

ISSN 2189-7107

KURRI-EKR-11

PRINT ISSN 1342-0852
KURRI- KR-114

「広島・長崎原爆放射線量新評価システムDS02に関する専門
研究会」報告書

**Proceedings of the workshop “New Radiation Dosimetry System
DS02 for the Atomic Bombings in Hiroshima and Nagasaki”**

編集：

葉佐井博巳、星正治、
柴田誠一、今中哲二

Edited by :

**Hasai H., Hoshi M.,
Shibata S., Imanaka T.**

京 都 大 学 原 子 炉 実 験 所

Research Reactor Institute, Kyoto University

「広島・長崎原爆放射線量新評価システムD S 0 2に関する専門研究会」報告書

2 0 0 4 年 7 月 2 9 - 3 0 日 開催

編集
葉佐井博巳
星正治
柴田誠一
今中哲二

京都大学原子炉実験所
Research Reactor Institute, Kyoto University

序文

本報告書は、2004年7月29日 - 30日に京都大学原子炉実験所において開催された「広島・長崎原爆放射線量新評価システムDS02に関する専門研究会」のプロシーディングスである。従来、広島・長崎原爆による放射線被曝量の評価には、DS86（Dose System 1986）が用いられてきたが、DS86方式に基づいて計算された中性子放射化量と測定データとが一致しないなどの問題があったため、1990年代前半から日米双方でその見直し作業が行われてきた。2000年末より日米合同ワーキンググループ（日本側代表：葉佐井、米国側代表：Young）として問題の解決にあたることになり、双方WGの積極的な作業の結果、新たな線量評価システムDS02が策定されるに至った。DS02は、2003年3月に東京で開催された日米合同原爆放射線量評価検討会（日本側厚生労働省、米国側DOE推薦の専門家会議）において、放射線影響研究所で実施されている広島・長崎被爆者調査のための新たな原爆放射線量推定システムとして承認された。

本専門研究会は、日本側WGメンバーを中心に、DS02のまとめの会として、これまで行ってきた日本側作業と今後に残された課題について総括的な議論をするために企画したものであった。さらに、DS02では扱われていない、黒い雨や誘導放射能に関する問題も議論に含めた。研究会には40名余りの参加があり、活発な討議が行われた。

専門研究会の世話人は、葉佐井、星（所外）、柴田、今中（所内）が担当した。DS02の内容を紹介する資料として、専門家はもちろん一般の人々にも本報告書が役立てば編集にあたった者として幸いである。研究会の報告者、座長、参加者をはじめ、これまで日本側WGの活動に支援を頂いた方々に改めて謝意を表したい。

2005年2月

葉佐井博巳	広島国際学院大学
星 正治	広島大学
柴田 誠一	京都大学
今中 哲二	京都大学

Proceedings of the workshop “ New Radiation Dosimetry System DS02 for the Atomic Bombings in Hiroshima and Nagasaki ”

Preface

This is proceedings of the workshop “New Radiation Dosimetry System DS02 for the Atomic Bombings in Hiroshima and Nagasaki” held in July 29-30, 2004 at Research Reactor Institute, Kyoto University. DS86 (Dose System 1986) has been used to estimate radiation dose to the atomic bomb survivors in Hiroshima and Nagasaki although the discrepancy was observed between DS86 calculation and measured values for neutron induced activation since early 1990’s. Several groups of scientists both in Japan and US have continued the investigation to resolve this discrepancy using new techniques for measurement and computation. In 2000 we agreed with US scientists to concentrate the efforts of both sides to resolve the discrepancy as a Japan-US joint team. After two years of the intensive collaboration, the Japan-US joint WG succeeded to develop a new dose system (DS02). In March 2003 DS02 was approved by the Joint Senior Review Group of the Ministry of Health, Labour and Welfare, Japan and Department of Energy, USA as a new dosimetry system to be used in the works of RERF.

As the summing up of the DS02 efforts by the Japanese WG, this workshop at KUR was planned to discuss all works by the WG members and remaining tasks to be done in the future. In addition, presentations were prepared about the dose contribution of ‘black rain’ and induced radioactivities that were not discussed in DS02. More than 40 people participated in the workshop.

This workshop was coordinated by Hasai, Hoshi, Shibata and Imanaka.. We are sure that this report will be useful to understand DS02 for not only specialists but ordinary citizens. We would like to express our deep acknowledgements to the reporters, chairpersons and attendants of the workshop.

February 2005

HASAI Hiromi
HOSHI Masaharu
SHIBATA Seiichi
IMANAKA Tetsuji

目次

序文

1. 広島・長崎原爆放射線推定方式 DS02 の背景と総括	1
葉佐井博巳（広島国際学院大学）	
2. 広島大での ^{152}Eu , ^{60}Co の測定	7
静間清（広島大学）	
3. 金沢大学での ^{152}Eu 測定（1）	14
中西孝（金沢大学）	
4. 金沢大学における原爆中性子誘導核種 ^{152}Eu の測定（II）	21
小村和久（金沢大学）	
5. 広島原爆被爆花崗岩の ^{36}Cl -AMS 測定	31
長島泰夫、関李紀、松広岳司、高橋勉、笹公和、末木啓介（筑波大学 AMS グループ）、 星正治（広島大学）、藤田正一郎（放射線影響研究所）、静間清（広島大学）、葉佐井 博巳（広島国際学院大学）	
6. 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 ^{63}Ni の測定	36
柴田誠一（京都大学）	
7. ^{152}Eu と ^{36}Cl の相互比較測定	42
星正治、遠藤暁（広島大学）、石川正純（東京大学）、小村和久（金沢大学）、長島泰 夫（筑波大学）、福嶋浩人（日本分析センター）、今中哲二（京都大学）	
8. 広島・長崎における原爆ガンマ線量の推定	49
丸山隆司（放射線医学総合研究所）、長友恒人（奈良教育大学）、星正治（広島大学）、 隈元芳一（放射線医学総合研究所）、藤田正一郎、Harry CULLINGS（放射線影響 研究所）	
9. Comparison of TLD measured values to DS02	65
Harry CULLINGS (RERF), George. KERR (Kerr Consultant), FUJITA Shoichiro (RERF), MARUYAMA Takashi (NIRS), HOSHI Masaharu (Hiroshima University), Stephen EGBERT (SAIC)	
10. Re-evaluation of the Hiroshima hypocenter based on data in ABCC Technical Reports 12-59 and 3-69: Some initial ideas and results	82
Harry CULLINGS, FUJITA Shoichiro (RERF), HOSHI Masaharu (Hiroshima University)	
11. 環境中性子の IN-SITU 測定	101
遠藤暁（広島大学）	
12. 放射化学的手法による $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応の励起関数の測定	108
高宮幸一（京都大学）	
13. 花崗岩中水分の測定 - 原爆中性子線量の再評価に関連して -	113
岩谷和夫（広島県立保健福祉大学）、葉佐井博巳（広島国際学院大学）、静間清、星正 治、遠藤暁（広島大学）、岡隆光（呉大学）、今中哲二（京都大学）	

14. 陽子弾性散乱同時計数法による花崗岩の水素分析	120
小松原哲郎、笹公和、石井聡、大和良広、宮川一尚、佐藤健一郎、黒澤正紀（筑波大学）	
15. DS02 原爆線量計算システムの概要とその検証計算	124
今中哲二（京都大学）	
16. DS02 計算と測定値の比較	134
遠藤暁（広島大学）	
17. 放影研における被爆者の DS02 線量計算	142
藤田正一郎、Harry CULLINGS、Dale PRESTON、船本幸代、寺西幸子、Eric GRANT、渡辺忠章（放射線影響研究所）	
18. DS02 に基づく誘導放射線量の評価	150
今中哲二（京都大学）	
19. 「黒い雨」にともなう積算線量	155
静間清（広島大学）	
20. 広島原爆黒い雨の中の U-235/U-238 比	164
藤川陽子（京都大学）、静間清、遠藤暁（広島大学）、福井正美（京都大学）	
21. 長崎原爆による Pu フォールアウトの環境中での分布と挙動：長崎でのローカル・フォールアウト調査とアガシ・アイス・キャップでのグローバル・フォールアウト調査	169
馬原保典、工藤章（京都大学）	
22. 広島原爆の黒い雨による残留放射能と被ばく線量	184
丸山隆司（放射線医学総合研究所）、吉川友章（気象研究所）	
付録：DS02 による無遮蔽地上 1 m のカーマ線量と放射化量計算値	196
専門研究会プログラム	
専門研究会参加者リスト	

Contents

Preface

1. Historical review of radiation dosimetry for the Hiroshima-Nagasaki atomic bombings	1
HASAI Hiromi (Hiroshima Kokusai Gakuin University)	
2. Residual ^{152}Eu and ^{60}Co activity measurement in Hiroshima and Nagasaki	7
SHIZUMA Kiyoshi (Hiroshima University)	
3. ^{152}Eu measurement at Kanazawa University (1)	14
NAKANISHI Takashi (Kanazawa University)	
4. Measurements of Atomic Bomb induced ^{152}Eu at Kanazawa University (II)	21
KOMURA Kazuhisa (Kanazawa University)	
5. AMS- ^{36}Cl measurements for the Hiroshima A-bombed granite	31
NAGASHIMA Yasuo, SEKI Riki, MATSUHIRO Takeshi, TAKAHASHI Tsutomu, SASA Kimikazu, SUEKI Keisuke (University of Tsukuba), HOSHI Masaharu (Hiroshima University), FUJITA Shoichiro (RERF), SHIZUMA Kiyoshi (Hiroshima University), HASAI Hiromi (Hiroshima Kokusai Gakuin University)	
6. ^{63}Ni measurements by liquid scintillation method	36
SHIBATA Seiichi (Kyoto University)	
7. Intercomparison of ^{152}Eu and ^{36}Cl measurements	42
HOSHI Masaharu, ENDO Satoru (Hiroshima University), ISHIKAWA Masayori (University of Tokyo), KOMURA Kazuhisa (Kanazawa University), NAGASHIMA Yasuo (University of Tsukuba), FUKUSHIMA Hiroto (Japan Chemical Analysis Center), IMANAKA Tetsuji (Kyoto University)	
8. TL measurements for γ-radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki	49
MARUYAMA Takashi (NIRS), NAGATOMO Tsuneto (Nara University of Education), HOSHI Masaharu (Hiroshima University), KUMAMOTO Yoshikazu (NIRS), FUJITA Shoichiro, Harry CULLINGS (RERF)	
9. Comparison of TLD measured values to DS02	65
Harry CULLINGS (RERF), George KERR (Kerr Consultant), FUJITA Shoichiro (RERF), MARUYAMA Takashi (NIRS), HOSHI Masaharu (Hiroshima University), Stephen EGBERT (SAIC)	
10. Re-evaluation of the Hiroshima hypocenter based on data in ABCC Technical Reports 12-59 and 3-69: Some initial ideas and results	82
Harry CULLINGS, FUJITA Shoichiro (RERF), HOSHI Masaharu (Hiroshima University)	
11. Measurement of natural neutrons in Hiroshima	101
ENDO Satoru (Hiroshima University)	
12. Measurement of excitation function for $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ by radiochemical method	108
TAKAMIYA Koichi (Kyoto University)	
13. Measurement of water component in the granite rock	113
IWATANI Kazuo (Hiroshima Prefectural College of Health Sciences), HASAI Hiromi (Hiroshima Kokusai Gakuin University), SHIZUMA Kiyoshi, HOSHI Masaharu, ENDO Satoru (Hiroshima University), OKA Takamitsu (Kure University), IMANAKA Tetsuji (Kyoto University)	

14. Hydrogen analysis for granite samples by using proton-proton elastic recoil coincidence spectrometry	120
KOMATSUBARA Tetsuro, SASA Kimikazu, ISHII Satoshi YAMATO Yoshihiro, MIYAKAWA Kazutaka, SATO Kenichiro, KUROSAWA Masanori (University of Tsukuba)	
15. Outline of the calculation system for DS02 and related calculations in Japan	124
IMANAKA Tetsuji (Kyoto University)	
16. Comparison of DS02 calculation with measured data	134
ENDO Satoru (Hiroshima University)	
17. DS02 survivor dose estimation at RERF	142
FUJITA Shoichiro, Harry CULLINGS, Dale PRESTON, FUNAMOTO Sachiyo, TERANISHI Sachiko, Eric GRANT, WATANABE Tadaaki (RERF)	
18. Neutron induced radiation dose by the atomic bombings in Hiroshima and Nagasaki based on the DS02 methodology	150
IMANAKA Tetsuji (Kyoto University)	
19. Estimation of cumulative exposure from radioactive fallout	155
SHIZUMA Kiyoshi (Hiroshima University)	
20. U-235/U-238 ratios detected in the black rain from the Hiroshima A-bomb	164
FUJIKAWA Yoko (Kyoto University), SHIZUMA Kiyoshi, ENDO Satoru (Hiroshima University), FUKUI Masami (Kyoto University)	
21. Distribution and behavior of fallout plutonium released by the Nagasaki A-Bomb: Surveys at the Nagasaki area for the local fallout and at Agassiz ice cap for the global fallout	169
MAHARA Yasunori, KUDO Akira (Kyoto University)	
22. Residual radioactivity and radiation dose due to black rain by the atomic bomb in Hiroshima	184
MARUYAMA Takashi (NIRS), YOSHIKAWA Tomoaki (Meteorological Research Institute)	
Appendix: Free-in-air kerma and neutron activation at 1 m above the ground based on DS02	196

Workshop program

Participant list

広島・長崎原爆放射線推定方式 DS02 の背景と総括

葉佐井 博巳*
広島国際学院大学

広島・長崎原爆放射線量評価に関する日米合同 WG (米国側代表：R.Young、日本側代表：葉佐井) は、放射線影響研究所 (RERF) が原爆被爆者のリスク解析に用いている 1986 年線量推定方式 (DS86) の再評価を行い、新たな線量推定方式 DS02 をとりまとめるに至った。本報告では、原爆線量評価問題の歴史的背景を含め、DS86 の再評価と DS02 策定に至った経緯をまとめておく。DS02 の作業は日米独の研究者が共同して行ったものであるが、ここでは日本の研究者が寄与した研究を中心に述べる。個々の研究の詳細については、それぞれの報告を参照されたい。

．歴史的背景

(1) 爆投下直後の測定

1945 年 8 月 6 日広島に最初の原子爆弾が投下され、3 日後の 8 月 9 日には長崎にも投下された。新型爆弾投下のニュースを受けて、直ちに日本の科学者ら数グループが被爆地を訪れ調査を開始した。一方米軍は、広島の前爆投下直前に測定器を搭載したパラシュートを投下し、それから得た圧力情報から爆弾の出力を 16.5kt と推定していた。

日本側では、陸軍の依頼で 8 月 9 日仁科らが来広し、砂や骨などからの放射能を測定、原子爆弾と確認した。さらに海軍の依頼により 8 月 10 日大阪大学の浅田らが誘導放射能を予測し、箔検電気、GM 計数管や写真乾板を持参し、広島市内の放射能を測定している。京都大学の荒勝、木村らは、自主的に調査隊を編成し 8 月 10 日第 1 次調査隊が土砂を採取し、その資料を持ち帰りベータ線を測定した。13 日には第 2 次調査隊が再確認のため市内約 100 箇所から資料を採取し、中性子による誘導放射能を確認した。馬の骨から $^{31}\text{P}(\text{n}, \gamma)^{32}\text{P}$, $^{32}\text{P} \rightarrow ^{32}\text{S} + \beta$ を測定し、爆心地の速中性子数を $10^{10} \sim 10^{13} / \text{cm}^2$ と推定した。第 3 次調査隊は長期調査を計画したが、残念なことに 9 月 17 日の大暴風雨のため 3 名の隊員を失い調査を断念した。

8、9 月には理化学研究所の山崎らが、人骨中の ^{32}P から熱中性子数を、捕獲断面積 $0.2 \times 10^{-24} \text{cm}^2$ と仮定し、 $9 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ と推定、さらに硫黄中の $^{32}\text{S}(\text{n}, \text{p})^{32}\text{P}$ から速中性子数を散乱断面積 3.7×10^{-27} と仮定し $1.2 \times 10^{12} / \text{cm}^2$ と推定した。また広島西方で放射能の異常に高い場所を発見した(放射能降下物)。

また長崎では 1945 年 9 月 10 日九州大学の篠原らが爆心地付近の放射能を測定し lauritsen 検電気で自然係数の 8 倍の量があることを報告している。また 10 月 1 日には西山地区で自然係数の 200 倍を観測している。

日本学術会議では 1945 年 9 月初めに日本の科学者らを多数動員し、被爆の状況を広く調査させた。しかし、調査結果が日本学術会議により原子爆弾災害調査報告書として出版されるのは、連合軍占領統治が終わったあとの 1953 年であった⁽¹⁾。この報告には先に述べた直後の測定も詳細に掲載されている。

1945 年 9 月下旬にはアメリカの陸軍、海軍、マンハッタン計画の専門家チームが来日し、日本人科

* HASAI Hiromi, Hiroshima Kokusai Gakuin University; hasai@hkg.ac.jp

学者と共同で調査を行っている⁽²⁾。

(2) T65D までの経緯

1946 年 11 月アメリカ大統領 Harry S Truman は、日米医学研究者で組織された放射線の影響を研究する日米共同委員会 (1945 年 10 月 12 日発足) の勧告を受け、広島、長崎の生存者らを長期にわたり研究するよう米国科学アカデミー (NAS) に命じた。NAS は直ちに原爆傷害調査委員会 (ABCC) を設け、広島、長崎に研究所を設置して調査を開始した。この ABCC は 1975 年に、放射線影響研究所 (RERF) という日米共同組織となり、原爆被爆者の健康と福祉の保持と、放射線の生物学的影響の研究を通じ全人類の健康に貢献することを目的とし、広島で約 8 万人、長崎で約 4 万人の追跡調査を行っている。追跡調査を基に放射線の影響を評価するためには、被爆者の浴びた放射線量が不可欠である。

米国では 1956 年、広島・長崎原爆被爆者の放射線量を推定するため、ORNL を中心に極秘プロジェクト「ICHIBAN」がスタートした⁽³⁾。ネバダ核実験場に日本家屋を建設し、原爆実験により線量と遮蔽効果の測定を行い、暫定線量「T57D」を発表した。さらに 1960 年から地上 500m のタワー実験を開始、裸の原子炉で中性子を、1200Ci のコバルト 60 を用いて γ 線の測定を行った。一方日本では、放射線医学総合研究所 (NIRS) の橋詰らが独自に残留放射能測定を行い、誘導放射能 ^{60}Co から中性子線量を、熱ルミネッセンス (TLD) 測定から γ 線量の推定を行った⁽⁴⁾。それらの結果が ORNL とほぼ一致し 1965 年 ABCC, ORNL 研究所から暫定線量「T65D」が発表された。原爆の出力は広島で $12 \pm 1\text{kt}$ 、長崎で $22 \pm 2\text{kt}$ と推定された。

(3) T65D から DS86 まで

1970 年後半まで T65D はかなりの信頼度を持って使用されてきた。その後 ABCC や RERF で臓器の吸収線量の推定が出来るようになり、T65D 線量に基づいて白血病になる危険度を解析すると、長崎に比べ広島の方がかなり大きくなることが判明した。1976 年 Rossi は米国放射線防護測定委員会に、中性子による許容線量限度を低くするよう勧告した⁽⁵⁾。一方、核兵器開発のため放射線漏洩を計算していた LANL の Preeg が、広島、長崎の原子爆弾についての計算データを明らかにし、広島原爆による中性子が T65D に比べ少ない可能性を示唆した⁽⁶⁾。こうして T65D 線量再評価の気運が高まり、1981 年、米国ではエネルギー省 (DOE) が原爆放射線量再評価作業グループを組織し、原子爆弾出力、ソースターム、空中輸送、家屋遮蔽、臓器線量などを線量評価に関する要因すべてを再評価させることにした。日本では厚生省が、原子力安全委員会委員の田島英三や NIRS の橋詰らを中心に研究チームを結成した。このチームは先の NIRS の鉄筋中誘導放射能 ^{60}Co データの補足に重点を置き、石や建造物内の誘導放射能 ^{152}Eu の測定も開始した。さらに、遠距離でのタイルやブロックを使って TL の測定を進めた。また、日本の文部省の援助により、いくつかの研究グループが発足した。原爆線量再評価の日米共同ワークショップが 1983 年から 1986 年までに 4 回開かれ、最終報告は DOE と日本のワーキンググループのメンバーによって作成され、第 4 回ワークショップにおいて RERF で用いる線量推定方式として DS86 使用が承認された⁽⁷⁾。

・ DS86 の再評価

(1) 再評価の始まり

DS86 では、米国のグループが原爆の出力を推定し、中性子や γ 線の前爆放出エネルギー Spektrum を計算し、大型計算機を駆使して輸送計算を行った。一方、日本チームは誘導放射能や TL の測定か

ら現場の線量を推定することを行い、原爆放射線量推定方式 DS86 が作成された。

国際的な放射線防護基準は、この DS86 に基づく原爆被爆者データに長らく依存してきた。しかし残念ながら、日本チームの出した誘導放射能 ^{60}Co のデータは、DS86 に基づく計算と一致していなかった。これは資料の数が少ないため、積極的に資料を集めデータを増やせば解決すると考え、DS86 を検証するため、広島グループが中心となり測定を始めた。このメンバーには DS86 の策定に参画した星も含まれている。

広島グループは当初、爆心から 130m に位置する元安橋橋柱の ^{152}Eu の深度分布を測定した⁽⁸⁾。その後、文部省からの援助を受け、日本の科学者が共同で再評価の作業を開始した。静間らは、被爆建造物、特に花崗岩に着目して約 100 に及ぶサンプルを採取し、花崗岩中の ^{152}Eu や、被爆鉄材中の ^{60}Co の測定を行った。その結果広島では、DS86 に基づく計算値に比べ、測定値が近距離で小さく遠距離では大きくなり、計算と実測の間で顕著な系統的違いが認められた⁽⁹⁾。一方米国の Straume らは、広島の被爆建造物コンクリートに含まれる ^{36}Cl の測定を行い、日本側による ^{60}Co や ^{152}Eu の測定と同じ傾向を報告した⁽¹⁰⁾。日本グループは、中性子誘導放射能に関するこうした測定値と計算値の違いについて、爆発高度や、様々な爆発過程を想定して検討してきた。これらの問題は日本の研究者だけで解決することではないので、1994 年から 97 年までに広島で 4 回、また 1996 年から 2000 年まで米国 Irvine で 3 回、日米ワークショップを開催して検討した。これらの反響を受けて、米国 DOE の呼びかけがあり、2000 年 12 月に米国グループの代表者 Young と Kerr が来日し、日本グループ代表の葉佐井と会い日米実務研究者会議を持つことになった。もちろん日本の厚生省も協力することになった。

(2) 日米実務研究者会議

第 1 回日米実務研究者会議(日米 WG 会議)は、2001 年 3 月 21 日から 2 日間、広島の国際会議場で開かれ、測定値と計算値が一致する部分、不一致と不確実性が認められる部分、およびこのような不確実性を解消するための方策を検討し、今後の課題について確認した。第 1 回日米 WG 会議では、以下の点について同意した。

- 1) LANL において新たに計算された広島原爆アウトプットスペクトルを基に、新しい放射線量計算方式を 1 年以内に完成させるよう努力する。
- 2) 爆心地から 1km 以遠における誘導放射能サンプルについて、より精度の高い測定を行う。特に金沢大学の小村に依頼して尾小屋地下実験室の低バック Ge での測定を行い、静間らのデータと相互比較を行う。これらの測定は今年度中に完成させる。
- 3) 1 年以内に誘導放射能に関する測定値と計算値の不一致を解決するよう試みる。

第 2 回日米 WG 会議は 2001 年 6 月 11 ~ 14 日、米国保健物理学会に合わせて Cleveland で開かれた。米国側から、LANL の新スペクトルに基づく輸送計算についての報告があったが、中性子計算不一致問題の解消につながるような結果は得られず、基本的に DS86 と同じ計算結果であった。ドイツのミュンヘンから参加した Ruehm より、加速器質量分析装置(AMS)を使って測定した ^{36}Cl の結果について発表があった。内容は、広島の 5 ヶ所の花崗岩サンプルを測定した結果、産地による宇宙線バックグラウンドを仮定し、測定値から差し引くと DS86 と一致するというものであった。また、AMS による ^{63}Ni の測定についても報告があり、1400m での測定値は DS86 計算値に比べ 3 ~ 4 倍であった。 ^{63}Ni データについても、バックグラウンドを考慮すると DS86 計算値と合うという報告であった。これに対し日本

側メンバーは、 ^{152}Eu データでは、宇宙線バックグラウンドの寄与は無視できるほどであり、バックグラウンドを考慮しても計算と測定の不一致は解消しない、と述べた。

第3回日米 WG 会議は 2001 年 11 月 14～15 日広島で開かれた。2001 年 6 月の Cleveland 会議で披露されたドイツグループによる花崗岩中 ^{36}Cl と銅中 ^{63}Ni の AMS 測定結果、静岡の ^{152}Eu サンプルを小村が尾小屋地下実験室で行った再測定結果などが検討された。米国の Straume は、コンクリート中 ^{36}Cl データについて、「表面汚染効果」および「バックグラウンド」を考慮すると、測定と計算はよく一致すると報告した。また、筑波大学の長島から、AMS による広島 ^{36}Cl サンプル測定の現状報告があった。小村の静岡サンプル再測定結果は、静岡データと矛盾しないものであったが、遠距離サンプルの測定は検出限界以下のサンプルが認められ、計算との比較についてははっきりした結論は出せなかった。第3回会議では、以下の今後の課題として以下の2点で合意した。

- 1) 検出限界やバックグラウンド効果のため、遠距離での誘導放射能測定データを基に計算との一致について細かい議論を行うのは困難である。今後の方向性としては、爆発距離 1200m 以内のデータに重点をおいて検討する。
- 2) 静岡らが既に測定している花崗岩などの広島サンプルなどを用いて、小村による ^{152}Eu 低レベル γ 線測定、Ruehm、Straume ならびに長島による ^{36}Cl の AMS 測定を行い、相互比較を実施する。

2002 年 3 月 1 日、アメリカ側 WG の要請で急遽サンディエゴ近くの SAIC において第4回日米 WG 会議がもたれた。そこで米側は、広島原爆について爆発高度を 20m 引き上げ、出力は 15kt に据え置いて新たな線量評価方式 DS02 をまとめたい、と言う提案を行った。日本側は、誘導放射能に関する計算と測定の不一致問題を解消するためには、原爆放出スペクトルを含むソースタームを見直す必要があると主張した。結局、LANL のソーススペクトルは変更しないが、DS86 より詳細な輸送計算を行った結果、測定値との比較は直線距離にして 1km まではほぼ一致するに至った。米国側としては、もっと遠方の測定データは測定誤差が大きく計算結果の妥当性を判断できないという見解であった。DS02 の採択については、次回の広島合同 WG で改めて検討することになった。

第5回日米合同 WG 会議は、2002 年 4 月 3～4 日に広島の放影研で開かれた。米国側から 11 名、日本側から 17 名、さらにドイツから 1 名の研究者が参加した。また、米国側から DOE および日本側から厚生労働省の担当官各 1 名がオブザーバーで出席した。米国側は、新たな線量評価方式 DS02 についてこの会議で日本側から基本的な合意を得る心つもりであった。会議ではまず、小村から ^{152}Eu 、長島と Ruehm から ^{36}Cl に関する相互比較測定の間接報告があった。3 者の測定データは相互によく一致し、また DS02 による計算結果とも 1.2km の距離まで一致していた。相互比較測定の報告をうけて、態度を保留していた日本グループも、「中性子不一致問題を解決する方向性が明らかになった」として、新線量評価方式 DS02 の策定に基本的に合意した。9 月に予定する次回の WG 会議で、DS02 の報告書作成について相談することになった。

日本側は 2002 年 8 月 19 日に広島で WG 会議を開き、小村と長島から相互比較測定に関する報告を受けるとともに、9 月会議に向けての方針を検討した。結局、広島の ^{60}Co 測定データなど open question

はいくつか残るものの、DS02 は全体として妥当であろう、ということになった。2002 年 9 月 11～12 日に広島・放影研で第 6 回日米 WG 会議が開かれ、日本側 15 名、米国側 6 名、またドイツから 2 名が参加した。相互比較測定の結果は、米国 Straume の ^{36}Cl 測定も含めて互いに一致し、1200m の距離まで DS02 計算値とも基本的に一致することが報告された。細かい遮蔽計算など、若干の課題は残っているものの、日米合同 WG として新線量評価方式 DS02 に合意し、上級諮問委員会へ報告することとなった。DS02 報告書をまとめる過程で、2002 年暮れ米国側 WG から、広島原爆の出力を 16kt に修正するとの連絡があった。建物等の遮蔽効果を細かく考慮したモデルで誘導放射能を計算し測定値と比較した結果、16kt とした方がよいという理由であった。

・DS02 の承認

日米合同 WG が策定した DS02 の妥当性を検討するため、米国 DOE と日本の厚生労働省は日米合同上級委員会 (JSRG) を設置した。JSRG のメンバーは、米国側 4 名 (Warren K. Sinclair、Harold L. Beck、Richard E. Faw、Nolan E. Hertel) と日本側 4 名 (森亘、濱田達二、丹羽太貫、葉佐井博巳) の計 8 名であった。2003 年 1 月 21～23 日、JSRG は米国 Pasadena のカリフォルニア工科大学でヒアリングを開き、日米 WG から DS02 策定作業について個々の課題の担当者から説明を受けた。

2 回目の JSRG 会議は、2003 年 3 月 14～15 日に東京で開かれた。米国側 WG の Young から改めて総合的な説明を受けた後、JSRG は、RERF で実施されている被爆生存者追跡調査で用いる新たな線量推定方式として DS02 を承認した⁽¹¹⁾。

DS86 と DS02 の主な相違点をまとめると次のようになる。

	DS86	DS02
< 広島 >		
爆弾出力	15 キロトン	16 キロトン
爆発高さ	580m	600m
γ 線量		若干増加 (10%以内)
中性子線量		1-2km で増加 (最大 10%)
< 長崎 >		
爆弾出力	21 キロトン	変化なし
爆発高さ	503m	変化なし
γ 線量		若干増加 (約 10%)
中性子線量		1-2km で減少 (10-30%)

日本側 WG は、2003 年 5 月までに DS02 報告書に関するすべての分担原稿を米国側に送り、昨年秋には放射線影響研究所から報告書が発表されるものと思われた。しかしながら、その後米国側 WG 内で、長崎 γ 線データに関する細かい議論が蒸し返されるなどといった事情により、DS02 報告書は未だ発表されるに至っていない。本研究会 1 カ月前の 2004 年 6 月に米国側 WG 代表の Young が来広し、DS02 報告書ドラフトについて議論した。米国 WG で長崎原爆の遅発 γ 線について再計算を行ったが、結局、DS02 を変更する必要はないことでコンセンサスが得られ、現在は報告書完成にむけて全力で取り組んでいるとのことであった。日米合同 WG の最後の仕事として DS02 報告書を早急に発表したい。

参考文献

1. 日本学術会議原子爆弾災害調査報告書刊行委員会編；原子爆弾災害調査報告集、日本学術振興会、1953 .
2. R.H. Ritchie, G.S. Hurst；核兵器放射線の透過性：広島・長崎調査への応用、ABCC TR 26-59, 1959 .
3. J.A. Auxier；ICHIBAN: Radiation Dosimetry for the Survivors of the Bombings of Hiroshima and Nagasaki. TID-27080, 1977.
4. Hashizume, T. et.al.; Estimation of the air dose from the atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. Health Phys. 13 (1967)149-161.
5. Rossi,H.H.and Mays,C.W.; Leukemia risk from neutrons. Health Physics 34 (1978)353-360.
6. Preeg W. E., Letter to C. P. Knowles dated on April 5, 1976.
7. W. C. Roesch Ed.; US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki. (DS86 Final Report) Vols. 1&2. RERF, 1987.
8. Hasai, H.et.al.; Europium-152 depth profile of a stone bridge pillar exposed to the Hiroshima atomic bomb: ^{152}Eu activities for analysis of the neutron spectrum,.Health Phys. 53:227-239; 1987.
9. Shizuma, K. et.al.; Residual ^{152}Eu and ^{60}Co activities induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb. Health Phys. 65: 272-282; 1993.
10. T. Straume et.al.; Neutron Discrepancies in the DS86 Hiroshima Dosimetry System. Health Phys. 63 (1992)421-6.
- 11 . 原爆放射線量評価検討会、「DS02 に関する原爆放射線量評価検討会日米会議報告書」厚生労働省健康局総務課、2003 年 3 月 .

広島大での ^{152}Eu , ^{60}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}Eu , ^{60}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}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¹⁾。ただし、橋詰ら²⁾による ^{60}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¹⁾。その後、広島、長崎ともに ^{152}Eu 実測データ、 ^{60}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}Eu 測定試料

広島の爆心から約 2km 以内において 70 サンプルの被爆試料を収集した³⁾。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⁴⁾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。

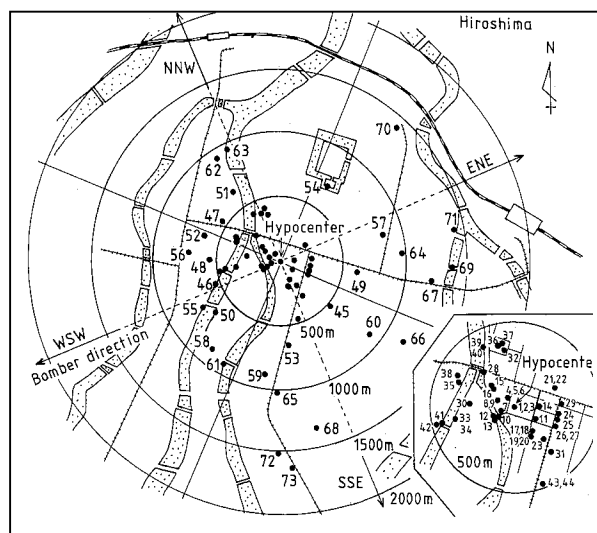


図 1 広島市内の被爆岩石試料の採取場所³⁾

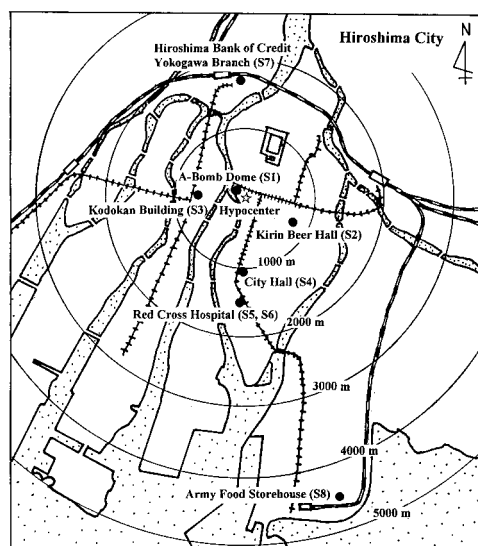


図 2 広島市内の被爆鉄材試料の採取場所^{1,2)}

* SHIZUMA Kiyoshi, Hiroshima University; shizuma@hiroshima-u.ac.jp

広島： ^{60}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 ^{60}Co 測定ではコンクリート中の表面から8cmの深さの鉄材²⁾と建物屋上にあった鉄リング⁵⁾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： ^{152}Eu 測定試料

長崎においては広島の場合よりも ^{152}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^{6,7)}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： ^{60}Co 測定試料

被爆鉄材は長崎大のグループ⁸⁾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。

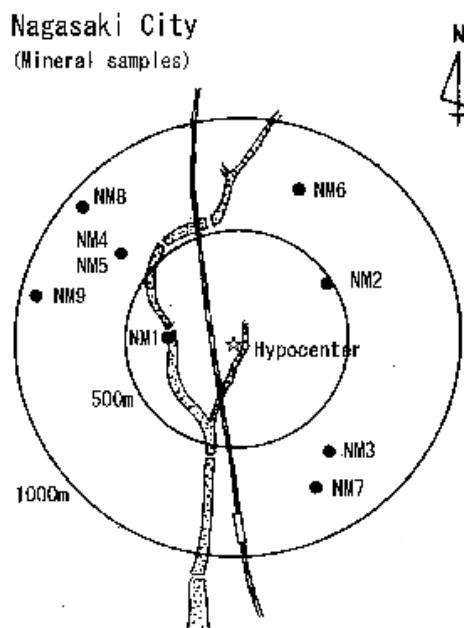


図3 長崎市内の被爆岩石試料の採取場所

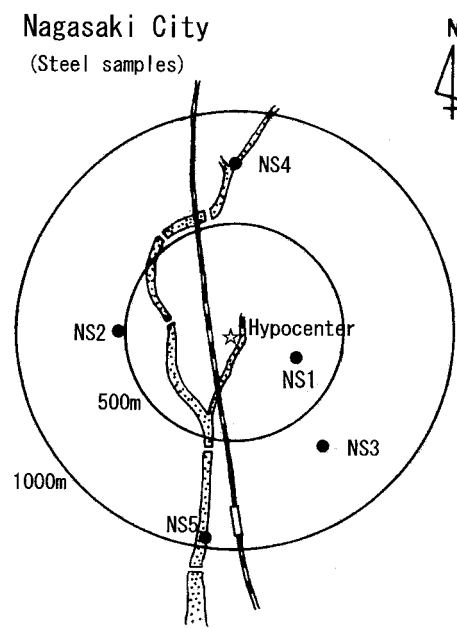


図4 長崎市内の被爆鉄材試料の採取場所

3. 試料処理

^{152}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}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 μm) 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⁹⁾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 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}Co 測定のための試料

^{60}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}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}Co を直接測定した³⁾。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¹⁰⁾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 Φ x 60mmh) に詰めて、有感体積 124cm³ の低バックグラウンド Ge 検出器¹¹⁾ (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¹¹⁾ 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}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}Eu ³⁾ および ^{60}Co の結果¹²⁾ を図 5, 6 に示す。長崎の ^{152}Eu ¹³⁾、 ^{60}Co ¹⁴⁾ 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}Eu 、 ^{60}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}Eu 、 ^{60}Co ¹⁴⁾ 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。

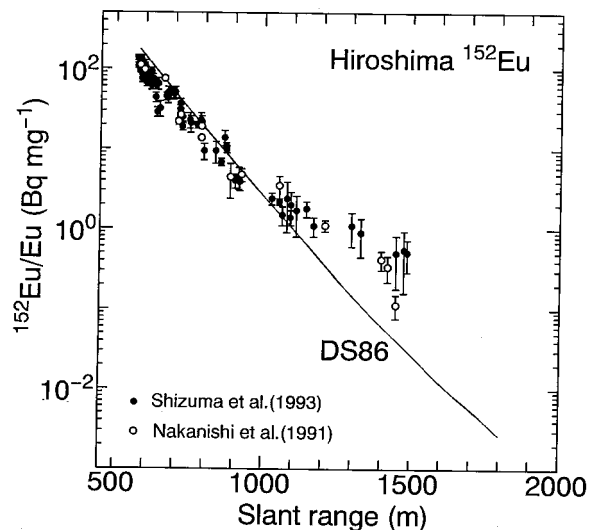


図5 広島 の ^{152}Eu 測定結果 (文献 3)

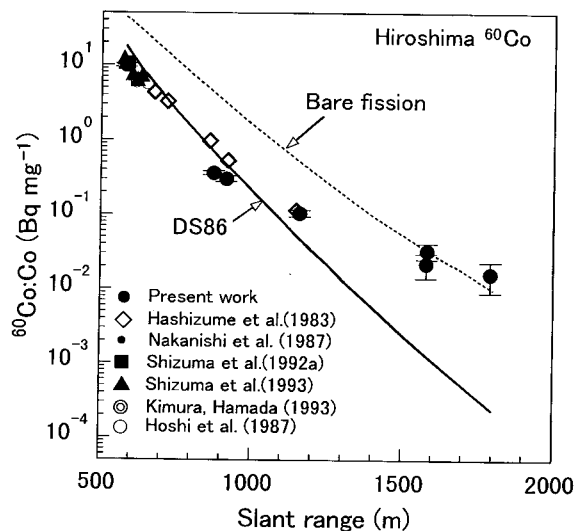


図6 広島 の ^{60}Co 測定結果 (文献 12)

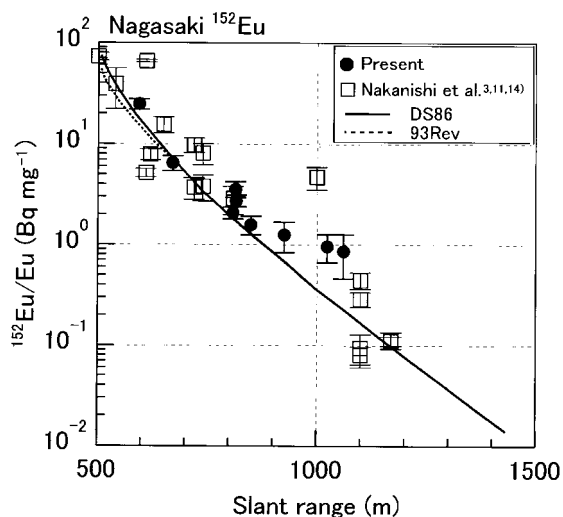


図7 長崎 の ^{152}Eu 測定結果 (文献 13)

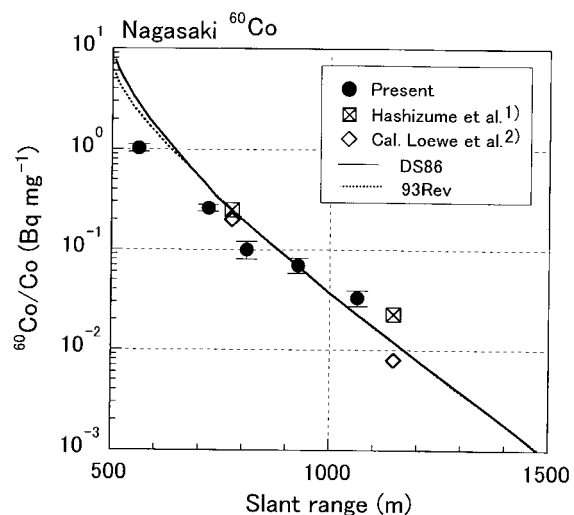


図8 長崎 の ^{60}Co 測定結果 (文献 14)

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¹⁵⁾は $n^* = 2.33 \sigma_b$ (σ_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1¹³⁾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¹⁵⁾は $n^* = 2.33 \sigma_b$ (σ_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}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}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}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}Eu 測定の検出限界 (文献 13)

