

MEASUREMENT OF RESIDUAL RADIOACTIVITIES ^{60}Co AND ^{63}Ni FOR THE REEVALUATION OF ATOMIC-BOMB NEUTRONS

Kiyoshi SHUZUMA ¹⁾, Kazuo IWATANI ¹⁾, Hiromi HASAI ¹⁾, Takamitsu OKA ²⁾,
Masaharu HOSHI ³⁾, Tokushi SHIBATA ⁴⁾, Seichi SHIBATA ⁴⁾
and Mineo IMAMURA ⁴⁾

- 1) Faculty of Engineering, Hiroshima University, 2) Kure University,
3) Res. Institute for Nucl. Med. and Biol., Hiroshima University,
4) Institute for Nuclear Study, University of Tokyo

Residual radioactivities ^{60}Co and ^{63}Ni are induced in iron samples exposed to atomic-bomb neutrons through reactions $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ and $^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$. ^{60}Co can be measured by the use of a low background Ge spectrometer. Since ^{63}Ni emits only low-energy β rays, it can be measured by the low background liquid scintillation counter. In this paper, sample preparation method to separate Co and Ni from iron samples and an example of ^{63}Ni measurement are described.

残留放射能 ^{60}Co , ^{63}Ni の測定による原爆中性子の評価

静岡 清、岩谷和夫、葉佐井 博巳（広大工） 岡 隆光（呉女子短大）、
星 正治（広大原医研）、柴田徳思、柴田誠一、今村峯雄（東大核研）

原爆に被爆した鉄材には $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ 反応、および $^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$ 反応により ^{60}Co や ^{63}Ni が生成されている。原爆中性子線量の評価を目的としてこれらの残留放射能の測定を行った。 ^{60}Co はガンマ線を放出するので、低バックグラウンド Ge スペクトロメータにより測定できる。 ^{63}Ni は低エネルギー β 線しか放出しないので低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタによってのみ測定可能である。被爆鉄材から Co と Ni を分離する試料処理の方法と ^{63}Ni の測定例について報告する。

1. はじめに

原爆中性子による誘導放射能として、これまでに知られている ^{152}Eu , ^{60}Co , ^{36}Cl , ^{32}P などのほかに、最近、柴田ら¹⁾ は ^{63}Ni が生成されている可能性について指摘した。 ^{63}Ni は半減期 100 年で、最大エネルギー、66 keV のベータ線を放出する核種である。生成反応には速中性子による $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$ 反応と熱中性子による $^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$ 反応がある。これまで原爆の速中性子の評価は直後に測定された ^{32}P のデータのみと考えられていたので被爆銅材中から ^{63}Ni が検出されれば速中性子の評価が可能になる。一方、銅材中に含まれる不純物としての Ni において熱中性子により ^{63}Ni が生成されれば速中性子の評価においては妨害となるが、被爆鉄材などに生成されている ^{63}Ni を測定すれば熱中性子の評価に役立つ。このため、被爆材を選ぶことにより、速中性子と熱中性子の両方の評価が可能になる。

1) 速中性子による生成量

加速器の銅コイルの放射化の問題に関連して速中性子による $^{63}\text{Cu}(n, p)^{63}\text{Ni}$ 反応の反応断面積の測定が進められている²⁾。この断面積が決まれば原爆の中中性子の評価に利用できる。このためには不純物としての Ni の含有量の低い銅の被爆試料が必要とされる。 ^{63}Ni の生成量は爆心付近で銅 1g あたり約 1.4×10^7 となり、現在の放射能量に換算すると 2.2×10^{-3} Bq となるので低バックグラウンドの液体シンチレーションカウンターを用いれば 10g 程度の試料で測定可能となる。銅中に含まれる Ni からの (n, γ) 反応による生成量を見積もると Ni が約 300ppm あれば速中性子による生成量と同程度になる。電線などの銅線中の Ni 含有量は約 10ppm 以下であるので速中性子の評価は十分可能である。

