

液体シンチレーション法による広島原爆被爆銅試料中の⁶³Niの測定

柴田誠一*

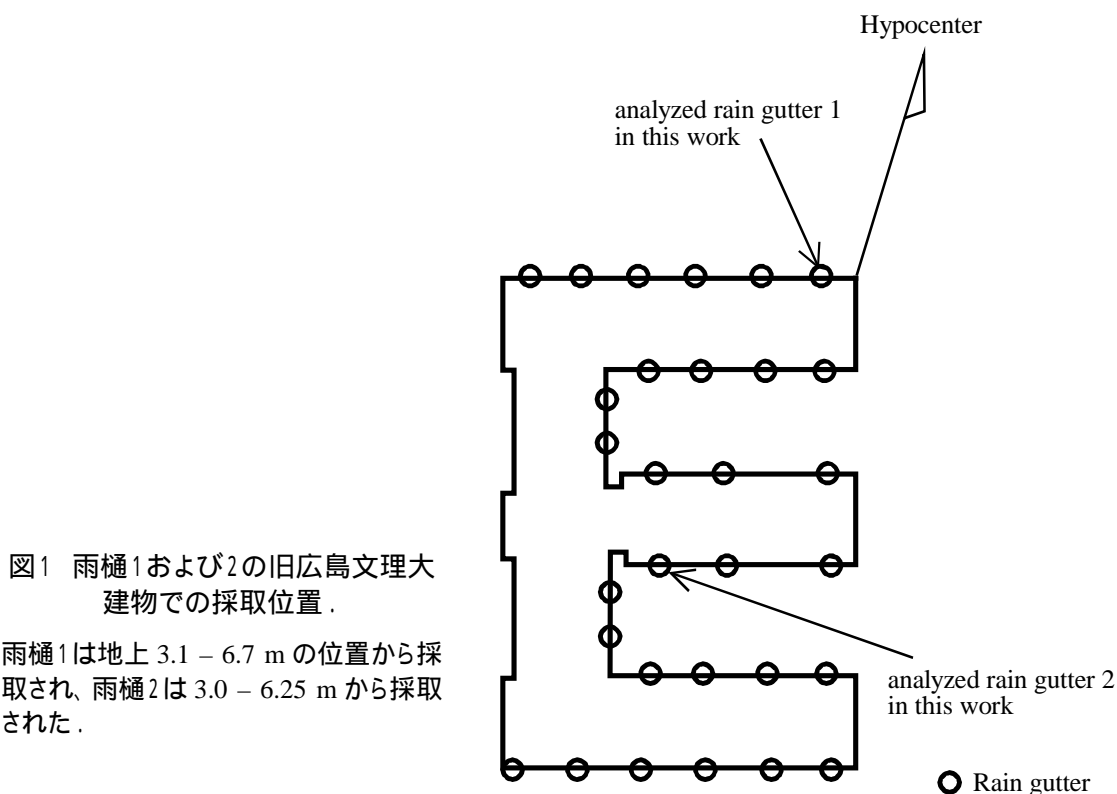
京都大学原子炉実験所

[はじめに]

速中性子誘起反応 ($^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$) により生成する ^{63}Ni (半減期 100.1 年) の測定により、現在でも、広島、長崎原爆による速中性子線の評価が可能である。被爆銅試料中に生成した ^{63}Ni の測定法としては二つの有効な方法が考えられる。一つは加速器質量分析法 (Straume and Marchetti, 1994) による ^{63}Ni 原子数の測定であり、もう一つは ^{63}Ni の崩壊により放出される β 線の液体シンチレーション法による測定である (Shibata et al., 1994)。我々は広島被爆銅試料中の ^{63}Ni の測定に際し後者の方法を用いた。液体シンチレーション法においては、銅試料から化学分離したニッケル中の ^{63}Ni の線を繰り返し測定することが可能であり、測定により試料が失われる加速器質量分析法と比べて、この方法の利点である。

[試料]