Sample	Place	Slant range	Measurement		Peak counts (344keV)		Background		d.m.c ^a	n ₀ / n [*]
No.		(m)	Date	time T (s)	N ₀	n ₀ (cps)	N _b	σ _b	n [*] (cps)	
Nagsaki										
NM1	Yana bridge	594	990908	515690	465 ± 32	9.0×10 ⁻⁴	325	18	8.1×10 ⁻⁵	11
NM2	Ukrakami church	677	940906	670720	127 ± 27	1.9×10 ⁻⁴	380	19	6.8×10 ⁻⁵	2.8
NM3	Nagasaki Univ. hospital	653	940917	770110	178 ± 29	2.3×10 ⁻⁴	560	24	7.3×10 ⁻⁵	3.2
NM4	Gokoku shrine-A	815	991026	1178360	285 ± 59	2.4×10 ⁻⁴	725	27	3.7×10 ⁻⁵	4.6
NM5	Gokoku shrine-B	816	991012	1201000	178 ± 31	1.5×10 ⁻⁴	550	23	4.5×10 ⁻⁵	3.3
NM6	Nanzan school-A	850	990922	1717590	119 ± 34	6.9×10 ⁻⁵	985	31	4.2×10 ⁻⁵	1.6
NM7	Shimoda house	926	991207	1201650	64 ± 37	5.3×10 ⁻⁵	560	23	1.9×10 ⁻⁵	2.8
NM8	Prefectural gymnasium	1024	991221	1116340	69 ± 33	6.2×10 ⁻⁵	520	23	4.8×10 ⁻⁵	1.3
NM9	St. Maria school	1061	000430	1551170	99 ± 31	6.4×10 ⁻⁵	800	28	4.2×10 ⁻⁵	1.5
NM11	Maruocho (control)	2889	990601	895430	-	-	664	26	6.8×10 ⁻⁵	-
Hiroshima										
1	Shima hospital	579	910117	81130	254 ± 20	3.1×10 ⁻³	50	7	2.0×10 ⁻⁴	25
45	Naka telephone office	774	901114	139970	263 ± 28	1.9×10 ⁻³	250	16	2.6×10 ⁻⁴	12
52	Myochgoji	873	900926	378200	175 ± 27	4.6×10 ⁻⁴	260	16	9.9×10 ⁻⁵	7.7
60	Enryuji	1081	910227	220400	31 ± 18	9.5×10 ⁻⁵	270	16	6.9×10 ⁻⁵	1.3
63	Teramachi stone wall	1112	910114	200240	35 ± 19	1.7×10 ⁻⁴	120	11	1.3×10 ⁻⁴	1.4
66	Kozenji	1299	910720	550680	31 ± 18	3.4×10 ⁻⁴	300	17	7.2×10 ⁻⁵	0.5
68	Primary school	1450	901119	425730	24 ± 17	5.6×10 ⁻⁵	300	17	9.5×10 ⁻⁵	1.0
70	Communication hospital	1488	910722	747820	62 ± 40	8.3×10 ⁻⁵	1100	33	1.0×10 ⁻⁴	0.8
Control	Comercial high school	2928	000713	1270310	-	-	700	27	4.7×10 ⁻⁵	-

^a Detectable minimum counting rate : n^{*}=2.33 σ_b T⁻¹

^a Detectable minimum counting rate : $n^*=2.33 \sigma_b T^{-1}$

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

No.	Place	Measuring	Peak counts	Peak counting	Background counts		d.m.c ^a	Ratio
		time	(1173+1332)	rate				
		T (s)	N _S (counts)	n ₀ (counts s ⁻¹)	N _B	σ _B	n [*] (counts s ⁻¹)	n ₀ / n [*]
[Nagasaki]								
NS1	Takatani	267020	199 ± 17	7.5 × 10 ⁻⁴	50	7.0	6.1 × 10 ⁻⁵	12
NS2	Shiroyama	455450	300 ± 23	6.6 × 10 ⁻⁴	160	12.6	6.4 × 10 ⁻⁵	10
NS3	Nagasaki Univ.	739200	75 ± 15	1.0 × 10 ⁻⁴	100	10.0	3.2 × 10 ⁻⁵	3.2
NS4	Motoki Bridge	1165860	140 ± 22	1.2 × 10 ⁻⁴	280	16.7	3.3 × 10 ⁻⁵	3.6
NS5	Mitsubishi Steel	1265260	143 ± 24	1.1 × 10 ⁻⁴	300	17.3	3.2 × 10 ⁻⁵	3.6
[Hiroshima]								
S1	A-Bomb Dome	269150	2901 ± 54	10.8 × 10 ⁻³	44	6.6	5.7 × 10 ⁻⁵	188
S2	Kirin Beer Hall	278530	580 ± 27	2.1 × 10 ⁻³	58	7.6	6.4 × 10 ⁻⁵	33
S3	Kodokan Building	607140	353 ± 21	5.8 × 10 ⁻⁴	101	10	3.9 × 10 ⁻⁵	15
S4	City Hall	611420	275 ± 24	4.5 × 10 ⁻⁴	102	10.1	3.8 × 10 ⁻⁵	12
S5	Red Cross Hospital (pipe)	823710	79 ± 21	0.96 × 10 ⁻⁴	148	12.2	3.4 × 10 ⁻⁵	2.8
S6	Red Cross Hospital (ladder)	938660	122 ± 18	1.3 × 10 ⁻⁴	168	13.0	3.2 × 10 ⁻⁵	4.0
S7	Hiroshima Back of Credit	1313690	151 ± 21	1.1 × 10 ⁻⁴	221	14.9	2.6 × 10 ⁻⁵	4.1
S8	Army Foods Storehouse	1288030	-	-	230	15.2	2.7 × 10 ⁻⁵	-

^a Detectable minimum counting rate $n^*=2.326 \sigma_B / T$

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}Eu 、 ^{60}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言える。広島における ^{152}Eu および ^{60}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。

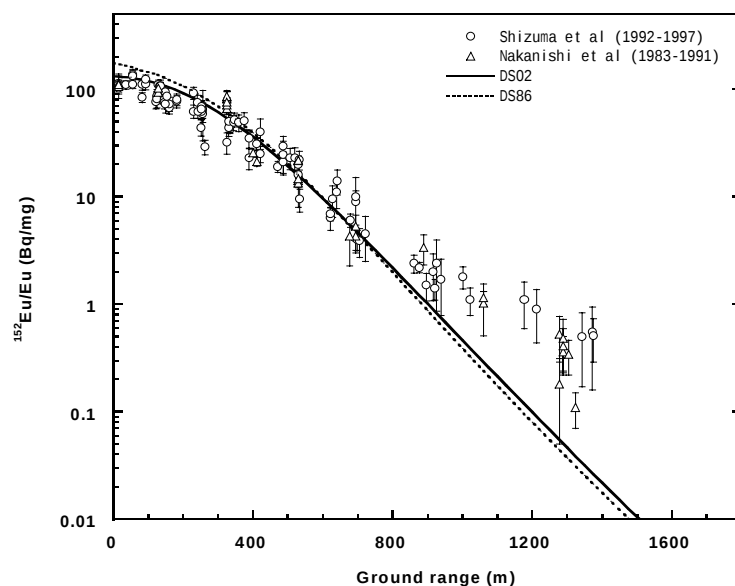


図9 広島における ^{152}Eu 測定値と DS02 中性子に基づく計算値の比較

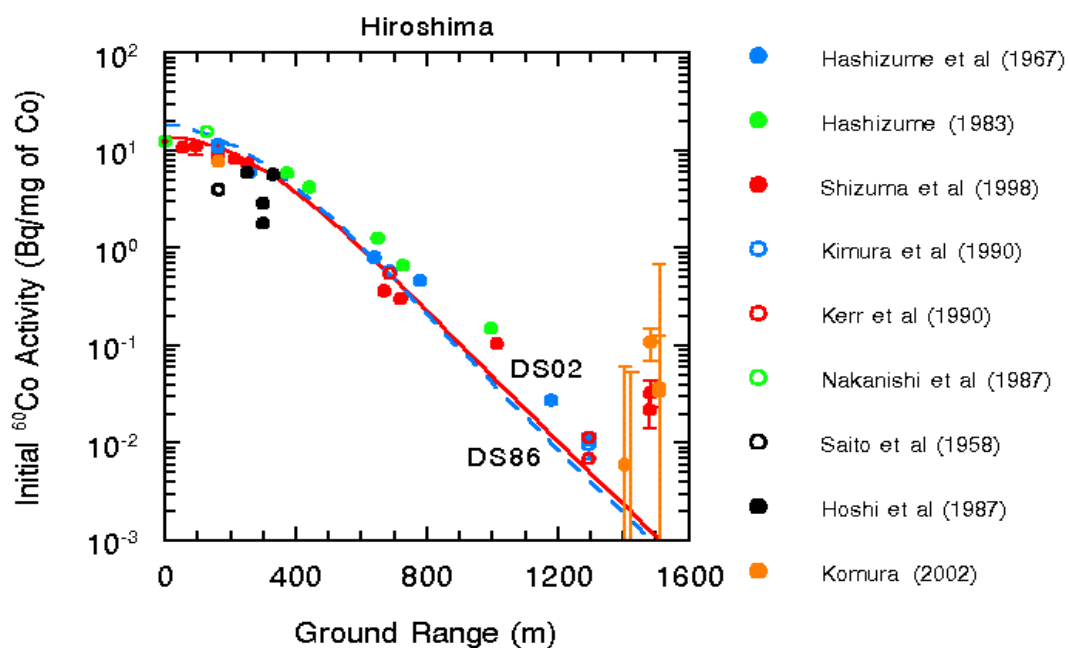


図10 広島における ^{60}Co 測定値と DS02 中性子に基づく計算値の比較

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}Eu and ^{60}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}Co to 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}Eu radioactivity induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb. *Nucl. Instrum. Methods B* **66**: 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}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, T., Yamashita, T., Imanaka, T. (2003) Measurement of Residual ^{152}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}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.

金沢大学での ^{152}Eu 測定 (1)

中西 孝*

金沢大学大学院自然科学研究科

1. はじめに

長崎原爆の爆裂点からの斜行距離が 1595 m の地点で遮蔽物の介在が無い条件で被曝したコンクリート製建造物が発見され、1997 年 11 月に(財)放射線影響研究所によって多くの柱状試料が採取された。我々は、極微弱残留 ^{152}Eu (半減期 13.542 年) の比放射能測定を行うために爆裂点に面した部分の試料の提供を受け、被曝試料からの希土類元素の群分離 (Eu 濃縮フラクションの粗分離) 及び Eu 濃縮フラクションの精製 (高純度化) の実験に着手した。被曝試料に残留する極微弱 ^{152}Eu 放射能を測定するためには Eu の分離・精製 (減容によって計数効率を高くし、 ^{152}Eu 放射能測定の妨害核種を除去する) は不可欠である。

2. 実 験

本研究用に提供されたコンクリート柱状試料の採取地点と位置を Fig. 1 と Fig. 2 に示す。4 本の柱状試料 (約 19 kg) を粗砕きして、骨材 (安山岩) 部分 (約 9.6 kg) とセメントモルタル部分 (約 7.7 kg) に分けた。中性子放射化分析によって安山岩部分の Eu 含量 ($0.96 \mu\text{g/g} \times 9600 \text{ g}$) がモルタル部分のそれ ($0.41 \mu\text{g/g} \times 7700 \text{ g}$) よりも約 3 倍多いことが分かったので、安山岩部分の粉碎試料

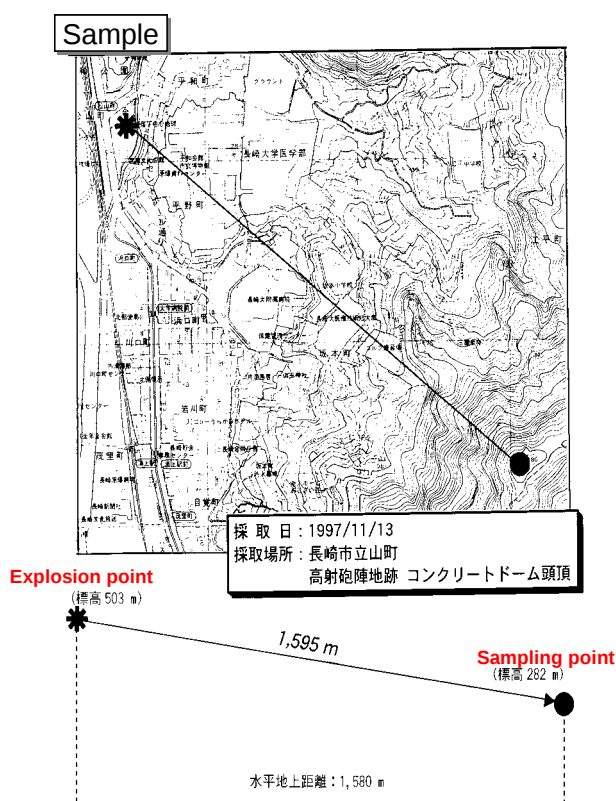


Fig. 1 The location of sampling point in Nagasaki.

* NAKANISHI Takashi, Kanazawa University; nakanisi@cacheibm.s.kanazawa-u.ac.jp

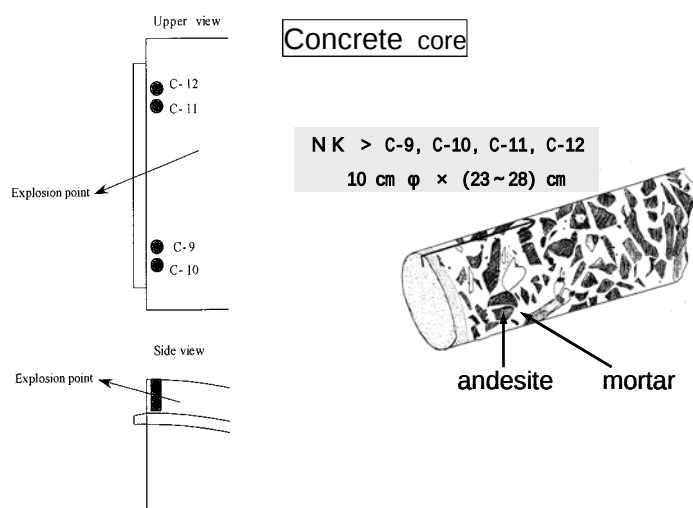
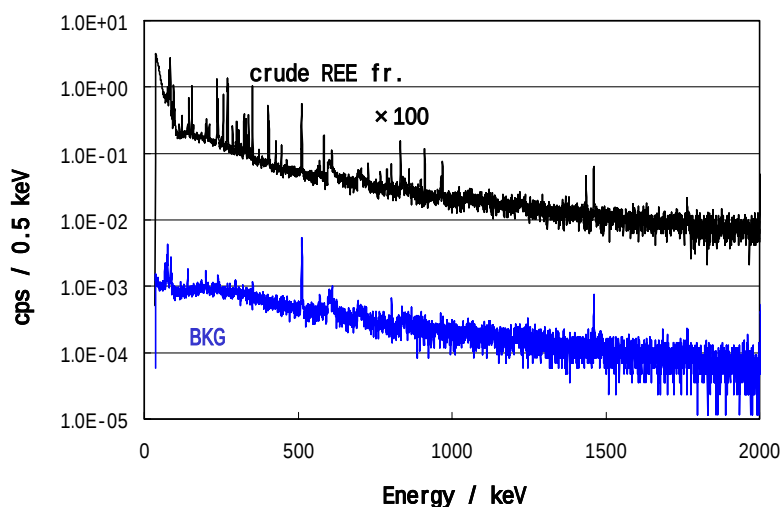


Fig. 2 Concrete core samples subjected to Eu enrichment in the present work.

約 7.8 kg から Eu フラクシオンの粗分離を行った。水酸化ナトリウムを用いるアルカリ溶融によって安山岩の粉末試料を全分解した後 (150 g/バッチ × 52 バッチ), 沈殿法, 溶媒抽出法, イオン交換樹脂カラム法によって主要元素やウラン・トリウムなどを除去して Eu を含む粗製希土類フラクション (乾燥質量約 54 g) を得た。

粗製希土類フラクションの γ 線スペクトロメトリーを行った結果 ^{227}Ac の娘核種が ^{152}Eu 放射能の測定を妨害することが分かったので (Fig. 3), 粗製希土類フラクションをアルカリ溶融によって再度全分解した後, 沈殿法とイオン交換樹脂カラム法で主要元素 (Al, Si) を除去し, さらに硝酸系でのジ(2-エチルヘキシル)リン酸 (HDEHP) を用いる溶媒抽出法によって Eu 濃縮フラクションの精製 (Ac の除去) を行うこととした。この溶媒抽出法による Eu 精製の最適条件の検討結果 (トレーサー実験の結果) を Fig. 4 及び Fig. 5 示す。0.1 M HNO_3 溶液から 1 M HDEHP ベンゼン溶液へランタノイドや Ac を一旦抽出した後, 有機層を 0.2 M HNO_3 で 5 回以上洗浄して Ac を除去し, 3 M HNO_3 で Eu を逆抽出すれば Ac 含量が十分少ない Eu フラクションが得られる見通しが得られた。



Measurement of ultra low-level radioactivity of ^{152}Eu was interfered with daughter nuclides of ^{227}Ac (viz. ^{227}Th , ^{223}Ra , ^{211}Bi).

Fig. 3 Gamma-ray spectrum of crude REE fraction.

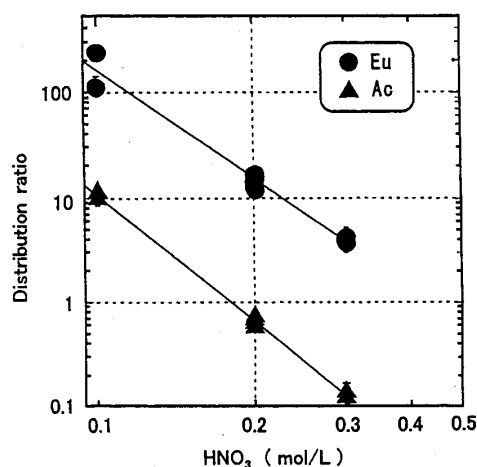


Fig. 4 Results of tracer experiment: extraction of Eu and Ac from HNO₃ solution into 1 M HDEHP in benzene.

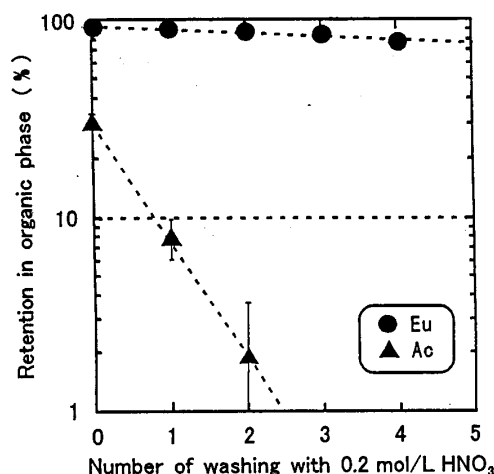


Fig. 5 Results of tracer experiment: separation of Eu and Ac extracted in 1M HDEHP in benzene by washing the organic phase with 0.2 M HNO₃.

実際の試料にこの溶媒抽出(水層 300 mL,有機層 300 mL)・有機層洗浄(1回あたりの水層 300 mL)・逆抽出(水層 300 mL)の操作を適用して Eu フラクシオンの精製を行った後,精製フラクシオンに 100 mg の Fe³⁺ を添加して鉄共沈を行い,水酸化物沈殿を一旦希塩酸に溶解してからポリエチレン容器に入れて乾燥し,得られた薄層試料について ¹⁵²Eu 定量のための X 線/γ 線スペクトロメトリーを開始した。

なお,粗分離及び精製分離の過程における各フラクシオンの元素分析のために,各フラクシオンの一部(既知割合)を分取して適宜 蛍光 X 線分析,中性子放射化分析,ICP-MS 分析を行った。

3. 結果と考察

安山岩試料 → 粗製希土類フラクシオン → 精製 Eu フラクシオン と分離精製を進めた過程におけるマトリックス量と Eu 等の回収率を Table 1 に示す。¹⁵²Eu 測定を妨害する核種 (²²⁷Ac の娘核種) は精製 Eu フラクシオンにほとんど含まれないまでになったが, Eu の回収量が必ずしも十分でない上に,本研究で処理した試料について DS86 (または DS02) 計算方式によって推定される現在の ¹⁵²Eu/Eu は $\sim 2 \times 10^{-4}$ Bq/mg であるため (Fig. 6), 3 カ月間以上の X 線/γ 線スペクトロメトリーが必要であるが, Sm-K-X 線の測定によって ¹⁵²Eu を定量できる見込が得られるに至っている (Fig. 7, Fig. 8)。しかし,精製 Eu フラクシオンには Eu 1.9 mg (Table 1) と Fe 100 mg (共沈担体) のみが含まれるわけではなく, Sm 7.0 mg, Ho 3.1 mg, Yb 19 mg, Lu 2.4 mg も含まれているため, ¹⁵²Eu の壊変に伴って放出される Sm-K-X 線の自己吸収や Sm の蛍光 X 線発生 (Fig. 9) が新たな誤差源として浮上しており,慎重な残留 ¹⁵²Eu 放射能の測定が必要になっている。

Table 1 Results of Eu enrichment and removal of Ac by the present chemical procedure.

Sample or specimen	Mass /g	Eu content /mg (Recovery)	La content /mg (Recovery)	²²⁷ Ac content /Bq (Recovery)
Andesite	7755	7.4 (≡ 100 %)	109 (≡ 100 %)	5.4 (≡ 100 %)
Crude specimen	53.76	4.9 (~66 %)	73 (~67 %)	3.3 (~61 %)
Purified specimen	~0.2	1.9 (~26 %)	not detected	not detected

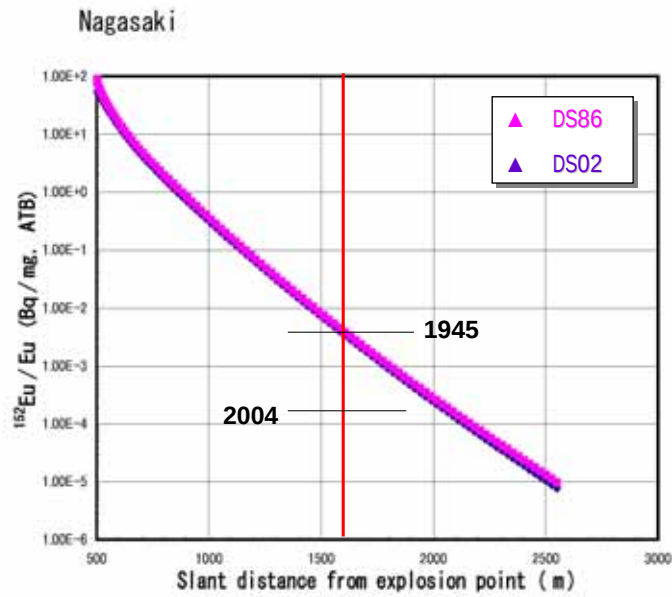


Fig. 6 Results of DS86 and DS02 calculations for Eu-152 in Nagasaki.

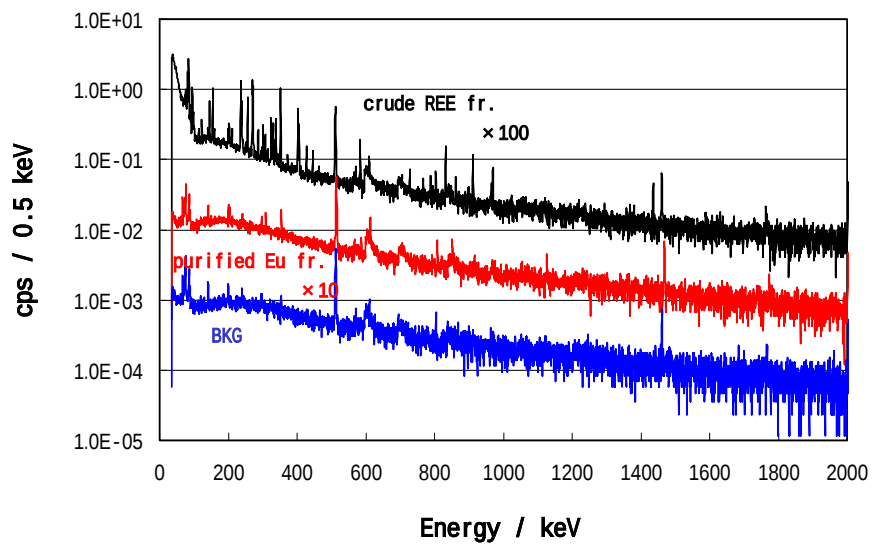


Fig. 7 Gamma-ray spectra of crude REE fraction and purified Eu fraction.

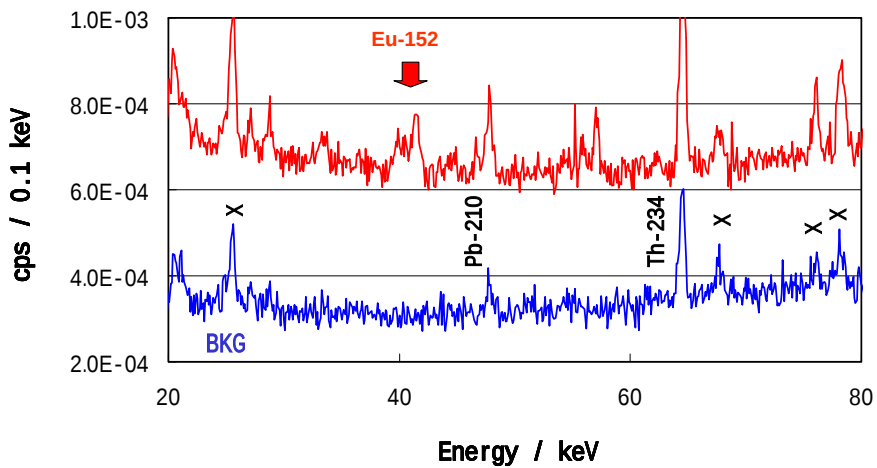


Fig. 8 Low-energy photon spectra of purified Eu fraction and background.

Sm K α X-rays resulted from self-excitation of Sm in counting sample is interfering with counting of Sm K α X-rays after ϵ -decay of ^{152}Eu .

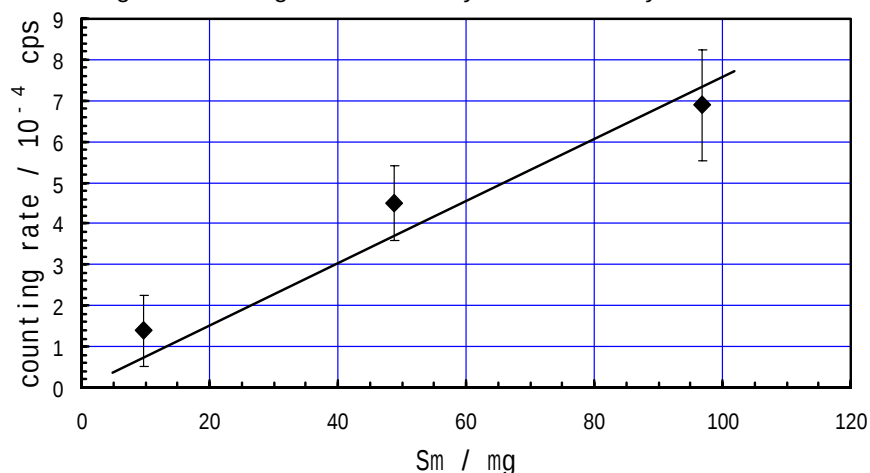


Fig. 9 Sm-K-X-ray from Sm.

本研究で行った硝酸 - HDEHP 系の溶媒抽出・有機層洗浄・逆抽出の過程において，Eu フラクションから Ac が除去されることが確認されるとともに，ランタノイドの分別についても若干のデータが得られた (Fig. 10)。すなわち，0.1 M HNO_3 溶液から 1 M HDEHP ベンゼン溶液へランタノイドと Ac を一旦抽出した後，有機層を 0.2 M HNO_3 で 5 回洗浄することによって，最初の 0.1 M HNO_3 溶液中に存在した La, Ce, Pr, Nd の 80 % 以上が “0.1 M HNO_3 溶液から抽出されないフラクション + 0.2 M HNO_3 で洗浄除去されるフラクション” に集められ，Sm, Eu 及び Tb - Tm の 50 % 以上が 3 M HNO_3 による逆抽出フラクションに回収されることが分かった。なお，3 M HNO_3 で逆抽出されなかった Tm - Lu は有機層を 8 M HNO_3 で洗浄することによって水層へ逆抽出できた。

Fractionation of Lns during Ac removal from Eu

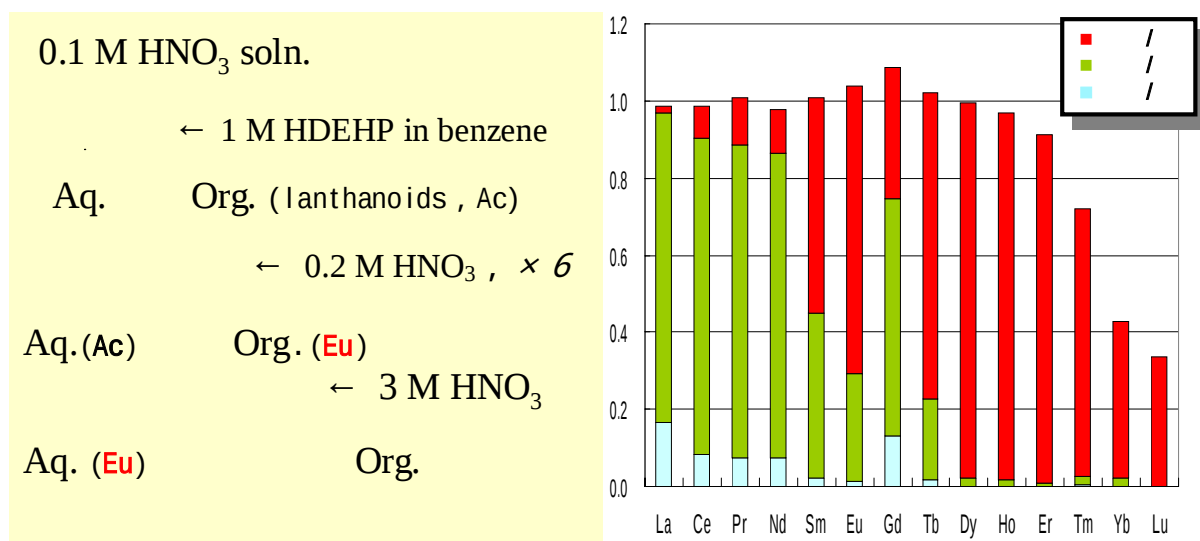


Fig. 10 Fractionation of lanthanoids during (1)extraction from 0.1M HNO_3 into 1M HDEHP in benzene, (2)washing the organic phase with 0.2M HNO_3 and (3)back-extraction with 3M HNO_3 . amounts in starting 0.1M HNO_3 , amounts remaining in 0.1M HNO_3 after the extraction with 1M HDEHP in benzene, amounts back-extracted with 0.2 M HNO_3 , amounts back-extracted with 3 M HNO_3 .

4. 謝 辞

本研究は，細谷 梨沙（現在，核燃料サイクル開発機構に勤務），和泉 宏謙（現在，富山医科薬科大学に勤務），能村 哲平（現在，前多(株)に勤務），井上 裕，横山 明彦 助教授の各氏の協力によって行われたものである。柱状試料は，(財)放射線影響研究所の藤田 正一郎 博士らのご尽力によって採取され，本研究に提供されたものである。記して謝辞に代えたい。

¹⁵²Eu measurement at Kanazawa University (1)

Takashi NAKANISHI

Graduate School of Natural Science and Technology, Kanazawa University

Measurements of the specific radioactivity of residual neutron-induced radionuclides such as ¹⁵²Eu and ⁶⁰Co have been carried out to assess the validity of a series of computer calculations employed for atomic-bomb neutron dosimetry in Hiroshima and Nagasaki. However, the use of these nuclides for atomic-bomb neutron dosimetry has been limited by the following difficulties: (1) today, these radionuclides are found only at extremely low concentrations in materials exposed to the atomic bombs and (2) the neutrons that induced these radionuclides were thermal and epithermal, while the neutron dose received in Hiroshima and Nagasaki is attributable to fast neutrons. In order to overcome the first difficulty, we established a chemical procedure to extract Eu and Co from materials exposed to the atomic bomb. This chemical procedure has been successful for materials exposed to the atomic bomb within a 1400 m slant distance from the explosion point over Hiroshima. At Nagasaki, materials exposed at distances greater than 1200 m have never been subjected to the measurement of residual neutron-induced radionuclides. In this work, we have undertaken the determination of the specific radioactivity of ¹⁵²Eu (half-life: 13.542 y) in a sample exposed to the Nagasaki atomic bomb at a place 1595 m distant from the explosion point. However, because of radioactive decay during the ~ 60 years since 1945 and the great distance from the explosion point, the current specific radioactivity of ¹⁵²Eu in the sample is extremely low (estimated to be $\sim 2 \times 10^{-4}$ Bq-¹⁵²Eu/mg-Eu), and a serious problem in the measurement of ultra low-level ¹⁵²Eu radioactivity arises due to interference from daughter nuclides of ²²⁷Ac (half-life: 21.8 y). Hence, our chemical procedure for preparing a Eu-enriched counting source must be improved, and much attention must be given to the removal of Ac from the Eu-enriched sample.

An approximately 19 kg concrete sample was obtained from the outer surface of a building exposed to the Nagasaki atomic bomb at a distance of 1595 m from the explosion point. From the concrete sample, approximately 9.6 kg of andesite (used as osteodentin) and approximately 7.7 kg of mortar were separated. Because preliminary neutron activation analysis demonstrated that the Eu concentration in the andesite fraction (0.96 ppm) was higher than the concentration in the mortar fraction (0.41 ppm), approximately 7.8 kg aliquots of andesite were subjected to a chemical procedure to separate rare-earth elements (REEs) including Eu. After total decomposition of the pulverized andesite by fusion with sodium hydroxide, removal of major elements (such as Si, Al, Fe, Ca, Na, K, and Mg) was carried out by precipitation, solvent extraction, and ion-exchange column methods. A crude specimen obtained in this manner was subjected to preliminary measurement of Eu and radionuclides. The crude specimen, which was

enriched in REEs, was then subjected to total decomposition and chemical procedures to obtain a purified specimen, which was virtually free of major elements and Ac. To remove Ac from the REEs, the major elements were first removed, and then solvent extraction with 1M HDEHP-benzene was applied to the REE fraction in dilute nitric acid medium.

Preliminary measurements of Eu and radionuclides in the crude specimen revealed that the content of ^{227}Ac daughters in the specimen was too high to determine the low-level ^{152}Eu radioactivity. A series of tracer experiments using ^{152}Eu and ^{228}Ac demonstrated that solvent extraction in a 1M HDEHP-benzene/dilute HNO_3 system is an efficient method to remove Ac from Eu (Figs. 4 & 5). In the case of the actual crude specimen enriched in REEs, Eu and Ac were first extracted into 300 mL of 1M HDEHP-benzene from 300 mL of 0.1 M HNO_3 solution. The organic phase was then washed with five 300 mL portions of 0.2 M HNO_3 . Some results of the enrichment and purification of Eu from the sample exposed to the atomic bomb are given in Table 1. Although the overall recovery of Eu in the purified specimen is only ~ 26 % of the amount contained in the approximately 7.8 kg aliquots of andesite, the removal of Ac from Eu has finally enabled the detection of ^{152}Eu radioactivity. The careful measurement of ^{152}Eu radioactivity in the purified specimen should be continued.

金沢大学における原爆中性子誘導核種 ^{152}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}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* γ 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}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すことであ

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}Eu の関わり

年 月	実施項目	備 考
1976.7	<i>in situ</i> 測定 (広島)	^{152}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}Eu , ^{60}Co の発見	
1999.9	JCO臨界事故調査	^{198}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}Eu 測定実施	^{36}Cl との Intercomparison
2002.3	11試料 (4 ブランク) の ^{152}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}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



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}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}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 γ 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。 γ 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}Eu 以外にないことから原爆中性子誘導核種 ^{152}Eu と判断した。 ^{152}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}Eu の発見は京都大学原子炉実験所の報告書¹⁾に簡単に記載されている。

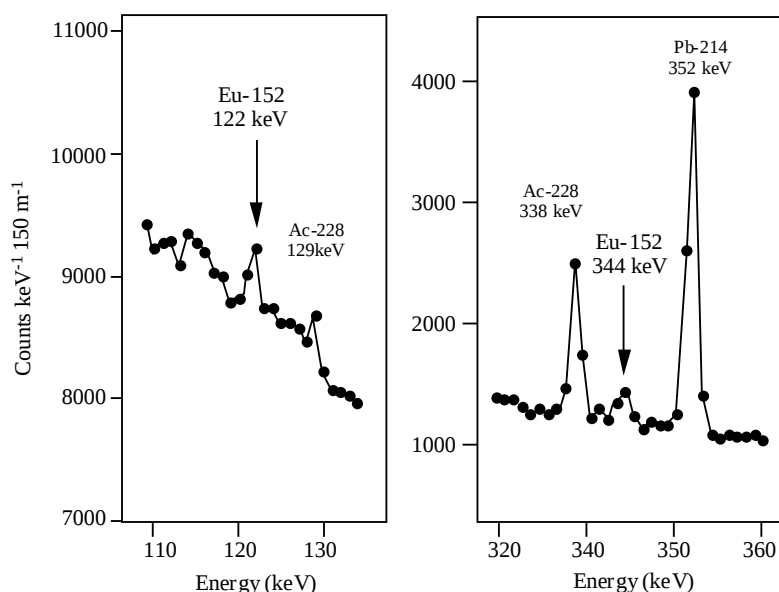


Fig. 1 原爆ドーム内での in situ 測定で発見された ^{152}Eu （測定時間150分）

1.2 長崎における in situ 測定 (1977.8)

広島での in situ 測定で ^{152}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}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}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 γ 線測定により ^{152}Eu (+ ^{154}Eu 、 ^{60}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²⁾。

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議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}Eu の深度分布を指数関数と仮定し 122keV γ 線のピークを用いて解析した³⁾。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}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}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⁴⁾。

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

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}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⁶⁾。これら ^{152}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}Eu と ^{60}Co のデータが数多く報告された^{7,8,9)}。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 年より定期的に行われるようになった。

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}Eu と ^{60}Co の発見¹⁰⁾ (1998 年)

環境中性子によって生成する天然の ^{152}Eu と ^{60}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¹¹⁾。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⁻³ と低い。1995 年 6 月に 2 台の検出器で始まっ

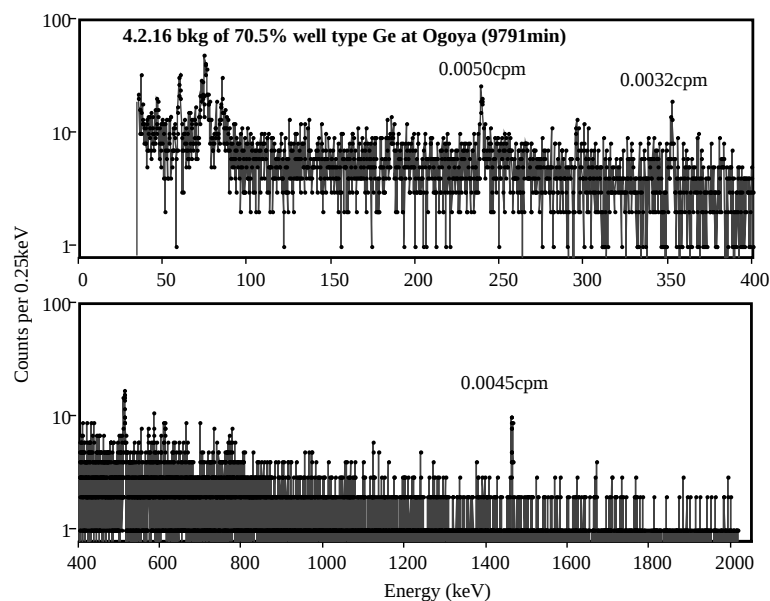


Fig. 2 相対効率 70.5%の井戸型 Ge 検出器のバックグラウンドスペクトル .

100 ~ 2000keV のグロスカウントは 1.3cpm、比較的高い 352keV (^{214}Pb) 及び 1461keV (^{40}K) でも 0.0032cpm と 0.0045cpm でしかない .