2) 熱中性子による生成量

鉄材中には Co と Ni がともに約 200 ppm 含まれている。鉄材を化学処理して Co を分離すれば $^{60}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$ により生成された ^{60}Co をガンマ線計測から測定できる。また、Ni を分離すれば $^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$ 反応による ^{63}Ni を液体シンチレーション計数法により測定できる。被爆鉄材中の ^{63}Ni の生成量を見積もると爆心から 100m の場所で原爆直後において 0.011 Bq/mgNi となる。被爆鉄材中の ^{63}Ni の現在量を見積もると 0.0021 Bq/g 鉄となるので、液体シンチレーションカウンターの検出効率を 0.01Bq とすれば鉄材約 200g 程度あれば検出できる。

2. 材料と方法

被爆鉄材 8 試料の一覧表を Table 1 に示す。これらの鉄材中の Ni と Co の含有量を分析した結果も Table 1 に示す (分析は K-TEC 千葉にて原子吸光法により行った)。鉄材には Ni が 200–300 ppm 含まれているが、山陰合銀の試料は特に Ni 含有量が高い。また、Co は 90–260 ppm 含まれている。鉄材の化学処理のプロセスを Fig. 1 に示す。フライスで細片化した鉄を濃塩酸で少しづつ溶かした。約 1kg の鉄を溶かして 6 l の塩酸溶液を得た。その溶液を 500 ml づつ、同量のイソプロピルエーテルと混ぜて浸とうして溶媒抽出を行い、鉄を除いた。このとき Ni, Co は溶液中に残る。過酸化水素水を加え Fe^{2+} から Fe^{3+} とし、加熱減量と溶媒抽出を際限なく繰り返して、最後に過酸化水素を加えても発泡しなくなるまで続けた。最初、黒い鉄溶液が最後には緑色の溶液となった。最終的に 500 ml 程度の量となった溶液を次に、陰イオン交換樹脂 (Dowex1-x8) を通して Ni, Co, Fe を分

離した。Co 溶液に NaOH 水溶液を加えて pH = 14 とし Co を沈殿させたのち、濾過して沈殿を水洗いし、乾固して約 1 g の粉末試料を得た。そして、低バックグラウンド Ge 検出器によりガンマ線の測定を行った。

Ni の純度をさらに高めるために Ni 溶液にアンモニア水を加えて pH = 8 とした。そしてジメチルグリオキシム（エタノール 100 ml + ジメチルグリオキシム 1g）を加えて赤色の Ni 錯体を作った。この錯体はクロロホルムに選択的に溶媒抽出される。この Ni 錯体を含むクロロホルムに希塩酸水を加えて浸とうすると、Ni 錯体は分解し、Ni は水溶液に移る。この水溶液を乾固し、Ni 試料を作った。液体シンチレータ用の試料は Ni 水溶液 6ml に乳化シンチレータ（クリアゾル；ナカライテスク社製）50 ml を加えた。測定には低バックグラウンド液体シンチレータ（アロカ LSC-LBⅢ）を使用した。

^{63}Ni の検出効率を求めるために既知量の ^{63}Ni を添加した標準試料を作成し、計数率を測定した。Fig. 2 に検出効率の校正曲線を示す。

3. 結果と考察

原爆ドームの鉄から Co, Ni を抽出した結果を示す。Fig. 3 に ^{60}Co ガンマ線スペクトルを示す。Co の抽出がうまく行われたことがわかる。現在、比放射能 $^{60}\text{Co}/\text{Co}$ を求めるための作業を進めている。次に ^{63}Ni の測定スペクトルとバックグラウンドスペクトルを Fig. 4 に示す。 ^{63}Ni の正味計数率とし 1.54 cpm が得られた。この試料溶液の Ni 含有量は 1.72 mgNi/g 溶液 であった。 ^{63}Ni の比放射能 S は次式で求められる。

$$S = N / (\epsilon \cdot V \cdot d \cdot 60) \quad (\text{Bq/mgNi})$$

ここで、N は正味計数率 (cpm)、 ϵ はこの測定条件での検出効率 (cps/Bq)、V は Ni 溶液量 (ml)、d は Ni の含有量 (mg/g) である。それぞれの数値を代入して S を求めると