本研究で用いられた銅試料は、旧広島文理大から採取された二つの雨樋試料であった。一つは、建物の爆心に直接向き合った部分から採取され (雨樋試料 1、slant range 1501 m)、もう一つは爆心に対し陰の部分から採取された (雨樋試料 2、slant range 1550 m)。広島文理大の建物における採取位置を図 1 に示す。得られた雨樋試料に関するデータを表 1 に示す。雨樋試料は、それぞれが溶接



* SHIBATA Seiichi, Kyoto University; shibata@HL.rri.kyoto-u.ac.jp

表1 液体シンチレーション法による⁶³Ni測定に用いた雨樋試料.

sample		weight (g)	slant distance (m)	Ni (ppm)	chemical yield (%)
Rain gutter 1	A	1085.04	1501	42	67
	B	935.38		45	64
	C	695.31		31	57
Rain gutter 2	A	1055.40	1550	29	57
	B	1076.87		7	71
	C	686.62		30	56

された三つの部分からなる。表1では、試料の三つの部分をそれぞれA、B、Cと表している。それぞれの銅試料中に不純物として含まれるニッケルの量は川鉄テクノロジー(株)により定量された。

[実験]

1) 銅試料中からニッケル成分の化学分離

⁶³Niは最大エネルギー67 keVの低エネルギー線を放出する。液体シンチレーション法で、このような低エネルギーの線を効率よく測定するためには、化学分離が不可欠である。化学分離に先立って、まず試料の表面を磨いてさびを落とした。化学分離の詳細を以下に述べる(Ota, 2003)。

銅試料は硝酸8%、硫酸17%の混合酸溶液に溶解された。溶液中の銅は、陽極に白金、陰極に銅を用いた定電圧電解法で、陰極に析出させることによりその大部分を除いた。電解後、溶液に6M水酸化ナトリウム溶液を加えて、ニッケル、コバルトおよび銅を水酸化物として沈殿させ、ろ過した。沈殿を温水で洗浄し、6M塩酸に溶解した。この溶液を蒸発乾固後、少量の9M塩酸に溶解し、陰イオン交換カラム(DOWEX 1X8, 100 - 200 mesh)に流し、9M塩酸でニッケルを、4M塩酸でコバルトを、0.1M塩酸で銅を溶離させた。得られたニッケルフラクションを蒸発乾固させ、希塩酸に溶解し、アンモニア水でpH ~8に調製した。この溶液にジメチルグリオキシム(1% w/w エタノール)を加えてニッケル錯体を生成させ、この錯体をクロロホルムに抽出し、1M塩酸に逆抽出した。逆抽出後、水相中に溶け込んだ有機物を、硝酸を加えて蒸発乾固を繰り返すことにより分解した。乾固後のニッケルフラクションを6M塩酸に溶解し、水を加えて0.5M塩酸として、陽イオン交換カラム(DOWEX 50WX8, 100 - 200 mesh)に流した。0.5M塩酸を数カラム容量流して不純物を除き、次に6M塩酸を流してニッケルを溶離した。得られたニッケル溶液を蒸発乾固後、希塩酸に溶解し、液体シンチレーション測定のための試料とした。この際、少量の溶液を分取し、ICP発光分析によりニッケルを定量して、化学分離過程における化学収率を求めた。得られた収率を表1に示す。

2) 液体シンチレーションカウンターによる⁶³Niの線測定

化学分離後、⁶³Niから放出される線の測定は東京大学アイソトープ総合センターの低バックグラウンド液体シンチレーションカウンター(Packard, TRI-CARB-2770 TR/SL)を用いて行った。塩化物として得られていたニッケル試料は、測定の前に硝酸塩に変換し、25%アンモニア水で弱アルカリ溶

液とした。この溶液にシンチレーター（クリアゾルI）を加え、液体シンチレーション法による測定のためのカクテルを調製した。この調製法は、数 10 mg のニッケルキャリアが存在する場合、 ^{63}Ni の測定に際し有効な方法である（Kojima and Furukawa, 1985）。