た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 検出器が稼動している。 ^{152}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}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}Eu と ^{60}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、尾小屋測定室が稼動するま

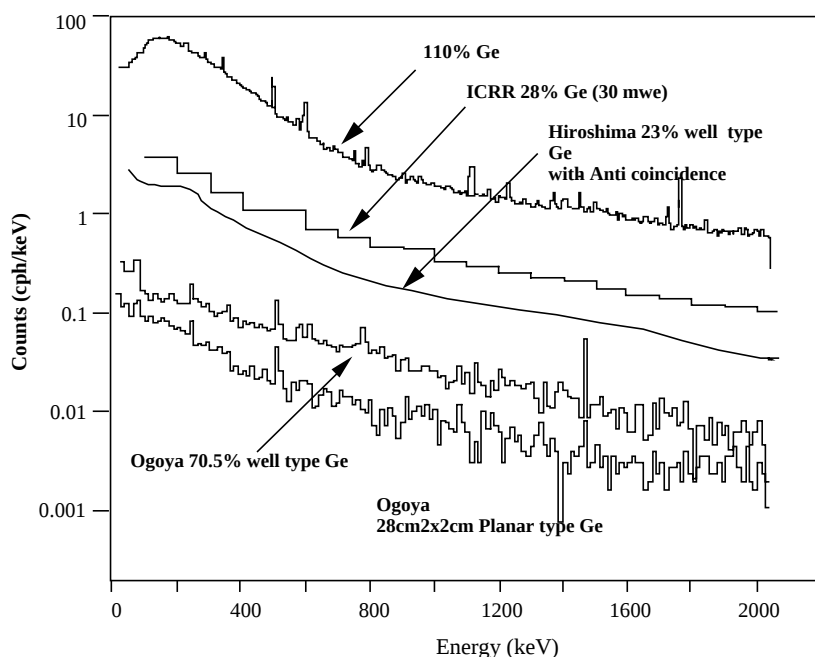


Fig. 3 尾小屋設置の Ge 検出器のバックグラウンドスペクトルと他機関の Ge 検出器の比較 (ICRR のものは、約 40mwe の地下)。比較のために縦軸は cph keV^{-1} で表したが、Ge 結晶の質量では規格化していない。

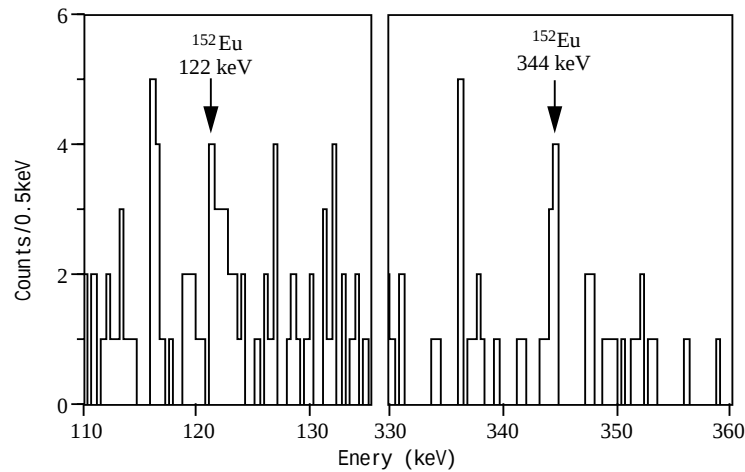


Fig. 4 1 gの酸化ユーロピウム試薬の測定による ^{152}Eu の発見

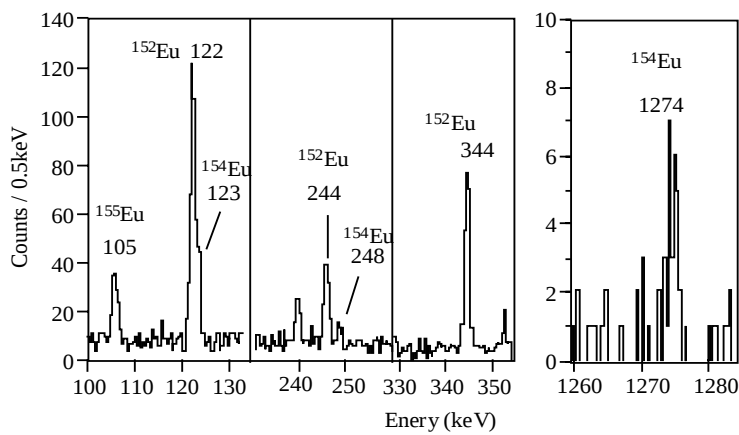


Fig. 5 10gの酸化ユーロピウム試薬中の ^{152}Eu ^{154}Eu ^{155}Eu の検出

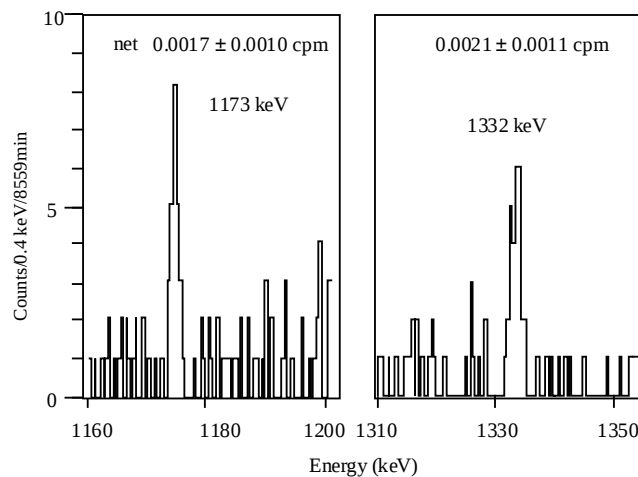


Fig. 6. 製造後50年以上経過した試薬の γ 線スペクトル(^{60}Co の発見)

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(Eu_2O_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しかないので、検出されなくてもともとと考えていたが、1日後には ^{152}Eu の122keV γ 線の存在を示唆するスペクトルが得られ (Fig. 4) 天然の ^{152}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}Eu のほかに、 ^{154}Eu と ^{155}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}Co の場合、検出されても人工の ^{60}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}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}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}Au を含む約20の誘導核種の検出に成功した¹²⁾。

天然の ^{152}Eu と ^{60}Co の寄与は、DS86の計算値と比較して広島市の爆心から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す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}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¹³⁾。この事実は、原爆中性子による ^{152}Eu 及び ^{60}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、静岡市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、広島市の17試料と長崎市の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 γ 線スペクトルの例を示す。前者は $^{223}\text{Ra} (^{227}\text{Ac})$ 由来の γ 線 (342.7keV) の妨害が比較的小さいので ^{152}Eu の存在を確認できたが、後者は妨害が大きいために、確認は困難であった。他の試料も同様な状況であり ^{227}Ac の妨害と ^{152}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}Eu を検出することができなかった。 ^{152}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。

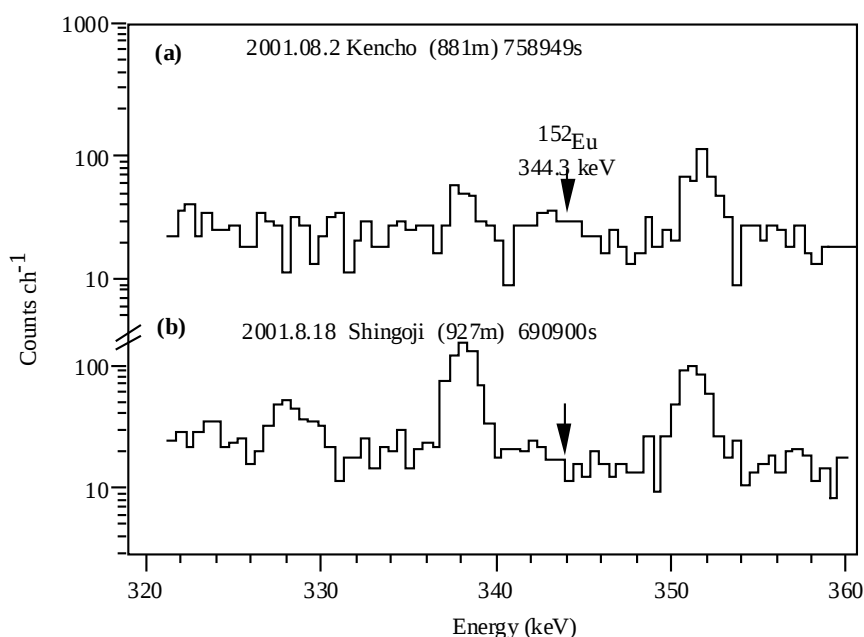


Fig. 7 (a) 広島県庁(881m)と(b)真行寺の被ばく花崗岩試料の γ 線スペクトル

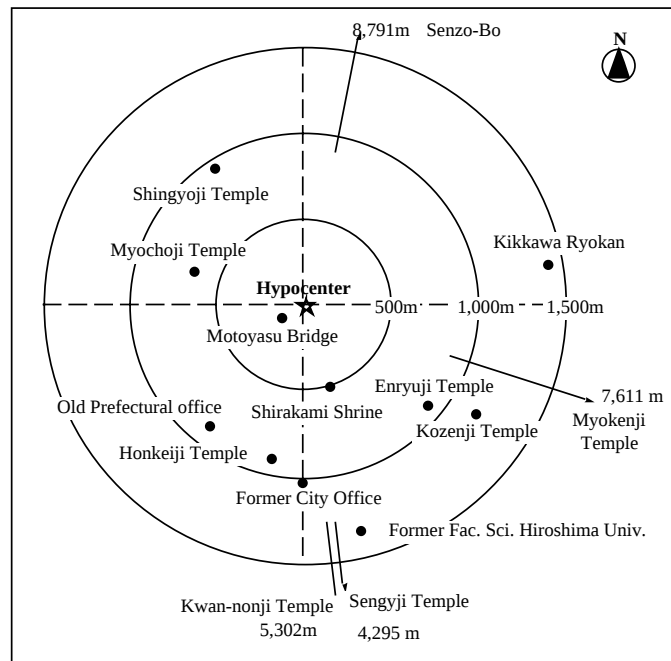


Fig. 8 Intercomparison で測定した花崗岩試料の採取地点

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}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}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}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。γ 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 γ 線エネルギーが ^{152}Eu の 344keV に近接した 342.7keV の γ 線を放出する ^{227}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}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 γ 線スペクトルの例を示す。

^{152}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}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}Ac ）で得たスペクトルを参照して Peeling Off 法で ^{152}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 γ 線の計数率(cpm)と各試料に対する検出効率、γ 線の放出を用いて測定時点の ^{152}Eu 放射能 (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}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}Eu のブランク値としては中性子フラックス

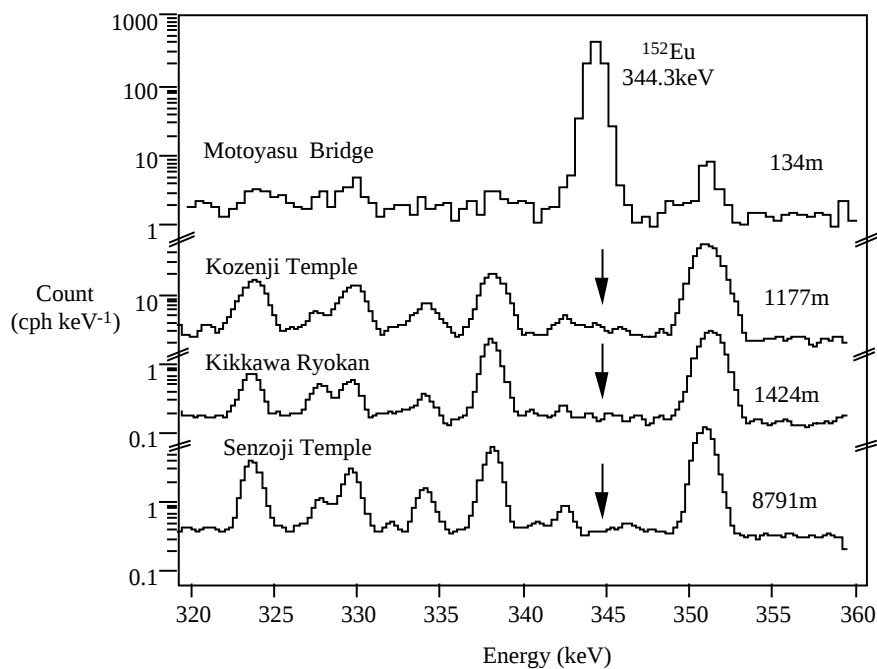


Fig. 9 極低バックグラウンド井戸型 Ge 検出器で測定した(a)元安橋(134m)、(b)白神神社(504m)、(c) 広禅寺(1177m)及び(d)ブランク試料の γ 線スペクトル。

($8 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$)の1/3が ^{152}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}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}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、 γ 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}Eu 生成量

試料番号	採取地点	爆心からの距離 (m)	^{152}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	妙顕寺7	7611	ND

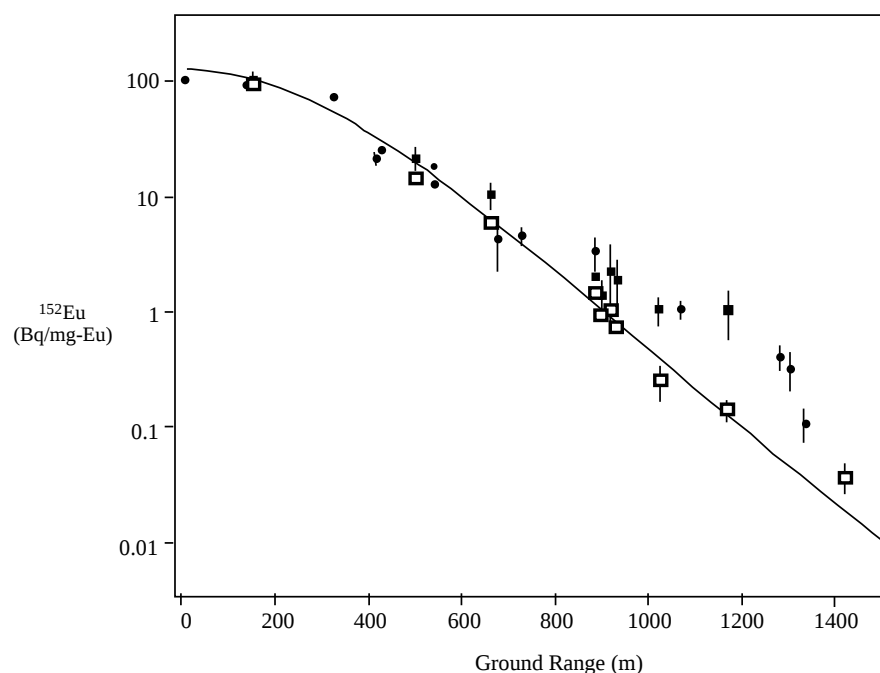


Fig. 10 ^{152}Eu 生成量と DS02 及び以前の測定との比較

1 σ 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}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する。

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}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}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).

広島原爆被爆花崗岩の ^{36}Cl -AMS 測定

長島泰夫*、関李紀、松広岳司、高橋勉、笹公和、末木啓介

(筑波大学 AMS グループ)

星正治、藤田正一郎、静間清、葉佐井博巳

(広島原爆線量研究会)

1. はじめに

DS86 原爆線量評価システムによる中性子線量見積もりと ^{152}Eu - γ 測定による中性子線量見積もりの不一致が指摘され、その原因の追究がなされてきた。評価システムの改善が必要視されていたが、そのためにも、更なる実測データの積み上げが必要であった。その一環として、われわれは、原爆熱中性子により花崗岩中に僅かに生成された ^{36}Cl を筑波大学 ^{36}Cl 加速器質量分析 (AMS) 装置で測定し、中性子線量の見積もりを行った。

原爆投下後 50 数年経過した現在、半減期が ~ 13 年の ^{152}Eu - γ 測定は難しさを増してきている。一方、 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 熱中性子吸収反応によって生成される ^{36}Cl は、 ~ 30 万年のきわめて長い半減期であることから、生成された ^{36}Cl がほぼそのまま保存されており、 ^{36}Cl 測定は今の時点での広島原爆線量評価にかなり有効な結果を与えると期待できる。しかしながら、長半減期である事と、 $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$ 反応の断面積が 44barn と小さくなく、 ^{36}Cl 生成量が少ないことから、 ^{152}Eu と同様の放射線測定は実質的に不可能であり、AMS 測定が唯一 ^{36}Cl 測定を可能とする方法である。

^{36}Cl -AMS 測定は、世界各所で開発が進められているが、実用化された施設は世界で 7 施設程度であり、日本では筑波大のみである。AMS 技術はここ 10 年で急速に発展し、現在も開発研究が進められている新しい測定技術であり、研究所間で測定結果に差異が生じることがある。

そこで、今回の試料測定では、測定結果の精度を確保することを考え、3 箇所の ^{36}Cl -AMS 施設で同一試料を測定し、その結果を相互比較検討して、原爆中性子線量の見積もりを求めることにした。

2. 加速器質量分析法 (AMS)

質量分析法の一種であり、タンデム静電加速器で測定粒子を加速することにより、従来の質量分析法 (SIMS 等) に比べ、格段の高感度を得ている。SIMS では、測定粒子をイオン化し、それを 2 極又は 4 極電磁石で運動量分析し、設定した運動量を持つ目的とする粒子を選択的に計数する方式である。AMS も原理的には同じであるが、イオン化した粒子や分子に高いエネルギーを与える事と、タンデム静電加速器の加速過程において、粒子や分子を薄膜に通過させる事に特徴がある。

ある程度加速された分子が薄膜を通過するすると、100% の確率で分子結合が切れ、単粒子になる。したがって、SIMS などでは測定の妨害となる同重分子の存在が AMS では完全になくなる。又、測定粒子が高エネルギーであることから、原子核実験で培われた粒子識別技術が応用でき、やはり SIMS などでは測定の妨害となる同重体を AMS ではほぼ完璧に分離される。これらの特徴により、AMS は SIMS 等 に比べ格段の高感度測定が実現されている。ちなみに筑波大 ^{36}Cl AMS 測定では、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比で 10^{-14} の超高感度が得られている。

放射性同位元素の計測には放射計数法が有効である。放射計数法と AMS 法を ^{36}Cl 測定を例にとっ

* NAGASHIMA Yasuo, University of Tsukuba; nagashima@tac.tsukuba.ac.jp

て比較してみる。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が 10^{-11} の試料の ^{36}Cl を 30 分間で 10000 カウント (1%統計) 計測するのに必要な試料量を比較してみる。AMS システムでの ^{36}Cl イオン転送効率 は加速器で 10%、測定系では 30% であり、又イオン源での ^{36}Cl -イオン生成効率はおよそ 3% である。これを考慮すると、AMS 測定の必要な塩素試料量は $\sim 0.3\text{mg}$ (AgCl) である。一方、放射計数法では計数効率を 100% としても、半減期が ~ 30 万年であることから、 $\sim 1.8\text{kg}$ もの AgCl が必要になる。 1.8kg もの AgCl を得るためには、その何千倍もの量の試料が必要となり、 ^{36}Cl 測定を放射計数法で行うことは不可能である。

3. ^{36}Cl -AMS システムの比較

表に、今回の相互比較測定を行った AMS 機関の ^{36}Cl -AMS 方式を示した。それぞれ特徴のある独自の方式を採用しており、方式の違いの測定結果への影響を確認する上からも、この 3 機関で相互比較測定を行ったことは適切であった。ミュンヘン工科大は、タンデム静電加速器で加速した後に更に線形加速器でより高いエネルギーに粒子を加速し、薄膜通過後、2 極電磁石で完全に軌道電子が剥ぎ取られた $^{36}\text{Cl}^{17+}$ を選別し、妨害となる ^{36}S 同重体は $^{36}\text{S}^{16+}$ が最大で $^{36}\text{S}^{17+}$ が存在しないことを利用して除去し、 ^{36}Cl のみを検出器で計数する方式を用いている。 ΔE -E 検出器を用いて ^{36}Cl - ^{36}S 識別検出を行う方法より、 ^{36}S の妨害が少ない優れた方法である。筑波大は、3 分子パイロットビーム ($^{12}\text{C}^{3+}$ — $^{12}\text{C}^{3+}$) を用いて、加速電圧の制御を行っている。GVM を用いる方法より長時間安定性に優れた方式である。LLNL の方式は多くの AMS 施設で採用されている一般的な方法であり、高効率に多数の試料を連続測定する事が可能となっている。

	ミュンヘン工科大	LLNL	筑波大
イオン源	単式カソード ロッド式	複式カソード ディスク式	複式カソード ロッド式
加速電圧制御	GVM - コロナ	GVM - コロナ	スリット - コロナ ($^{12}\text{C}^{3+}$)
^{36}Cl - ^{35}Cl 測定	順次測定	順次測定	同時測定
^{36}Cl 検出 ^{36}S 除去	SSD 検出器 ($^{36}\text{Cl}^{17+}$ 検出)	ΔE -E 検出器 (^{36}Cl - ^{36}S 識別検出)	ΔE -E 検出器 (^{36}Cl - ^{36}S 識別検出)

表 1 相互比較測定をした機関の ^{36}Cl -AMS システムの方式比較

4. 広島原爆被爆試料の ^{36}Cl 測定

元安橋欄干や寺院の墓石等 11 種類の原爆被爆花崗岩と遠距離コントロール試料として採取された原爆に被爆していない花崗岩 5 種の計 16 種の花崗岩の ^{36}Cl を測定した。爆心地からの距離は 146m (元安橋) から 1424m (吉川旅館) で、採取地点を右図に示した。石切り場の花崗岩は ^{36}Cl の自然存在量 (バックグラウンド) を見積もるために測定された。

花崗岩試料は図 2 に示すごとく、表面から $\sim 10\text{mm}$ 厚にスライスし表面から 2 又は 3 層目を測定

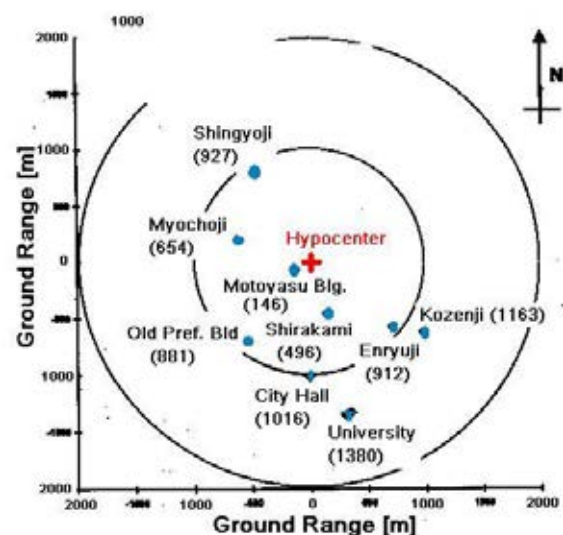


図 1 花崗岩採取地点



図2 花崗岩試料の前処理

した。 ^{36}Cl 測定は AgCl で数mgあれば十分であり、そのためには50g程度の花崗岩試料があればよく、大きな試料では各スライスを更に2分割し、その分割片をスタンプミルを用いて粉末化した(図2の2)。

粉末化した花崗岩より図3に示す化学処理の手順により含有されている塩素を AgCl の化学形で取り出した。超純水10mlに混ぜた試料粉末を1mlの濃硝酸で酸性にした後、0.25Mの硝酸銀溶液10mlを加えて、粉末中の塩素を遠心分離を通して塩化銀として取り出した。この塩化銀は、かなりの硫黄を含んでいるので、アンモニアで塩化銀を溶液にした後、硝酸バリウムを加え硝酸バリウムとして硫黄成分を取り除く操作を行った。この硫黄除去操作は必要に応じて複数回行った。硫黄除去操作は重要で、 AgCl の試料に1ppmの硫黄が残っていると、 $\Delta\text{E-E}$ 検出器に入る妨害粒子の ^{36}S の量が多くなり、10ppmあると ^{36}Cl の測定が困難となってしまう。図4に硫黄除去操作をした場合としない場合での、 $\Delta\text{E-E}$ 検出器出の測定

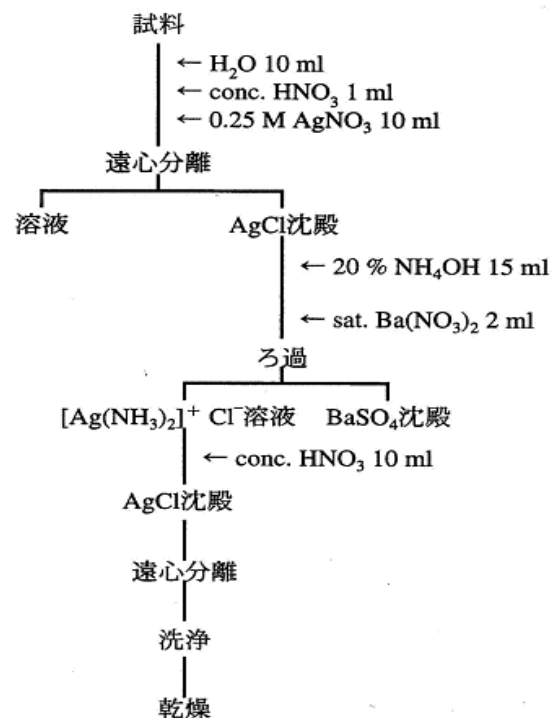


図3 試料の化学処理手順

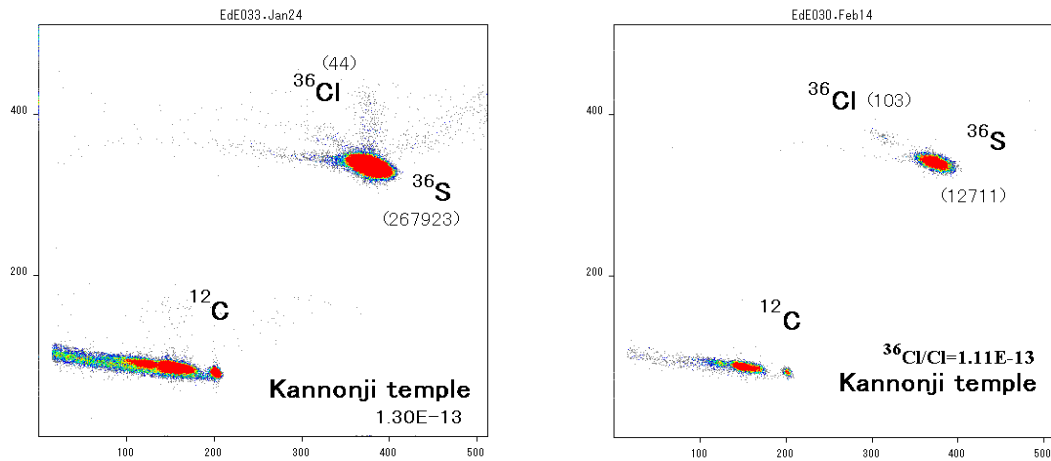


図4 硫黄除去操作有無の比較。左図は無し、右図は有り

状態を示した。同一試料（バックグラウンド試料、観音寺）の測定であるが、硫黄除去無しでは ^{36}S の妨害が ^{36}Cl に入り込み、 $\sim 20\%$ 程度、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が大きくなってしまっている。

測定では AMS 測定で ^{36}Cl を個数として計るとともに、F-Cup で ^{35}Cl を電流値として同時に測定し、 $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ の相対比を求めた。 $^{36}\text{Cl}/^{35}\text{Cl}$ 絶対比を得るために、試料と標準試料との交互測定を行った。

5. 結果

被爆花崗岩の ^{36}Cl を ΔE -E 検出器で測定した例を図5に示す。縦軸は粒子が電離ガス（アイソプタン）を通過中に失ったエネルギー、横軸は半導体検出器で測定した残留エネルギーである。 ^{36}Cl に加え、試料にわずかに（ $\sim 1\text{ppm}$ ）含まれている ^{36}S とパイロットビームの ^{12}C が同時に測定されている。 ^{36}Cl は ^{36}S から明確に分離識別して測定された。 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比が $\sim 10^{-14}$ 程度と小さくなり、かつ ^{36}S の含有が大きくなると、 ^{36}S の裾野が ^{36}Cl の領域に重なってきて妨害が無視できなくなってくる。したがって、試料調整段階での硫黄除去操作が、測定精度確保の上からも重要な操作となっている。現在、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = \sim 4 \times 10^{-14}$ が実用上の最高感度となっており、もっぱら硫黄の妨害によって決められ

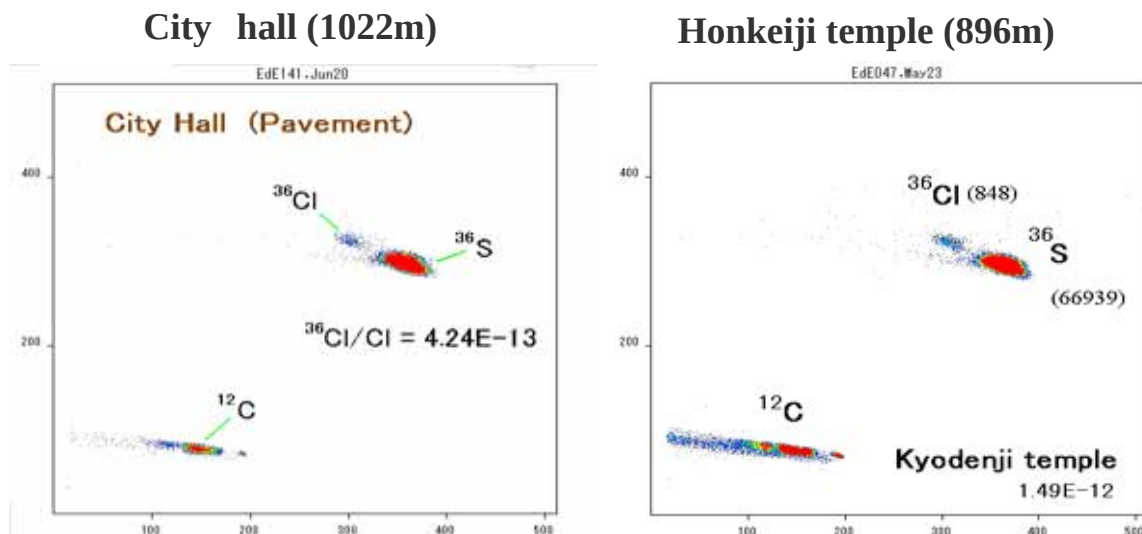


図5 原爆被爆花崗岩 ^{36}Cl 測定 2 次元 Map、縦軸： ΔE 、横軸：残留 E

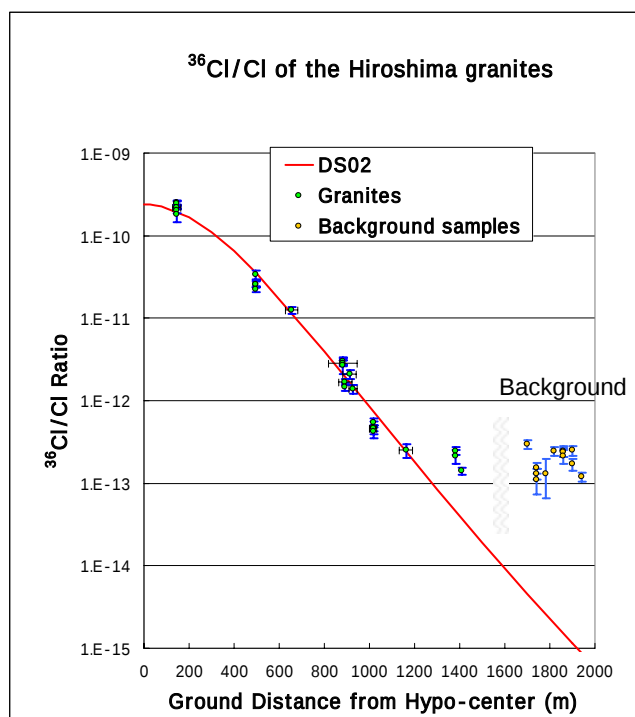


図6 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比。横軸は爆心地からの地上距離

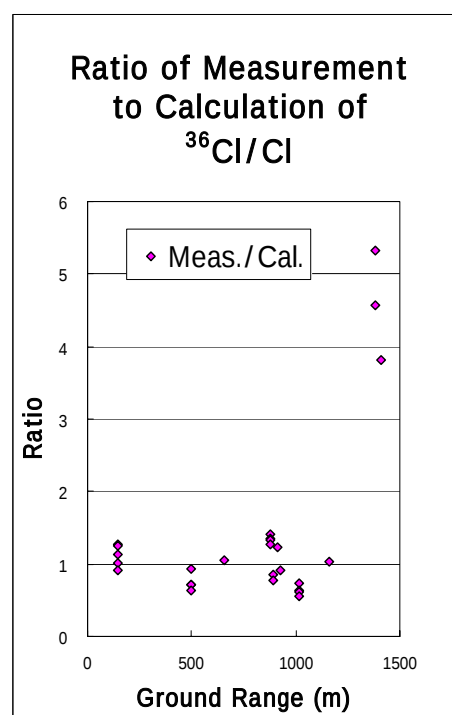


図7 測定と DS02 計算との比

ている。

図6に爆心地からの地上距離を横軸にとって、 $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ の測定結果を示した。実線は新しい線量評価システム DS02 の見積もりである。爆心地から～1200mまでは、測定は DS02 とかなり良い一致を示した。測定値と DS02 計算値の比を取ったものを、図7に示した。元安橋(134m)から高善寺(1177m)の間では、比はほぼ1の周りに分布しており、測定と DS02 の一致性が認められた。

一方、地上距離が～1200m以遠では、測定値は DS02 計算より大きくなり、距離に依存せずその比は 2×10^{-13} 程度になることがわかった(旧広島大学工学部と吉川旅館)。また、被爆していない花崗岩の測定結果も、採取場所に関係なくおおむね 2×10^{-13} 程度となった。これらのことから、花崗岩には普遍的に $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ 比で $\sim 2 \times 10^{-13}$ の ^{36}Cl が含まれている(バックグラウンド)ことがわかり、～1200m以遠の被爆花崗岩の ^{36}Cl 測定からは原爆放射線量の見積もりが困難であることが明白となった。詳細な測定結果は広島原爆線量再評価 - DS02 - 報告に記述されているので参照されたい。

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 ^{63}Ni の測定

柴田誠一*

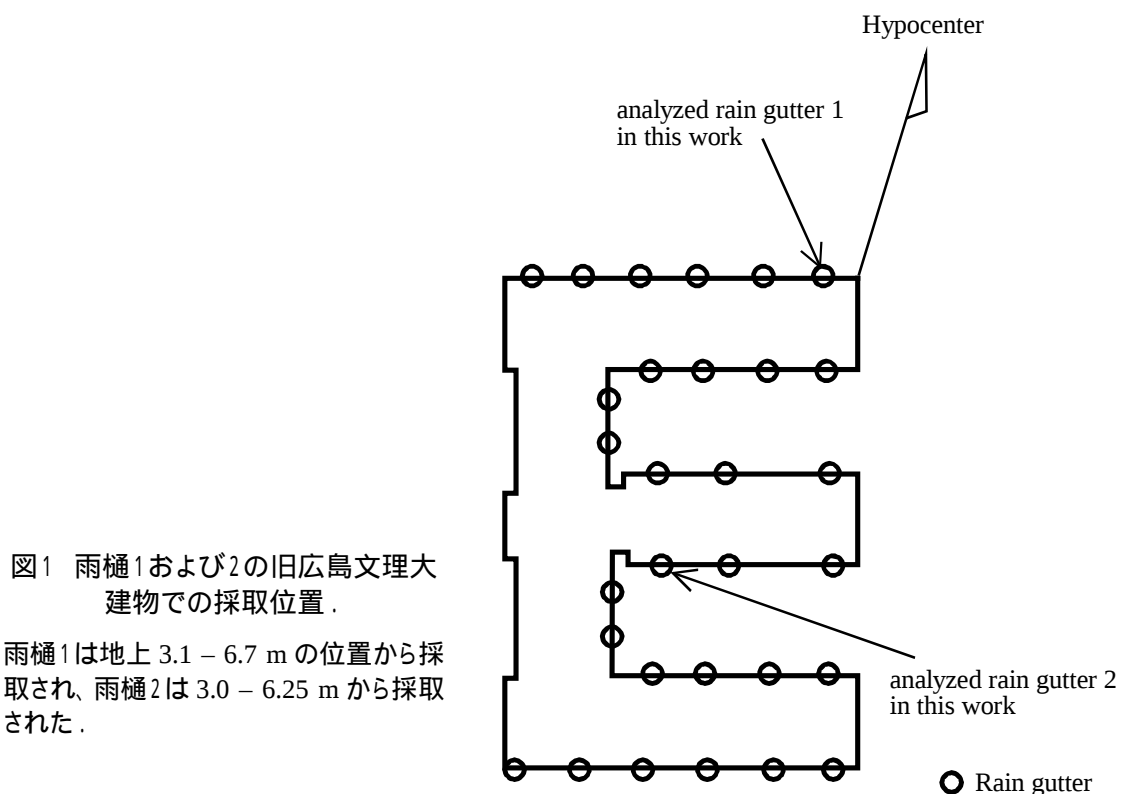
京都大学原子炉実験所

[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 β 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 ^{63}Ni 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

^{63}Ni は最大エネルギー67 keV の低エネルギー β 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 β 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 ^{63}Ni の β 線測定

化学分離後、 ^{63}Ni から放出される β 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。

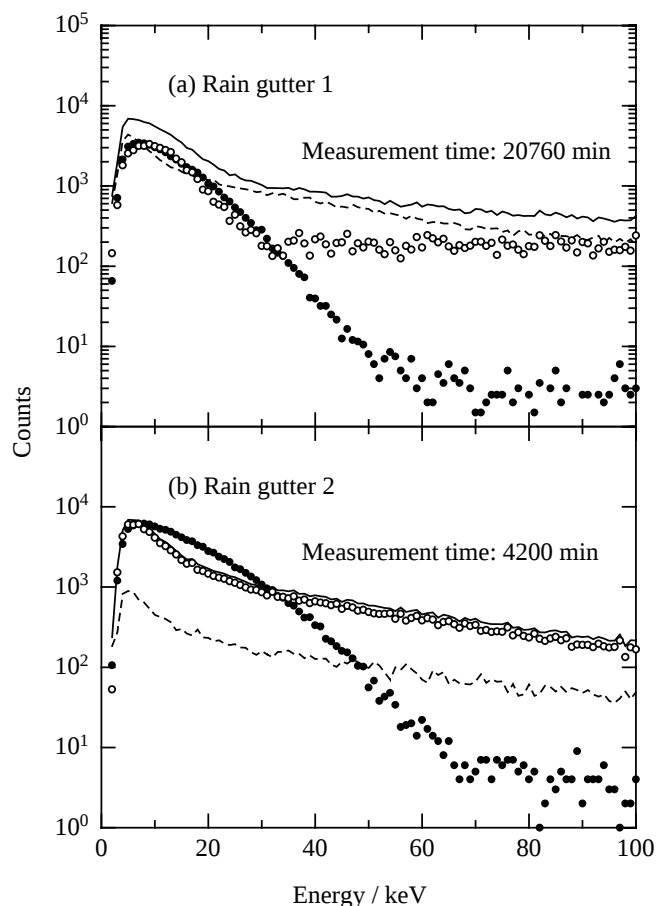
[結果・考察]

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 β 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 β 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)。

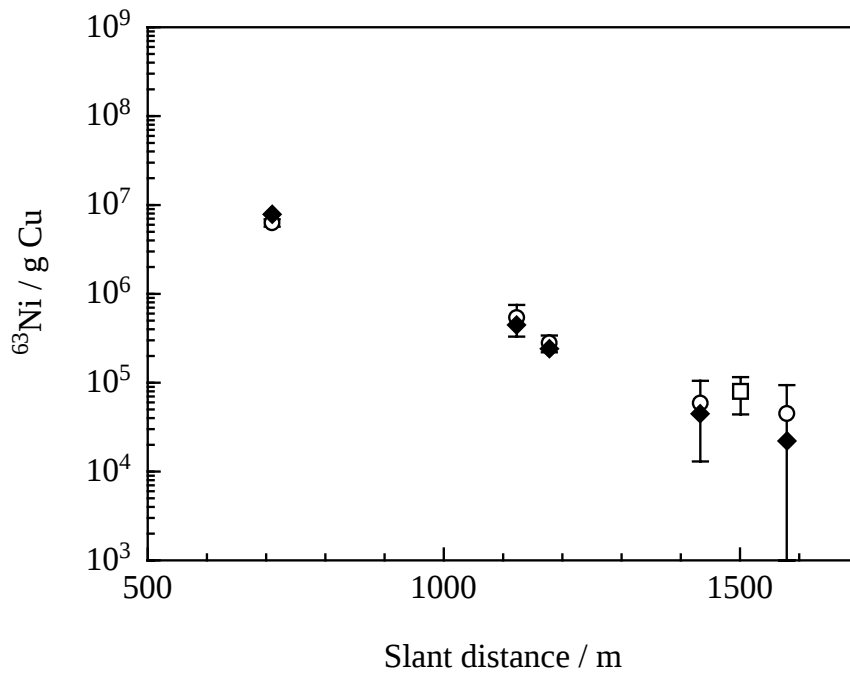


図3 雨樋1中の⁶³Ni 測定結果と加速器質量分析で得られた結果との比較.

(□):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、β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).

^{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 γ 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間に“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。

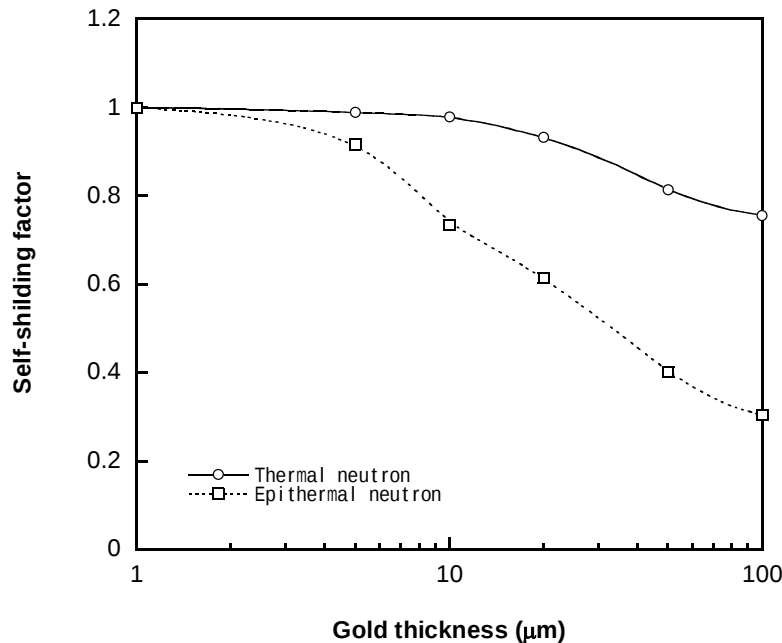


図 1 . 金箔の厚さと自己遮蔽係数 . 図に示すとおり自己遮蔽係数は厚さの異なった金箔を使って実験的に求めた . これらの補正係数は $1 \mu\text{m}$ の厚さの金箔のデータに対する $50 \mu\text{m}$ 厚さ金箔のデータの比で、「熱中性子場」と「熱外中性子場」でそれぞれ 0.813 と 0.402 であった .