$$S = 0.0050 \pm 0.00039 \quad (\text{Bq/mgNi})$$

が得られた。この値を半減期を考慮して被爆時に時間補正すると

$$S_0 = 0.0070 \pm 0.00055 \quad (\text{Bq/mgNi})$$

となる。そこで、前述した Ni の生成量について計算値 (C) と実測値 (M) の比を求めると

$$C/M = 1.57$$

となる。この比はすでに ^{152}Eu , ^{60}Co など得られている爆心での値とほぼ一致する。このことは爆心付近では熱中性子束は過大に評価されていることを意味する。今後、爆心から 2 km までの範囲の鉄について ^{60}Co 、 ^{63}Ni の測定を継続してゆく予定である。

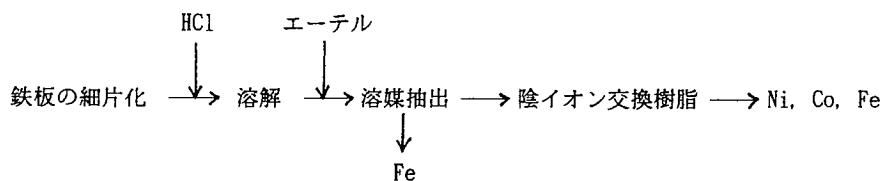
参考文献

- 1) T. Shibata, M. Imamura, S. Shibata et al. J. Phys. Soc. Jpn 63 (1994) 3546-3547.
- 2) 柴田徳思 他、日本原子力学会 (1994) 予稿集

Table 1 被爆鉄材試料

試料	材質	爆央からの距離 (m)	Ni (wt.%)	Co (wt.%)
1. 原爆ドーム(16A)	鉄板	602	0.025	0.026
2. 山陰合銀	避雷針	835	0.81	0.019
3. キリンビヤホール	はしご	876	0.035	0.015
4. 光道国民学校	手すり	913	0.030	0.011
5. 市役所	避雷針	1016	0.034	0.015
6. 日赤病院	避雷針	1608	0.037	0.013
	はしご	1608	0.026	0.009
7. 広信横川支店	はしご	1774	0.030	0.011