また、液体シンチレーション法による測定におけるクエンチング効果を調べるために、ニッケルのキャリアを 0 - 100 mg 含んだ ^{63}Ni の標準溶液（各標準溶液は 9 Bq の ^{63}Ni を含む）を上記と同様の方法で調製し、雨樋 1 および 2、ブランク、 ^{63}Ni 標準溶液について液体シンチレーション法により測定した。測定中の計数のゆらぎは、 ^{63}Ni 標準溶液の測定により、0.3%以下であることが確認された。また、測定中のゲインのシフトによるスペクトルの形の変化はすべての試料について観測されなかった。塩化ニッケルの濃度にもなう検出効率の変化は ^{63}Ni 標準溶液を用いて測定された。雨樋試料に対する検出効率は、解析に用いるエネルギー領域 10 - 30 keV で 24%と評価された。

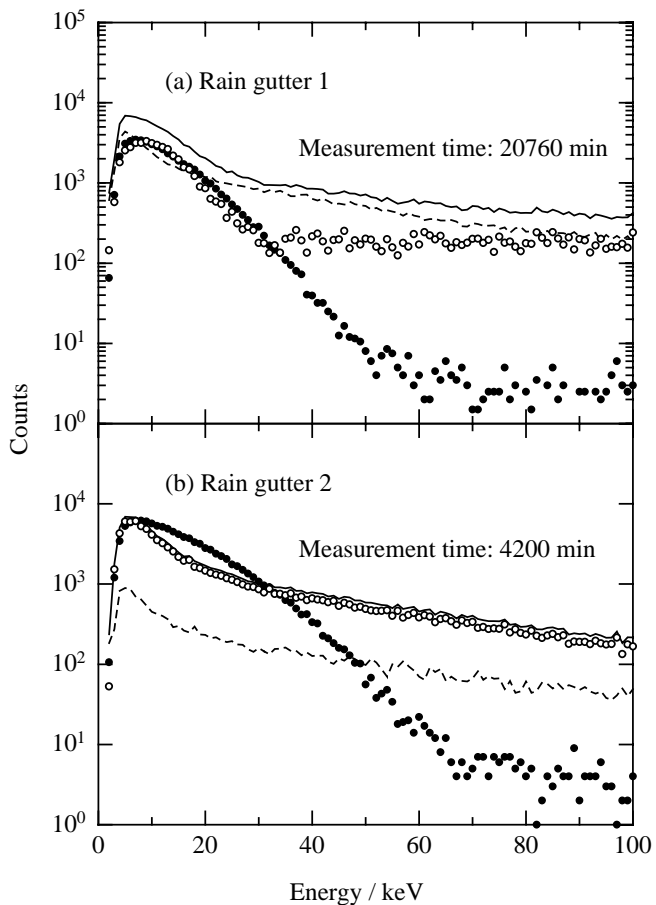
[結果・考察]

この実験に先立って、液体シンチレーション法と加速器質量分析法の二つの測定法の相互比較のために、 ^{252}Cf の自発核分裂で生成した中性子により照射された銅線中に生成した ^{63}Ni の測定を行った。この銅試料中に生成した ^{63}Ni は照射条件より、 2.00×10^8 ^{63}Ni / g Cu と評価された。加速器質量分析法による結果は、 $2.03 (\pm 0.12) \times 10^8$ ^{63}Ni / g Cu と報告された（Straume et al., DS02 Report, Chapter 9 Part B）。液体シンチレーション法による我々の結果は、 $1.95 (\pm 0.15) \times 10^8$ ^{63}Ni / g Cu と得られ、加速器質量分析の結果と実験誤差の範囲内でよく一致した。このことから、この二つの測

図2 液体シンチレーション法により測定された線スペクトル：
(a) 雨樋1、(b) 雨樋2。

- (○) : 雨樋、
- (●) : ブランク、
- (◇) : ^{63}Ni 標準溶液、
- (□) : 雨樋からブランクを差し引いたスペクトル。

雨樋1の測定は 2003 年 1 月 24 日から、雨樋2は 2003 年 2 月 20 日から開始された。 ^{63}Ni 標準溶液のスペクトルは差し引きのスペクトルと比較のためにピーク位置を重ね合わせて示した。



