences. In: Roesch, W.C., Ed. US-Japan joint reassessment of atomic radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, final report. Hiroshima: Radiation Effects Research Foundation; Vol.1: pp.185-204.

- 2) Hashizume, T.; Maruyama, T.; Shiragai, A.; Tanaka, S. (1967) Estimation of the air dose from the atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. *Health Phys.* **13**: 149-161.
- 3) Shizuma, K., Iwatani, K., Hasai, H., Hoshi, M., Oka, T., Morishima, H. (1993) Residual  $^{152}\text{Eu}$  and  $^{60}\text{Co}$  activities induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb, *Health Phys.* **65**: 272-282.
- 4) Watanabe, T., Yamasaki, M., Kojima, G., Nagaoka, S., Hirayama, K. Geological study of damages caused by atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki. *Japan J. Geol. Geogr.* **24**: 161-170; 1954.
- 5) Hashizume, T. Present plans for dose reassessment experiments by the Japanese. In: U.R.-Japan Joint Workshop for Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki. Hiroshima, Japan; RERF 1983: 7-12.
- 6) 長崎被爆 50 周年事業「被爆建造物等の記録」、同図面集、長崎市（平成 8 年 3 月 25 日）
- 7) 「原子爆弾 広島・長崎の写真と記録」仁科記念財団（光風社、昭和 48 年）
- 8) 岡島俊三、昭和 59 年度科学研究費補助金研究成果報告書「原爆線量の評価に関する研究」昭和 60 年 3 月
- 9) Nakanishi, T., Ohtani, T., Mizuochi, R., Miyaji, K., Yamamoto, T., Kobayashi, K., Imanaka, T. Residual neutron induced radioactivities in samples exposed to the nuclear explosion over Hiroshima. *J. Radiat. Res. (supl. 32)* 69-82; 1991.
- 10) Kawamura, S., Izawa, M., Maruyama, T., Tanaka, E., Hashizume, M. determination of  $^{60}\text{Co}$  to  $\text{Co}$  ratio for the estimation of fast neutron dose from the atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. *Health Phys.* **13**: 801-806; 1967.
- 11) Shizuma, K., Fukami, K., Iwatani, K., Hasai, H. (1992b) Low-background shielding of Ge detectors for the measurement of residual  $^{152}\text{Eu}$  radioactivity induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb. *Nucl. Instrum. Methods B66*: 459-464.
- 12) Shizuma, K., Iwatani, K., Hasai, H., Oka, T., Endo, S., Takada, J., Hoshi, M., Fujita, S., Watanabe, T., Imanaka, T. (1998) Residual  $^{60}\text{Co}$  activity in steel samples exposed to the Hiroshima atomic-bomb neutrons. *Health Phys.* **75**: 278-284.
- 13) Shizuma, K., Endo, S., Hoshi, M., Takada, J., Ishikawa, M., Iwatani, K., Hasai, H., Oka, T., Fujita, S., Watanabe, Yamashita, T., Imanaka, T. (2003) Measurement of Residual  $^{152}\text{Eu}$  Activity Induced by Atomic-Bomb Neutrons in Nagasaki and Contribution of Environmental Neutrons to This Activity. *J. Radiat. Res.* **44**: 133-139.
- 14) Shizuma, K., Endo, S., Hoshi, M., Takada, J., Iwatani, K., Hasai, H., Oka, T., Shimazaki, T., Okumura, Y., Fujita, S., Watanabe, T., Imanaka, T. (2002) Measurement of Residual  $^{60}\text{Co}$  Activity Induced by Atomic-Bomb Neutrons in Nagasaki and Background Activation by Environmental Neutrons. *J. Radiat. Res.* **43**: 387-396.
- 15) Currie, L. A. (1968) Limits for qualitative detection and quantitative determination. *Anal. Chem.* **40**: 586-593.