1. Fe, Co, Ni の分離



2. Ni の抽出

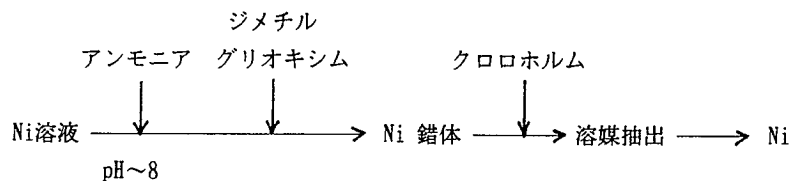


Fig.1 被爆鉄試料からの Co と Ni の分離

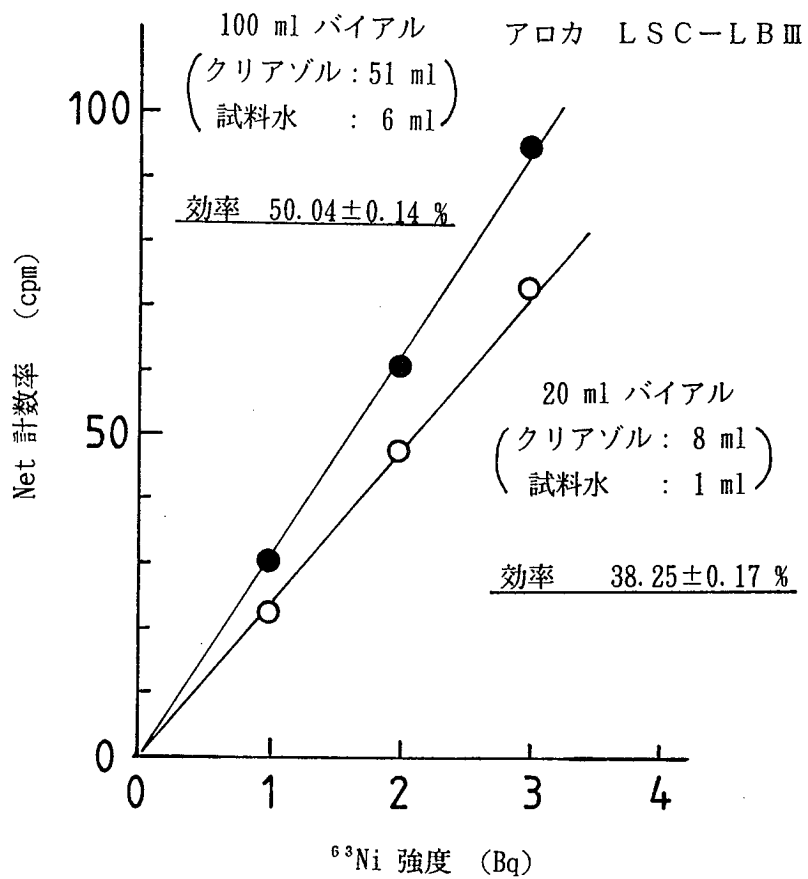


Fig. 2 ^{63}Ni 検出効率の測定

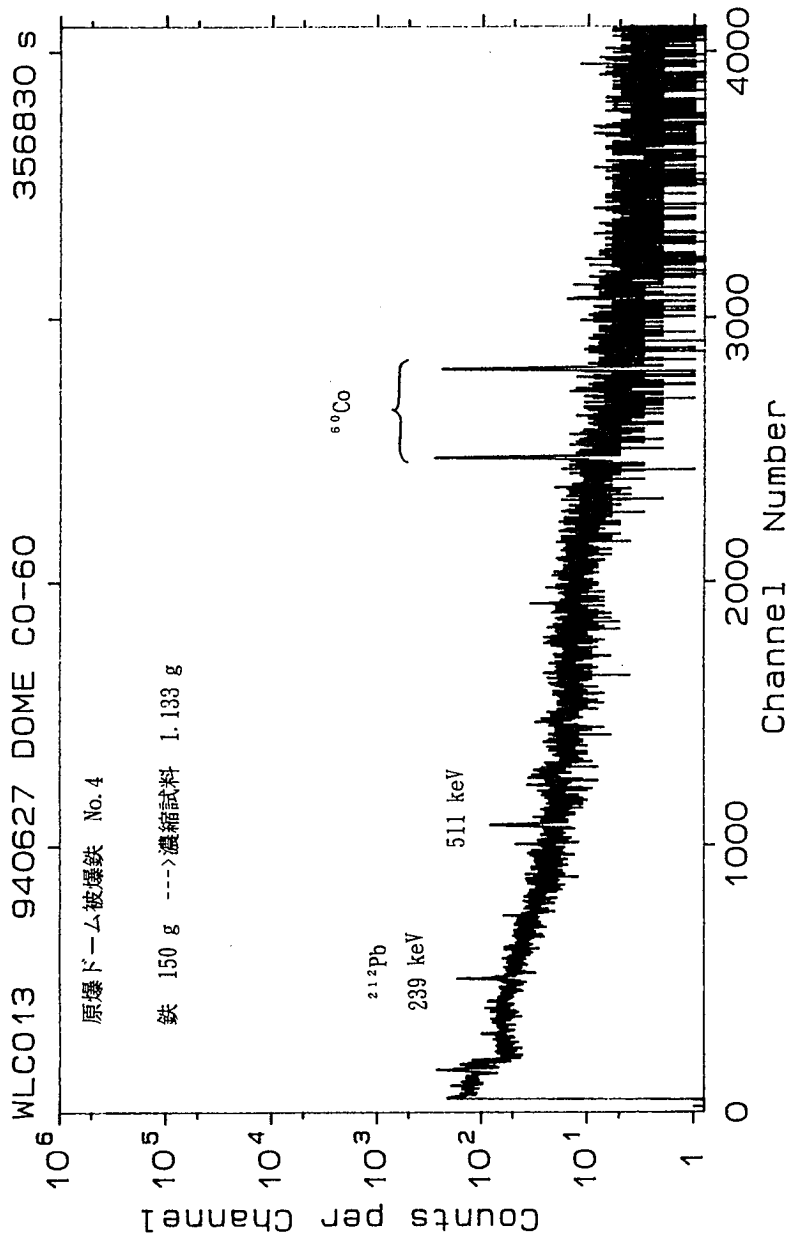