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 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)*	$^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$ (Bq/mg)			$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$		
		DS02	長島	ストローム	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。

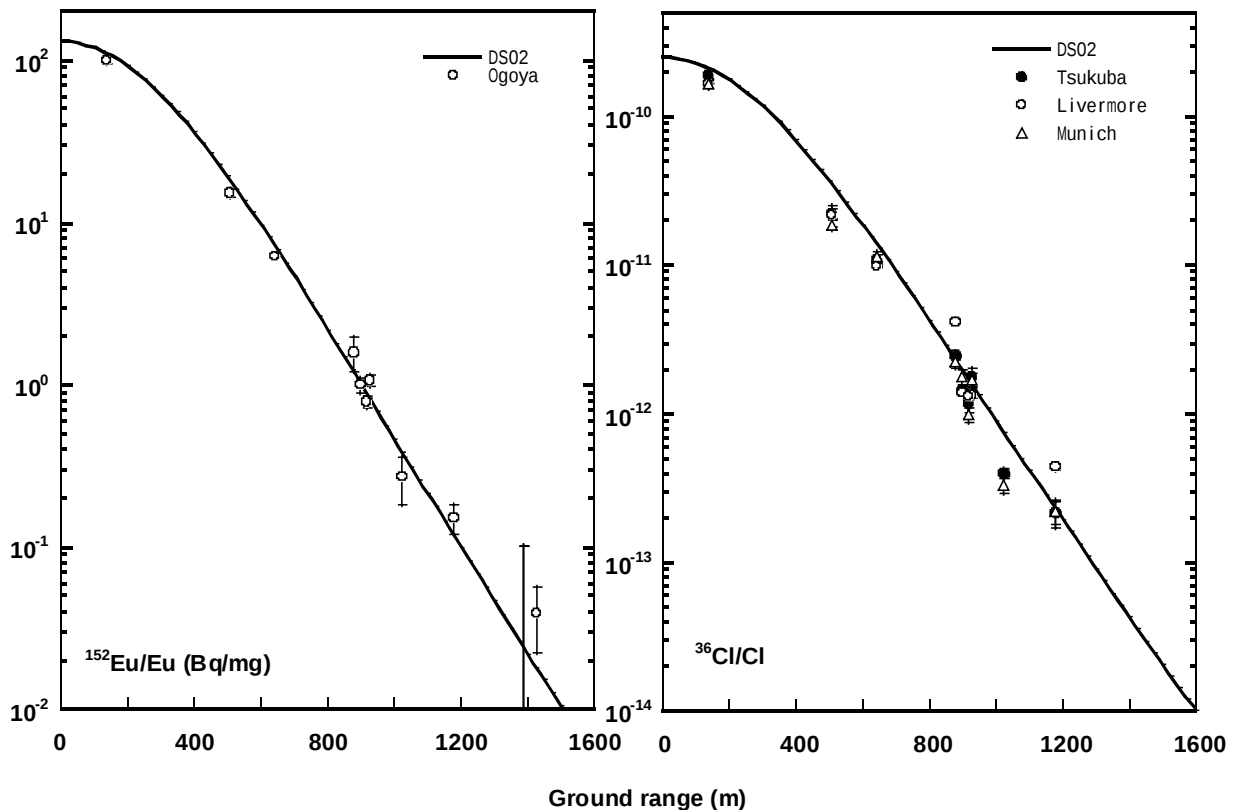


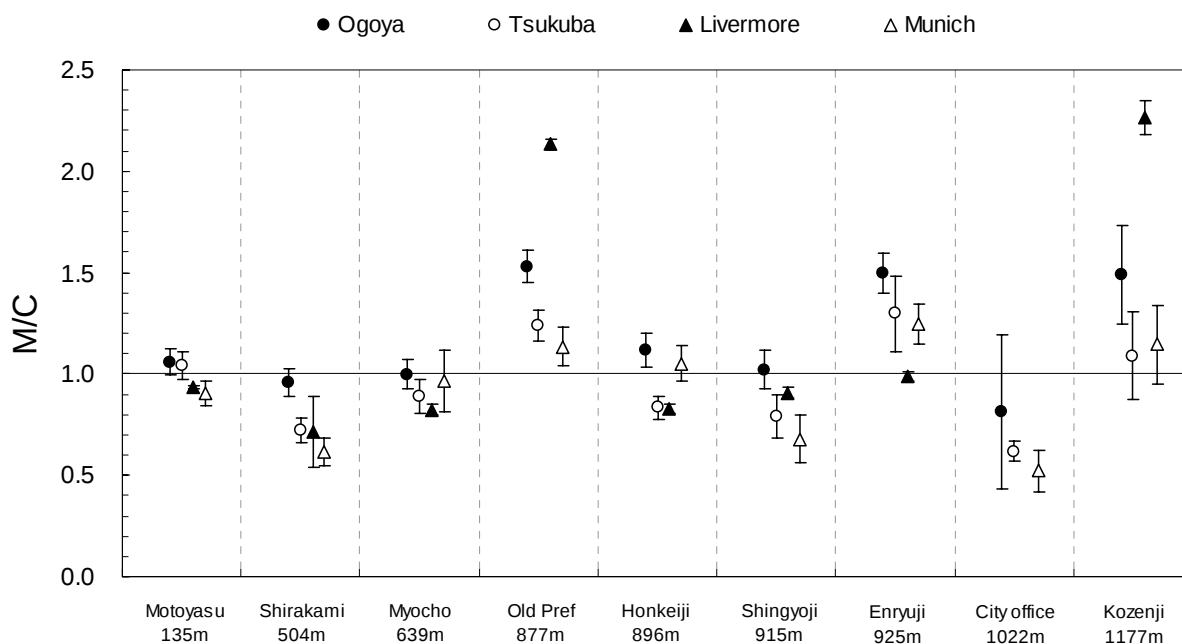
図 2 . DS02 と比較した ^{152}Eu と ^{36}Cl の測定結果 . (a) は ^{152}Eu で (b)は ^{36}Cl . これらの測定結果は透過係数で補正していない .

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、ストロームら、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、ストローム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 (m)*	$^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$			$^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$
		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

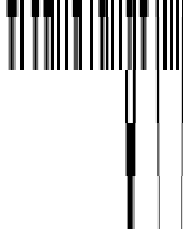


図 4 . Eu 測定値に対する Cl 測定値の比 .

^{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.

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 $^{63}\text{Cu}(\text{n,p})^{63}\text{Ni}$ 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).

広島・長崎における原爆ガンマ線量の推定

丸山隆司*（放射線医学総合研究所） 長友恒人（奈良教育大学）

星正治（広島大学） 隈元芳一（放射線医学総合研究所）

藤田正一郎、Harry Cullings（放射線影響研究所）

はじめに

現在では、放射線業務従事者等の個人モニタなどに広く使われている熱ルミネセンス線量計（以下、TLD という）ではあるが、線量計として開発されたのは 1970 年代である。ABCC（現在の RERF の前身）の寿命調査(LSS)のため、信頼性のある被ばく線量評価システムの必要性が喚起されたのは 1950 年代の後半である。LSS は、戦後初の国勢調査が行なわれた 1950 年に開始された。そのころ原爆被ばく線量の評価にはネバダの核実験に基づく T57D が使用されていた。しかし、この線量評価法の不確かさが問題であった。当時 ABCC の顧問であった東大の中泉教授が、放医研の橋詰物理研究室長に被ばく線量の推定を要請してきた。そのころ米国では、時のトルーマン大統領の大気圏核実験禁止令により、ネバダでの核実験による線量評価法の研究は中止された。Auxier 博士が保健物理研究用原子炉（HPRR）を利用した“ICHIBAN”プロジェクトにより、1965 年に T65D（1965 年暫定的線量評価法）を確立した。このとき放医研は、広島および長崎で被爆したコンクリート建造物中に中性子によって生成された Co60 誘導放射能から中性子線量およびレンガやタイルなどの窯業製品の熱ルミネセンス（TL という）を用いて γ 線量を推定した。一方、京都大学の東村および市川グループは、屋根瓦などの熱ルミネセンスを用いて γ 線量を推定していた。放医研のデータおよび京都大の γ 線のデータは、T65D とよい一致を示した。

1978 年に H. H. Rossi と C. W. Mays は、T65D を用いた LSS の結果から推定した低線量中性子線に対する白血病のリスク係数が極めて大きな数値になることを見出し、T65D の中性子線量のバイアスを示唆していた。1980 年に LLNL（ローレンスリバモア国立研究所）の W.E. Loewe と E. Mendelesohn は、T65D が特に広島の中性子線量を過大評価していることを指摘した。LSS の結果は、ICRP の線量限度値などに大きな影響を与えていることなどから、日米は勿論、世界の関係機関から注目されている。このため、日米の専門家を中心にグループが立ち上げられ、1983 年 2 月の長崎会議から 1986 年 3 月の広島会議まで 4 回の日米合同会議の結果、DS86 が作成された。DS86 では、 γ 線量の推定はレンガやタイルなどの TL 測定が中心であり、日本の 3 グループ（放医研、奈良教育大および広島大）および米国のユタ大、さらに後半では英国の 2 つのグループが参加し、T65D のときとは異なり日米英の専門家グループで測定データの検討を行うことができた。DS86 が発表されてからも、中性子誘導放射能の測定と並行して TL 測定についても、なお一層の γ 線量評価の精度向上に努めることが日米合同会議で勧告された。すでに戦後 40 年を経過しており、都市計画が進み、爆心からの方向および距離を考慮した被爆試料の収集は困難であったが、市民をはじめ放医研および広島大等の関係者の努力により試料の収集が行なわれ、測定を続けることができた。しかし、DS02 では、中性子誘導放射能の問題に重点がおかれ、残念ながら TL 測定には新しい所見はなく淡々と地道な作業が続いた。（例えば、放医研グループでは、試料のある限り TL 測定継続の態勢を保持してきたが、2002 年の独立行政法人への移行と関係者の定年退職も加わり、残念ながら休止状態に陥っている。）これまでの TL 測定では、試料中の自然放射

* MARUYAMA Takashi, National Institute of Radiological Sciences; t_maru@fml.nirs.go.jp

能によるバックグラウンドの影響が大きく、爆心から約 2km 以遠で γ 線量の測定は困難である。今後は、発光の転換をはかった新しい手法によるレンガやタイルなどを用いた微弱な γ 線量の推定法の出現を期待したい。そのためのレンガおよびタイルの被爆試料は放影研および広島大に保存されている。

以下、わが国における TL による原爆 γ 線量評価研究機関として T65D 以来参加している放射線医学総合研究所および奈良教育大学・広島大学のグループを中心に DS02 報告書にいたるまでの研究成果の概略をまとめ、ここに報告する。なお、本文中特別の断りがない限り、参考文献は放射線影響研究所刊行の DS 86 および DS02 を参照されたい。

I. 一般共通事項

1. レンガやタイルなどの TL による線量測定の原理

(a) 熱ルミネセンス

熱ルミネセンス (TL) は、ある種の初期励起によって蓄積されていたエネルギーが加熱により固体から放出された光である。初期励起、通常は電離放射線によるが、これが結晶格子欠陥での電子および正孔の捕捉を生じ、それに続く温度上昇が電子と正孔を捕捉から脱出させ、それらの再結合が発光中心のいたるところで起こり光を放出する。すなわち、TL 物質を加熱すると、その温度の上昇とともに蓄積されているエネルギーを TL して放出する。温度上昇に対する発生する TL 量の変化を示す曲線をグロー曲線という。このグロー曲線を用いて、熱ルミネセンス量が科学的に測定される。

熱ルミネセンスの歴史は、今から 3.5 世紀前の 1663 年、R.Boyle 卿に遡るが、それから 3 世紀後の 1953 年に、米国の Daniels が地質学および考古学における年代決定への TL の応用の可能性を示唆した時が TL 科学史の最初のようなのである。日本では、1965 年の市川による TL による土器の年代決定が最初

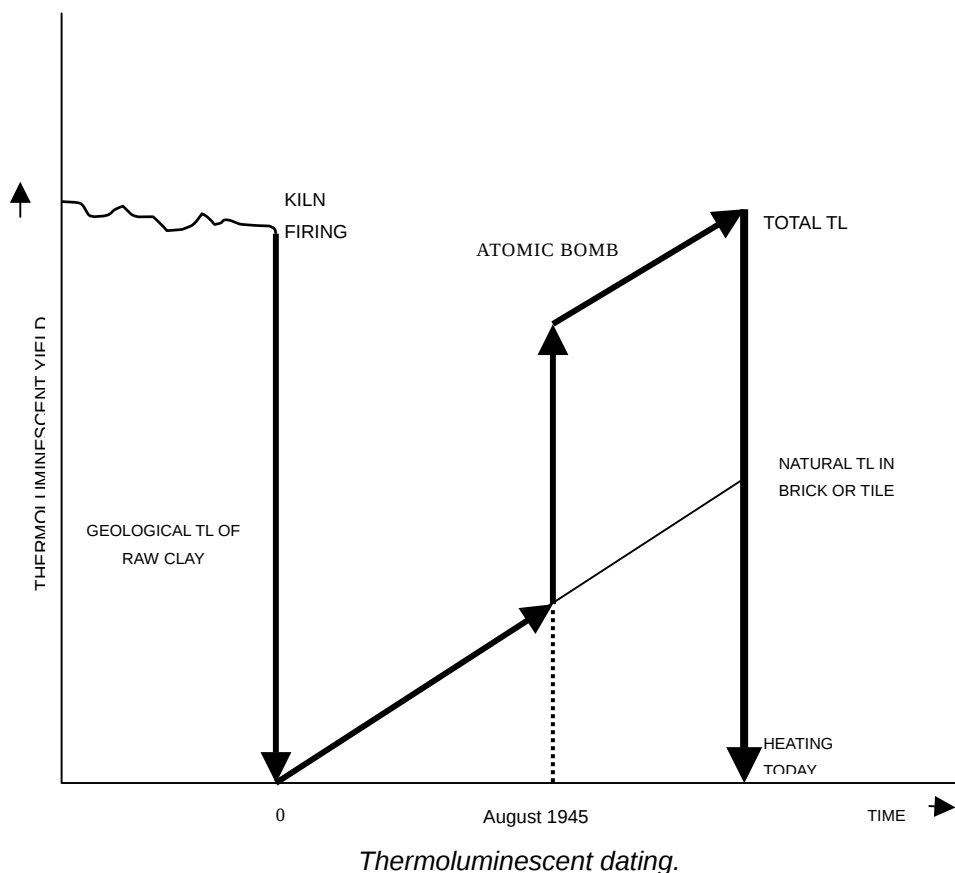


図 1. レンガやタイルに含まれる石英の熱ルミネセンス (TL) による線量推定の模式図。

である。

年代決定では、土器などの素材に含まれる石英などが TL 物質として利用される。素材の土壌には、ウランウム系列(^{238}U)、アクチニウム系列(^{235}U)、トリウム系列(^{232}Th) およびカリウム(^{40}K)などの自然放射性物質が含まれている。石英などは、土壌の放射性物質から放出された α 線、 β 線、 γ 線、さらに宇宙線および環境放射線のエネルギーを吸収して、その結晶構造内に図1に示すように大量の TL エネルギーとして蓄積している。しかし、土壌がレンガやタイルとして加工されたとき、約 600 以上の窯で焼かれる。そのため蓄積されていた TL エネルギーが放出され、TL ストップウォッチはゼロ(窯業ゼロ時という)に戻され、その後、時間の経過とともに土器などの窯業製品自身および周辺環境からの放射線を被ばくして、あらためて TL エネルギーを蓄積する(この TL エネルギーを TLBG という)。その TL エネルギーの蓄積量は、ほぼ時間の一次関数で自然増加する。年代測定では、実験などで1年間の TL エネルギー蓄積量を求め、その値で総 TL エネルギーを除すことにより年代を推定する。

(b) レンガおよびタイルを用いた原爆ガンマ線量の推定

広島、長崎における γ 線量の推定に TL 物質の石英を含むレンガおよびタイルが用いられた。1945年の夏、原爆に被爆したレンガおよびタイルは、ほとんど瞬間的に γ 線を吸収して、図1に示すように急激に TL エネルギーが増加し、それ以後は被爆以前とほぼ同じ割合で自然放射線によるほぼ直線的な TL 増加を示す。原爆 γ 線量の測定では、被爆した γ 線量の測定では、TL エネルギーをバックグラウンド(TLBG という)として差し引かねばならない。被爆試料として採取された窯業製品は、主として広島ではタイル、長崎ではレンガであった。これらの試料の窯業ゼロ時から被爆までの年数は、60年から90年程度であり、dating とは比較にならない短い期間である。後で述べるように、TLBG は試料により年あたりほぼ2から5 mGy 程度である。例えば、年あたり3.5 mGy とすれば、80年間に蓄積された TLBG は、 $3.5 \times 80 = 280\text{mGy}$ である。3 Gy を超える原爆線量では、バックグラウンドの寄与は10%以下であるが、爆心から2kmでの原爆線量は100mSv 前後と推定されるので、測定される全 TL 線量のうち約1/3を占めるのみである。従って、遠距離ではバックグラウンドの評価は重要である。

(c) 年代測定における TL 測定のための試料精製法

土壌中に含まれる石英などは、ウランウム系列など自然放射性元素からの α 線、 β 線および γ 線により TL エネルギーを蓄積する。特に、ウランウムやトリウムなどの壊変により放出される α 線のエネルギーは、最大でポロニウム212の8.78MeVであり、土器の中での飛程は45 μm 程度である。従って、90 μm 以上の直径をもった石英の結晶には、 α 線による線量とは全く無関係な内殻部分が存在すると考えられる。このような考え方に従い、年代測定法では次のような石英試料精製法が利用されている。

微粒子法(Fine grain technique): 土器などの測定試料を、衝撃を与えないように万力を用いて、V字形金属などで直径がほぼ1~9 μm の微粒子に粉碎し、ほぼ98%の α 線による TL 線量と β および γ 線の全量を測定する。しかし、DS86の日米および英国の TL 線量測定専門家会議で、微粒子法は、低線量環境測定には不向きである事が結論され、原爆線量推定から除外された。

石英粗粒子法(Quartz inclusion technique) α 線による TL 線量が無視できる100 μm 程度の石英粒子を用いて、 β 線および γ 線による TL 線量を測定する。この方法では、土器などを80~120 μm の小粒子にして、磁気分離器により鉄鉱石などを除去し、塩酸や弗化水素などで処理して石英の表面を剥離して、 α 線に照射された部分を除去する。この処理を施した TL 測定試料を用いることにより α 線の寄

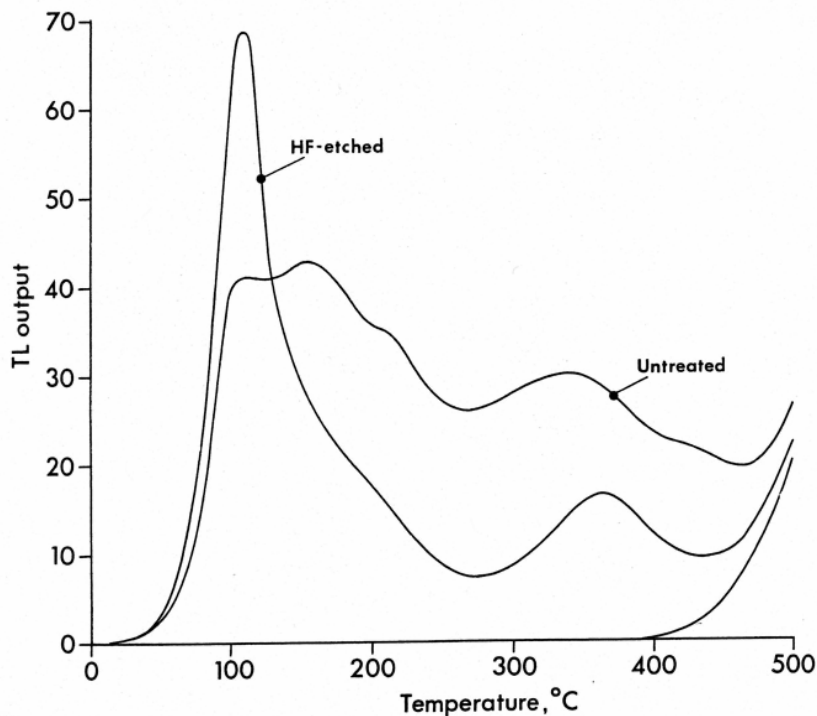


図2 . 石英の TL グロー曲線の一例 . 石英粗粒子法 (HF 処理) と単純高熱法 (HF 非処理) の比較

与を無視しうるほど小さくすることができる。原爆線量推定では、 β 線に加えて環境 γ 線による線量の評価が重要になる。

(d) 試料精製法による TL グロー曲線、

石英の TL を用いた原爆 γ 線量の測定の場合も年代決定と同様に、深いところにあるトラップは長期間にわたって漏出することなく保持されているというのが基本的な考え方である。石英粗粒子法 (1 規定の弗化水素で 10 分間処理した場合) では、図 2 の HF 処理曲線が示すように高温側の 300 ~ 400 にある巾広い 2 つの重なり合ったグローピーク (325 および 375) および低温側 (110) にあるグローピークが顕著である。一方、弗化水素で処理しなかった場合は、図 2 の非処理のようなグロー曲線になる。いずれの場合も同一線量の β 線を照射した試料について測定されたデータである。計算によるグローピークの平均寿命は、それぞれ 110 が 3.5 時間、325 が 3×10^3 年および 375 が 10^7 年である。110 のピークは寿命が短いために年代決定などにはこのままでは利用できない。

石英微粒子法や石英素粒子法では、この高温側のグロー曲線が TL 測定に利用される。

(e) プリドース法

石英に見られる 110 のピークは、その半減期が短いので自然放射線による熱ルミネセンスとしては存在しない。しかしながら、高感度のピークであり、10 ~ 100 mGy 程度の線量 (試験線量という) を照射するだけで正確に測定しうる TL が誘発される。測定試料を一時的に 400 ~ 500 に加熱することにより感度が増加し、その増加量はそれまで焼成以来試料に蓄積されていた線量 (プリドースという) に比例する。110 ピークを生ずるトラップは僅かな数の電子によるが、受けてきた放射線量の記憶であり、一時的に 400 ~ 500 に加熱する結果として漏出されない記憶である。

2. 原爆線量推定のための石英の TL 測定法

(a) TL 測定装置

T65D のころは TL 測定装置が未だ製品化されていなかったため、自家製の TL 測定装置が使用された。1970 年代には現在のように自動読み取り装置つきではないが、年代測定などにも使用できる TL 装置が市販されるようになった。さらに、1980 年代には、ブリドース法に便利な年代測定用 TL 装置が市販され、DS86 ではユタ大学やオックスフォード大学がこの装置を使用している。日本では、3 機関とも米国の Harshaw Chemical 社製のモデル 2000 を使用している。

(b) 線量推定に用いられた試料

疫学調査の目的には、究極的には被爆者の臓器組織線量の評価が必要である。しかし、臓器組織線量を直接評価することは困難であるので、まず被爆した場所の空間線量を推定し、次いで被爆者の臓器組織線量を算定する方法をとる事にする。そこで、空間 γ 線量の評価のために、屋内被爆者を想定して屋根瓦、壁面のタイル或いはレンガなど石英を含む窯業製品が測定試料として選ばれた。屋根瓦は日本家屋などに多く用いられていたが、爆風や火災などによってほとんどが被爆時の場所が同定できないばかりか高熱のため、一部の鬼瓦などを除いては TL による線量推定には利用が困難であった。また、表面にタイルやレンガを用いた建造物等は、被爆当時から稀少であった上に、被爆線量推定の作業を行なうことができるようになった頃には、急速な復興などにより試料採取が困難になった。放影研および広島大学の関係者の皆様の努力によって、使用中の被爆建造物などから採取されたタイルやレンガの貴重な測定試料を用いて線量推定が行なわれてきた。1980 年代には、広島で広島大学や日赤病院などから表面タイル、長崎では民家の塀や倉庫などからレンガなどのかなり大量の試料が提供された。

(c) TL 測定試料採取における重点事項

TL 測定試料（以下、試料という）であるレンガやタイル等の製造年の推定が可能であること。
少なくとも、登記簿などから建造物の建設年月日が推定できること。

試料は、焼成以来 TL 測定時まで、火災等によって概ね 800 以上の高温に曝されたことがないこと。

周辺に人工放射線源が存在していないこと。

原爆 γ 線の試料への入射角度など被爆条件が推定できること。

試料は直接原爆 γ 線に被爆したことが明らかであること。

試料は、改築などによって移動されることなく採集位置に固着されていたものであること。

試料採取は、上記の重点事項に基づき、広島・長崎市民をはじめ、放影研および広島大学などの協力によって行われた。これらの試料を用いた TL 測定による原爆線量評価は、TL 測定機関の独自性に基づいて実施されているので、測定評価グループに報告する。報告の順番にはグループ施設名のイロハ順とした。

． 原爆 γ 線量の測定

1. 放射線医学総合研究所（放医研）グループ

（a）測定試料の精製

原爆線量評価のために、タイルやレンガなどを粉砕して TL 測定試料を精製しなければならない。タイルやレンガを粉砕あるいは切断するとき強い衝撃や摩擦などによるトリボルミネセンスが生じないよう細心の注意を必要である。通常は V 字型の金属および万力などで穏やかにタイルやレンガを粉砕する。また、切断する場合なども水で冷やしながらダイヤモンドカッターを用いて、摩擦熱などに細心の注意が払われた。そのような条件下では、トリボルミネセンスを発生しないことを確認した。

建造物等から採取したタイルやレンガの被爆表面の汚れや放射能汚染を除去するとともに原爆 γ 線による 2 次電子平衡を考慮するため、採取した試料について、被爆面から 5 mm の部分を水で冷やしながら、カッターで切断して除去する。

被爆面の厚さ 5mm を除去したタイルやレンガの試料から被爆表面 5cm × 5cm、厚さ 1cm の板状試料を切り取り、この板状試料を V 字型金属で穏やかに粉砕し、粗粒子とする。

粉砕した試料を乳鉢の中で乳棒を使って静かに粉末化する。

粉末化した試料を 210 μ m および 105 μ m メッシュの篩により、210 μ m を超える粒径、105 μ m 未満の粒径、105 から 210 μ m の粒径の粒子に分別した。

105 から 210 μ m の粒径の試料を TL 測定試料とする

超音波洗浄器を用いて蒸留水およびアセトンで洗浄する。

洗浄後磁気分離器を通して、鉄分など不用物を除去する。

以上の過程を経て精製された石英含有試料を鉤物顕微鏡で観測して、石英の含有状況をチェックする。

すでに述べたように、石英粗粒子法では TL 試料精製するとき α 線の影響を除去するため、弗化水素などで石英粒子の表面を処理することによりウランやトリウムなどからの α 線による TL 成分を除去する方法が執られている。放医研では物理測定室では、弗化水素などが使用できないため、石英粗粒子法を採用することができなかった。 α 線によるバックグラウンドの寄与が無視できない 3Gy 程度以下の原爆線量が予想される石英試料についてはブリドース法が適用された。3Gy 以上の線量推定には、275 から 310 の範囲のグロー曲線に囲まれた面積が使用された。この方法を簡易高温法という。一方、HF を用いる方法を石英粗粒子高温法と呼び、区別する。

（b）TL 測定

TL 量の測定は、多目的タイプ 2000 TL 線量測定器（Harshaw Chemical 社製）により実施された。TL 測定では、5mm × 5mm の正方形の凹面型スチール皿（深さ 0.5mm）に dispenser を用いて、約 5mg の TL 試料を単一層に広げる。高温における酸化防止のため窒素ガス雰囲気の中で、加温率 20 / 秒で室温から 200 まで石英含有試料を加熱し、石英からの TL グロー曲線を得る。85 から 125 までの温度領域におけるグロー曲線の面積から TL 量を読み取る。

(c) γ 線用標準線量計

ブリドース法および単純高熱法では、石英の TL 量を γ 線の線量に変換するために、それぞれの測定試料について ^{60}Co γ 線量に対する TL 量の関係、すなわち線量・TL 関係が必要であった。この目的のため、 γ 線源としては ^{60}Co 遠隔治療装置および γ 線標準線量計としては電子技術総合研究所(現、産業総合研究所の前身)の国家標準線量計とトレーサビリティを有する医療用準標準線量計(0.6cc 指帽型電離箱)が用いられた。

(d) 試験線量用線源

ブリドース法における試験線量用線源としては、微量の ^{90}Sr - Y 溶液を含む塩化物を塗布した β 線源を用いた。

(イ) ブリドース法

ブリドース法には、試料の線量・TL 量関係の直線性により、additive pre-dose 法および modified pre-dose 法のいずれかが用いられた。詳細は放影研出版の DS86 報告書に委ねる。精製された石英試料は 3 セットに分けられ、各セットは 7 つに分包される。各分包について TL 測定が行われる。試料によっては試料のセット数などは異なる。

(i) additive pre-dose 法：この方法は、主としてタイルの TL 測定に用いられた。その手順を以下に示す。

- 1) 200 に加熱し、85 から 125 までの 110 をピークとするグロー曲線の面積 S_0 を求める。
- 2) 500 に加熱して、次に試験線量 (12mGy) を照射して、200 に加熱して、1) と同様にグロー曲線の面積 $S(N)$ を求め、 $S(N)/S(0)$ を算定する。
- 3) 残りの 2 セットの試料には、 ^{60}Co 治療装置により所定の γ 線量を照射する。
- 4) γ 線を照射した試料をそれぞれ加熱して約 10 秒間 500 に保つ。
- 5) 試験線量を照射して、200 に加熱して、1) と同様にグロー曲線の面積 $S(N + \gamma)$ を求め、 $S(N + \gamma)/S(0)$ を算定する。
- 6) 同様にして、 $S(N + 2\gamma)$ を求め、 $S(N + 2\gamma)/S(0)$ を算出する。
- 7) 求めた比 $S(N)/S(0)$ 、 $S(N + \gamma)/S(0)$ および $S(N + 2\gamma)/S(0)$ を試験線量と付加した γ 線量の和の関数としてプロットする。その直線の外挿値を最小二乗法で読み取る。その外挿値が求める線量である。

(ii) Modified Pre-dose 法：この方法は、主としてレンガ試料の測定に用いられた。特に、レンガの場合、additive pre-dose 法では線量 - TL レスポンスの直線性が得られないため、測定処理後の石英試料を電気炉で 550 に 5 時間加熱して、残留している TL シグナルを消去後、1Gy オーダー程度以上の線量の異なる ^{60}Co γ 線を照射した後、それらの試料の TL 測定を行う。

- 1) 試験線量を照射し、200 に加熱して、グロー曲線の面積 $S(0)$ を求める。
- 2) 3 セットの石英試料を電気炉により 6 分間、525 に加熱し、1 セットに試験線量を照射し、200 に加熱してグロー曲線の面積 $S(N)$ を求める。
- 3) 2 セットには、additive doses として γ および 2γ (Gy) の ^{60}Co γ 線を照射して、200 に加熱し、グロー曲線の面積 $S(N + \gamma)$ 、 $S(N + 2\gamma)$ を求める。
- 4) $S(N)/S(0)$ 、 $S(N + \gamma)/S(0)$ および $S(N + 2\gamma)/S(0)$ を求める。
- 5) 2) および 3) の測定に用いたすべての石英試料を全部混合し、電気炉で 5 時間 550 で加熱す

る。加熱した試料を 3 セットに分割する。

6) 試験線量を照射し、200 に加熱して、グロー曲線の面積 $S'(0)$ を求める。

7) additive doses として ^{60}Co γ 線量 (γ 、 2γ 、 $\dots$) を照射する。

8) 電気炉で、6 分間 525 で加熱する。

9) 試験線量を照射し、200 に加熱してグロー曲線の面積 $S'(N+\gamma)$ 、 $S'(N+2\gamma)$ を求める。

次式のレスポンス曲線を満足する R_∞ および定数 λ を求める。

$$R = R_\infty \{ 1 - \exp(-\lambda D) \}$$

(ロ) 単純高温法

測定試料の特性にも依るが、レンガでは約 1 Gy 以上、タイルでは約 1.5 Gy 以上の高線量域で、TL レスポンスと γ 線量との間に直線関係が得られないことがある。そのため、単純高温法により TL 測定が行なわれた。この方法では、ブリドース法と同様に精製された石英試料を 400 程度まで加熱し、275 ~ 310 のグロー曲線の面積が用いられた。この温度の範囲内では、面積から推定された線量は温度の変化に対してほぼ一定であった。

(c) バックグラウンド測定

レンガやタイル試料に含まれる自然放射性核種を Ge 半導体検出器で同定した。その結果、広島および長崎のレンガとタイルには α 線放出核種は大量に含まれていないことが確認された。レンガおよびタイルからのバックグラウンド β 線は、図 3 に示す BG 測定セットにより、化成オプトニクス社製 $\text{Mg}_2\text{SiO}_4\text{TLD}$ 粉末 (粒径約 100 ~ 150 μm) を用いて測定した。レンガやタイルからの α 線を除去するため、厚さ 100 μm のポリエチレン・フィルムを用いた。また、鉛遮蔽箱内の γ 線量は、 β 線を充分除去する厚さの亚克力樹脂上の TLD 粉末により測定した。TL 測定に用いられた試料と同種のレンガおよびタイルについて、それぞれ 3 組づつの測定セットを 15cm 厚さの鉛で遮蔽された箱の中に約 6 か月間放置して、 β 線バックグラウンド測定を行なった。図のポリエチレン フィルムによる β 線吸収率を 0.3 として補正した。また、 Mg_2SiO_4 TL 線量計素子を厚さ 2cm のアルミニウム板の深さ 5、10 および 15mm に計 15 本づつ封入した測定セットを試料採取位置に約 6 ヶ月間放置して、宇

TL powder for background measurement
in a lead shield container

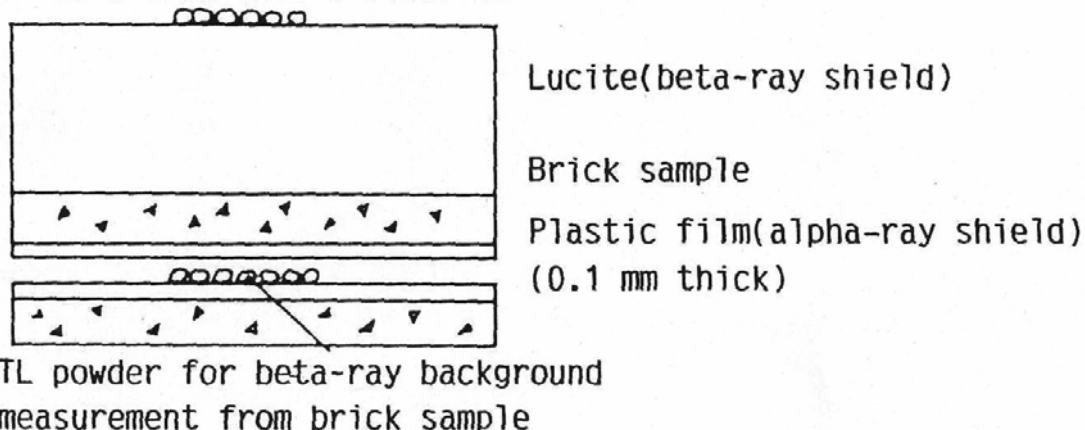


図 3 放医研の β 線バックグラウンド測定の例 (この測定配置を 15cm 厚さの鉛ブロック遮蔽箱に閉じ込めて約 6 か月測定する)。

宙線および地殻からの γ 線など環境放射線によるバックグラウンドを測定した。これらの測定値より試料採取位置における年間 β 線および γ 線バックグラウンドを推定した。採取した建造物の登記簿から建築年月を推定し、レンガやタイルの TL 時計のスタート（自然放射線蓄積開始時刻）とした。

2. 奈良教育大および広島大グループ

(a) 試料の精製

奈良教育大グループは、1960 年代から考古学における土器などの年代決定に TL の利用に着手し、その手法を用いて放医研グループのデータとともに T65D および DS86 に γ 線量の情報を提供してきた。このグループは、HF を用いた石英粗粒子高温法およびプリドース法により、主にタイルの TL 測定を実施した。

タイルの被爆面から 2mm および裏面 1mm を除去したあと、粉碎して $74 \sim 149 \mu\text{m}$ 、 $49 \sim 74 \mu\text{m}$ および $49 \mu\text{m}$ 以下の粒径別に篩い分けした。 $74 \sim 149 \mu\text{m}$ の粒子を超音波洗浄およびアセトンで洗浄後、室温で 24 時間王水により処理した後、磁気分離器で分離した非磁気成分を 10% HF で 1 時間処理して、非石英粒子を除去し、石英粒子の表面を緩やかにエッチングする。この処理により α 線の影響を記憶している部分を除去する。精製した石英粒子を再び水およびアセトンで洗浄し、TL 測定のための石英試料とする。 $49 \mu\text{m}$ 以下のタイル粉末は、直径 45mm、厚さ 3mm の円板にプレスされ、 β 線バックグラウンドの測定に用いられる。

(b) TL 測定

Harshaw Model 2000 TL 装置（最大温度 600 ）を用い、窒素ガス雰囲気下で 5 乃至は 10 /sec の加温率で TL 測定を行なった。石英粗粒子法が持ちられてきたが、DS86 では、比較のためプリドース法による線量推定が行なわれた。

(イ) 石英粗粒子法

石英試料を窒素ガス雰囲気のもとで 20 /sec の加熱比で 室温から 500 に加熱し、グロー曲線を描かせる。図 4 は、一例として、広島大の建物の屋上のタイルで得られたグロー曲線を示す。N は被

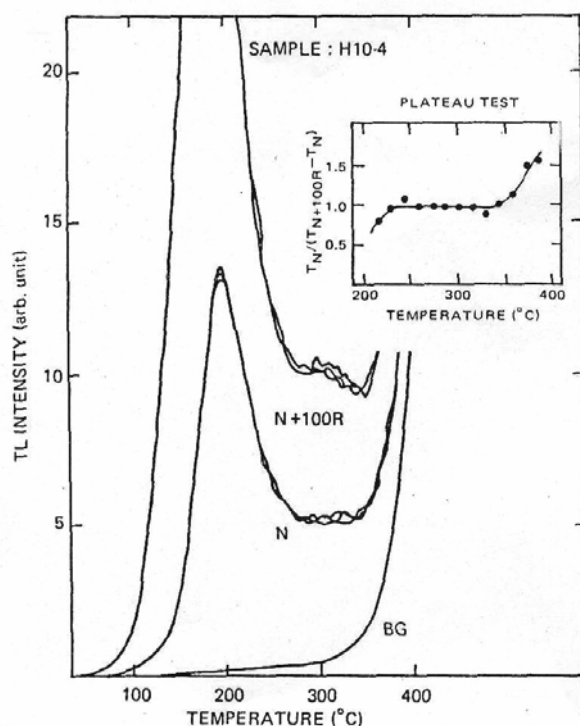


図 4 . 奈良教育・広島大グループ
の TL グロー曲線の一例 .

爆タイル、N + 100 は N に 100R (876mGy) の ^{60}Co γ 線を照射したときのグロー曲線を示す (参考 : 空気カーマ換算 : $100\text{R} = 0.00876 \times 100\text{R} = 876\text{mGy}$) 。 ^{60}Co γ 線の照射は電子技術総合研究所大阪支所で行われた。

(ロ)ブリドース法

爆心から 1.2km から 2.1km の位置にあったタイル試料について、ブリドース法による TL 測定が適用された。試験線量は 60kV (2 mA) の X 線による Gd の K-特性 X 線を利用した。Additive dose には電子技術総合研究所で ^{60}Co γ 線を照射した。手順等は通常の方法と同様であるので、ここでは省略する。

(c) バックグラウンドの測定

試料および環境のバックグラウンド測定は、松下電器製の CaSO_4 TL 粉末を用い、図 5 に示す測定配置によって行われた。測定試料を作成のときに生じた粒径 49mm 以下のタイルや屋根瓦の粉末を 62.5kPa で圧縮して、直径 49mm Φ 、厚さ 3mm の円板を 2 枚作成した。この 2 枚の円板で図のように挟んだ CaSO_4 TL 粉末からなる測定セットを 10cm 厚さの鉛ブロックで遮蔽された容器の中に約 1 カ月間放置して、バックグラウンドを測定した。試料からの α 線を吸収するため、図のように 2 枚の円板を厚さ 3.5mg/cm² のポリエチレンで覆った。このポリエチレンによる β 線の吸収に対する補正係数を 1.13 とした。宇宙線や地殻からの γ 線バックグラウンドは、試料採取後の場所に厚さ 1mm の銅管 (7mm Φ $\times$ 10cm) の中に封入した CaSO_4 TL 粉末によって測定した。

3 . T L による原爆 γ 線量の測定結果

(a) バックグラウンドの測定結果

放医研、奈良教育大および広島大のグループが測定した石英試料の TL バックグラウンドの結果を測定試料別に表 1 に示す。表は、測定グループ、測定試料の簡単な採取場所または建造物名称、試料の爆心からの距離、年間のバック β 線バックグラウンドおよび γ 線バックグラウンド、試料の年数、推定された全バックグラウンドの順に与えている。TL 蓄積年数は建造物の年数とほぼ同じとした。バックグラウンドは試料に依存するが、大体 0.2Gy 程度であることがわかる。

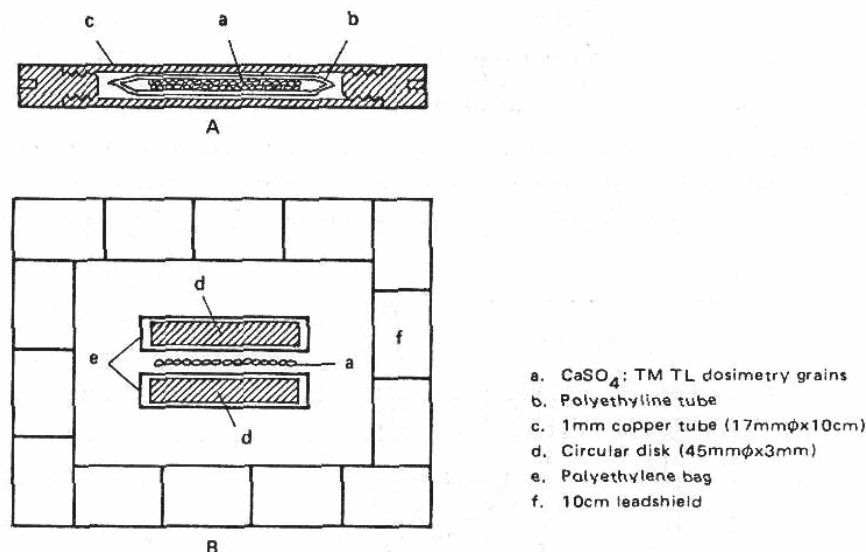


図 5 . 奈良教育大・広島大グループの β 線バックグラウンド測定例 .

(b) 原爆 γ 線量の推定結果

試料の TL 測定値および評価された γ 線量を表 2 に示す。評価された γ 線量を爆心からの距離の関数として図 6 に示す。

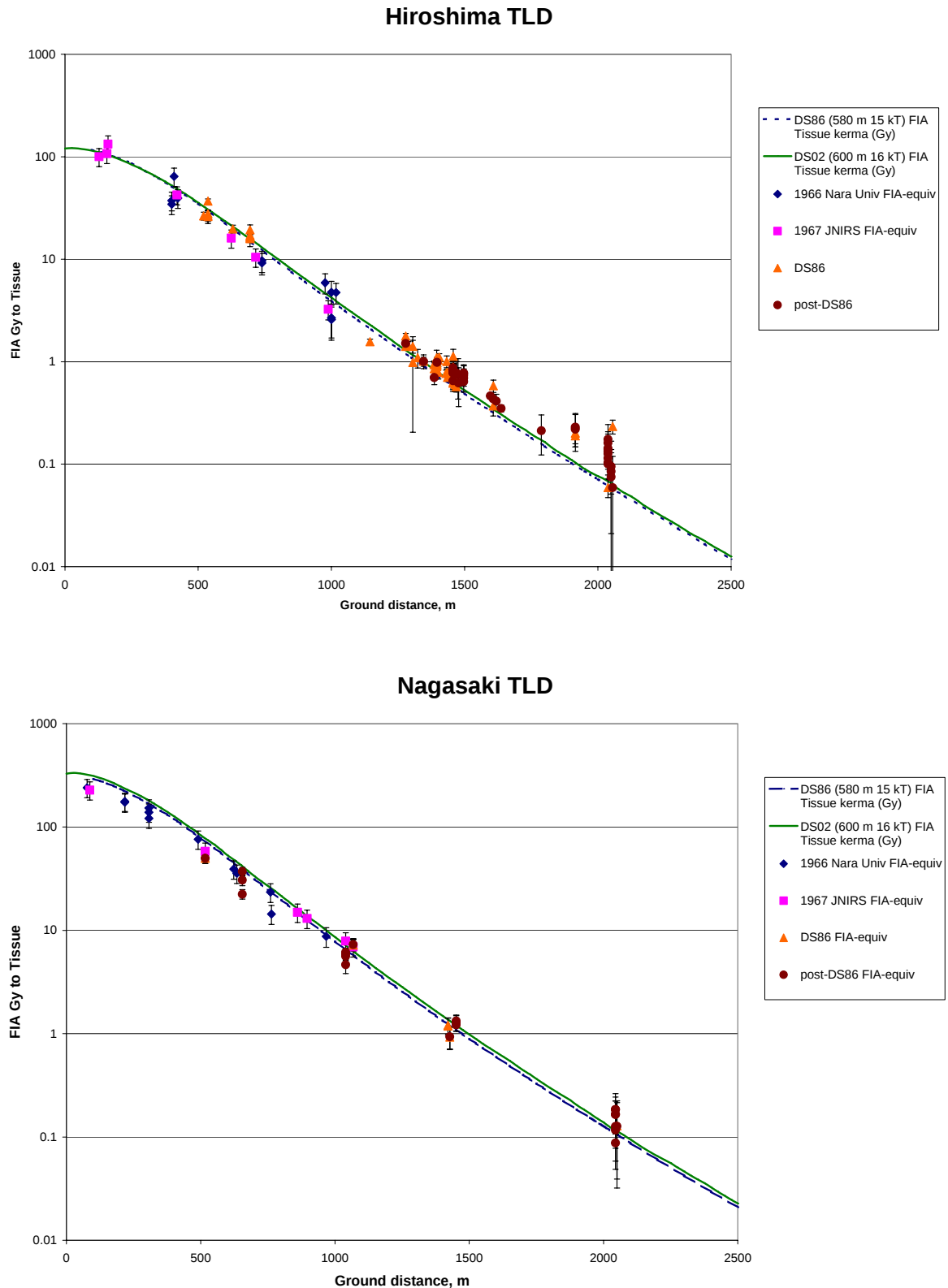


図 6 . レンガやタイルの TL 法による原爆 γ 線量測定結果と計算曲線との比較 .