定法の信頼性が確認された。

雨樋 1 および 2 に対して得られた線スペクトルをそれぞれ図 2 (a)、(b)に示す。図 2 の実線、点線、黒丸は、それぞれ雨樋、ブランク、 ^{63}Ni 標準溶液について得られたスペクトルを示す。図中には、雨樋のスペクトルからブランクのスペクトルを差し引いて得られたスペクトルも白丸で示している。図 2 (a)から、差し引いて得られたスペクトルの形は ^{63}Ni 標準試料のスペクトルの形と 10 - 30 keV のエネルギー領域でよく一致した。このことにより広島原爆に被爆した銅試料中に生成した ^{63}Ni が、初めて液体シンチレーション法により明確に検出された。一方、図 2 (b)の中性子照射に対して遮蔽された場所から採取された雨樋 2 のスペクトルの形は、ブランク試料から得られたスペクトルの形とほとんど同じであった。

図 2 (a)の差し引きにより得られたスペクトルから、雨樋 1 中に生成した ^{63}Ni の原子数は、 $1.26 (\pm 0.31) \times 10^5$ $^{63}\text{Ni} / \text{g Cu}$ と計算された。現在、宇宙線などの照射により生成する ^{63}Ni について補正するための液体シンチレーション法による測定データはない。したがって、加速器質量分析法により測定されたバックグラウンドデータ、 7.26×10^4 $^{63}\text{Ni} / \text{g Cu}$ 、をこの補正のために用いた (Straume et al., DS02 Report, Chapter 9 Part B ; Rühm et al., Chapter 9 Part D)。この補正の後、熱中性子誘起核反応 $^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$ により生成した ^{63}Ni の影響を差し引き (Santoro et al., DS02 Report, Chapter 3)、さらに、 ^{63}Ni の壊変を補正し 1945 年 8 月での結果を求めた。広島原爆により生成した ^{63}Ni として、最終的に $7.97 (\pm 3.58) \times 10^4$ $^{63}\text{Ni} / \text{g Cu}$ という結果が得られた。表 2 にそれらをまとめて示す。図 3 には、この結果を加速器質量分析の結果とともに、爆央からの距離の関数としてプロットした結果を示す。 ^{63}Ni 生成に対するバックグラウンドなど解明すべき点はまだ残されているが、この図において、液体シンチレーション法により得られた結果と加速器質量分析法の結果とはよく一致した。

以上、旧広島文理大の雨樋試料の測定結果について述べてきたが、この測定に先立って、日本銀行 避雷針試料 (slant range: 706 m; sample weight: 40.14 g; Ni content: 210 ppm)、山陰合同銀行 避雷針試料 (slant range: 864 m; sample weight: 91.35 g; Ni content: 13 ppm) についても同様

表 2 雨樋 1 の ^{63}Ni の測定結果

sample	Rain gutter 1
slant distance (m)	1501
$^{63}\text{Ni} / \text{g Cu}$ measured	$1.26 \pm 0.31 (\times 10^5)$
- background*	$5.38 \pm 2.21 (\times 10^4)$
corrected to 1945	$8.01 \pm 3.29 (\times 10^4)$
$^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$ correction**	$7.97 \pm 3.58 (\times 10^4)$

* 加速器質量分析法により得られたバックグラウンド 7.26×10^4 atoms $^{63}\text{Ni} / \text{g Cu}$ を用いた (Straume et al., Chapter 9 Part B, DS02 Report ; Rühm et al., Chapter 9 Part D, DS02 Report) .