Fig.3 原爆ドーム鉄の ^{60}Co ガンマ線スペクトル

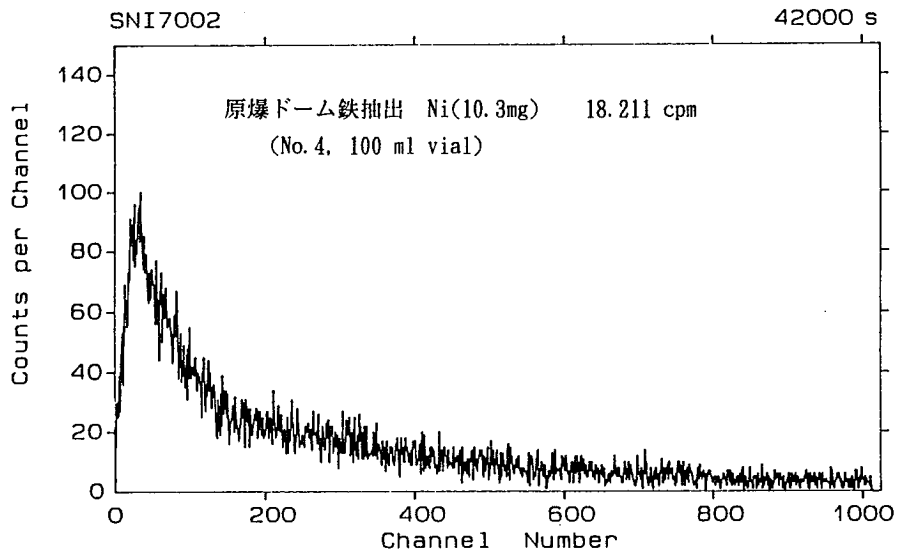
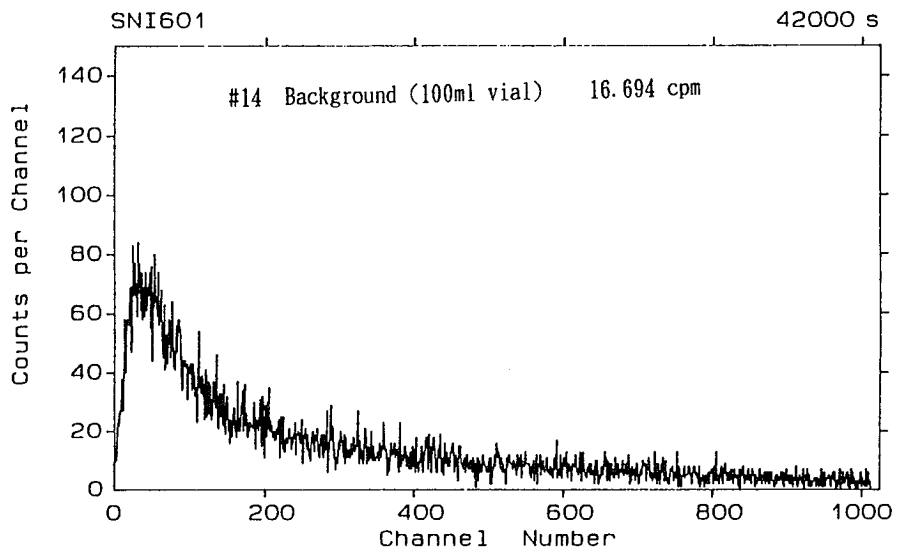


Fig. 4 液体シンチレーションカウンターのバックグラウンドスペクトル (上) と原爆ドーム鉄から抽出した ^{63}Ni スペクトル