4. 考察

広島・長崎の原爆 γ 線量は、1960 年頃から奈良教育大学、放射線医学総合研究所を中心に行われてきた。45 年の歳月を費やした大仕事であったが、スーパーコンピュータによるシミュレーション計算ともほぼ一致した結果が得られた。このあたりが幕の火引きときかと心得る。石英の熱ルミネセンス測定は、考古学から発祥したことは良く知られているが、原爆線量推定の手法も考古学に類似していることを学ばせていただいた。別の意味であろうが、ORNL の Auxier は原爆線量推定のことを「原爆考古学」とおっしゃったことを思い出した。

DS86 のとき、英米の考古学研究者の協力を得て、TL 測定の相互比較などを実施した。このとき、研究者間で測定結果および測定精度にかなりよい一致が得られた。今回は、日本のグループを中心に γ 線量の測定評価を続けた。その結果は図 6 に示されるように、爆心から 2km 以内では、TL による測定結果が計算の値とかなりよく一致することが明らかになった。

長崎の TL による γ 線量が、いくつかの測定ポイントで計算による結果を過小評価していると指摘された。その原因は、航空写真などを参考にして検証したとき建物などのかげで γ 線が遮蔽された可能性があるとして指摘された。地上から見て遮蔽されていなかったと判断したので、そのようなことがあるかもしれない。しかし、現在それを確認することは困難である。しかし、今後そのような事実がはっきりすれば、計算と実験との間でさらによい一致がえられるかも知れない。しかし、事象の再現が不可能であり、そのようなコメントがあったとだけ記しておく。

原爆被爆 TL による実測データは、石英の釜だし以後のバックグラウンド TL によって隠れてしまう 2 km を超える地点の γ 線量に対して、DS02 による計算値の妥当性を裏付けている。

石英がアニールという熱処理により繰り返し TL 線量計素子として利用できることから、同一素子によりスーブラリニアリティやブリドース特性などの確認が可能であり、かなり精度の高い測定が可能であった。これからもレンガやタイルによる γ 線量の測定を行うとしたらケイ素でなく長石などの物性的変化を利用するのもよいのではないかとコメントして本稿を閉じる。

謝辞

貴重な被爆試料の収集にこころよくご協力下さいました広島および長崎の市民の皆様に、放射影響研究所ならびに広島大学の関係者に深く感謝いたします。

稿を終わるにあたり、始終ご指導、ご協力をいただいた独立行政法人 放射線医学総合研究所 重粒子医科学センター医学物理部 西沢かな枝研究室長ならびに研究室の皆様に深甚の謝意を表します。

表1. バックグラウンドの測定結果.

Lab	Place and Sample	Sample Type	Beta +/- (mGy/yr)		Gamma +/- (mGy/yr)		Total Back-ground Dose +/- Rate (mGy/yr)		Age +/- (yr)		Total Bkg Dose +/- (Gy)		Dose to:	Reported Dist (m)
DUR	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	TILE	2.1	0.2	1.15	1	3.25	1.02	52	2	0.160	0.059	quartz	1454
DUR	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	TILE	2.1	0.2	1.15	1	3.25	1.02	52	2	0.160	0.059	quartz	1454
JNIRS	Naka Telephone Office	TILE											tissue	507
JNIRS	Naka Telephone Office	TILE											Tissue	523
JNIRS	Sanin Bank	TILE											Tissue	621
JNIRS	Chugoku Elec Co	TILE											Tissue	665
JNIRS	Chugoku Elec Co	TILE											Tissue	691
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.65	.32	1.25	0.04	3.9	0.32	52	2	0.203	0.020	Tissue	1366
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.65	.32	1.25	0.04	3.9	0.32	52	2	0.203	0.020	Tissue	1366
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.65	.32	1.25	0.04	3.9	0.32	52	2	0.203	0.020	Tissue	1393
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.65	.32	1.25	0.04	3.9	0.32	52	2	0.203	0.020	Tissue	1416
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.65	.32	1.25	0.04	3.9	0.32	52	2	0.203	0.020	Tissue	1420
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.65	.32	1.25	0.04	3.9	0.32	52	2	0.203	0.020	Tissue	1428
JNIRS	Red Cross Hospital	TILE	2.75	.36	1.21	0.07	3.96	0.37	44	2	0.174	0.021	Tissue	1433
JNIRS	H.U.F.S.(Hiro.Univ.)	TILE	2.65	.32	1.25	0.04	3.9	0.32	52	2	0.203	0.020	Tissue	1443
JNIRS	Ryomatsu sho	BRK	1.91	.38	1.2	0.08	3.11	0.39	73	2	0.227	0.034	Tissue	3387
JNIRS	H.U.F.S.(Hiro.Univ.)	TILE	2.65	.32	1.25	0.04	3.9	0.32	52	2	0.203	0.020	Tissue	1450
JNIRS	Chokin-Kyoku	TILE	2.96	.45	1.25	0.09	4.21	0.46	47	2	0.198	0.027	Tissue	1607
NUE	Naka Telephone Office	TILE											Roentgen	523
NUE	Naka Telephone Office	TILE											Roentgen	523
NUE	Naka Telephone Office	TILE											Roentgen	523
NUE	Chugoku Electric Co.	Wall Tile	2.64	10	1.1	10	3.74	14.14	55		0.206		Tissue	692
NUE	Chugoku Electric Co.	Wall Tile	2.64	10	1.1	10	3.74	14.14	55		0.206		Tissue	692
NUE	Chugoku Electric Co.	Wall Tile	2.81	10	1.1	10	3.91	14.14	55		0.215		Tissue	692
NUE	Chugoku Electric Co.	Wall Tile	2.81	10	1.1	10	3.91	14.14	55		0.215		Tissue	692
NUE	Chugoku Electric Co.	Wall Tile	2.96	10	1.1	10	4.06	14.14	55		0.223		Roentgen	692
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	tile, railing	2.49	0.007	0.82	0.04	3.31	0.04	45	2	0.149	0.008	Roentgen	1271
NUE	HUFS "T" Bldg	tile, railing, roof	2.49	0.007	0.82	0.04	3.31	0.04	45	2	0.149	0.008	Tissue	1271
N.U.E	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	tile, railing	2.49	0.007	0.82	0.04	3.31	0.04	45	2	0.149	0.008	Roentgen	1298

Lab	Place and Sample	Sample Type	Beta +/- (mGy/yr)		Gamma +/- (mGy/yr)		Total Back-ground Dose +/- Rate (mGy/yr)		Age +/- (yr)		Total Bkg Dose +/- (Gy)		Dose to:	Reporte d Dist (m)
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	Tile, eaves	2.49	0.007	0.82	0.04	3.31	0.04	45	2	0.149	0.008	Roentgen	1282
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	Tile, eaves	2.49	0.007	0.82	0.04	3.31	0.04	45	2	0.149	0.008	Roentgen	1316
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	tile, railing	2.49	0.007	0.82	0.04	3.31	0.04	45	2	0.149	0.008	Roentgen	1336
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1388
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1388
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1388
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, railing	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1393
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1422
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1428
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1451
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1451
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1451
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ)	tile, floor	2.71	0.007	0.88	0.03	3.59	0.03	52	2	0.187	0.009	Roentgen	1461
NUE	Japanese House (Nobori-cho)	Oni-gawara											Roentgen	1131
NUE	HUFS "T" Bldg	tile, railing, roof	2.37	0.007	0.78	0.04	3.15	0.04	45	2	0.142	0.800	Tissue	1298
NUE	HUFS "E" Bldg	tile, wall	2.57	0.007	0.84	0.03	3.41	0.03	52	2	0.177	0.009	Tissue	1378
NUE	HUFS "E" Bldg	tile, railing, roof	2.57	0.007	0.84	0.03	3.41	0.03	52	2	0.177	0.009	Tissue	1388
NUE	HUFS "E" Bldg	tile, wall	2.57	0.007	0.84	0.03	3.41	0.03	52	2	0.177	0.009	tissue	1388
NUE	Red Cross Hospital	tile, floor of roof	3.29	1.06	1.16	10	4.45	10.06	45		0.200		Tissue	1451
NUE	Chokin-Kyoku (Postal Savings)	Roof tile	3.23	.32	0.82	0.04	4.05	0.32	42	2	0.162	0.017	Roentgen	1597
NUE	Meisen -ji "oni-gawara" top	Roof Ornament	1.1	10	1.4	10	2.5	14.14	71		0.178		Tissue	1909
NUE	Meisen -ji "oni-gawara" bottom	Roof Ornament	1.1	10	1.4	10	2.5	14.14	71		0.178		Tissue	1909
NUE	HUFE	Tile, wall	3.12	10	0.96	10	4.08	14.14	55		0.053		Tissue	2041

Lab	Place and Sample	Sample Type	Beta +/- (mGy/yr)		Gamma +/- (mGy/yr)		Total Back-ground		Age +/- (yr)		Total Bkg		Dose to:	Reported Dist (m)
NUE	Hiramoto "oni-gawara" bottom	Roof Ornament	2.4	10	1	10	3.4	14.14	48	0.163			Tissue	2053
NUE	Kirihara	Roof tile	2.5	10	0.7	10	3.2	14.14	66	0.211			Tissue	2453
NUE	Kirihara	Roof tile	1.1	10	1.3	10	2.4	14.14	66	0.158			Tissue	2453
NUE	Kirihara	Roof tile	1.7	10	1.3	10	3	14.14	66	0.198			Tissue	2453
NUE	Kirihara	Roof tile	1.7	10	1.3	10	3	14.14	66	0.198			Tissue	2453
OXF H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.1	0.21	1.15	1	3.25	1.02	52	2	0.169	0.063	Quartz	1454
OXF S	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.1	0.21	1.15	1	3.25	1.02	52	2	0.169	0.063	quartz	1454
OXF S	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2.3	0.46	1.15	1	3.45	1.10	52	2	0.179	0.076	Quartz	1454
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	3.08	0.15	1.15	0.1	4.23	0.18	52	2	0.196	0.014	Quartz	1386
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	3.08	0.15	1.15	0.1	4.23	0.18	52	2	0.196	0.014	Quartz	1426
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	10	10	10	10	20	14.14			0.000		Quartz	1433
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	3.08	0.15	1.15	0.1	4.23	0.18	52	2	0.196	0.014	Quartz	1451
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2	0.2	1.15	1	3.15	1.02	52	2	0.148	0.057	Quartz	1454
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	2	0.2	1.15	1	3.15	1.02	52	2	0.148	0.057	Quartz	1454
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	3.08	0.15	1.15	0.1	4.23	0.18	52	2	0.196	0.014	Quartz	1389
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	3.08	0.15	1.15	0.1	4.23	0.18	52	2	0.196	0.014	Quartz	1455
U OF U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	TILE	3.08	0.15	1.15	0.1	4.23	0.18	52	2	0.196	0.014	Quartz	1430
Dur	Ieno wall	Brick											Quartz	1427
Dur	Ieno wall	Brick											Quartz	1427
Dur	Ieno wall	Brick											Quartz	1427
Dur	Ieno wall	Brick											Quartz	1427
Dur	Ieno wall	Brick											quartz	1427
Dur	Ieno wall	Brick											quartz	1427
JNIRS	Urakami	Brick											tissue	459
JNIRS	Sakamoto	Brick	2.18	0.28	1.09	0.3	3.27	0.41	50	5	0.164	0.033	tissue	1079
JNIRS	Zenza	Brick	1.82	0.22	1.05	0.06	2.87	0.23	60	3	0.172	0.019	tissue	1437

注 JNIRS : 放射線医学総合研究所、NUE : 奈良教育大学、HU: 広島大学:

表2 . T L測定によって得られた広島・長崎γ線量 .

広島:

測定機関	試料採取場所・建造物	距離 (m)	測定線量 (Gy)	バックグラウンド (Gy)	空気中組織線量 (Gy)
NIRS	Atomic Bomb Dome	128	91.5 ± 18.3	-	91.5 ± 18.3
NIRS	Togiyacho Shojinji	162	77.1 ± 15.4	-	77.1 ± 15.4
NIRS	Nenryo Kaikan	158	68.5 ± 13.7	-	68.5 ± 13.7
NUE	Zaimokucho Denpukuji	410	61.4 ± 12.6	-	61.4 ± 12.6
NUE	Zaimokucho Seiganji	401	35.7 ± 7.4	-	35.7 ± 7.4
NUE	Zaimokucho Seiganji	401	32.9 ± 6.9	-	32.9 ± 6.9
NIRS	Fukuromachi Hospital	421	35.2 ± 7.1	-	35.2 ± 7.1
NUE	Zaimokucho	424	37.6 ± 7.8	-	37.6 ± 7.8
NIRS	Naka Telephone Office	521	30.3 ± 2.7	-	30.3 ± 2.7
NIRS	Naka Telephone Office	537	33.3 ± 1.7	-	33.3 ± 1.7
NUE	Naka Telephone Office	537	30.3 ± 2.7	-	30.3 ± 2.7
NUE	Naka Telephone Office	537	28.9 ± 3.4	-	28.9 ± 3.4
NUE	Naka Telephone Office	537	28.4 ± 4.1	-	28.4 ± 4.1
NIRS	Tatemachi Sanin Bk.	624	14.1 ± 2.9	-	14.1 ± 2.9
NIRS	Tatemachi Sanin Bk.	630	19.6 ± 1.7	-	19.6 ± 1.7
NIRS	Chugoku Electric Co.	694	10.5 ± 0.8	-	10.5 ± 0.8
NUE	Chugoku Electric Co.	694	12.3 ± 1.4	-	12.3 ± 1.4
NEU	Chugoku Electric Co.	694	10.5 ± 0.8	-	10.5 ± 0.8
NUE	Chugoku Electric Co.	694	10.6 ± 0.7	-	10.6 ± 0.7
NUE	Chugoku Electric Co.	694	10.9 ± 0.7	-	10.9 ± 0.7
NUE	Chugoku Electric Co.	694	10.3 ± 1.0	-	10.3 ± 1.0
NIRS	Noboricho minka	716	9.32 ± 1.90	-	9.32 ± 1.90
NUE	Hiroshima Castle	739	9.13 ± 2.15	-	9.13 ± 2.15
NUE	Hiroshima Castle	739	9.60 ± 2.25	-	9.60 ± 2.25
NUE	Nishiteramachi Koenji	977	5.68 ± 1.26	-	5.68 ± 1.26
NIRS	City Hall	988	2.94 ± 0.63	-	2.94 ± 0.63
NUE	Hiroshima Castle	1000	4.57 ± 1.29	-	4.57 ± 1.29
NUE	Hiroshima Castle	1000	2.58 ± 0.94	-	2.58 ± 0.94
NUE	Hiroshima Castle	1000	2.48 ± 0.92	-	2.48 ± 0.92
NUE	Nishitera Shosenji	1017	4.54 ± 1.03	-	4.54 ± 1.03
NUE	Noboricho minka	1145	1.86	0.2	1.66 ± 0.10

NUE	Hiroshima University	1279	1.66	0.2	1.46 ± 0.14
NUE	Hiroshima University	1279	1.63	0.2	1.43 ± 0.21
NUE	Hiroshima University	1279	1.19	0.2	0.99 ± 0.79
NUE	Hiroshima University	1290	1.31	0.2	1.11 ± 0.23
NUE	Hiroshima University	1305	1.19	0.2	0.99 ± 0.15
NUE	Hiroshima University	1305	1.19	0.2	0.99 ± 0.10
NIRS	Hiroshima University	1324	1.15	0.2	0.95 ± 0.08
NUE	Hiroshima University	1346	1.05	0.2	0.85 ± 0.12
NUE	Hiroshima University	1346	0.9	0.2	0.70 ± 0.10
NIRS	Hiroshima University	1385	1.27	0.2	1.07 ± 0.20
NUE	Hiroshima University	1386	1.04	0.2	0.84 ± 0.16
NUE	Hiroshima University	1386	1.02	0.2	0.82 ± 0.04
NUE	Hiroshima University	1395	1.12	0.2	0.92 ± 0.06
NUE	Hiroshima University	1396	1.12	0.2	0.92 ± 0.08
NUE	Hiroshima University	1396	1.15	0.2	0.95 ± 0.06
NUE	Hiroshima University	1396	1.16	0.2	0.96 ± 0.10
NUE	Hiroshima University	1396	0.98	0.2	0.78 ± 0.11
NUE	Hiroshima University	1396	0.9	0.2	0.70 ± 0.06
NIRS	Hiroshima University	1401	1.19	0.2	0.99 ± 0.13
NIRS	Hiroshima University	1405	0.96	0.2	0.76 ± 0.06
NUE	Hiroshima University	1430	0.82	0.2	0.62 ± 0.06
NIRS	Hiroshima University	1433	0.78	0.2	0.58 ± 0.10
NUE	Hiroshima University	1534	0.81	0.2	0.61 ± 0.11
NIRS	Hiroshima University	1435	0.93	0.2	0.73 ± 0.14
NIRS	Red Cross Hospital	1456	0.78	0.2	0.58 ± 0.10
NUE	Red Cross Hospital	1456	0.81	0.2	0.61 ± 0.11
NIRS	Red Cross Hospital	1456	0.93	0.2	0.73 ± 0.14
NUE	Red Cross Hospital	1456	1.02	0.2	0.82 ± 0.15
NIRS	Red Cross Hospital	1456	0.95	0.2	0.75 ± 0.12
NIRS	Red Cross Hospital	1456	0.99	0.2	0.79 ± 0.12
NIRS	Red Cross Hospital	1456	0.94	0.2	0.74 ± 0.13
NUE	Red Cross Hospital	1457	0.82	0.2	0.62 ± 0.08
NIRS	Hiroshima University	1457	1.23	0.2	1.03 ± 0.18
NUE	Hiroshima University	1457	0.96	0.2	0.76 ± 0.12
NUE	Hiroshima University	1457	0.92	0.2	0.72 ± 0.07
NUE	Hiroshima University	1458	0.86	0.2	0.66 ± 0.10
NUE	Hiroshima University	1458	0.92	0.2	0.72 ± 0.07
NUE	Hiroshima University	1458	0.96	0.2	0.76 ± 0.06
NUE	Hiroshima University	1458	0.78	0.2	0.58 ± 0.09
NUE	Hiroshima University	1469	0.68	0.2	0.48 ± 0.06
NIRS	Hiroshima University	1470	0.9	0.2	0.70 ± 0.21
NIRS	Hiroshima University	1475	0.88	0.2	0.68 ± 0.29
NIRS	Hiroshima University	1477	0.76	0.2	0.56 ± 0.23
NIRS	Red Cross Hospital	1497	0.93	0.2	0.73 ± 0.14
NIRS	Red Cross Hospital	1497	0.81	0.2	0.61 ± 0.13
NIRS	Red Cross Hospital	1497	0.9	0.2	0.70 ± 0.11
NIRS	Red Cross Hospital	1497	0.94	0.2	0.74 ± 0.15
NUE	Postal Sav.(Chokin k)	1608	0.59	0.2	0.39 ± 0.06
NUE	Postal Sav.(Chokin k)	1607	0.58	0.2	0.38 ± 0.02
NUE	Postal Sav.(Chokin k)	1607	0.53	0.2	0.33 ± 0.07
NUE	Postal Sav.(Chokin k)	1607	0.57	0.2	0.37 ± 0.06
NUE	Postal Sav.(Chokin k)	1619	0.51	0.2	0.31 ± 0.03
NIRS	Postal Sav.(Chokin k)	1637	0.53	0.2	0.33 ± 0.08
NUE	JEMIC	1766	0.4	0.2	0.20 ± 0.08
HU/NEU	Meisenji	1915	0.39	0.2	0.19 ± 0.04
HU/NEU	Meisenji	1915	0.38	0.2	0.18 ± 0.04
HU/NEU	Meisenji	1915	0.41	0.2	0.21 ± 0.08
HU/NEU	Meisenji	1915	0.4	0.2	0.20 ± 0.08
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.26	0.2	0.06 ± 0.06
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.3	0.2	0.10 ± 0.04
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.32	0.2	0.12 ± 0.04
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.32	0.2	0.12 ± 0.04
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.33	0.2	0.13 ± 0.06
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.33	0.2	0.13 ± 0.02
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.29	0.2	0.09 ± 0.03

HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.31	0.2	0.11 ± 0.04
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.36	0.2	0.16 ± 0.06
HU/NEU	Hiramocho Oni-gawara	2038	0.35	0.2	0.15 ± 0.03
NUE	Hiroshima University	2050	0.27	0.2	0.07 ± 0.05
NUE	Hiroshima University	2050	0.29	0.2	0.09 ± 0.04
NUE	Hiroshima University	2050	0.28	0.2	0.08 ± 0.08
NUE	Hiroshima University	2056	0.43	0.2	0.23 ± 0.04
NUE	Hiroshima University	2056	0.26	0.2	0.06 ± 0.01

注 . JNIRS : 放射線医学総合研究所、NUE : 奈良教育大学、HU : 広島大学:

長崎 :

測定機関	試料採取場所・建造物	距離 (m)	測定線量 (Gy)	バックグラウンド (Gy)	空気中組織線量 (Gy)
NIRS	Yamazotocho	87	222.9 ± 44.6		222.9 ± 44.6
NUE	Matsuyamacho	77	213.3 ± 42.8		213.3 ± 42.8
NUE	Oka machi	217	175.3 ± 35.2		175.3 ± 35.2
NUE	Oka machi	217	172.4 ± 34.6		172.4 ± 34.6
NUE	Yamazotocho	307	147.7 ± 29.6		147.7 ± 29.6
NUE	Yamazotocho	307	134.4 ± 27.0		134.4 ± 27.0
NUE	Yamazotocho	307	117.3 ± 23.6		117.3 ± 23.6
NUE	Shiroyama Primary Sch	490	75.0 ± 14.9		75.0 ± 14.9
NIRS	Urakami Church	517	44.3 ± 4.8		44.3 ± 4.8
NIRS	Urakami Church	517	44.3 ± 4.8		44.3 ± 4.8
NIRS	Urakami Church	517	57.8 ± 11.6		57.8 ± 11.6
NUE	Shumoyama cho	623	36.6 ± 7.4		36.6 ± 7.4
NUE	Ueno cho	634	34.0 ± 6.9		34.0 ± 6.9
NIRS	Nagasaki U. Hospital	655	40.4 ± 3.9		40.4 ± 3.9
NIRS	Nagasaki U. Hospital	655	33.4 ± 3.9		33.4 ± 3.9
NIRS	Nagasaki U. Hospital	655	24.4 ± 2.6		24.4 ± 2.6
NUE	Shiroyama cho	760	21.4 ± 4.4		21.4 ± 4.4
NUE	Shiroyamacho	763	12.9 ± 2.7		12.9 ± 2.7
NIRS	Hachimannjinja nearby	860	14.8 ± 3.0		14.9 ± 3.0
NIRS	Hachimanjinja	896	13.3 ± 2.7		13.3 ± 2.7
NUE	Urakamicho	967	8.43 ± 1.72		8.4 ± 1.7
NIRS	Sakamoto cemetery	1040	8	0.23	7.8 ± 1.67
NIRS	Sakamoto cemetery	1040	7.6	0.23	7.4 ± 1.5
NIRS	Sakamoto cemetery	1040	6.5	0.23	6.3 ± 0.8
NIRS	Sakamoto cemetery	1040	5.2	0.23	5.0 ± 0.9
NIRS	Sakamoto cemetery	1040	6.7	0.23	6.5 ± 0.6
NIRS	Sakamoto cemetery	1068	7.8	0.23	7.6 ± 0.10
NIRS	Sakamoto cemetery	1068	8	0.23	7.8 ± 0.10
NIRS	Ienoch wall A	1421	1.39	0.23	1.16 ± 0.21
NIRS	Ienoch wall B	1421	1.37	0.23	1.14 ± 0.22
NIRS	Zenza	1428	1.21	0.23	0.98 ± 0.24
NIRS	Zenza	1428	1.22	0.23	0.99 ± 0.24
NIRS	Nagasaki U. Charnel	1452	1.46	0.23	1.23 ± 0.21
NIRS	Nagasaki U. Charnel	1452	1.51	0.23	1.28 ± 0.18
NIRS	Nagasaki U. Charnel	1452	1.4	0.23	1.17 ± 0.15
NIRS	Yamada Oil Storehouse	2045	0.35	0.23	0.12 ± 0.06
NIRS	Yamada Oil Storehouse	2045	0.45	0.26	0.19 ± 0.06
NIRS	Yamada Oil Storehouse	2045	0.4	0.26	0.17 ± 0.06
NIRS	Yamada Oil Storehouse	2045	0.43	0.26	0.17 ± 0.06
NIRS	Yamada Oil Storehouse	2045	0.38	0.26	0.12 ± 0.06
NIRS	Yamada Oil Storehouse	2045	0.45	0.26	0.19 ± 0.06
NIRS	Yamada Oil Storehouse	2045	0.43	0.26	0.17 ± 0.06
NIRS	Inasa	2050	0.39	0.26	0.131 ± 0.10
NIRS	Inasa	2050	0.39	0.26	0.131 ± 0.10

注 . JNIRS : 放射線医学総合研究所、NUE : 奈良教育大学、HU : 広島大学:

Comparison of TLD Measured Values to DS02

Harry Cullings^{*}, George Kerr[#], Shoichiro Fujita^{*}, Takashi Maruyama^{\$},
Masaharu Hoshi[%], Stephen Egbert⁺

^{*} Radiation Effects Research Foundation, [#] Kerr Consulting Company,

^{\$} National Institute of Radiological Sciences, [%] Hiroshima University,

⁺ Science Applications International Corporation

Introduction

The comparison of measured TL results ^{*}from ceramic materials (bricks and tiles from Hiroshima and Nagasaki) to the doses calculated by A-bomb dosimetry systems requires good, sample-specific calculations for acceptable accuracy. That is, even though investigators typically measured samples with exposed surfaces that had a clear line of sight to the bomb, the actual calculated dose deposited in the measured quartz crystals by bomb gamma rays (the *in situ* dose to quartz) is not always equal to the free-in-air kerma (Kerr *et al.* 1987) at the same location, to an acceptably close approximation. This has been demonstrated independently of the DS86 and DS02 dosimetry systems by both experiment and calculation, e.g., in Hashizume *et al.* (1967) and Uehara *et al.* (1988), which demonstrated that the *in situ* dose to quartz depends on the depth of the measured material below the surface and the angle between the surface and direction of the incident gamma rays. The ratio of 1) the *in situ* dose to quartz, to 2) the free-in-air kerma at the same location, is regarded as a “transmission factor” (TF) in DS02. We can think of the TF as representing the fraction of the free-in-air kerma that reached the quartz crystals whose TL signal was measured.

In this report, as in the DS02 report itself, we consider all of the available measurements that contain useful information about the free-in-air kerma from the Hiroshima and Nagasaki bombs, including those considered in the DS86 Final Report: measurements by the Japan National Institute of Radiological Sciences, identified by the abbreviation “JNIRS” in the tables below, the University of Utah (USA) group, identified by the abbreviation “U of U” in the tables below, the Oxford University (UK) group, identified by the abbreviation “OXF” in the tables below, and the Durham University (UK) group, identified by the abbreviation “DUR” in the tables below, (Hashizume *et al.* 1967, Maruyama *et al.* 1984, Maruyama *et al.* 1987) and the Nara University of Education (Japan) group, identified by the abbreviation “NUE” in the tables below (Nagatomo *et al.* 1987) as well as an important set of early measurements by the Nara University of Education group not considered in DS86 (Ichikawa *et al.* 1966), and various newer measurements reported after DS86 by the JNIRS and NUE groups (Maruyama *et al.* 1988, Hoshi *et al.* 1989, Nagatomo *et al.* 1991, Nagatomo *et al.* 1992, Nagatomo *et al.* 1995, Maruyama *et al.* In Press).

Kaul *et al.* (1987) made detailed calculations of the *in situ* dose to quartz in almost all of the samples included in the DS86 report. Although they did not evaluate TF’s explicitly, it is simple to calculate TF’s from their calculations of the *in situ* dose to quartz. To calculate the *in situ* dose to quartz they used detailed adjoint Monte Carlo calculations similar to those used for evaluating the shielding of Japanese wooden houses in DS86. Unfortunately, funding was not available to perform such a suite of calculations for DS02. Besides having different gamma ray and neutron fluences from DS86, DS02 includes new, post-DS86 TL measurements at a considerable number of new sites. This resulted in a need for a thorough quantitative analysis of the DS86 calculations, so that they could be adjusted and extended for DS02.

^{*} Harry CULLINGS, Radiation Effects Research Foundation; hcull@rerf.or.jp

To analyze the DS86 TF's of Kaul *et al.*, we first separated their calculated *in situ* dose to quartz into two portions. The first and most important part is due to incident gamma rays from the bomb, and the second, sometimes called “building gammas,” is due to the incident neutrons from the bomb. The key assumption that allows us to extend the analysis of the DS86 TF's to DS02 is that the TF for a given sample is the same in DS02 as in DS86, for the portion of the *in situ* dose to quartz arising from incident bomb gamma rays. That is, the angle and energy distribution of the gamma ray fluences in DS86 and DS02 are similar enough that, using the subscript “BG” to denote “building gammas” and “FIA” to denote “free in air,”

$$TF_{DS02} = \frac{\text{dose}_{\text{quartz}, \text{in}_\text{situ}, \text{without}_\text{BG}, \text{DS02}}}{\text{kerma}_{\text{FIA}, \text{DS02}}} = \frac{\text{dose}_{\text{quartz}, \text{in}_\text{situ}, \text{without}_\text{BG}, \text{DS86}}}{\text{kerma}_{\text{FIA}, \text{DS86}}} = TF_{DS86} , \text{ to a very good}$$

approximation (< 1% difference). This assumption has been checked and is supported by various observations, beginning with the parallel nature of the curves for calculated free-in-air kerma of DS86 and DS02, suggesting that they are attenuated almost identically in air.

This assumption allowed us to calculate the DS02 *in situ* dose to quartz in a straightforward way, for samples that were calculated for DS86 by Kaul *et al.* That is, we could simply calculate the DS86 TF and multiply it times the DS02 free in air kerma to obtain a DS02 *in situ* dose to quartz. For samples that were not calculated by Kaul *et al.*, we needed to take an additional step. That step was to analyze the TF's of Kaul *et al.* by using a simplified model that would allow us to estimate TF's for other samples with reasonable accuracy, although not as accurately as a full, custom adjoint Monte Carlo calculation.

We analyzed the DS86 TF's of Kaul *et al.* as a function of the input variables that we could model in a simple way, which are a few sample parameters: the depth of the measured material below the surface of the sample, the density of the sample material, and the angle between the surface of the sample and a line of sight to the epicenter of the bomb (related to the “angle of incidence”). We could not model the effects of scattering and partial blocking of the incident bomb fluence by the structure in which the sample was situated at the time of bombing, because that requires an adjoint Monte Carlo calculation or a model of some other type that we did not have the resources to develop. However, our simplified model gave good enough results for a useful approximation of the TF's that Kaul *et al.* calculated. We used our simplified model to estimate TF's for samples that were not calculated by Kaul *et al.*, and we applied those estimated TF's to the DS02 free in air kerma at the sample locations to estimate the *in situ* dose to quartz under DS02.

DS02 has new sample distances, and new ground elevations at sample locations in Nagasaki, that are based on a careful evaluation of sample locations using the Geographical Information System (GIS) at RERF with the U.S. Army maps, the newer Japanese city maps, and pre-bombing aerial photographs. In addition, DS02 has a 20 m increase in the height of burst (HOB) in Hiroshima, which affects the slant range to any given sample location. To analyze the DS86 TF's of Kaul *et al.*, we calculated the DS86 free-in-air kerma for the divisor by using a slant range based on the same sample distances, sample ground elevations in Nagasaki, and HOB that they used: the DS86 ones. To calculate the DS02 *in situ* dose to quartz, however, for all of the samples, whether or not calculated in DS86 by Kaul *et al.*, we used the DS02 free in air kerma at a slant range based on the DS02 sample distances, DS02 sample ground elevations in Nagasaki, and DS02 HOB.

We used a somewhat analogous method to estimate the “building gamma” component of *in situ* dose to quartz, which arises from fast interactions (e.g., inelastic scattering, prompt capture gammas) of incident bomb neutrons. In that case, we determined that if we corrected for the inverse square of slant distance from the epicenter of the bomb, the bomb gamma components of Kaul *et al.* were close to a straight line on a semi-logarithmic plot vs. slant distance. Based on this, we used an inverse square of slant

distance times an exponential in slant distance to correct for differences between the sample distance assumed in DS86 and that assumed in DS02, and we corrected for the difference between the DS86 and DS02 neutron fluences by using a ratio of calculated ^{60}Co activation values. For samples calculated for DS86 by Kaul *et al.*, we could simply apply these corrections to the building gamma component calculated by them. For samples not calculated for DS86, we used a simple regression model vs. slant distance, based on the inverse square times the exponential as just described, to obtain an estimate of the DS86 building gamma component, and then we corrected it for the ratio of DS02 to DS86 neutron fluence using the ratio of calculated ^{60}Co activation values.

In the following sections, we give some additional details of these calculations. We identify some remaining concerns about particular post-DS86 samples for which we may not be able to calculate acceptably accurate TF's, and we describe several other potential sources of inaccuracy in measured or calculated values that might influence the comparison of one to the other. Finally, we summarize the results of our comparison of measured and calculated values for DS02.

Calculation and Analysis of the TF's Implicit in DS86

As noted above, we defined the DS86 TF as $TF_{DS86} \equiv \frac{\text{dose}_{\text{quartz}, \text{in situ}, \text{without BG}, \text{DS86}}}{\text{kerma}_{\text{FIA}, \text{DS86}}}$. The numerator

of this ratio for each sample was taken from Tables 15, 17, 19, 21, and 23 of Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report. To obtain the divisor, we took the table of free-in-air kerma to tissue values for DS86 (e.g., Table 40 in Chapter 3 of the DS86 Final Report), converted the noted ground distances to slant distances using the DS86 height of burst, converted dose to quartz to dose to tissue by dividing by 0.916, and interpolated the resulting values at the slant distance of the sample, based on its elevation and “new city map” ground distance as given in Tables 1 - 5, Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report.

In obtaining the calculated free-in-air kerma for the divisor by this method, we assume that the free-in-air kerma “scales as the slant distance” within a few tens of meters height above the elevation of the hypocenter – i.e., that the free-in-air kerma at some ground distance and height (GR_1, h_1) is equal to the free-in-air kerma at some other ground distance and height (GR_2, h_2) if

$\sqrt{GR_1^2 + (HOB - h_1)^2} = \sqrt{GR_2^2 + (HOB - h_2)^2} \Leftrightarrow SR_1 = SR_2$, where GR is a ground distance, HOB is the height of the epicenter above the hypocenter, h is the elevation difference between a sample location and the hypocenter, and SR is a slant distance. DS86 uses this assumption to correct for terrain elevation in Nagasaki, whereas it corrects for sample height above ground implicitly because that height is included in the model of the building containing the sample that is used for forward-adjoint Monte Carlo coupling. For DS02 we removed these corrections so that we could analyze TF's based on sample properties, by using this assumption to calculate a free-in-air quartz kerma at the sample's actual slant range, corrected for both terrain elevation and height above ground. We can use the TF that we estimate by this method to get a “free-in-air-equivalent measured value” at the sample's actual location (ground distance and elevation), and then use the above assumption again, with the DS02 estimate of the sample's elevation, to correct it back to one meter above ground at the same ground distance. The resulting “free-in-air-@1m-equivalent measured value” can then be compared to tabulated values of free-in-air kerma at one meter above flat ground, or plotted versus distance in comparison to a smooth curve of calculated free-in-air kerma at one meter above flat ground. This allows us not only to estimate “free-in-air-@1m-equivalent measured values” for new measurements not calculated in DS86, but to correct DS86 calculated *in situ* dose to quartz for DS02 estimates of terrain elevation that may differ from those used in DS86.

A very important aspect of the analysis was to calculate the angle of incidence accurately for each sample, where the angle of incidence is defined per the usual convention in radiological physics, as the plane angle between a normal to the exposed surface and a ray to the center of the radiation source, with the latter being assumed parallel to unscattered incident radiations. For horizontal samples the angle of incidence is easily calculated from the height of the bomb epicenter above the elevation of the sample and the ground distance from the hypocenter to the sample. For vertical samples and samples tilted somewhat from the true horizontal, we developed formulae based on the trigonometry in three dimensions. For vertical samples the formula requires the azimuthal angle (in the horizontal plane) between the vertical surface and a ray to the hypocenter, in addition to the angle of elevation defined by the epicenter height and ground distance. For “tilted” samples that are neither horizontal nor vertical, the formula requires the azimuthal angle (in the horizontal plane) between the axis about which the sample’s surface is tilted and a ray to the hypocenter, as well as the tilt angle, in addition to the angle of elevation defined by the epicenter height and ground distance. These angles are given for the samples calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report, in either the text or figures of that section. The formulae and method of derivation are given in the DS02 report (Cullings *et al.* In Press).

The other necessary variables were the assumed depth and density of the measured material as used in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report, which are given in the tables of that section. The calculated angles, the density, the measured depths, and the corresponding TF’s are given in Tables 1 and 2 below.