** 爆央からの距離 1500 m での計算値 8.37×10^6 atoms $^{63}\text{Ni} / \text{g Ni}$ を用いた (Santoro et al., Chapter 3, DS02 Report) .

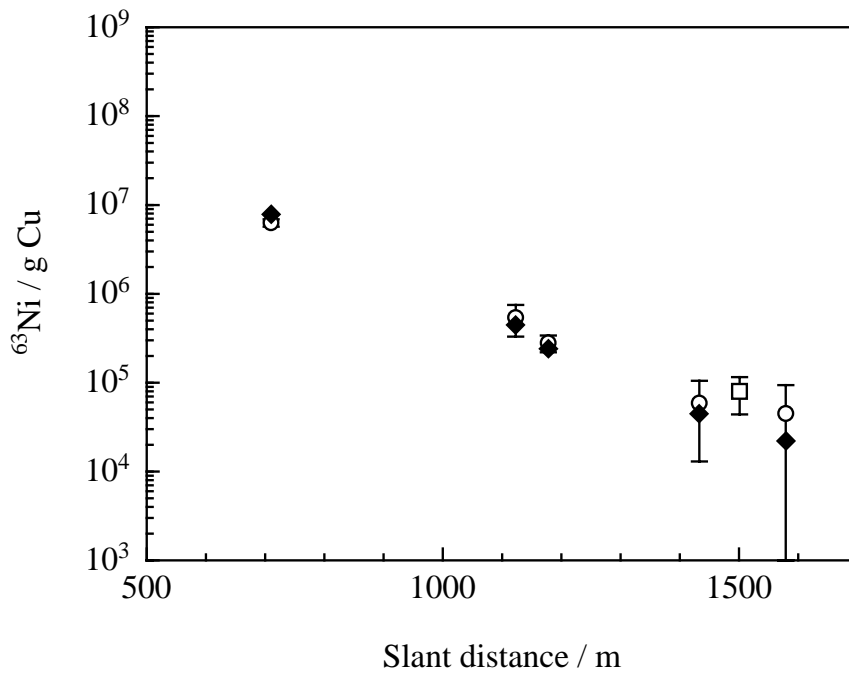


図3 雨樋1中の⁶³Ni測定結果と加速器質量分析で得られた結果との比較.

(●):今回得られた結果、(○):加速器質量分析法により得られた結果、(□):DS02による計算結果 (Straume et al., Chapter 9 Part B, DS02 Report) .

の測定を行った。

その結果(1945年8月に壊変補正)は次の通りである。

日本銀行避雷針: $1.65 (\pm 2.32) \times 10^8$ ⁶³Ni / g Cu (chemical yield: 0.58 %)

山陰合同銀行避雷針: $6.24 (\pm 1.54) \times 10^5$ ⁶³Ni / g Cu (chemical yield: 53 %)

日本銀行避雷針については、化学収率が低く残念ながら信頼性のある結果が得られなかった。山陰合同銀行避雷針については、線スペクトルの解析の結果、ポジティブな値が得られた。この値を図2にあてはめると、DS02により予想される値の~20%となる。この試料は原爆の際遮蔽された状態にあったことが明らかとなっており、遮蔽の状況についての詳細な検討が必要であるが、現時点では特に矛盾した結果ではないと思われる。

[参考文献]

Kojima, S. and Furukawa, M., Liquid scintillation counting of low activity ⁶³Ni, J. Radioanal. Nucl. Chem., Letters **95**, 323 (1985).

Ota, Y., Study on estimation of fast-neutron fluence of the Hiroshima atomic bomb by ⁶³Cu(n,p)⁶³Ni, MS Thesis, Graduate School of Engineering, Kyoto University (2003) (in Japanese).

Rühm, W. et al., Evaluation of cosmic ray-induced ⁶³Ni background in copper, Chapter 9 Part D, DS02 Report (draft).

Santoro, R. T. et al., Radiation transport calculations for Hiroshima and Nagasaki, Chapter 3, DS02 Report (draft).

Shibata, T., Imamura, M., Shibata, S., Uwamino, Y., Ohkubo, T., Satoh, S., Nogawa, N., Hasai., H., Shizuma, K., Iwatani, K., Hoshi, M., Oka, T., A method to estimate the fast-neutron fluence for the Hiroshima atomic bomb, J. Phys. Soc. Japan **63**, 3546 (1994).

Straume, T., Marchetti, A. A., A plan for $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ measurements in Hiroshima using AMS, Presented at the Meeting of the Japan and U. S. Dosimetry Measurement Groups, Radiation Effects Research Foundation, Hiroshima, Japan, August 2 – 3 (1994).

Straume, T. et al., ^{63}Ni measurements, Chapter 9 Part B, DS02 Report (draft).

DS02 Report: US-Japan WG; “Reassessment of the A-bomb Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki – Dosimetry System 2002”, RERF (in preparation).