Table 1. Type 1 Transmission Factors Implicit in Calculated *in situ* Values of DS86 with Related Angles, Measured Depths, and Density of Sample Material: Hiroshima

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	DS86 GR, m	DS86 ht, m ²	Elev. Angle Theta, deg	Azimuthal Angle, deg	Angle of Incidence tau, deg	Meas. Depth, cm	Density, g/cm ³	TF, no Bldg gamma	TF with Bldg gamma
JNIRS	A-bomb Dome ¹			118.6	4	78.4	NA ⁵	11.6	1-2	2.10	0.786	0.944
JNIRS	Togiya-cho Shojun-ji ¹			146.2	3	75.8	90	75.8	1-2	2.00	0.392	0.645
JNIRS	Nenryo Kaikan (Fuel Authority Bldg) ¹			175.4	3	73.1	90	73.1	1-2	2.00	0.451	0.695
JNIRS	Fukuro-machi East Orthopedic Surgical Hospital ¹			406.4	3	54.8	90	54.8	1-2	2.00	0.696	0.861
JNIRS	Naka Telephone Office	3	1-01	506.8	14	48.2	NA ⁵	41.8	0.4-0.9	2.10	1.019	1.093
JNIRS	Naka Telephone Office	2	1-19	523.1	14	47.3	69	50.7	0.6-1.3	2.00	0.774	0.870
NUE	Naka Telephone Office	203-3	1-04	523.4	14	47.2	NA ⁵	42.8	0.2-1.05	2.10	0.962	1.046
NUE	Naka Telephone Office	204-2	1-04	523.4	14	47.2	NA ⁵	42.8	0.2-1.05	2.10	0.962	1.046
NUE	Naka Telephone Office	204-3	1-04	523.4	14	47.2	NA ⁴	42.8	0.2-1.05	2.10	0.962	1.046
JNIRS	Tate-machi Sanin Godo Bank ¹			617.5	3	43.1	90	43.1	1-2	2.00	0.793	0.885
JNIRS	Sanin Bank		12-02	621	13	42.4	74	44.8	0.4-1.05	2.00	0.889	0.959
JNIRS	Chugoku Elec Co		2_01	665.4	0.16	41.1	NA ⁵	48.9	0.4-1	2.00	0.527	0.582
JNIRS	Chugoku Elec Co	2	2-03	691.8	0.5	40.0	68.3	44.6	0.4-0.8	2.00	0.610	0.672
NUE	Chugoku Electric Co.	3-1-3	2-03	691.8	0.5	40.0	68.3	44.6	0.2-1.2	2.00	0.592	0.647
NUE	Chugoku Electric Co.	3-1-3	2-03	691.8	0.5	40.0	68.3	44.6	0.2-1.2	2.00	0.592	0.647
NUE	Chugoku Electric Co.	3-2-2	2-03	691.8	0.5	40.0	68.3	44.6	0.2-1.2	2.00	0.592	0.647
NUE	Chugoku Electric Co.	3-2-2	2-03	691.8	0.5	40.0	68.3	44.6	0.2-1.2	2.00	0.592	0.647
NUE	Chugoku Electric Co.	3-2-3	2-03	691.8	0.5	40.0	68.3	44.6	0.2-1.2	2.00	0.592	0.647
JNIRS	Nobori-machi Elementary School			710.0	3	39.1	90	39.1	1-2	2.00	0.825	0.893
JNIRS	City Hall ¹			985.5	3	30.3	90	30.3	1-2	2.00	0.876	0.901
NUE	Japanese House (Nobori-cho)		145	1131.2	4.8	27.0	23.455761	69.2	0.1-1.5	2.00	1.037	1.052
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-1	4-08	1271.3	14.72	24.0	NA ⁵	66.0	0.2-2.5	1.87	0.970	0.981
NUE	HUFS "I" Bldg	H1	4-08	1271.3	14.72	24.0	NA ⁵	66.0	0.2-2.5	1.87	0.970	0.981
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-2	4-07	1282.1	14.72	23.8	72.9	29.0	0.2-2.5	1.87	0.987	0.998
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-3	4-09	1297.7	14.72	23.5	NA ⁵	66.5	0.2-2.5	1.87	0.979	0.990
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-4	4-01	1316.5	14.72	23.2	74.3	27.8	0.2-2.5	1.87	0.987	0.996
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-5	4-03 horizontal	1338.1	14.72	22.9	NA ⁵	67.1	0.2-2.5	1.87	0.950	0.959
NUE		H-5B	4-03 vertical	1338.1	14.72	22.9	74.8	27.3	0.2-2.5	1.87	0.852	0.861
NUE		H-5B	4-03 vertical	1338.1	14.72	22.9	74.8	27.3	0.2-2.5	1.87	0.852	0.861
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-5B	4-03 vertical	1338.1	14.72	22.9	74.8	27.3	0.2-2.5	1.87	0.852	0.861
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	7	3-07	1377	13.1	22.4	75.8	26.3	0.5-1.5	2.00	0.981	0.991
NUE	HUFS "E" Bldg	HPI	3-08	1378.4	10.61	22.4	75.8	26.4	0.2-1.9	2.00	0.972	0.982
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	10	3-10	1387.4	13.1	22.2	73.8	27.3	0.5-1.5	2.00	0.951	0.958
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-6-1	3-20	1387.9	13.1	22.2	NA ⁵	67.8	0.2-1.9	2.00	0.885	0.892
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-6-2	3-20	1387.9	13.1	22.2	NA ⁵	67.8	0.2-1.9	2.00	0.885	0.892
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-6-3	3-20	1387.9	13.1	22.2	NA ⁵	67.8	0.2-1.9	2.00	0.885	0.892
NUE	HUFS "E" Bldg	HP2	3-11	1388.5	10.7	22.3	73.8	27.3	0.2-1.9	2.00	0.957	0.964

< Table 1 continued >

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	DS86 GR, m	DS86 ht, m ²	Elev. Angle Theta, deg	Azimuthal Angle, deg	Angle of Incidence tau, deg	Meas. Depth, cm	Density, g/cm ³	TF, no Bldg gamma	TF with Bldg gamma
NUE	HUFS "E" Bldg	HP3	(3-11)	1388.5	10.7	22.3	73.8	27.3	0.2-1.9	2.00	0.957	0.964
U. OF U.	H.U.F.S. ³ (Hiro. Univ.)	UHFSO3	3-23	1392.8	13.1	22.1	75.3	60.7	0.25-1.75	2.10	0.982	0.989
NUE	H.U.F.S. ³ (Hiro. Univ.)	H-7	3-36	1393.1	13.4	22.1	75.8	60.7	0.2-1.9	2.00	0.957	0.964
U. OF U.	H.U.F.S. ³ (Hiro. Univ.)	UHFSO2	3-22	1397.0	13.1	22.1	74.8	60.8	0.25-1.75	2.10	0.959	0.966
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-8	3-18	1422.0	13.1	21.7	NA ⁵	68.3	0.2-1.9	2.00	0.885	0.891
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	I	3-29	1424.9	13.5	21.7	74.3	26.5	0.5-1.5	2.00	0.961	0.968
JNIRS	H.U.F.S. ³ (Hiro. Univ.)	IV	3-31	1426.1	13.4	21.7	75.8	61.2	0.5-1.5	2.00	0.942	0.948
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-9	3-17	1427.9	13.1	21.7	74.3	26.5	0.2-1.9	2.00	0.860	0.867
JNIRS	Red Cross Hospital		5-01	1451.8	7	21.5	56.5	39.1	0.5-1.5	2.00	0.923	0.930
NUE	Red Cross Hospital	HP4	5-01	1451.8	7	21.5	56.5	39.1	0.2-1.4	2.00	0.961	0.969
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	R1	3-35	1449.1	13.1	21.4	NA ⁵	68.6	0.5-1.5	2.10	0.881	0.888
DUR	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT02	3-35	1449.1	13.1	21.4	NA ⁵	68.6	0.25-1.75	2.10	0.885	0.892
DUR	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT02	3-35	1449.1	13.1	21.4	NA ⁵	68.6	0.25-1.75	2.10	0.885	0.892
OXF H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT03	3-35	1449.1	13.1	21.4	NA ⁵	68.6	0.25-1.75	2.10	0.885	0.892
OXF H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT03	3-35	1449.1	13.1	21.4	NA ⁵	68.6	0.25-1.75	2.10	0.885	0.892
OXF H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT03	3-35	1449.1	13.1	21.4	NA ⁵	68.6	0.25-1.75	2.10	0.885	0.892
U of U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT02	3-35	1449.1	13.1	21.4	NA ⁵	68.6	0.25-1.75	2.10	0.885	0.892
U of U	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT03	3-35	1449.1	13.1	21.4	NA ⁵	68.6	0.25-1.75	2.10	0.885	0.892
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-1	3-15	1450.5	13.1	21.3	NA ⁵	68.7	0.2-1.9	2.00	0.897	0.904
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-2	3-15	1450.5	13.1	21.3	NA ⁵	68.7	0.2-1.9	2.00	0.897	0.904
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-3	3-15	1450.5	13.1	21.3	NA ⁵	68.7	0.2-1.9	2.00	0.897	0.904
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-4	3-15	1450.5	13.1	21.3	NA ⁵	68.7	0.2-1.9	2.00	0.897	0.904
U of U	H.U.F.S. ³ (Hiro. Univ.)	UHFSO4	3-24	1456.9	13.1	21.3	15.7	66.9	0.25-1.75	2.10	0.955	0.961
U of U	H.U.F.S. ³ (Hiro. Univ.)	UHFSO7	3-27	1457.2	13.1	21.3	75.8	61.6	0.25-1.75	2.10	0.942	0.947
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-11	3-16	1460.9	13.1	21.2	NA ⁵	68.8	0.2-1.9	2.00	0.821	0.826
NUE	Chokin-Kyoku (Postal Savings)		6-04	1602.9	20	19.3	28	63.7	0.2-0.7	2.05	0.654	0.657
JNIRS	Chokin-Kyoku ⁴		6-00	1605.7	22	19.2	61.5	57.9	0.5-1.5	2.10	0.857	0.860
NUE	HUFE	HP5	8-01	2050.5	6	15.6	87.7	15.8	0.2-1.65	2.00	0.978	0.978

Notes: 1. Hashizume 1967 sample. 2. Includes only height above ground (elevation of ground above hypocenter was assumed = 0). 3. These samples were slanted downward 7.4° in a direction close to the direction to the hypocenter. 4. This sample was "slightly slanted," but neither the angle nor necessary dimensions are given by Kaul *et al.* (1987). 5. Horizontal surface sample.

Table 2. Type 1 Transmission Factors Implicit in Calculated *in situ* Values of DS86 with Related Angles, Measured Depths, and Density of Sample Material: Nagasaki

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	DS86 GR, m	DS86 ht, m	Elevation Angle Theta, deg	Azimuthal Angle, deg	Angle of Incidence tau, deg	Meas. Depth, cm	Density, g/cm ³	TF, no Bldg gamma	TF with Bldg gamma
JNIRS	Yamazoto-cho House ¹			88	4	81.2	45	10.0	1-2	2.1	1.018	1.048
JNIRS	Urakami		N4	501	24	42.8	46.9	57.5	0.5-1.5	1.7	0.860	0.869
JNIRS	Urakami Church			508	3	38.2	45	44.5	1-2	2	0.878	0.894
JNIRS	Hachiman jinja nearby house ¹			866	3	29.3	90	30.0	1-2	2	0.957	0.963
JNIRS	Hachiman jinja ¹			891	3	28.1	90	29.3	1-2	2	0.968	0.974
JNIRS	Sakamoto cho Gaijin Cemetery ¹			935	3	27.1	45	28.1	1-2	2	0.986	0.992
JNIRS	Sakamoto-cho Gaijin Cemetery ¹			973	3	24.6	70	27.2	1-2	2	0.986	0.991
JNIRS	Sakamoto		N-6	1054	28	24.0	90	24.0	0.5-1.5	1.7	1.055	1.057
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	0.3-3.2	1.7	0.992	0.992
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	3.4-6.4	1.7	0.775	0.776
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	6.6-10.3	1.7	0.688	0.689
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	0.3-3.2	1.7	0.992	0.992
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	3.4-6.4	1.7	0.775	0.776
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	6.6-10.3	1.7	0.688	0.689
JNIRS	Ieno	A	N-2-2	1431	11	19.0	81	20.9	0.5-1.5	1.7	0.969	0.970
JNIRS	Ieno	B	N-2-2	1431	11	19.0	81	20.9	1-3	1.7	0.965	0.966
NUE	Ieno wall	A	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	0.2-3.6	1.7	0.959	0.960
NUE	Ieno wall	B	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	3.6-6.6	1.7	0.817	0.818
NUE	Ieno wall	C	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	7-10.4	1.7	0.682	0.683
OXF H	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	0.3-3.2	1.7	0.992	0.992
OXF H	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	3.4-6.4	1.7	0.775	0.776
OXF H	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	6.6-10.3	1.7	0.688	0.689
U of U	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	0.4-3.6	1.7	0.955	0.956
U of U	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	1429	11	19.0	81	20.9	3.7-6.9	1.7	0.793	0.794
U of U	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	1429	11	18.8	72	20.9	7-10.2	1.7	0.718	0.719
JNIRS	Zenza		N-7	1424	9	19.3	90	19.1	0.5-1.5	1.7	1.060	1.061
JNIRS	Inasa	A	N-3	2050	0.6	13.9	67.4	26.3	0.5-1.5	1.7	1.025	1.025
JNIRS	Chikugo		N-8	2323	22			11.7	0.5-1.5	1.7	1.009	1.009

When the TF's were divided into groups based on the mass thickness depth to the middle of the measured material and then plotted vs. the inverse of the cosine of the angle of incidence (the angled depth d_{ang} to a perpendicular depth d is given by $d_{ang} = \frac{d}{\cos \tau}$ for an angle of incidence τ), the plot did not show clear and simple trends, as shown in Figure 1.

The key to analyzing these data was to notice that the samples measured by JNIRS and reported in 1967 by Hashizume *et al.*, except for one sample in each city, were modeled for DS86 by using the same exact building model, in addition to the same measured depth and density. The TF's for these JNIRS 1967 samples in Hiroshima do lie on a smooth curve, and the identically modeled JNIRS 1967 samples in Nagasaki lie on a different curve. Thinking about this led to the idea of combining all of the depth (d), density (ρ), and angle (τ) information by calculating an angled mass thickness depth $amtd \equiv \frac{d\rho}{\cos \tau}$ to any portion of the measured material at depth d . Then, based on the idea that attenuation should be proportional to $e^{-\frac{amtd}{RL_{E,mat}}}$, where $RL_{E,mat}$ is some characteristic relaxation length specific to the incident gamma energy spectrum and the sample material, we could model the logarithm of the TF as a linear function of quantities based on $amtd$, and other variables of interest. Another inspiration for this concept, and a useful standard for comparison in some respects (although differing from DS86 because of differences in sample environs, beam energy and beam directionality), was a 1988 paper by Uehara *et al.*, in which they measured and calculated depth doses for thin layers of sample material in bricks and tiles. We used their depth doses to calculate TF's based on the definitions they used for depth dose vs. our definition of TF, and then we made smoothed curves based on their values, which are included in Fig.1.

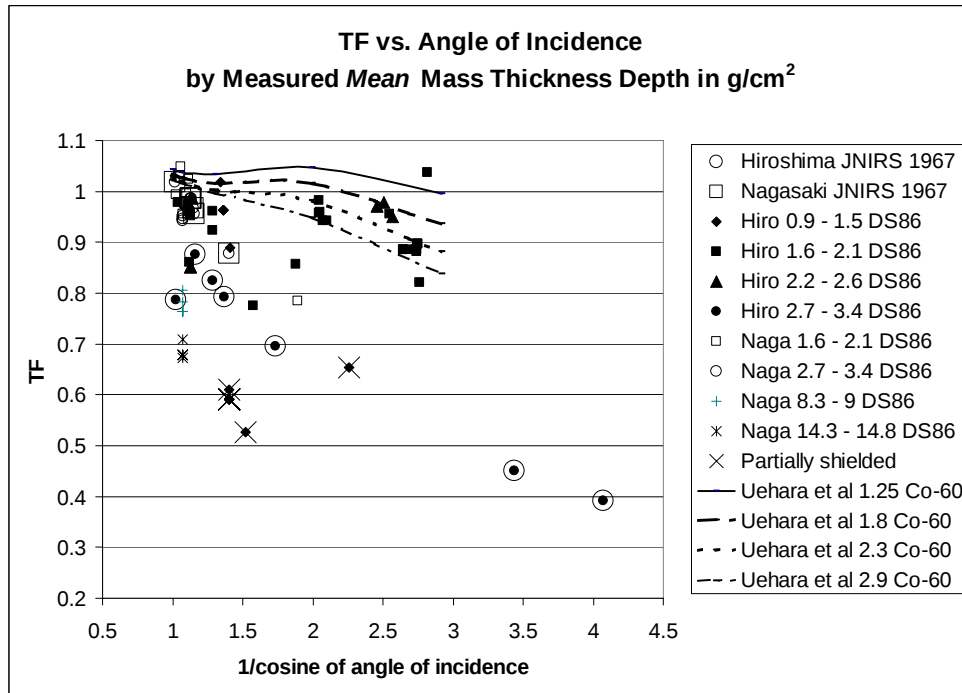


Figure 1. TF vs. inverse cosine of angle of incidence, classified by mass thickness depth.

We therefore analyzed $\log(TF)$ by doing a multiple linear regression on the $amtd$'s associated with the minimum, geometric mean, and maximum depths of the measured material in each sample. In Hiroshima, we also included a dummy variable for vertical vs. horizontal samples, to allow for a broad

difference between the two. Another important point is that we purposely excluded particular samples at the Chugoku Electric Co. and the Postal Savings Building that had unusually low calculated TF's due to substantial and obvious blocking of part of the incident bomb fluence by part of the modeled structure. The model chosen as best for Hiroshima was:

$$\ln(TF) = 0.130155 - 0.095655amtd_{\min} - 0.011206amtd_{\max} - 0.075565HV ,$$

where the dummy variable HV was taken equal to 0 if the sample was horizontal and 1 if the sample was vertical. The model chosen as best for Nagasaki was:

$$\ln(TF) = 0.0914539 + 0.0998853amtd_{\min} - 0.1122389amtd_{geom_mean} .$$

The positive sign on the term for minimum $amtd$ in the Nagasaki equation is apparently due to the fact that the sample population in Nagasaki consisted of relatively thin, shallow samples at various locations and much thicker, much deeper samples at Ieno wall.

The TF values predicted by the regression are compared to the actual values calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report, in Table 3 below. The regression-based models are useful because the indicated terms were highly significant in the regressions, and the models correspondingly explained much of the variation among the calculated TF's. The unexplained remainder of the variation is essentially random variation due to the detailed properties of randomly determined building geometries as reflected in the Monte Carlo calculations of TF; i.e., aspects of building geometry that affect the scattering and (minor) partial blocking of incident bomb fluences but are not systematically related to sample angle, measured depth, or density. Therefore these models should give a good approximation of the TF that would be calculated for a different sample not calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report, so long as it was not taken from a location with obvious, substantial blocking of part of the incident fluence; i.e., locations like those at the Chugoku Electric Co. that were deliberately omitted from this analysis.

Table 3. Loglinear Model Results for Estimating Type 1 TF

City	Place	Sample ID#	RERF List No.	DS86 TF	TF estimated by loglinear regression model	Ratio of regression estimate to DS86 TF
H	A-bomb Dome			0.786	0.885	1.126
H	Togiya-cho Shojun-ji			0.392	0.405	1.033
H	Nenryo Kaikan (Fuel Authority Bldg)			0.451	0.470	1.042
H	Fukuro-machi East Orthopedic Surgical Hospital			0.696	0.701	1.007
H	Naka Telephone Office	3	1-1	1.019	0.994	0.975
H	Naka Telephone Office	2	1-19	0.774	0.841	1.087
H	Naka Telephone Office	203-3	1-4	0.962	1.044	1.085
H	Tate-machi Sanin Godo Bank			0.793	0.764	0.963
H	Sanin Bank		12-2	0.889	0.917	1.031
H	Nobori-machi Elementary School			0.825	0.779	0.944
H	City Hall			0.876	0.803	0.917
H	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-1	4-08	0.970	0.922	0.951
H	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-2	4-07	0.987	0.957	0.970
H	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-3	4-09	0.979	0.919	0.939
H	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-4	4-01	0.987	0.958	0.971
H	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-5	4-03 horizontal	0.950	0.914	0.962
H	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-5B	4-03 vertical	0.852	0.958	1.124
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	7	3-07	0.981	0.915	0.933
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	HP1	3-08	0.972	0.966	0.994
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	10	3-10	0.951	0.913	0.960
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-6-1	3-20	0.885	0.924	1.044
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	HP2	3-11	0.957	0.966	1.009
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSO3	3-23	0.982	0.948	0.965
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-7	3-36	0.957	0.969	1.013
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSO2	3-22	0.959	0.948	0.989
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-8	3-18	0.885	0.920	1.040
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	I	3-29	0.961	0.914	0.951
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	IV	3-31	0.942	0.873	0.927
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-9	3-17	0.860	0.966	1.123
H	Red Cross Hospital		5-01	0.923	0.894	0.969
H	Red Cross Hospital	HP4	5-01	0.961	0.966	1.005

<Table 3 continued>

City	Place	Sample ID#	RERF List No.	DS86 TF	TF estimated by loglinear regression model	Ratio of regression estimate to DS86 TF
H	H.U.F.S.(Hiro.Univ.)	R1	3-35	0.881	0.787	0.893
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT02	3-35	0.885	0.890	1.006
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-1	3-15	0.897	0.917	1.022
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFS04	3-24	0.955	0.906	0.949
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFS07	3-27	0.942	0.943	1.001
H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-11	3-16	0.821	0.916	1.116
H	Chokin-Kyoku		6-00	0.857	0.884	1.032
H	HUFE	HP5	8-01	0.978	0.978	1.000
N	Yamazoto-cho House			1.018	0.967	0.961
N	Urakami		N4	0.860	0.941	1.114
N	Urakami Church			0.878	0.929	1.072
N	Hachiman jinja nearby house			0.957	0.957	1.012
N	Hachiman jinja			0.968	0.957	1.001
N	Sakamoto cho Gaijin Cemetery			0.986	0.959	0.984
N	Sakamoto-cho Gaijin Cemetery			0.986	0.960	0.985
N	Sakamoto		N-6	1.055	1.003	0.963
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.992	0.947	0.971
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.775	0.784	1.029
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.688	0.675	0.994
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.992	0.947	0.971
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.775	0.784	1.029
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.688	0.675	0.994
N	Ieno	A	N-2-2	0.961	1.005	1.059
N	Ieno	B	N-2-2	0.957	0.923	0.980
N	Ieno wall	A	N-2-1	0.959	0.955	1.013
N	Ieno wall	B	N-2-1	0.817	0.779	0.969
N	Ieno wall	C	N-2-1	0.682	0.684	1.014
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.992	0.947	0.971
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.775	0.784	1.029
N	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.688	0.675	0.994
N	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	0.955	0.922	0.984
N	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	0.793	0.765	0.981
N	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	0.718	0.696	0.978
N	Zenza		N-7	1.060	1.006	0.961
N	Inasa	A	N-3	1.025	1.002	0.989
N	Chikugo		N-8	1.009	1.009	1.012

Estimation of DS02 TF's and Calculation of DS02 Dose to Quartz Exclusive of Building Gamma Component

For new samples and locations not calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report, we used the loglinear model described in the preceding section. For the JNIRS 1967 measurements, because the TF's calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report lie on a reasonably smooth curve vs. the inverse of the cosine of the angle of incidence (they are well approximated over most of the range by a simple exponential), we could adjust the DS86 estimates by calculating a new angle of incidence based on a DS02 ground distance evaluated with the geographical information system (GIS), and new assumptions about the azimuthal angles involved. For the samples and locations that were calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report, we did not have a straightforward way to adjust the TF for a re-evaluated angle of incidence. We could have developed a perturbation method based on the TF calculated for DS86 and the log-linear model, but it was not necessary because we confirmed that the adjustments would be very small based on the changes in angle that would apply to the particular samples involved. The TF's that were adjusted or calculated *de novo* for DS02 are summarized in Tables 4 and 5 below. These TF's, and those that were adopted from DS86 without adjustment, were used with DS02 free-in-air calculated values, evaluated at DS02 slant range for all samples, to obtain DS02 *in situ* dose to quartz, exclusive of the building gamma component.

Table 4. DS02 TF's Estimated *de novo* or Adjusted Based on Analysis of DS86 TFs: Hiroshima (does not include height correction)

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	DS02 GR, m	DS02 ht, m	Elevation Angle Theta, deg	Azimuthal Angle, deg	Angle of Incidence tau, deg	Meas. Depth, cm	Density, g/cm ³	TF, no Bldg gamma	TF with Bldg gamma
JNIRS	Togiya-cho Shojun-ji			162	3	74.8	77.7	75.2	1-2	2	0.402	0.584
JNIRS	Nenryo Kaikan (Fuel Authority Bldg)			158	3	75.2	78.9	75.5	1-2	2	0.393	0.573
NUE	Zaimoku cho, Dempuku ji	H-1		410	4	55.5	45	30.0	2.2-3.9	2.1	0.593	0.696
NUE	Zaimoku cho, Seigan ji	H-2		401	4	56.1	45	30.0	2.2-3.9	2.1	0.593	0.698
NUE	Zaimoku cho, Seigan ji	H-2'		401	4	56.1	45	30.0	2.2-3.9	2.1	0.593	0.698
JNIRS	Fukuro-machi East Orthopedic Surgical Hospital			421	3	54.8	69.4	57.4	1-2	2	0.662	0.790
NUE	Zaimoku cho,	H-3		424	4	54.6	45	30.0	2.2-3.9	2.1	0.593	0.694
JNIRS	Tate-machi Sanin Godo Bank			624	3	43.0	74.0	45.9	1-2	2	0.780	0.859
JNIRS	Nobori-machi Elementary School			716	3	39.8	76.3	41.7	1-2	2	0.810	0.872
NUE	Hiroshima Castle, ninomaru	H-4		739	4	38.9	45	33.6	0.2-1.9	2.1	0.991	1.048
NUE	Hiroshima Castle, ninomaru	H-4'		739	4	38.9	45	33.6	0.2-1.9	2.1	0.991	1.048
NUE	Nishitera machi, koen ji	H-6		977	4	31.4	45	37.3	0.2-1.9	2.1	0.987	1.018
NUE	Hiroshima Castle, honmaru	H-8		1000	4	30.8	45	37.7	0.2-1.9	2.1	0.986	1.015
NUE	Hiroshima Castle, honmaru	H-8'		1000	4	30.8	45	37.7	0.2-1.9	2.1	0.986	1.015
NUE	Hiroshima Castle, honmaru	H-8"		1000	4	30.8	45	37.7	0.2-1.9	2.1	0.986	1.015
JNIRS	City Hall			988	3	31.1	72.4	35.3	1-2	2	0.847	0.873
NUE	Nishitera machi, Shozen ji	H-7		1017	4	30.4	45	37.9	0.2-1.9	2.1	0.986	1.014
JNIRS	Hiroshima Univ Radioisotope Facility			1470	4	22.1	NA*	67.9	0.5-1.5	2	0.808	0.814
JNIRS	Hiroshima Univ Radioisotope Facility			1475	4	22.0	NA*	68.0	0.5-1.5	2	0.807	0.813
JNIRS	Hiroshima Univ Radioisotope Facility			1477	4	22.0	NA*	68.0	0.5-1.5	2	0.807	0.813
JNIRS	Red Cross Hospital			1501	20	21.1	56.5	38.9	0.5-1.5	2	0.895	0.901
JNIRS	Red Cross Hospital			1501	20	21.1	56.5	38.9	0.5-1.5	2	0.895	0.901
JNIRS	Red Cross Hospital			1501	20	21.1	56.5	38.9	0.5-1.5	2	0.895	0.901
JNIRS	Red Cross Hospital			1501	20	21.1	56.5	38.9	0.5-1.5	2	0.895	0.901
JNIRS	Red Cross Hospital			1501	20	21.1	56.5	38.9	0.5-1.5	2	0.895	0.901
NUE	Postal Savings (Chokin Kyoku)	A		1596	19	20.0	NA*	70.0	0.2-1.9	2	0.900	0.904
NUE	Postal Savings (Chokin Kyoku)	B		1607	22	19.8	61.5	57.9	0.2-2.1	2	0.971	0.975
NUE	Postal Savings (Chokin Kyoku)	D		1619	19	19.7	NA*	70.3	0.2-1.9	2	0.897	0.901
NUE	Postal Savings (Chokin Kyoku)	E		1637	19	19.5	NA*	70.5	0.2-1.9	2	0.895	0.899
NUE	JEMIC	HP7		1788	14.5	18.1	69	27.5	0.2-0.5	2	1.000	1.002
NUE	Myosen -ji "oni-gawara" top	Me-1		1915	7	17.2	16.8	74.0	0.2-1.6	2	0.808	0.809
NUE	Myosen -ji "oni-gawara" bottom	Me-2		1915	7	17.2	16.8	74.0	0.2-1.6	2	0.808	0.809
NUE	Myosen -ji "oni-gawara" top	A-1		1915	7	17.2	16.8	74.0	0.2-1.6	2	0.808	0.809
NUE	Myosen -ji "oni-gawara" bottom	A-2		1915	7	17.2	16.8	74.0	0.2-1.6	2	0.808	0.809
NUE	Hiramoto "oni-gawara" bottom	Hr-1		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto "Oni-gawara"	B		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A1-1		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A1-2		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A1-3		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A2		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A3		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A4-1		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A4-2		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A5		2067	4.8	16.1	47	45.3	0.2-1.4	2	0.807	0.808

*; Horizontal surface sample.

Table 5. DS02 TF's Estimated *de novo* or Adjusted Based on Analysis of DS86 TFs: Nagasaki (does not include height correction)

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	DS02 GR, m	DS02 ht, m	Elevation Angle Theta, deg	Azimuthal Angle, deg	Angle of Incidence tau, deg	Meas. Depth, cm	Density, g/cm ³	TF, no Bldg gamma	TF with Bldg gamma
NUE	Matsuyama cho	N-1		77	5	81.2	45	39.2	2.2-3.9	2.1	0.827	0.848
NUE	Oka machi	N-2		217	7	66.3	45	32.0	2.2-3.9	2.1	0.848	0.870
NUE	Oka machi	N-2'		217	7	66.3	45	32.0	2.2-3.9	2.1	0.848	0.870
NUE	Yamazoto cho	N-3		307	10	58.1	45	30.2	2.2-3.9	2.1	0.853	0.871
NUE	Yamazoto cho	N-3'		307	10	58.1	45	30.2	2.2-3.9	2.1	0.853	0.871
NUE	Yamazoto cho	N-3"		307	10	58.1	45	30.2	2.2-3.9	2.1	0.853	0.871
NUE	Shiroyama Elementary School	N-4		490	16	44.8	45	31.5	2.2-3.9	2.1	0.850	0.862
JNIRS	Urakami church			517	29	48.1	46.9	60.8	1-2	2	0.677	0.690
NUE	Shiroyama cho	N-6		623	12.5	38.2	45	33.9	0.2-1.9	2.1	0.983	0.992
NUE	Ueno cho	N-7		634	19	37.3	45	34.3	2.2-3.9	2.1	0.842	0.851
JNIRS	Nagasaki University Hospital			655	30	35.8	37	60.8	0.5-1.5	2	0.918	0.926
JNIRS	Nagasaki University Hospital			655	30	35.8	53	49.7	0.5-1.5	2	0.961	0.969
JNIRS	Nagasaki University Hospital			655	30	35.8	53	49.7	0.5-1.5	2	0.961	0.969
NUE	Shiroyama cho	N-8		760	12	32.9	45	36.5	2.2-3.9	2.1	0.836	0.842
NUE	Sakamoto cho	N-9		763	6	33.1	45	36.4	2.2-3.9	2.1	0.836	0.842
JNIRS	Hachiman jinja nearby house			861	16	34.2	74.8	36.9	1-2	2	0.932	0.938
JNIRS	Hachiman jinja			896	18	33.0	74.8	35.9	1-2	2	0.938	0.943
JNIRS	Sakamoto cho Gaijin Cemetery			1040	33	28.6	74.8	32.0	1-2	2	0.959	0.963
NUE	Urakami cho	N-10		967	9	27.1	45	39.9	2.2-3.9	2.1	0.825	0.828
JNIRS	Sakamoto-cho Gaijin Cemetery			1068	33	28.0	74.8	31.5	1-2	2	0.962	0.965
JNIRS	Sakamoto Cemetery			1040	26	24.6	70	31.3	0.5-1.5	1.7	0.997	0.999
JNIRS	Sakamoto Cemetery			1040	26	24.6	70	31.3	0.5-1.5	1.7	0.997	0.999
JNIRS	Sakamoto Cemetery			1040	26	24.6	70	31.3	0.5-1.5	1.7	0.997	0.999
JNIRS	Sakamoto Cemetery			1040	26	24.6	70	31.3	0.5-1.5	1.7	0.997	0.999
JNIRS	Nagasaki University Charnel			1452	9	18.8	72	25.8	0.5-1.5	1.7	1.014	1.015
JNIRS	Nagasaki University Charnel			1452	9	18.8	72	25.8	0.5-1.5	1.7	1.014	1.015
JNIRS	Nagasaki University Charnel			1452	9	18.8	72	25.8	0.5-1.5	1.7	1.014	1.015

For the Myosen temple and Hiramoto residence in Hiroshima, we could not verify the very oblique angle of incidence values that were given by the authors. We can obtain a georeferenced image of the buildings in question from the new city map in the former case and from a pre-bombing aerial photograph in the latter case, such that we can use the GIS to measure horizontal (azimuthal) angles of sides and corners of the buildings vis-à-vis the direction to the hypocenter. But the side(s) of the roof from which samples were taken were not documented well enough to clearly resolve apparent inconsistencies with the apparent angles of the sides and corners of the georeferenced images. In addition, the sample from Myosenji was a relatively small oni-gawara tile that was rounded and protuberant, and would not have the same properties as a sample from a large, flat surface. For these reasons, the TF's that we can calculate at these two sites may be inaccurate. However, because the TF's calculated here are about 0.8, and the true TF could not possibly exceed about 1, errors in these TF's could explain only a small part of the observed amount by which the free-in-air-equivalent measured values exceed the calculated values at these sites.

There are two TF's calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report for the Urakami church in Nagasaki. The specific TF calculated using the model described for the "N-4" sample on p. 222 of final report is about 0.86, whereas the generic model used in that Appendix for the JNIRS 1967 samples gives a result of about 0.68 if it is adjusted for the correct angle of incidence using the regression method described above. Unfortunately, it was not possible to determine from available records whether any of the samples measured could have come from the south corner of the west façade, which would have had substantial partial frontal shielding from an adjacent building, or whether there could have been any shielding by the façade itself because of the deep relief of the main wall surface vs. the protruding columns.

For some of the new locations in Nagasaki that were measured after DS86, it was not possible to calculate accurate TF's for some of the samples. These include the portion of the wall tiles that were recessed into the window opening in the case of the tower at Nagasaki University Hospital and were therefore partially shaded by the portion of the same wall that lay in the general direction of the bomb, and some bricks from a gatepost of the Yamada-Furukawa family graveyard in Sakamoto-cho that may have had their exposed surface on a side with a very oblique or even shaded line of sight to the bomb.

Calculation of DS02 Building Gamma Component of Dose to Quartz

When the building gamma component of dose to quartz calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report was adjusted for the square of slant distance and plotted vs. slant distance, it was apparent that it could be well fitted with a simple exponential. Furthermore, the exponential obtained by a regression of the logarithm of building gamma on slant distance had a relaxation length typical of bomb thermal neutron activation. This, along with the physics of building gamma production from incident bomb neutron fluence, suggested that the building gamma component for new samples and locations could be estimated by the regression line for the appropriate city, and that the values already calculated could be adjusted in a straightforward manner for DS02 distances by applying a correction based on the same exponential and the inverse square of distance. The values calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report and the corresponding regression lines used to estimate DS02 values are shown in Figure 2. These values are evaluated at or adjusted to the DS02 slant distance, using the exponential with the indicated relaxation length divided by the square of distance, and are further adjusted by multiplying them times the ratio of the DS02 ^{60}Co activation to the DS86 ^{60}Co activation, to reflect the difference between the DS02 and DS86 neutron fluences.

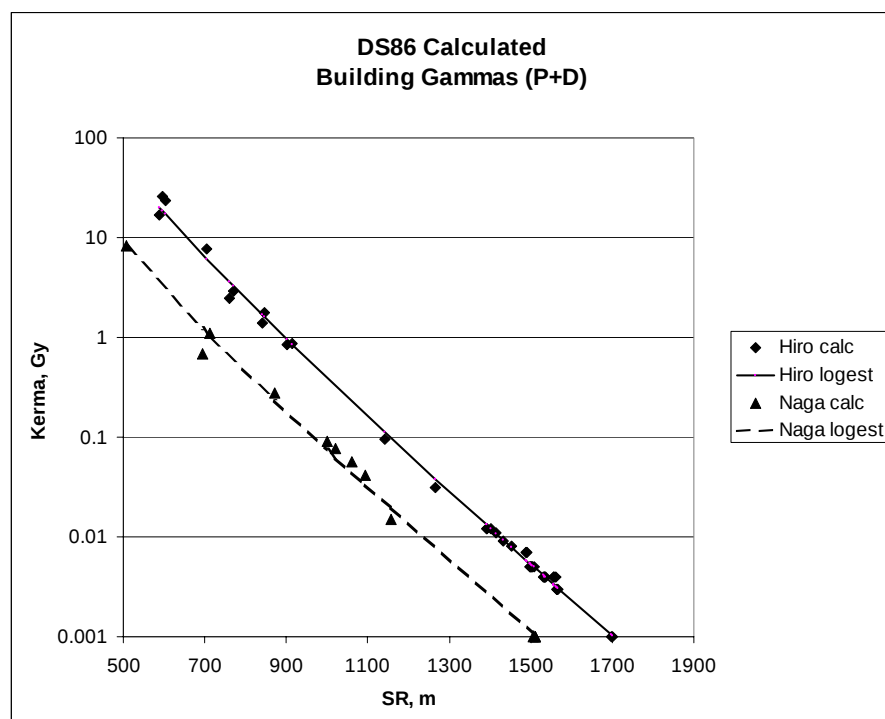


Figure 2. Building gamma component calculated in Appendix 11 to Chapter 4 of the DS86 Final Report, vs. slant distance.

Comparison of Measured and Calculated Values for DS02

The “free-in-air-equivalent” measured values at one meter above flat ground, obtained by dividing the measured value by the TF and correcting for sample height (height above ground and, in Nagasaki, ground elevation at sample location vs. hypocenter) using ground distances and heights as evaluated in DS02, are shown in Tables 6 and 7 and Figures 3 and 4 below. We included a series of measurements published by Ichikawa *et al.* in 1966, for which it was necessary to make considerable adjustments, as well as assumptions for calculating TF’s, which are given in DS02 (Cullings *et al.* In Press). Although the uncertainty of these measurements is considerably larger than most of the others included in the DS02 analysis, they are important measurements, both historically and due to the dearth of later measurements at proximal distances in both cities.

Table 6. Measured Values and Measured/Calculated Ratios: Hiroshima

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	in situ Measured Tissue Dose, Gy		Free-In-Air @ 1 m-Equivalent Tissue Dose, Gy		Measured to Calculated Ratio
				Gy	±	Gy	±	
JNIRS	A-bomb Dome			83.805	16.791	99.509	19.938	0.90
JNIRS	Togiya-cho Shojun-ji			70.594	14.149	130.006	26.057	1.25
JNIRS	Nenryo Kaikan (Fuel Authority Bldg)			62.710	12.572	117.691	23.595	1.12
NUE	Zaimoku cho, Dempuku ji	H-1		56.100	11.220	86.516	17.303	1.70
NUE	Zaimoku cho, Seigan ji	H-2		32.610	6.522	50.216	10.043	0.96
NUE	Zaimoku cho, Seigan ji	H-2'		29.739	5.948	45.795	9.159	0.87
JNIRS	Fukuro-machi East Orthopedic Surgical Hospital			32.223	6.475	44.051	8.852	0.90
NUE	Zaimoku cho,	H-3		34.350	6.870	53.135	10.627	1.10
JNIRS	Naka Telephone Office	3	1-01	27.570	2.47	26.180	2.345	0.80
JNIRS	Naka Telephone Office	2	1-19	30.320	1.56	36.595	1.883	1.19
NUE	Naka Telephone Office	203-3	1-04	27.240	2.47	27.190	2.466	0.89
NUE	Naka Telephone Office	204-2	1-04	25.970	3.15	25.923	3.144	0.85
NUE	Naka Telephone Office	204-3	1-04	25.560	3.75	25.514	3.743	0.83
JNIRS	Tate-machi Sanin Godo Bank			12.907	2.612	16.274	3.294	0.76
JNIRS	Sanin Bank		12-02	17.780	1.56	19.496	1.711	0.93
JNIRS	Chugoku Elec Co		2-01	7.140	1.010	13.568	1.919	0.77
JNIRS	Chugoku Elec Co	2	2-03	9.430	1.56	15.489	2.562	0.98
NUE	Chugoku Electric Co.	3-1-3	2-03	11.190	1.328	19.073	2.263	1.20
NUE	Chugoku Electric Co.	3-1-3	2-03	9.480	0.746	16.158	1.272	1.02
NUE	Chugoku Electric Co.	3-2-2	2-03	9.610	0.638	16.380	1.087	1.03
NUE	Chugoku Electric Co.	3-2-2	2-03	9.900	0.677	16.874	1.154	1.07
NUE	Chugoku Electric Co.	3-2-3	2-03	9.290	0.882	15.834	1.504	1.00
JNIRS	Nobori-machi Elementary School			8.535	1.738	10.613	2.162	0.73
NUE	Hiroshima Castle, ninomaru	H-4		8.250	1.650	8.498	1.700	0.65

<Table 6 continued>

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	in situ Measured Tissue Dose, Gy		Free-In-Air @ 1 m-Equivalent Tissue Dose, Gy		Measured to Calculated Ratio
NUE	Hiroshima Castle, ninomaru	H-4'		8.685	1.737	8.946	1.789	0.69
NUE	Nishishin machi*	H-5		7.596	1.519			
NUE	Nishitera machi, koen ji	H-6		5.160	1.032	5.491	1.098	1.18
NUE	Hiroshima Castle, honmaru	H-8		4.074	0.815	4.348	0.870	1.03
NUE	Hiroshima Castle, honmaru	H-8'		2.247	0.449	2.398	0.480	0.57
NUE	Hiroshima Castle, honmaru	H-8"		2.272	0.432	2.305	0.461	0.55
JNIRS	City Hall			2.160	0.572	3.348	0.712	0.76
NUE	Nishitera machi, Shozen ji	H-7		4.116	0.823	4.398	0.880	1.13
NUE	Japanese House (Nobori-cho)		145	1.52	0.088	1.564	0.091	0.68
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-1	4-08	1.30	0.07	1.408	0.076	1.09
NUE	HUFS "I" Bldg	H1	4-08	1.370	0.10	1.484	0.108	1.15
NUE	HUFS "I"	"HP1"		1.391	0.090	1.509	0.097	1.17
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-2	4-07	1.34	0.13	1.428	0.139	1.15
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-3	4-09	1.31	0.19	1.410	0.205	1.21
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-4	4-01	1.02	0.21	1.092	0.225	1.01
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-5	4-03 horizontal	0.91	0.14	1.010	0.155	1.02
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-5B	4-03 vertical	0.730	0.14	0.902	0.173	0.91
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-5B	4-03 vertical	0.890	0.14	1.100	0.173	1.11
NUE	H.U.P.S. (Hiro. Univ.)	H-5B	4-03 vertical	0.800	0.14	0.989	0.173	1.00
NUE	HUFS "I"	"HP2"		0.905	0.092	1.121	0.115	1.13
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	7	3-07	0.900	0.07	0.970	0.075	1.15
NUE	HUFS "E" Bldg	HP1	3-08	0.620	0.11	0.677	0.120	0.81
NUE	HUFS "E"	"HP3"		0.644	0.092	0.714	0.103	0.86
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	10	3-10	1.010	0.18	1.125	0.201	1.40
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-6-1	3-20	0.77	0.15	0.922	0.180	1.15
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-6-2	3-20	0.75	0.04	0.898	0.048	1.12
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-6-3	3-20	0.84	0.05	1.006	0.060	1.25
NUE	HUFS "E" Bldg	HP2	3-11	0.84	0.07	0.935	0.078	1.17
NUE	HUFS "E" Bldg	HP3	(3-11)	0.87	0.05	0.967	0.056	1.21
NUE	HUFS "E"	"HP4"		0.883	0.092	0.996	0.104	1.24
NUE	HUFS "E"	"HP5"		0.873	0.073	0.942	0.078	1.20
U. OF U.	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSO3	3-23	0.990	0.04	1.069	0.043	1.36
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-7	3-36	0.690	0.10	0.764	0.111	0.97
U. OF U.	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSO2	3-22	1.030	0.08	1.140	0.089	1.47
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-8	3-18	0.64	0.05	0.767	0.060	1.10
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	I	3-29	0.940	0.12	1.037	0.132	1.50
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	IV	3-31	0.70	0.05	0.789	0.056	1.15
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-9	3-17	0.57	0.05	0.703	0.062	1.03
JNIRS	Red Cross Hospital		5-01	0.53	0.09	0.615	0.104	0.98
NUE	Red Cross Hospital	"HP6"		0.560	0.101	0.654	0.118	1.04
JNIRS	Red Cross Hospital			0.669	0.128	0.777	0.149	1.24
JNIRS	Red Cross Hospital			0.751	0.137	0.873	0.160	1.39
JNIRS	Red Cross Hospital			0.687	0.110	0.799	0.128	1.27
JNIRS	Red Cross Hospital			0.724	0.110	0.841	0.128	1.34
JNIRS	Red Cross Hospital			0.678	0.119	0.788	0.138	1.26
NUE	Red Cross Hospital	HP4	5_01	0.550	0.077	0.613	0.086	0.98
JNIRS	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	R1	3-35	0.970	0.16	1.167	0.193	1.87
DUR	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT02	3-35	0.680	0.12	0.815	0.144	1.31
DUR	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT02	3-35	0.690	0.12	0.827	0.144	1.32
OXF H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT03	3-35	0.730	0.13	0.875	0.156	1.40
OXF H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT03	3-35	0.760	0.12	0.911	0.144	1.46
OXF H	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT03	3-35	0.760	0.11	0.911	0.132	1.46
U. OF U.	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT02	3-35	0.710	0.08	0.851	0.096	1.36
U. OF U.	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFSFT03	3-35	0.660	0.11	0.791	0.132	1.27
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-1	3-15	0.70	0.11	0.828	0.130	1.33
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-2	3-15	0.66	0.06	0.780	0.071	1.26
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-3	3-15	0.60	0.09	0.709	0.106	1.14
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-10-4	3-15	0.66	0.06	0.780	0.071	1.26
U. OF U.	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFS04	3-24	0.730	0.05	0.812	0.056	1.34
U. OF U.	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	UHFS07	3-27	0.550	0.08	0.621	0.090	1.03
NUE	H.U.F.S. (Hiro. Univ.)	H-11	3-16	0.44	0.05	0.569	0.065	0.96
JNIRS	Hiroshima University Radioisotope Facility			0.641	0.192	0.855	0.257	1.45
JNIRS	Hiroshima University Radioisotope Facility			0.623	0.266	0.832	0.355	1.44
JNIRS	Hiroshima University Radioisotope Facility			0.513	0.211	0.686	0.282	1.19
JNIRS	Red Cross Hospital			0.669	0.128	0.788	0.151	1.50
JNIRS	Red Cross Hospital			0.559	0.119	0.658	0.140	1.25
JNIRS	Red Cross Hospital			0.641	0.101	0.755	0.119	1.44
JNIRS	Red Cross Hospital			0.678	0.137	0.798	0.162	1.52
JNIRS	Red Cross Hospital			0.605	0.101	0.712	0.119	1.35
NUE	Postal Savings (Chokin Kyoku)	A		0.405	0.019	0.475	0.022	1.32
NUE	Chokin-Kyoku (Postal Savings)		6-04	0.36	0.05	0.581	0.081	1.70
NUE	Postal Savings (Chokin Kyoku)	B		0.352	0.017	0.382	0.019	1.11
JNIRS	Chokin-Kyoku		6-00	0.30	0.06	0.369	0.074	1.07
NUE	Postal Savings (Chokin Kyoku)	D		0.334	0.055	0.394	0.065	1.20
NUE	Postal Savings (Chokin Kyoku)	E		0.283	0.021	0.335	0.024	1.10
NUE	JEMIC	HP7		0.183	0.077	0.197	0.083	1.14
NUE	Myosen -ji "oni-gawara" top	Me-1		0.17	0.036	0.228	0.048	2.20
NUE	Myosen -ji "oni-gawara" bottom	Me-2		0.16	0.035	0.214	0.047	2.07
NUE	Myosen -ji "oni-gawara" top	A-1		0.195	0.070	0.261	0.094	2.52
NUE	Myosen -ji "oni-gawara" bottom	A-2		0.186	0.073	0.249	0.097	2.40

<Table 6 continued>

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	in situ Measured Tissue Dose, Gy		Free-In-Air @ 1 m-Equivalent Tissue Dose, Gy		Measured to Calculated Ratio
NUE	HUFE clay wall tile	C-1		0.067	0.048	0.075	0.054	1.15
NUE	HUFE clay wall tile	C-2		0.085	0.039	0.095	0.044	1.46
NUE	HUFE clay wall tile	C-3		0.076	0.074	0.085	0.082	1.30
NUE	HUFE	HP5	8-01	0.049	0.032	0.054	0.036	0.86
NUE	HUFE	HP8		0.053	0.054	0.059	0.060	0.92
NUE	Hiramoto "oni-gawara" bottom	Hr-1		0.05	0.010	0.067	0.013	1.12
NUE	Hiramoto "Oni-gawara"	B		0.088	0.040	0.118	0.054	1.97
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A1-1		0.113	0.038	0.152	0.051	2.53
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A1-2		0.107	0.023	0.144	0.031	2.39
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A1-3		0.121	0.055	0.163	0.074	2.71
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A2		0.118	0.020	0.159	0.027	2.65
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A3		0.085	0.024	0.115	0.033	1.91
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A4-1		0.097	0.036	0.130	0.048	2.17
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A4-2		0.148	0.058	0.199	0.078	3.32
NUE	Hiramoto Oni-gawara	A5		0.136	0.031	0.183	0.041	3.06

*could not be analyzed due to conflicting map information.

Table 7. Measured Values and Measured/Calculated Ratios: Nagasaki

Lab	Place Name	Sample ID#	RERF List No.	in situ Measured Tissue Dose, Gy		Free-In-Air @ 1 m-Equivalent Tissue Dose, Gy		Measured to Calculated Ratio
				Gy	±	Gy	±	
JNIRS	Yamazoto-cho House			204.154	40.861	195.363	39.102	0.62
NUE	Matsuyama cho	N-1		195.255	39.051	243.174	48.635	0.76
NUE	Oka machi	N-2		160.455	32.091	193.501	38.700	0.82
NUE	Oka machi	N-2'		157.845	31.569	190.354	38.071	0.81
NUE	Yamazoto cho	N-3		135.225	27.045	160.997	32.199	0.89
NUE	Yamazoto cho	N-3'		123.045	24.069	146.496	29.299	0.81
NUE	Yamazoto cho	N-3''		107.385	21.477	127.851	25.570	0.71
NUE	Shiroyama Elementary School	N-4		68.089	13.618	80.182	16.036	0.92
NUE	Shiroyama cho*	N-5		48.225	9.645			
JNIRS	Urakami		N4	40.400	4.40	46.179	5.029	0.60
JNIRS	Urakami			40.579	4.397	46.158	5.001	0.60
JNIRS	Urakami Church			52.918	10.614	76.025	15.249	0.98
NUE	Shiroyama cho	N-6		33.435	6.687	35.371	7.074	0.73
JNIRS	Gokoku jinja (?) house*			35.166	7.064			
NUE	Ueno cho	N-7		31.086	6.217	37.500	7.500	0.82
JNIRS	Nagasaki University Hospital			37.006	3.527	39.475	3.762	0.94
JNIRS	Nagasaki University Hospital			30.594	3.609	31.194	3.680	0.75
JNIRS	Nagasaki University Hospital			22.350	2.336	22.788	2.382	0.55
NUE	Shiroyama cho	N-8		19.515	3.903	24.549	4.910	0.95
NUE	Sakamoto cho	N-9		11.772	2.354	15.051	3.010	0.59
JNIRS	Hachiman jinja nearby house			13.619	2.755	15.247	3.084	0.94
JNIRS	Hachiman jinja			12.210	2.473	13.514	2.737	0.98
JNIRS	Sakamoto cho Gaijin Cemetery			7.719	1.575	8.164	1.666	1.14
NUE	Urakami cho	N-10		7.074	1.415	9.148	1.830	0.91
JNIRS	Sakamoto-cho Gaijin Cemetery			6.774	1.386	7.160	1.466	1.14
JNIRS	Sakamoto Cemetery			5.743	0.769	5.938	0.796	0.83
JNIRS	Sakamoto Cemetery			4.534	0.815	4.688	0.843	0.66
JNIRS	Sakamoto Cemetery			5.478	0.394	5.664	0.407	0.79
JNIRS	Sakamoto Cemetery			5.981	0.540	6.185	0.559	0.87
JNIRS	Sakamoto		N-6	6.920	0.88	6.817	0.867	1.09
JNIRS	Sakamoto			7.099	0.879	6.938	0.859	1.10
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.890	0.116	0.966	0.126	0.70
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	1.050	0.074	1.457	0.103	1.06
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.780	0.106	1.220	0.165	0.89
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.700	0.056	0.760	0.060	0.55
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.610	0.105	0.847	0.146	0.62
Dur	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.740	0.055	1.157	0.086	0.84
JNIRS	Ieno	A	N-2-2	1.06	0.19	1.177	0.211	0.86
JNIRS	Ieno	B	N-2-2	1.04	0.20	1.160	0.223	0.85
NUE	Ieno wall	A	N-2-1	0.970	0.028	1.089	0.032	0.79
NUE	Ieno wall	B	N-2-1	0.860	0.028	1.133	0.037	0.83
NUE	Ieno wall	C	N-2-1	0.910	0.032	1.436	0.050	1.05
OXF H	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.850	0.111	0.923	0.120	0.67
OXF H	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.700	0.102	0.972	0.142	0.71
OXF H	Ieno wall	NAIEO5	N-2-1	0.620	0.091	0.970	0.143	0.71
U. OF U.	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	0.930	0.057	1.048	0.064	0.76
U. OF U.	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	0.730	0.041	0.990	0.056	0.72
U. OF U.	Ieno wall	NAIEO6	N-2-1	0.580	0.036	0.869	0.054	0.63
JNIRS	Nagasaki University Charnel			1.127	0.192	1.198	0.204	0.99
JNIRS	Nagasaki University Charnel			1.172	0.165	1.246	0.175	1.03
JNIRS	Nagasaki University Charnel			1.072	0.137	1.139	0.146	0.95
JNIRS	Zenza		N-7	0.910	0.22	0.932	0.225	0.70
JNIRS	Zenza			0.907	0.220	0.929	0.225	0.70
JNIRS	Inasa	A	N-3	0.12	0.09	0.128	0.096	1.13
JNIRS	Inasa A			0.119	0.082	0.127	0.088	1.12
JNIRS	Yamada Oil Storehouse			0.110	0.055	0.117	0.058	1.01
JNIRS	Yamada Oil Storehouse			0.174	0.055	0.185	0.058	1.60
JNIRS	Yamada Oil Storehouse			0.156	0.055	0.166	0.058	1.43
JNIRS	Yamada Oil Storehouse			0.156	0.055	0.166	0.058	1.43
JNIRS	Yamada Oil Storehouse			0.082	0.037	0.088	0.039	0.76
JNIRS	Yamada Oil Storehouse			0.119	0.046	0.127	0.049	1.09
JNIRS	Yamada Oil Storehouse			0.174	0.073	0.185	0.078	1.60
JNIRS	Chikugo		N-8	-0.01	0.15	-0.011	0.160	-0.26

*could not be analyzed due to conflicting map information.

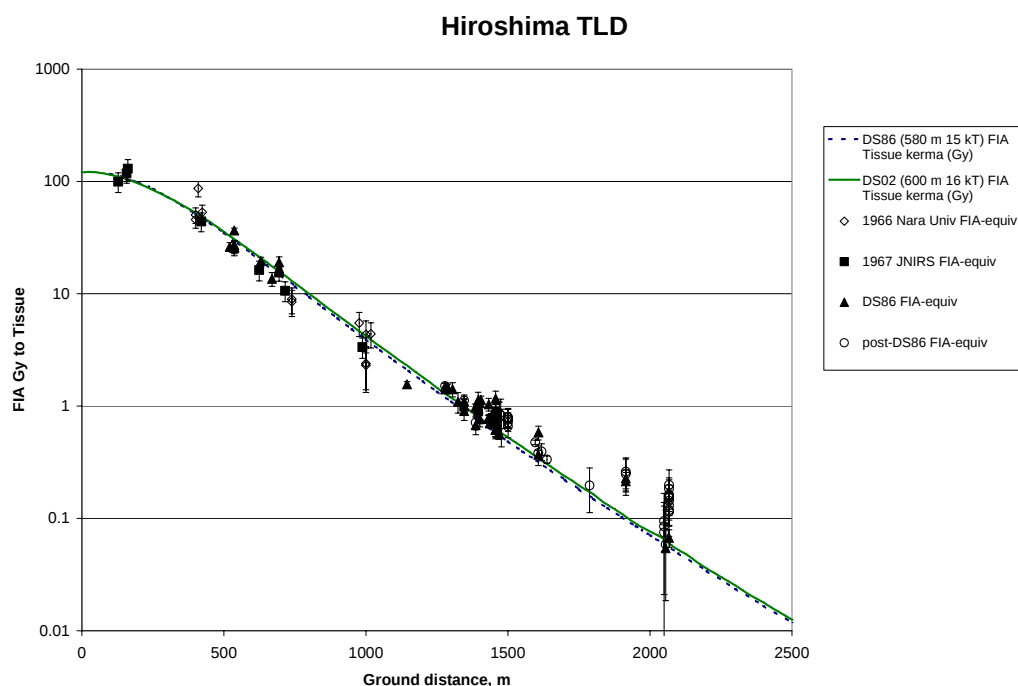


Figure 3. Hiroshima measured free-in-air-equivalent values compared with DS86 and DS02 calculated values, vs. slant distance.

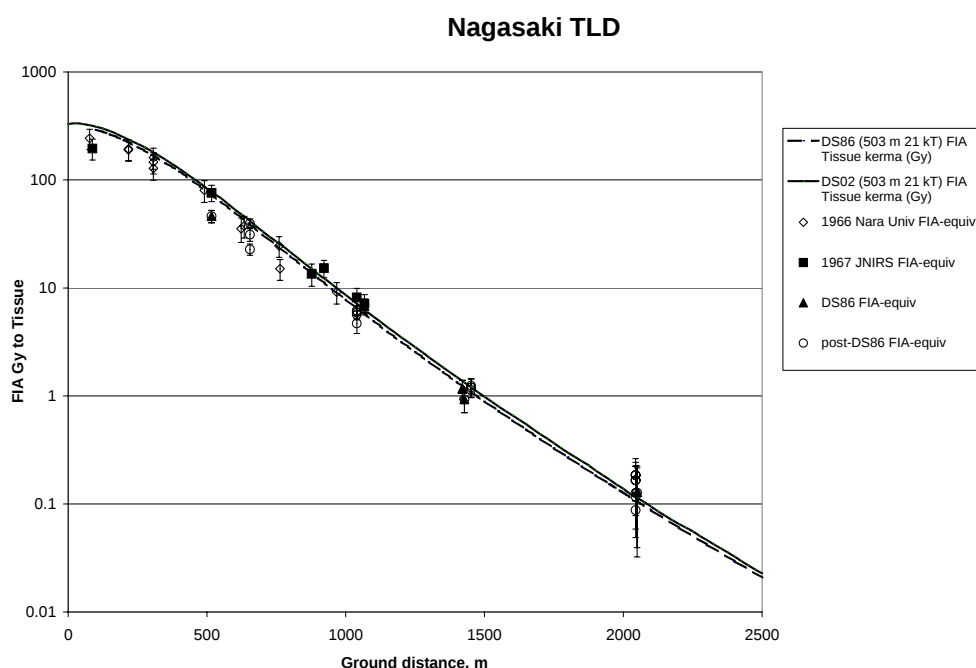


Figure 4. Nagasaki measured free-in-air-equivalent values compared with DS86 and DS02 calculated values, vs. slant distance.

It can be seen in Fig. 3 that the agreement in Hiroshima is very good; overall it is slightly better for DS02 than DS86. There remain some measurements at distances over about 1400 m slant distance and kerma values less than about 1 Gy that exceed the calculated values for both DS86 and DS02, although only the samples at Myosen Temple, at about 1900 m ground distance, stand out clearly in this regard when measurement uncertainty, as indicated by the error bars, is considered. Because accumulated background becomes a substantial fraction of bomb kerma when the latter drops below about 1 Gy, with

even the youngest samples dating from pre-war construction having estimated total background doses of at least 0.15 to 0.2 Gy, the accuracy and reliability of background estimates are important concerns.

Agreement in Nagasaki is not quite as good overall as Hiroshima, and is slightly worse for DS02 than for DS86. There is a tendency for measured values to lie below calculated, particularly at distances less than about 800 m ground distance, although it is certainly not clear that this constitutes any kind of a trend with distance, given the errors involved and the small number of sites with DS86 and post-DS86 measurements, particularly at ground distances less than 800 m. In addition, the comparison is made more difficult by a number of other serious concerns:

- As mentioned above in regard to calculating TF's, there is a concern about the ability to calculate accurate and reliable TF's for three important sites of post-DS86 measurements, at 517 m ground distance (Urakami church), 655 m ground distance (Nagasaki University Hospital tower) ,and 1040 m ground distance (Yamada-Furukawa family graveyard gatepost in Sakamoto-cho). All three sites have wide ranges of measured values.
- In the case of Urakami church, the DS86 and 1988 measured values are substantially less than the 1967 value, even though the 1967 sample was deeper and therefore has a much lower calculated TF (0.68 vs. 0.86) if the calculated dose to quartz *in situ* for the 1967 sample in Appendix 11 to Chapter 4 of DS86 is adjusted for angle of incidence. Therefore, because the larger TF applies to the smaller measurement and vice versa, applying the TF's as such gives free-in-air equivalent values for the DS86 and 1988 measurements that are only 61% of those for the 1967 measurement: 46.2 Gy vs. 76.0 Gy, a very large difference in measured values on the same material from the same location.
- The possibility of minor frontal shielding (blocking of some minor portion of incident fluence) at several sites in Nagasaki, by terrain, other buildings, or groves of trees has been discussed, particularly because the sample locations in Nagasaki are so much closer to the ground than in Hiroshima, the terrain is so much more hilly, and the height of the bomb is about 100 m less.

In addition to these concerns about the comparability of existing measurements to calculated values, there has been discussion of the adequacy of the calculated location of fission debris in the fireball that is used to calculate delayed gamma ray kerma, which accounts for a large portion of total gamma ray kerma in Nagasaki.

Conclusions

Measurements and calculated values compare quite well in Hiroshima, with agreement for DS02 being somewhat better than for DS86. There remains some concern about the adequacy of background corrections for measurements substantially below 1 Gy and the indications of some measurements that appear to exceed calculated values at distances beyond about 1400 m.

Agreement in Nagasaki is not as good, and is slightly worse for DS02 than for DS86, but there are substantial concerns about the comparability of measured and calculated values with the presently available information about sample-structure geometry, particularly in light of rather large ranges of measured values on the same samples at several important sites. There may also be some concern about the adequacy of the model used for the delayed radiation calculation in Nagasaki.

References

- Cullings, H. M.; Egbert, S. D.; Maruyama, T.; Hoshi, M.; Fujita, S. "Thermoluminescence Measurements for Gamma Rays: Part B. Comparison of TLD Measurements with DS86 and DS02." In: *Reassessment of the Atomic Bomb Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki: DS02* (Young, R. W. and Kerr, G. D.; Ed's.). Hiroshima, Japan: Radiation Effects Research Foundation; In Press.
- Hashizume, T.; Maruyama, T.; Shiragai, A.; Tanaka, E.; Izawa, M.; Kawamura, S.; Nagaoka, S. "Estimation of the Air Dose from the Atomic Bombs in Hiroshima and Nagasaki." *Health Phys.* 13: 149-161; 1967.
- Hoshi, M.; Sawada, S.; Ichikawa, Y.; Nagatomo, T.; Uehara, S.; Kondo, S. "Thermoluminescence Dosimetry of γ -Rays from the Hiroshima Atomic Bomb at Distances 1.91-2.05 km from the Hypocenter." *Health Phys.* 57: 1003-1008; 1989.
- Ichikawa, Y.; Higashimura, T.; Sidei, T. "Thermoluminescence Dosimetry of Gamma Rays from Atomic Bombs in Hiroshima and Nagasaki." *Health Phys.* 12: 395-405; 1966.
- Kaul, D. C.; Egbert, S. D.; Kuhn, T.; Roberts, J. "Calculation of Dose in Quartz for Comparison with Thermoluminescence Dosimetry Measurements." In: *US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, Final Report*, Vol. 2, pp. 204-241 (Roesch, W. C.; Ed.). Hiroshima, Japan: Radiation Effects Research Foundation; 1987.
- Kerr, G. D.; Pace, J. V., III; Mendelshon, E.; Loewe, W. E.; Kaul, D. C.; Dolatshahi, F.; Egbert, S. D.; Grintzer, M.; Scott, W. H., Jr.; Marcum, J.; Kosako, T.; Kanda, K. "Transport of Initial Radiation in Air Over Ground." In: *US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, Final Report*, Vol. 1, pp. 66-142. (Roesch, W. C.; ed.). Hiroshima, Japan: Radiation Effects Research Foundation; 1987.
- Maruyama, T.; Kumamoto, Y.; Ichikawa, Y.; Noda, Y.; Yamada, H.; Okamoto, Y.; Fujita, S.; Hashizume, T. "Preliminary Measurements of Thermoluminescent Yield with Samples Irradiated Indoors." In: *US-Japan Joint Workshop for Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, (November, 1983)*, pp. 45-47. Hiroshima, Japan: Radiation Effects Research Foundation; 1984.
- Maruyama, T.; Kumamoto, Y.; Ichikawa, Y.; Nagatomo, T.; Hoshi, M.; Haskell, E.; Kaipa, P. "Thermoluminescence Measurements of Gamma Rays." In: *US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, Final Report*, Vol. 1, pp. 143-184 (Roesch, W. C.; Ed.). Hiroshima, Japan: Radiation Effects Research Foundation; 1987.
- Maruyama, T.; Kumamoto, Y.; Noda, Y. "Reassessment of Gamma Doses from the Atomic Bombs in Hiroshima and Nagasaki." *Rad. Res.* 113: 1-14; 1988.
- Maruyama, T.; Cullings, H. M.; Hoshi, M.; Nagatomo, T.; Kumamoto, Y.; Kerr, G. D. "Thermoluminescence Measurements for Gamma Rays: Part A: Thermoluminescence (TLD) Measurements." In: *Reassessment of the Atomic Bomb Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki: DS02* (Young, R. W. and Kerr, G. D.; Ed's.). Hiroshima, Japan: Radiation Effects Research Foundation; In Press.
- Nagatomo, T.; Hoshi, M.; Ichikawa, Y. "Comparison of the Measured Gamma Ray Dose and the DS86 Estimate at 2.05 km Ground Distance in Hiroshima." *J. Radiat. Res.* 33: 211-7; 1992.
- Nagatomo, T.; Hoshi, M.; Ichikawa, Y. "Thermoluminescence Dosimetry of the Hiroshima Atomic-Bomb Gamma Rays Between 1.59 km and 1.63 km from the Hypocenter." *Health Phys.* 69: 556-9; 1995.

Nagatomo, T.; Ichikawa, Y.; Hoshi, M. "Thermoluminescence Measurement of Gamma Rays by the Predose Method." In: *US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, Final Report*, Vol. 2, pp.145-148 (Roesch, W. C.; ed.). Hiroshima, Japan: Radiation Effects Research Foundation; 1987.

Nagatomo, T.; Ichikawa, Y.; Hoshi, M. "Thermoluminescence Dosimetry of Gamma Rays Using Ceramic Samples from Hiroshima and Nagasaki: A Comparison with DS86 Estimates." *J. Radiat. Res.* **32** (Suppl): 48-57; 1991.

Nagatomo, T.; Ichikawa, Y.; Ishii, H.; Hoshi, M. "Thermoluminescence Dosimetry of Gamma Rays from the Atomic Bomb at Hiroshima Using the Predose Technique." *Radiat. Res.* **113**: 227-34; 1988.

National Research Council. *Status of the Dosimetry for the Radiation Effects Research Foundation (DS86)*. Washington, D. C.: National Academy Press; 2001.

Uehara, S.; Hoshi, M.; Sawada, S.; Nagatomo, T.; Ichikawa, Y. "Monte Carlo Calculations of Doses to Tiles Irradiated by ^{60}Co and ^{252}Cf Simulating Atomic Bomb γ -Ray Fluences." *Health Phys.* **54**(3): 249-256; 1988.

Re-evaluation of the Hiroshima Hypocenter Based on Data in ABCC Technical Reports 12-59 and 3-69: Some Initial Ideas and Results

Harry Cullings*, Shoichiro Fujita

Radiation Effects Research Foundation

Masaharu Hoshi

Hiroshima University

Abstract

Modern software and associated computing speed allow a better evaluation of data on the hypocenter than was feasible even ten years ago. Hubbell, Jones, and Cheka wrote a report in 1969, ABCC Technical Report 3-69, which is the source of the Hiroshima hypocenter estimate used in the DS86 and DS02 dosimetry systems. They made an exhaustive study of all available data at that time and they documented all of the available data explicitly in their report, except for data that were documented previously in an earlier report, ABCC TR 12-59. For the present work all of these data were entered into spreadsheets. In addition to direct entry of tabular numerical data, data implicit in maps and drawings were obtained in numerical form by using the Geographical Information System (GIS) to locate them in the map coordinate systems used in DS02. The GIS was also used to check 1) the coordinates of measured locations whose identity is established by site names or other such information, 2) various hypocenter estimates of the original studies as drawn on maps and figures by the original investigators, and 3) various hypocenter estimates of the original studies as given by the original investigators in reference to landmarks of known location. Measurement locations could be checked against aerial photographs and modern maps using the GIS, with correction if appropriate, and estimates of hypocenter location specified above in (2) and (3) could be evaluated in the GIS and compared to numerical coordinate values given by the original investigators or cited from other sources in ABCC TR 3-69. The raw data from four major studies on which the Hiroshima hypocenter estimate of TR 3-69 was primarily based (Kimura and Tajima, Arakawa and Nagaoka, Kanai, Woodbury and Mizuki), were extensively analyzed. The least-squares fitting method given by Arakawa and Nagaoka in TR 12-59 was augmented to allow for specification of the penumbra effect from a fireball of any specified size, and combinatorial methods were used to check the effects of various related assumptions on the results of the two major studies (Arakawa and Nagaoka, Kanai) in which the authors did not explicitly treat the penumbra issue nor document the sides of the shadow-casting objects on which they took measurements. A new uncertainty analysis was performed, including the definition of a new statistic similar to the one used in TR 3-69, to provide a way to relate the information in the data themselves (how close the measured rays come to intersecting at a single, common point) to the uncertainty in the input variables (X and Y coordinates of measured locations, angles measured) and the resulting uncertainty in the corresponding hypocenter estimate. This relationship was elucidated and estimated by numerical simulations of random errors, including the simulation of many plausible sets of measurement locations for studies for which the measurement locations are not available. A new weighting scheme similar to that suggested by Land in TR 3-69 was devised and used to obtain a new hypocenter estimate. In contrast to the work of DS02, which used a map alignment to define the location in new city map coordinates of the hypocenter determined in U.S. Army map coordinates by Hubbell, Jones, and Cheka, this more

* Harry CULLINGS, Radiation Effects Research Foundation; hcull@rerf.or.jp

fundamental work completely re-analyzes the data used by Hubbell, Jones, and Cheka. Initial indications are that the new estimate may be about 17 m south of their estimate.

Introduction

For almost 20 years, dosimetry working groups (RERF 1987) have used an estimate of the atomic bomb hypocenter location in Hiroshima that was produced in 1969 by a thorough review of earlier studies. This review was conducted by scientists of the U.S. Oak Ridge National Laboratory and published in an ABCC (Atomic Bomb Casualty Commission) Technical Report, No. 3-69 (Hubbell et al. 1969). A major strength of ABCC TR 3-69 is that it did an excellent job of preserving all of the detailed information that was available in 1969 from earlier studies. ABCC TR 3-69 and an earlier ABCC report produced in 1959, No. 12-59 (Arakawa and Nagaoka 1959, Woodbury and Mizuki 1959), taken together, contain all of the raw data, consisting of measurement locations and measured angles to the hypocenter at those locations, for four major studies that were the main basis of the estimate produced in ABCC TR 3-69. Although the joint binational working group that prepared the DS02 dosimetry system conducted a major reanalysis of map issues using modern Geographical Information System (GIS) software, time and resource constraints compelled them to use the hypocenter estimate of 1969, as originally defined on the 1945 U.S. Army map of Hiroshima, for which they determined a new estimate of the corresponding location on new city maps produced by the City of Hiroshima in 1979. This transfer of the ABCC TR 3-69 hypocenter to more modern maps was based strictly on the alignment of the two sets of maps. That is, DS02 did not attempt to re-analyze the original raw data (Young and Kerr 2004).

The possibility of re-analyzing the raw data of ABCC TR's 12-59 and 3-69 is interesting in the first place because of the great progress in computerized computation and related information systems since the 1960's. Contemporary Geographical Information Systems (GIS's) allow maps and aerial photographs to be combined in ways that enable more accurate estimation of the map coordinates of sites where angles to the hypocenter were measured (Young and Kerr 2004). Modern computer software in the form of spreadsheets and programming languages allows greatly facilitated computation, and the speed of modern computers allows much larger calculations for purposes such as numerical simulation of statistical problems. Furthermore, statistical methods such as linear regression have been extensively developed and elaborated in the last several decades (Draper and Smith 1981).

In addition to the advantages of modern methods and computers, a careful reading of ABCC TR's 12-59 and 3-69 reveals that a number of problems related to analyzing and interpreting the original raw data were never resolved. This paper will focus on solutions to three of the most prominent of those problems:

1. Devising a method to analyze the data of measurers who failed to record the sides of shadow-casting objects on which they made measurements of the angles of the edges of shadows from the bomb's thermal radiation (the penumbra problem),
2. Devising a statistic that uses the information implicit in the measurements of such angles for a given study, and a method of estimating the distribution of that statistic, so that it can be used in turn to estimate the uncertainty of the resulting hypocenter estimate of that study (the measurement uncertainty problem), and
3. Using the uncertainty estimates so derived to construct an appropriate method of statistical weighting to be used in combining the results of the original studies considered in ABCC TR 3-69 (the statistical weighting problem).

We take the solution proposed here for the penumbra problem and apply it to the data of Kanai, which was an unresolved enigma for the authors of ABCC TR 3-69. We take the solution proposed for the

measurement uncertainty problem and illustrate it using the data of Arakawa and Nagaoka (Arakawa and Nagaoka 1959), which consist of 1178 total measurements at 37 different sites and represent by far the largest recorded data set of the four major studies used in ABCC TR 3-69. In both of these cases we also give the results of using the GIS to re-evaluate the coordinates of the sites where the measurements were made. Finally, we use the solution to the third problem to combine the resulting estimates of the hypocenter location from the data of Kanai and those of Arakawa and Nagaoka with similarly derived estimates for the other studies considered in ABCC TR 3-69, to produce a new initial estimate of the hypocenter location.

Methods

The Penumbra Problem

Data collected by measuring shadows created by the thermal radiation from the bomb comprise almost all of the information on which the authors of ABCC TR 3-69, and most reports cited by them, based their estimates of the location of the Hiroshima hypocenter. The source of thermal radiation, which is identifiable with the “fireball,” was substantial in size, a fact remarked upon repeatedly by Hubbell, Jones and Cheka in ABCC TR 3-69. As a result, shadows preserved by the alteration of surfaces by the thermal radiation from the fireball had a penumbra, as shown in Figure 1. Because investigators naturally tried to measure the outer edge of the penumbra, where it blends into the area of no shadow, they measured the angle to one side of the fireball that constitutes the source of radiation producing the shadow, and not the center of the source. A measurement on one side of the shadow-casting object corresponds to one side of the fireball, and a measurement on the other side of the object corresponds to the other side of the fireball.

The investigators performing two of the major studies considered in ABCC TR 3-69 (Kimura and Tajima, Woodbury and Mizuki) measured shadows on both sides of an object and took a ray halfway

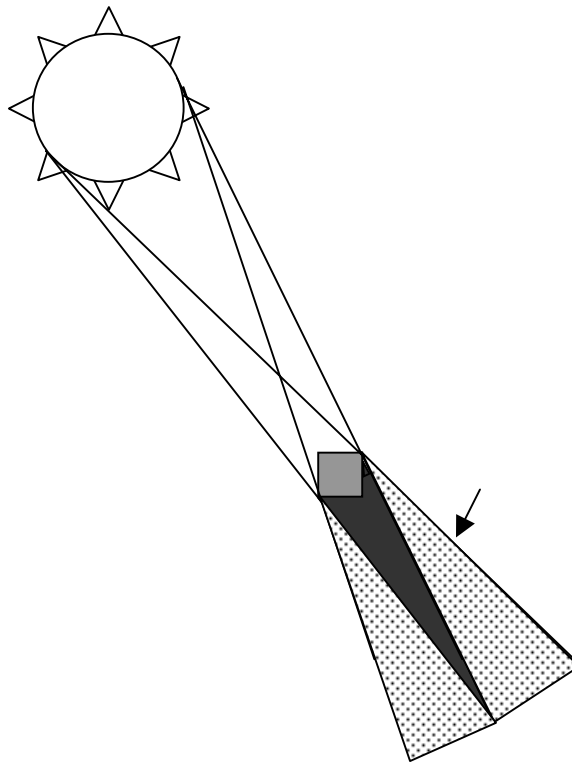


Figure 1. Shadows from a source of non-negligible extent create an area of partial shadow, the penumbra, adjacent to the full shadow, or umbra

between the rays so measured as being a ray to the center of the fireball. However, in the other two major studies (Kanai, Arakawa and Nagaoka), there is no information in ABCC TR 12-59 or ABCC TR 3-69 about which sides of the shadow-casting objects were measured, nor is there information to establish whether or not a procedure to obtain a central ray was followed. Treatment of the penumbra in two of the four major original studies was therefore a problematic issue in the writing of ABCC TR 3-69 and has remained an unresolved question to the present day.

To attack this problem we began by choosing the method of solving for a hypocenter estimate that was originally proposed by Arakawa and Nagaoka in Part I of ABCC TR 12-59, and appears to give good results. (That is, the solutions obtained by this method, unlike the solutions obtained by the methods suggested by Woodbury and Mizuki in Part II of ABCC TR 12-59, appear by visual inspection of plots to be central to the measured rays. This issue will be documented further in future work.) We follow the authors' original nomenclature, which is illustrated in Figure 2, taken from their work (Arakawa and Nagaoka 1959). That is, (x,y) are the coordinates of the hypocenter, (x_i,y_i) are the coordinates of the location where the i^{th} measurement was made, the measured azimuthal angle α_i is specified counter-clockwise from grid east, and d_i is the perpendicular (and shortest) distance from the ray to the hypocenter. Based on the simple but elegant geometry that Arakawa and Nagaoka illustrated in Fig. 2, they observed that

$$d_i = AB - AC = (y - y_i) \cos \alpha_i - (x - x_i) \sin \alpha_i \quad (1)$$

(i.e., ABx_iy_i and ACx_iy_i are similar right triangles, so that the length of segment AC is given by $\sin \alpha_i = AC/Ax_iy_i = AC/(x - x_i)$, where we have used " Ax_iy_i " to denote the length of the segment from the point labeled A to (x_i,y_i) , etc.). They suggested finding a hypocenter estimate (x,y) that minimizes the weighted sum of squares of the d_i , which they denoted as Λ , by setting the first derivatives equal to zero, i.e.,

$$\Lambda = \sum_{i=1}^m n_i d_i^2, \quad -\frac{1}{2} \frac{\partial \Lambda}{\partial x} = \sum_{i=1}^m n_i d_i \sin \alpha_i = 0, \quad \frac{1}{2} \frac{\partial \Lambda}{\partial y} = \sum_{i=1}^m n_i d_i \cos \alpha_i = 0 \quad (2).$$

FIGURE 5 PROCEDURE USED FOR CALCULATING LOCATION OF THE HYPOCENTER
図5 爆心地点の計算に用いられた方法

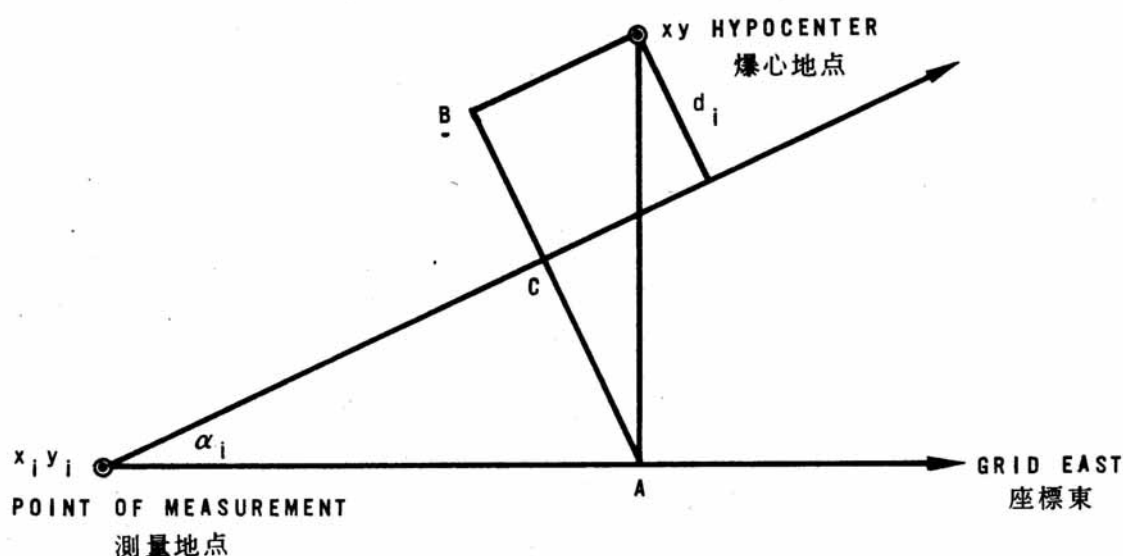


Figure 2. Notation for measurements parameterized as X-Y coordinates of the measurement location and azimuthal angle (reproduced from Arakawa and Nagaoka (Arakawa and Nagaoka 1959))

Here m is the number of measured locations, n_i is the number of measurements at the i^{th} location, and the weighting reflects the presumed dependence of the variance of, e.g., the mean of n measurements, on n . With some additional algebra (shown below for the case in which we assume a fireball of some fixed radius), this results in a solution

$$x = \frac{C(P - R) - B(Q - S)}{AC - B^2}, y = \frac{B(P - R) - A(Q - S)}{AC - B^2} \quad (3),$$

where

$$A = \sum_{i=1}^m n_i \sin^2 \alpha_i, B = \sum_{i=1}^m n_i \sin \alpha_i \cos \alpha_i, C = \sum_{i=1}^m n_i \cos^2 \alpha_i, P = \sum_{i=1}^m n_i x_i \sin^2 \alpha_i, \\ Q = \sum_{i=1}^m n_i x_i \sin \alpha_i \cos \alpha_i, R = \sum_{i=1}^m n_i y_i \sin \alpha_i \cos \alpha_i, \text{ and } S = \sum_{i=1}^m n_i y_i \cos^2 \alpha_i \quad (4).$$

It is easy to rewrite and solve the equations of Arakawa and Nagaoka for optimization to a circle of some fixed radius r about the hypocenter. In that case we do not want the d_i to be as small as possible, but rather as close as possible to some specified effective fireball radius r . Using the same notation, we write

$$\Lambda = \sum n_i (d_i - r)^2 = \sum n_i [(y - y_i) \cos \alpha_i - (x - x_i) \sin \alpha_i \pm r]^2 \quad (15)$$

wherein the sign of the term for r depends on which side of the shadow-casting object was measured, as discussed further below. (Consistent with the notation of Arakawa and Nagaoka, we have omitted the limits on the summations for simplicity; they are all “ $i = 1$ to m .”)

Then taking the first partial derivatives with respect to x and y gives

$$\frac{\partial \Lambda}{\partial x} = -2 \sum n_i [(y - y_i) \cos \alpha_i - (x - x_i) \sin \alpha_i \pm r] \sin \alpha_i \\ \frac{\partial \Lambda}{\partial y} = -2 \sum n_i [(y - y_i) \cos \alpha_i - (x - x_i) \sin \alpha_i \pm r] \cos \alpha_i \quad (16),$$

and setting them equal to zero gives

$$\sum n_i (\hat{y} - y_i) \sin \alpha_i \cos \alpha_i = \sum n_i (\hat{x} - x_i) \sin^2 \alpha_i + \sum \pm n_i r \sin \alpha_i \\ \sum n_i (\hat{y} - y_i) \sin \alpha_i \cos \alpha_i = \sum n_i (\hat{x} - x_i) \sin^2 \alpha_i + \sum \pm n_i r \cos \alpha_i \quad (17)$$

which expand to

$$\hat{x} \sum n_i \sin^2 \alpha_i - \hat{y} \sum n_i \sin \alpha_i \cos \alpha_i = \sum n_i x_i \sin^2 \alpha_i - \sum n_i y_i \sin \alpha_i \cos \alpha_i - \sum \pm n_i r \sin \alpha_i \\ \hat{x} \sum n_i \sin^2 \alpha_i - \hat{y} \sum n_i \sin \alpha_i \cos \alpha_i = \sum n_i x_i \sin^2 \alpha_i - \sum n_i y_i \sin \alpha_i \cos \alpha_i - \sum \pm n_i r \cos \alpha_i \quad (18).$$

Abbreviating the summations for the remaining algebra, we can write

$$A\hat{x} - B\hat{y} = P - R - T \\ B\hat{x} - C\hat{y} = Q - S - U \quad (19),$$

from which

$$\hat{x} = \frac{P - R - T + By}{A} = \frac{C(P - R - T) + B^2\hat{x} - B(Q - S - U)}{AC} \Rightarrow \\ \hat{x} = \frac{1}{1 - \frac{B^2}{AC}} \left(\frac{C(P - R - T) - B(Q - S - U)}{AC} \right) = \frac{AC}{AC - B^2} \left(\frac{C(P - R - T) - B(Q - S - U)}{AC} \right) \\ = \frac{C(P - R - T) - B(Q - S - U)}{AC - B^2} \quad (20).$$

Similarly,

$$\hat{y} = \frac{B(P - R - T) - A(Q - S - U)}{AC - B^2} \quad (21),$$

wherein we have kept A through S exactly as defined by Arakawa and Nagaoka, and we have added the expressions T and U, in which we must remember that the signs of the individual terms depend on which side of the shadow-casting object was measured. The correct sign is obtained by the rule that, if the angle is measured counterclockwise from due E, reverse (to negative) the signs for terms corresponding to a ray that is drawn to the left side of the fireball, i.e., the ray with the larger angle of the two to either side of the fireball. Looking *away* from the hypocenter *toward* the point of measurement, this is the shadow on the *left* side of the structure casting the shadow: the side indicated by the arrow in Fig. 1.

When only one of two rays has been measured, and one knows not which, the problem is to decide which sign to associate with each term in T and U. In the case of only two rays, the correct decision is obvious, because only one solution lies in the correct direction with respect to the directions of the rays. For larger numbers of rays, the correct solution is not necessarily obvious. For a single measurement at each of m locations, there are 2^m possible solutions, defined by changing or not changing the sign of each term in T, where each term in U has the same sign as the corresponding term in T. For numbers of locations around 18 to 20 or so, it is quite feasible to exhaustively check each of these possible combinations to see which one has the smallest residual sum of squared distances between the rays and the circle representing the effective fireball radius. This provides a truly optimal solution in cases lacking the side-measured information, and this method can be used to learn something about the individual data sets, as shown in the following analysis for the data of Kanai.

The method that was devised for exhaustive checking was to

- use the digits of a binary number between 0 and $2^{m+1}-1$, including all of the leading zeros to the full width of m characters,
- increment the number from 0 to $2^{m+1}-1$ in steps of 1, and
- for each such number, equate the sign of each term with the 1 or 0 of the corresponding digit.

The terms A, B, C, P, Q, R, and S do not have to be recalculated for these combinations, only the terms T and U need be recalculated. In this code, as in the code for numerical simulation of random errors described below, the results of the code for representative sets of input values were extensively cross-checked against spreadsheet calculations of the same solutions to assure correct results.

The situation is illustrated here with a simple example. Figure 3 shows measured rays for both sides of the shadow-casting objects at three hypothetical locations, using the grid coordinates of the newer city map of Hiroshima for illustration. In Figure 4, we assume as an example that all measurements were actually made to the left side of the fireball. As noted above, the correct solution for this case is obtained by using a negative sign for all of the terms T and U described above, which we designate “L L L” in the figure legend and in Table 1.

In Figure 4 we show all of the solutions that would be calculated for the hypocenter location for various combinations of the sides that we might assume were measured at each location. Although it is clear that the correct combination, “L L L,” is tangent to all three rays, it also appears that the combination “R R L,” i.e., the solution based on the assumption that the first two locations were measured to the right side of the fireball and the third to the left, is tangent to all three rays. In fact, “R R L” is actually not quite a perfect fit, but the difference is too small to be visually apparent on this plot. This ambiguity arises because the first and second points are not well separated in terms of their angular distribution about the hypocenter. This problem should not arise in the applications of interest, which have larger numbers of observed rays with a much more homogeneous angular distribution. However, it is clear from even this

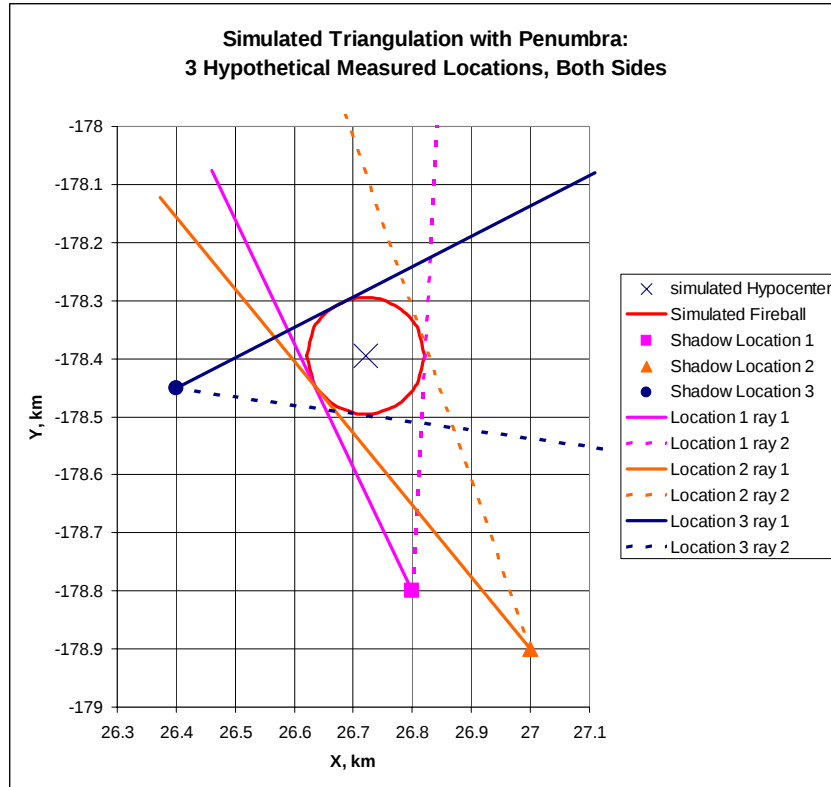


Figure 3. A set of hypothetical locations and the rays that would be measured (without error) to the sides of a 100-m effective fireball radius.

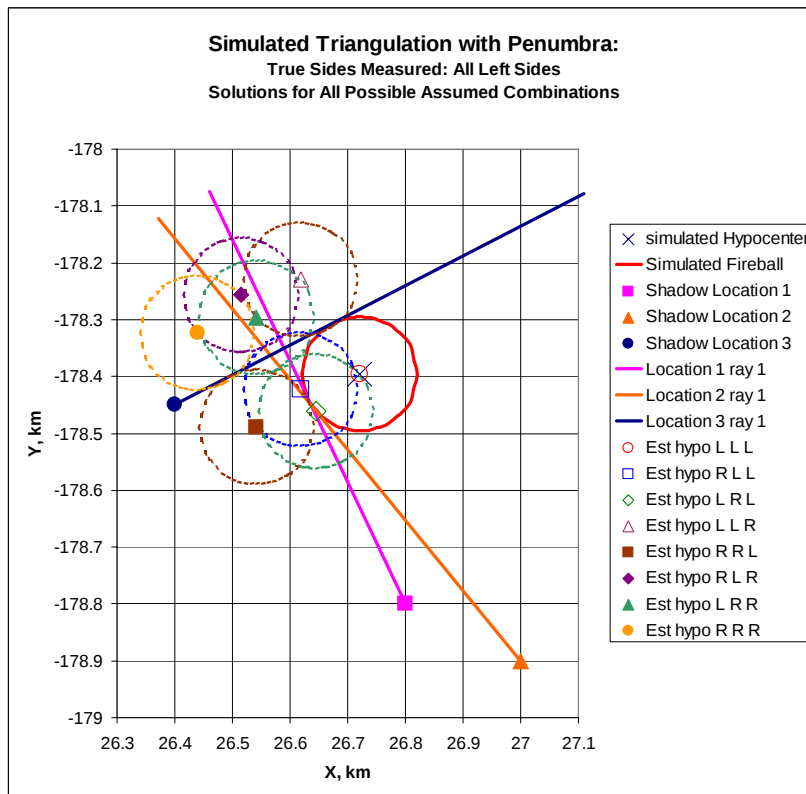


Figure 4. Three measured rays and the hypocenter estimates that would be obtained for all possible combinations of sides assumed to have been measured.

small example that picking a correct combination by visual inspection is impossible, even if errors in the measured angles and coordinates of the measurement sites are negligible and we know the exact size of the effective fireball radius.

In Table 1, we check the sum of squared perpendicular distances in m from the three rays to the fireball for all of the possible combinations of sides assumed to have been measured, for fireball radii in 10-m increments from 10 m to 120 m. That is, for each set of assumptions about the combination of sides measured and the fireball radius, we calculate the minimum sum of squared perpendicular distances, which corresponds to the hypocenter location that we would calculate under those assumptions. In addition to the perfect fit for the the correct combination “L L L,” it is notable that the misleading combination “R R L,” “ fits almost perfectly if the fireball radius is assumed to be 120 m rather than 100 m. It is also apparent from the table that a very small fireball of radius 10 m fits very well for the combination “R L L,” although not perfectly. (This possible solution is not shown on the plot in Fig. 4, but it fits into the triangle formed by the intersection of the three measured rays.) Again, such ambiguity should not be encountered in practice if the number of measurements is > 2 and the measurement locations have a reasonably homogeneous distribution of azimuthal angle about the hypocenter.

Now we apply this method to the data of Kanai, shown in Table 2, which include measurements at 14 locations. The locations are well established. They are named in Table 3 of ABCC TR 3-69, along with the authors’ estimates of their U.S. Army map coordinates, and they are shown on a reproduction of

Table 1. The minimum sum of squared perpendicular distances for each set of assumptions about the fireball radius and the sides measured.

Assumed Fireball radius, m	Assumed combination of sides measured							
	L L L	L L R	L R L	L R R	R L L	R L R	R R L	R R R
10	266.4	387.7	923.7	1139.8	6.3	34.6	275.0	398.0
20	210.5	451.4	1818.8	2438.8	171.9	40.6	225.8	473.7
30	161.2	519.9	3014.3	4226.0	825.7	347.1	181.5	555.9
40	118.4	593.2	4510.2	6501.4	1967.6	953.9	142.0	644.7
50	82.2	671.3	6306.5	9265.1	3597.8	1861.1	107.4	740.1
60	52.6	754.3	8403.2	12516.9	5716.2	3068.7	77.6	842.1
70	29.6	842.1	10800.2	16256.9	8322.8	4576.6	52.6	950.6
80	13.2	934.8	13497.7	20485.1	11417.5	6385.0	32.5	1065.8
90	3.3	1032.3	16495.5	25201.6	15000.5	8493.7	17.2	1187.5
100	0.0	1134.6	19793.7	30406.2	19071.7	10902.9	6.7	1315.8
110	3.3	1241.7	23392.3	36099.0	23631.1	13612.4	1.1	1450.6
120	13.2	1353.7	27291.3	42280.0	28678.7	16622.3	0.3	1592.1

Table 2. The data of Kanai.

Kanai Point No.	Location	GIS-Estimated New City Map Coordinates		Kanai azimuthal angle
		Y, km	X, km	ccw from grid E, deg
1	Branch Office, Sanwa Bank	26.821	-178.485	193
7	Branch, Chiyoda Insurance Co.	26.852	-178.380	221
10	Branch, Sumitomo Bank	26.966	-178.453	194
13	Seiyoken	26.912	-178.656	141
14	Industrial Museum, S side	26.617	-178.317	326
17	Chamber of Commerce and Industry	26.615	-178.182	299
20	Fukuro-machi Primary School	27.035	-178.733	138
23	Hiroshima Central Telephone Bureau	27.136	-178.773	131
24	Branch Office, Yasuda Bank	27.201	-178.614	172
25	Honkawa Primary School	26.357	-178.214	332
29	Chugoku Electric Co.	26.813	-179.085	98
30	Bank of Commerce and Industry Assn	27.337	-178.470	188
35	Hiroshima City Office	26.719	-179.436	454
36	Shin-ohashi Bridge	26.208	-178.725	391

Table 3. Results for Kanai data.

Radius, m	Best combination for radius		Next to best combination for radius	
	Combination	SS, km²	Combination	SS, km²
10	LRLLLLRRLLLLLL	0.0313	LRLLLLRRLLRLLL	0.0320
20	LRLLLLRRLLLLLL	0.0225	LRLLLLRRLLRLLL	0.0236
30	LRLLLLRRLLLLLL	0.0164	LRLLLLRRLLRLLL	0.0180
40	LLLLLRRLLLLLL	0.0130	LLLLLRRLLRLLL	0.0130
50	LLLLLRRLLRLLL	0.0114	LRLLLLRRLLLLLL	0.0125
60	LLLLLRRLLRLLL	0.0120	LRLLLLRRLLLLLL	0.0146
70	LLLLLRRLLRLLL	0.0150	LLRLLRRLLRLLL	0.0179
80	LLLLLRRLLRLLL	0.0202	LLLLLRRLLRLLR	0.0225
90	LLRLLRRLRLRR	0.0225	RRRLLRRLLRLL	0.0296
100	LLRLLRRLRLRR	0.0226	RRRLLRRLLRLL	0.0306

Kanai's original map in Figure 1 of Appendix 3 of ABCC TR 3-69. For this study, the new city map coordinates of these locations were evaluated using the GIS, giving the values in Table 2. This corrects a substantial distortion in the map originally used by Kanai.

The measured azimuthal angles of the shadows are given with respect to magnetic north in Table 3 of ABCC TR 3-69. To restate them with respect to grid east of the newer city maps, we first noted that, according to the declination diagram on the U.S. Army map, magnetic north in Hiroshima in 1945 was 5 deg. 41 min. = 5.683 deg. west of true north. We also calculated from the equations of the Geographical Survey Institute, which relate grid coordinates of the new city map to longitude and latitude in the Tokyo datum (Young and Kerr 2004), that grid north of the new city maps in the Hiroshima area is about 0.2 deg. east of true north. We assumed that the direction "true north" in the Tokyo datum used for the new city maps was the same as "true north" in the datum used for the U.S. Army maps. Thus, to convert from angles specified with respect to 1945 magnetic north to angles specified with respect to new city map grid east, we converted the angles given by Table 3 of ABCC TR 3-69 to angles stated counter clockwise (ccw) from 1945 magnetic north and then added $5.683 + 0.2 + 90$ deg. to obtain angles stated ccw from new city map grid east.

The results for the analysis of Kanai's data are given in Table 3. For each effective fireball radius checked, in increments of 10 m, the best and next-best combination of sides measured are shown, along with their sums of squared perpendicular distances. The best combination is for a radius of 50 m and has three sites with measurements to the right side of the fireball and eleven with measurements to the left side of the fireball. This reduces the sum of squares considerably from the assumption of no fireball effect on the measured angles (equivalent to assuming that all of the reported angles were actually for central rays) from 0.0429 km^2 to 0.0114 km^2 . The mean absolute perpendicular distance from measured rays to the hypocenter is approximately 47 m for the solution based on the assumption of no fireball effect, whereas the mean absolute perpendicular distance from the measured rays to the effective fireball radius is about 22 m for the best solution with a fireball effect. The hypocenter estimate for the combination **LLLLLRRLLRLLL** with a 50-m effective fireball radius is at (27.714, -178.465), about 34 m west and 12 m north of the solution for no assumed fireball (equivalent to assuming that all of the reported angles were actually for central rays), which is at (27.748, -178.477). These solutions are shown in relation to the measured rays in Figure 5. The three shadow lines that the optimal fireball-effect solution suggests were measured to the right side of the fireball are shown as dotted lines.

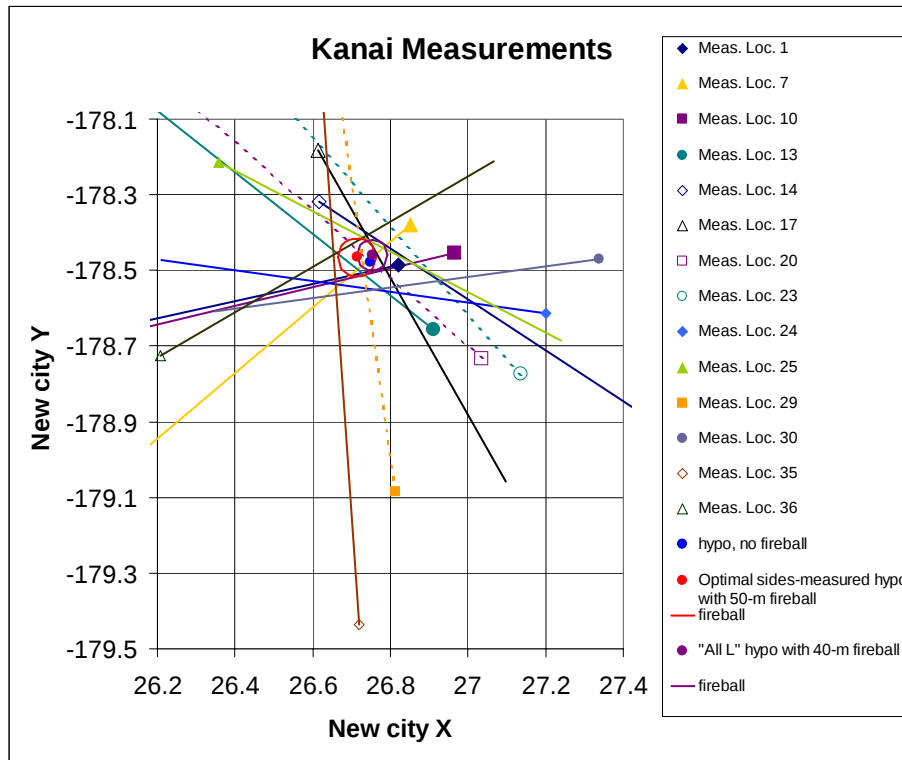


Figure 5. Kanai's measured shadow lines and various possible solutions.

Because the optimal solution suggested that only three shadows were measured to the right side of the fireball, we considered the possibility that all sites were measured to the left side of the fireball, and that the situation of those three lines is due to error. The solution with all measurements to the left of the fireball has a minimum sum of squared perpendicular distances for a radius of 40 m, and its solution is very close to the solution for no fireball effect, as shown in Fig. 5. Its sum of squared perpendicular distances is 0.0274 km^2 , and its mean absolute perpendicular distance from the measured rays to the effective fireball radius is about 39 m. This is a small improvement over the assumption of no fireball effect, but not nearly as good as the optimal combination. We also considered the influence of one particular measurement, at location No. 23, the Hiroshima Central Telephone Office. It has the largest error in all of the solutions discussed here, and appears quite discordant with the other lines. However, when this particular observation is omitted, there is little effect on the solutions discussed above. On balance, we feel that the solution for the combination **LLLLLLRRLRL** with a 50-m effective fireball radius is the best one and should be used in the combined estimate. It is also closer to the estimates of the three other major studies than the other two estimates discussed above.

The same method was used to analyze the data of Arakawa and Nagaoka. Those data are more complicated, as many replicate measurements were made at most of the sites measured. The method described above was applied to the *average measured angle for each site*, based on analyses that are too extensive to include here but will be included in a future publication. That is, it appeared from detailed analyses that all of the measurements at a given site were made on the same side of the shadow-casting objects. For example, when the measured angles for each site were plotted, there was no evidence of a bimodal distribution or enough angular separation to suggest that both sides were measured.

As with the Kanai data, the coordinates of the measurement locations were re-evaluated for this study using the GIS. Because a total of 37 sites were measured, it was not practical to exhaustively evaluate all possible combinations of sides measured; however, because the numbers of measurements per site were very unevenly distributed, the vast majority of measurements could be included. The first 16

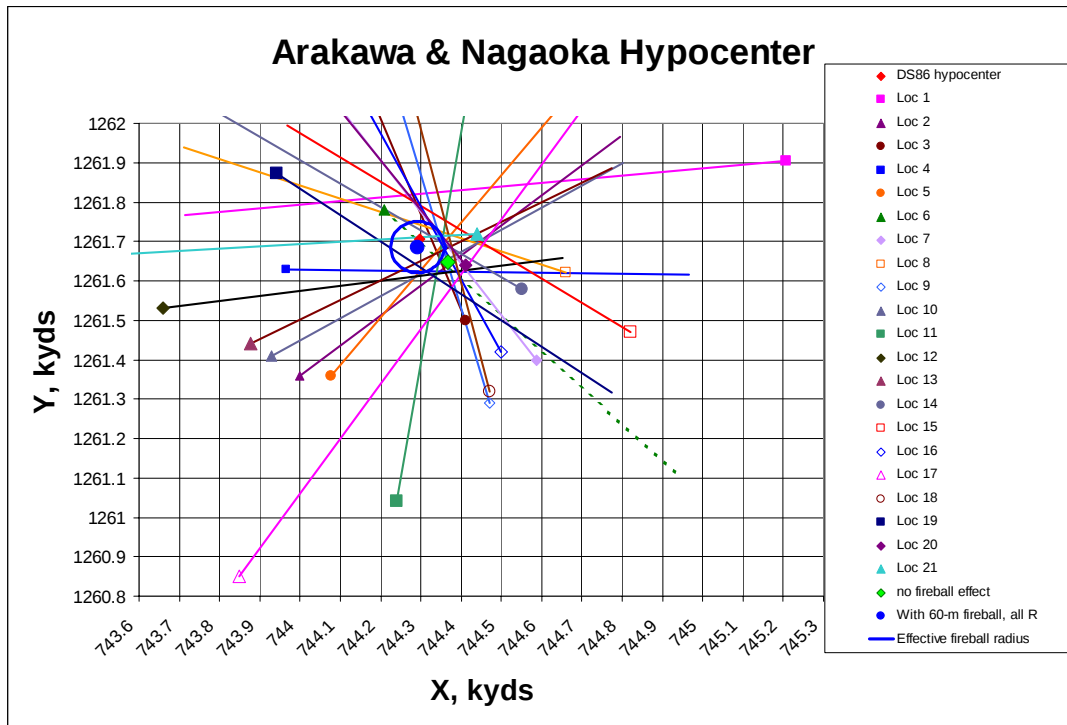


Figure 6. Arakawa and Nagaoka’s measured shadow lines and two possible solutions.

sites with the most measurements per site, which include 1104 of the 1178 measurements, were subjected to the full optimization. The optimal solution was for all except one (location No. 6) of the 20 sites being measured to the right side of the fireball. This is clearly seen in Figure 6, in which the shadow line for location No. 6 is shown as a dotted line. For several reasons, we believe it is most plausible that the measurements at this site were actually made to the right of the fireball, and that the result obtained from the optimization is due to the error in the measurements. The difference between the two solutions is small, as the combination chosen here, with all measurements to the right side of the fireball, is at (744.291, 1261.686) in U.S. Army map coordinates, whereas the solution assuming that location No. 6 was measured to the left side of the fireball is at (744.285, 1261.682).

The Measurement Uncertainty Problem

Because of the errors in measured angles and estimates of the coordinates of locations where measurements were made, there is uncertainty in the hypocenter estimate obtained for each set of data, which is related to the quality of the data in that particular study. We need to evaluate this uncertainty quantitatively in order to properly combine the results of studies with different qualities into a single overall estimate of the hypocenter location, as well as to estimate the uncertainty of that combined estimate. There are various ways to approach this problem. One way, which is explored here, is to start with a full probability model of the errors in the input variables and then determine the corresponding error distribution to be expected in the solutions. Another way, which is being considered for future work, is to use a resampling method such as the bootstrap method to evaluate the uncertainty in the solutions.

We do not have ideal information on the uncertainty in the input data for most of the studies, but we do have at least rough estimates of the uncertainty in the measured angles, which were part of what Hubbell *et al* used to weight their overall estimate, and there are some ways to get at least a rough estimate of the accuracy in specifying the coordinates of the measurement locations that investigators would have used in making their original estimates. More importantly, we can give fairly good estimates of the uncertainty in location coordinates for the major studies that are re-analyzed here, because we can relate

them to known sites on the maps and aerial photographs in most cases. In addition, another thing we have for the major studies is the Λ - the sum of squares of perpendicular distances from the measured rays to the solution point constituting the hypocenter estimate. This is a very useful item in view of the insightful observation, as suggested by Hubbell *et al* and undoubtedly others before them, that the size of the Λ must be statistically related to the uncertainty of that estimate. That is, the closer the rays come to converging in a single point at which all of them intersect, the more confidence we can have in the accuracy of the solution.

The approach used here, then, is to seek to establish a statistical relationship between the uncertainty in the input data (x_i, y_i, α_i) of each original study and the uncertainty in both (a) the Λ , and (b) the solution $(\hat{x}, \hat{y})$. The uncertainty in the input data (x_i, y_i, α_i) would be characterized by a fully-specified joint probability density function such as $f(x_i, y_i, \alpha_i; \mu_x, \mu_y, \mu_\alpha, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_\alpha)$. Given the form of $f(x_i, y_i, \alpha_i; \mu_x, \mu_y, \mu_\alpha, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_\alpha)$, the probability distribution of Λ , which determines its uncertainty, depends on the $\mu_x, \mu_y, \mu_\alpha, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_\alpha$ via equation (1) above, and the probability distribution of the hypocenter estimate $(\hat{x}, \hat{y})$ depends on the $\mu_x, \mu_y, \mu_\alpha, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_\alpha$ via equation (3) or (19) above, as applicable.

In this work, because of the mathematical difficulty of establishing this relationship in analytical form, we have chosen to use numerical simulation of random errors. We will make simple assumptions about $f(x_i, y_i, \alpha_i; \mu_x, \mu_y, \mu_\alpha, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_\alpha)$ and rely on estimating the key relationships by simulating of random errors generated from $f(x_i, y_i, \alpha_i; \mu_x, \mu_y, \mu_\alpha, \sigma_x, \sigma_y, \sigma_\alpha)$. We will use this relationship, along with the observed value of Λ and other information available from each original study, to make an estimate of the uncertainty in the input data (x_i, y_i, α_i) of that study. Then we use the same statistical relationship to estimate the uncertainty in the hypocenter estimate for that study. The relationships involved are illustrated in Fig. 7 and are further explained below.

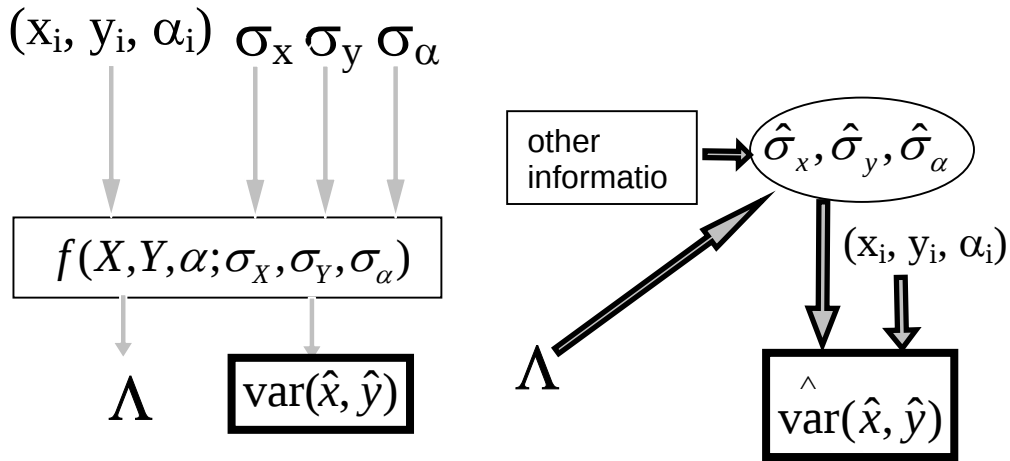


Figure 7. Relationships among quantities involved in estimating the uncertainty of the hypocenter estimates of individual studies.

Uncertainty in Input Values

Measured Angle

The assumption adopted for this work is that the errors in measured angles are *approximately* normally distributed. Clearly this can only be an approximation, because the normal distribution is defined on the entire set of real numbers, from $-\infty$ to $+\infty$, whereas the angles can only extend from $-\pi$ (-180°) to $+\pi$ ($+180^\circ$). But with angle standard deviations on the order of even 10° , about the largest likely to be considered here, the tales of the normal distribution that cannot be accommodated contain infinitesimal mass.

The most complete information, by far, on the reproducibility of measured angles of shadows is given by the data of Arakawa and Nagaoka, as reported in Part I of ABCC TR 12-59. They comprise 1178 measurements, with as many as 219 measurements at a single location. These data thus represent a very important basis for estimating σ_α .

The sample standard deviations of the recorded angles for the 18 sites including the vast majority of the measurements are shown in Table 4, along with the approximate distance of the site from the hypocenter.

Coordinates of Locations Where Measurements Were Made

The locations given by Arakawa and Nagaoka are documented with both specific site names and U.S. Army map coordinates. These could be checked on georeferenced aerial photographs and the new city map for almost all sites, including the 18 sites with the most measurements as shown in Table 4. The data obtained by checking these sites, including consideration of the information given in ABCC TR 3-69 about errors at several of them, is shown in Table 5.

The information on the most measured sites was good enough to specify U.S. Army map coordinates correct to an error standard deviation in each coordinate no more than 15 to 20 m in all cases.

Table 4: Summary data on measured angles of Arakawa and Nagaoka (18 most-measured sites)

Site No.	Ground distance, m	# of observations	sample s.d. of angles measured	estimated s.d. of mean angle for site
1	851	7	1.57	0.59
2	418	181	7.81	0.58
3	215	93	3.08	0.32
4	313	214	6.73	0.73
5	378	35	3.95	0.43
6	105	30	8.74	1.59
7	387	101	3.26	0.60
8	340	39	3.21	0.59
9	412	91	6.32	1.15
10	432	115	6.13	1.12
11	612	14	4.04	0.74
12	605	85	2.52	0.46
13	455	50	6.37	1.16
14	258	18	3.74	0.68
15	524	16	6.77	1.24
16	321	16	3.58	0.65
17	884	11	1.03	0.19
18	387	11	3.89	0.71

Table 5. Measurement locations used by Arakawa and Nagaoka in ABCC TR 12-59

Site No.	Site Name	X	Y	avg angle, deg cw from mag N	deg ccw from Army grid E	rad ccw from grid E
1	Shokaku Temple	745.208	1261.905	259	185.3	3.234
2	Joen Temple	744	1261.36	47	37.3	0.651
3	Sensho Temple	744.41	1261.5	332	112.3	1.960
4	Jisen Temple	743.965	1261.628	85	359.3	6.271
5	Keizo Temple	744.076	1261.358	34	50.3	0.878
6	Sairen Temple	744.21	1261.78	127	317.3	5.538
7	Myoren Temple	744.588	1261.398	317	127.3	2.222
8	Shojun Temple	744.66	1261.62	283	161.3	2.816
9	Kokutai Temple	744.47	1261.29	338	106.3	1.856
10	Myoho Temple	743.93	1261.41	55	29.3	0.512
11	Ryuko Temple	744.24	1261.04	4	80.3	1.402
12	Jokaku Temple	743.66	1261.53	77	7.3	0.128
13	Dempuku Temple	743.877	1261.442	58	26.3	0.459
14	Yasuda Life Insurance Co.	744.55	1261.58	295	149.3	2.606
15	Yasuda Bank	744.82	1261.47	296	148.3	2.589
16	Fukoku Life Insurance Co.	744.5	1261.42	326	118.3	2.065
17	Yorozuyo Bridge	743.85	1260.85	30	54.3	0.948
18	Nippon Bank	744.47	1261.32	340	104.3	1.821
19	Honkawa Grade School	743.941	1261.872	118	326.3	5.695
20	Daiichi Bank	744.41	1261.64	316	128.3	2.240
21	Chiyoda Life Insurance Co.	744.44	1261.72	261	183.3	3.199
22	Gokoku Shrine, outer gate	744.31	1261.91	178	266.3	4.648
23	Kokutai Temple	744.45	1261.17	345	99.3	1.733
24	Seiryu Temple	744.94	1261.6	286	158.3	2.763
25	Sorazaya Shrine	743.96	1262.29	156	288.3	5.032
26	Aioi Bridge, west end	744.02	1261.98	145	299.3	5.224
27	Aioi Bridge, east end	744.12	1261.96	153	291.3	5.084
28	Aioi Bridge, south end	744.05	1261.87	123	321.3	5.608
29	Kiyozumi Temple	743.79	1262.05	126	318.3	5.556
30	Sanwa Bank	744.4	1261.61	335	109.3	1.908
31	Monument (West Parade Ground)	744.5	1261.88	230	214.3	3.741
32	West Reconstruction Board	744.36	1261.9	210	234.3	4.090
33	Bank Club	744.37	1261.52	355	89.3	1.559
34	Nippon Life Insurance Co.	744.38	1261.56	330	114.3	1.995
35	Honkawa Geibi Bank	743.8	1261.63	80	4.3	0.075
36	Osaka Bank	744.57	1261.64	286	158.3	2.763
37	Court	744.94	1261.05	320	124.3	2.170

Results of Random Error Simulation

A number of plots like the one shown in Figure 8, for various assumed error s.d.'s in the measurement location coordinates, were generated by random error simulation and evaluated. The observed standard deviation of the perpendicular distances from the measured rays to the hypocenter estimate noted above, 16.8 m, is shown as a horizontal line in red. Based on the trend in the simulated s.d. of the same quantity, as shown by the triangles on the plot, it was decided to assign error s.d.'s of 2.3 deg and 10 m, respectively, for measured angle and measurement location coordinates, which are quite consistent with the information from other sources noted above.

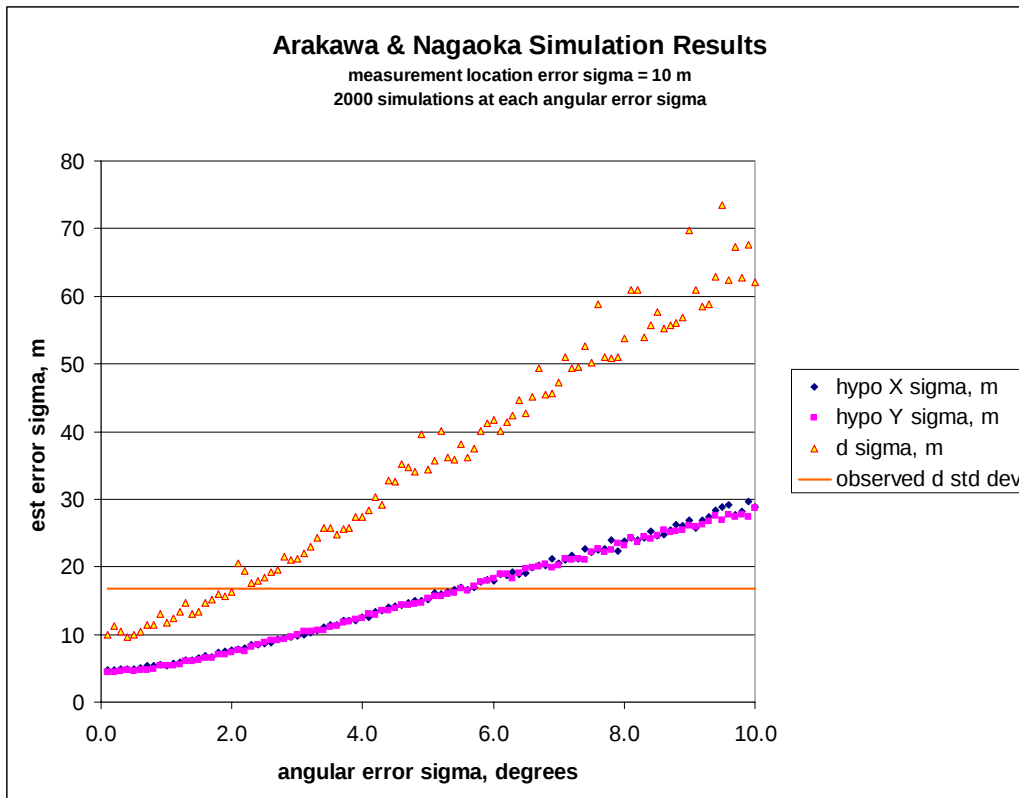


Figure 8. Results of random error simulation for the data of Arakawa and Nagaoka.

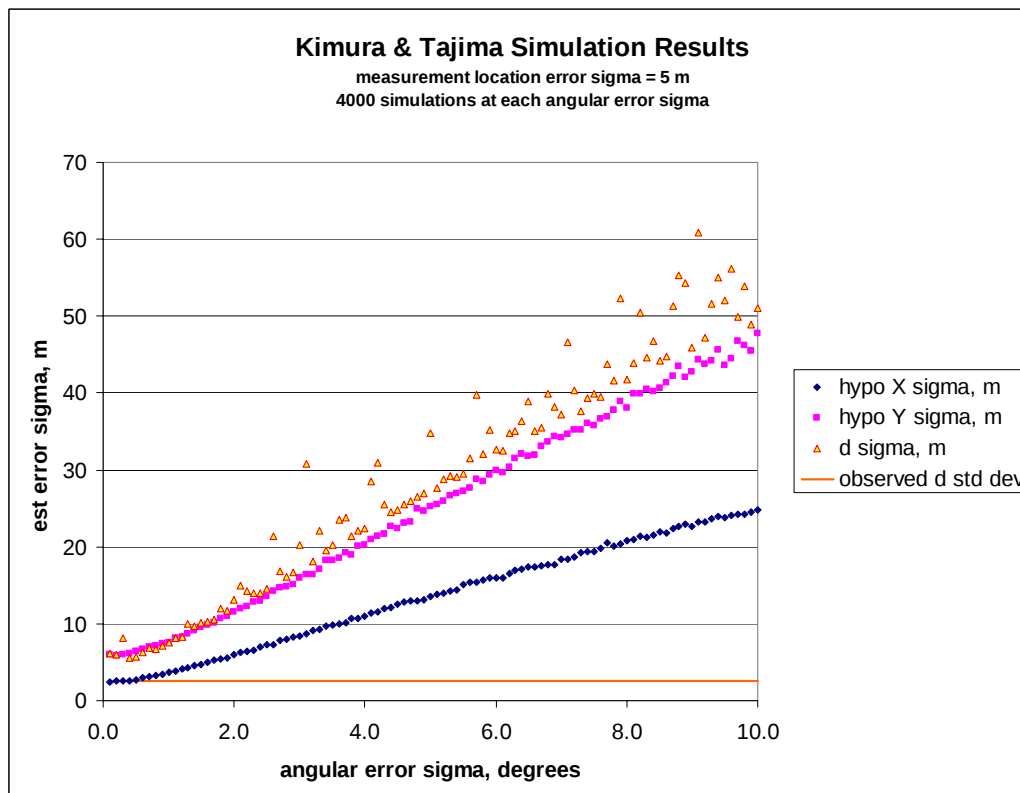


Figure 9. Simulation results for the data of Kimura and Tajima.

One of the virtues of random error simulation as used here is that it includes the effect of asymmetrical angular dispersion of measurement locations about the presumed solution. The uncertainties for the two coordinates of the hypocenter, shown as diamonds and squares in Fig. 8, are virtually identical

because of the relative radial symmetry of the angular dispersion of measurement locations. Even though there are no locations directly north of the hypocenter area in Arakawa and Nagaoka's data, as shown in Fig. 7, there is enough coverage of radial angles to avoid asymmetry in the coordinate uncertainty. On the other hand, the simulation results for the measurement locations of Kimura and Tajima, shown in Figure 9, reflect the fact that there were relatively few measurement locations, as shown in Figure 10, and most of them were north or south of the hypocenter area, so that the uncertainty in the Y coordinate is greater because there is less angular difference for a unit difference in hypocenter location on the Y axis than on the X axis. (The observations shown as dotted arrows entering the diagram from outside its depicted area were not used because they appeared inconsistent with the reported result of Kimura and Tajima when the named measurement locations were evaluated with the GIS, and in the case of the "Gas Tank," the location was unknown.)

The most important unsolved problem in this regard has to do with the numerous small studies included by the authors of ABCC TR 3-69 in their tabulation and their resulting estimates, which they estimated to have only three measurement locations. They have no real documentation of these studies except for their resulting hypocenter estimates. Most importantly, they have no documentation of the locations measured. Simulations to date have indicated that, even when very favorable constraints are imposed on a random selection of measurement locations to avoid any two of them being close to having the same direction from the simulated hypocenter, modest-sized error standard deviations in the simulated errors of the measured angles result in very large errors in the hypocenter estimate with non-negligible probability: the empirical distribution of the simulated errors has "heavy upper tail." As a result, the simulation estimates of the uncertainty in the hypocenter estimates of such studies are unstable, even at

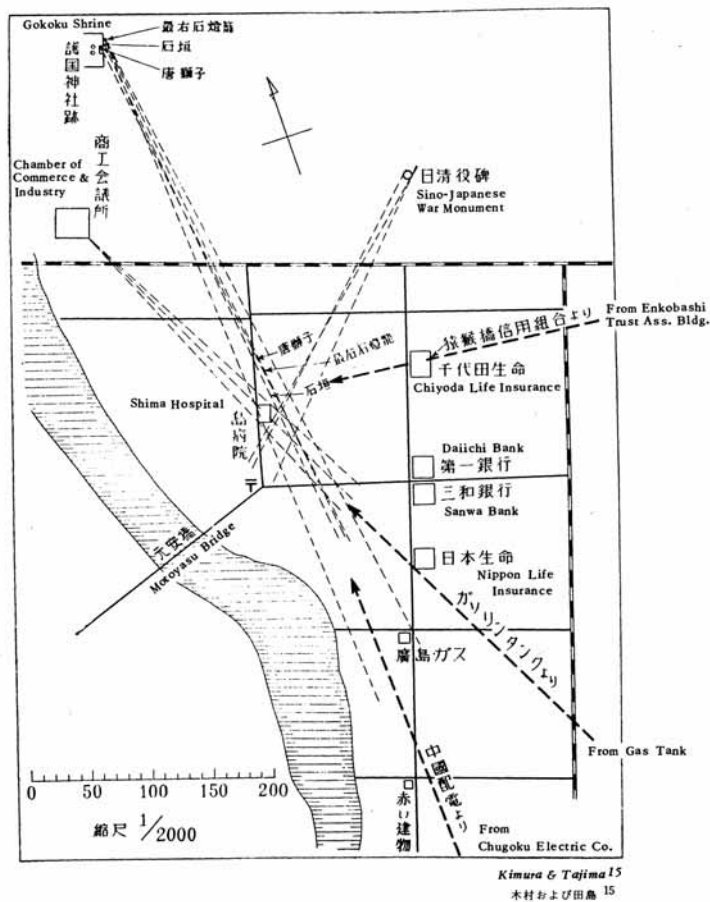


Figure 10. The measurement locations of Kimura and Tajima, from ABCC TR 3-69.

surprisingly large numbers of trials. Although very large number of trials and additional work on simulation may improve the related estimates of uncertainty for such three-location studies, this is an area that requires more statistical research if these small studies are to be considered.

The Statistical Weighting Problem

Although the authors of ABCC TR 3-69 gave tabulated values of estimated error standard deviations in the coordinates for the locations where measurements were made, for all of the individual studies in their Table 1, they did not use them in their weighting for combining the results of those individual studies. They chose instead to estimate the sample standard deviation of the d_i 's (perpendicular distances from measured rays to hypocenter estimate) for the various studies, in combination with the estimated standard deviation of the measured angles. They were able to calculate this quantity for the four major studies, but they generally had no quantitative basis for estimating it for the studies lacking recorded measurement data. (They quote a value for the USSBS study that is not footnoted as "Assumed by the present authors," as are the values given in their Table 1 for other studies without measurement data, but they do not provide a source or a basis for this estimate.) Thus, for studies lacking the original data, they based their weights partly on a quantity that depends on the uncertainties in the measured data in a rather complicated way, which they did not determine, and partly on the uncertainties of the measured data

themselves. They wrote their formula for weights as $w_i = \frac{\sqrt{N_i}}{\sigma_i \Delta \theta_i}$, where N_i is the number of

measurements in the i^{th} study, σ_i is an estimate of the standard deviation of the d_j 's of the i^{th} study, and $\Delta \theta_i$ is an estimate of the error standard deviations in the measured angles of the i^{th} study. No statistical derivation is given, and this formula illogically combines uncertainties in an input variable with an uncertainty in an intermediate variable that is influenced by that input variable.

A better and much more obvious method is to estimate the hypocenter coordinates X and Y using weighted sums of the individual study results, with the weights being the inverses of the estimated variances of the X and Y coordinates of the individual estimates, i.e.,

$$\hat{x} = \frac{\sum_{j=1}^N w_{x_j} \hat{x}_j}{\sum_{j=1}^N w_{x_j}}, \hat{y} = \frac{\sum_{j=1}^N w_{y_j} \hat{y}_j}{\sum_{j=1}^N w_{y_j}}; \quad w_{x_j} = \frac{1}{\hat{\sigma}^2(x)_j}, w_{y_j} = \frac{1}{\hat{\sigma}^2(y)_j} \quad (26).$$

This is a component-wise application of a standard statistical method used for weighted means of scalar quantities, as suggested by Land in Appendix 1 of ABCC TR 3-69 and in many other texts and references such as, e.g., Bevington and Robinson's popular book *Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences* (Bevington and Robinson 1992). As Kerr and Solomon observed in their report on the Nagasaki hypocenter, if $\hat{\sigma}_{x_j} = \hat{\sigma}_{y_j} \forall j \in 1, \dots, N$, it is equivalent to minimizing the weighted sum of squares of the Euclidean distances from the combined estimate to the individual estimates, but this method further corrects for situations in which this equality does not apply. Because the $\hat{\sigma}_{x_j}$ and $\hat{\sigma}_{y_j}$ are based on all relevant parameters of the individual studies, there is no weighting at this level by the numbers of measurements in each study.

One potential shortcoming of this method is that it does not consider possible covariance between errors in the X and Y coordinates of the hypocenter estimates of individual studies. Thus, it may be necessary to adjust the formulae for covariance.

These methods were used to re-evaluate the hypocenter estimates of the four major studies used in ABCC TR 3-69, and to produce rough preliminary estimates of the uncertainties in all of the individual

study results considered in that report. The results are given in Table 6 and Figure 11. The listing suggested by Land in Appendix 1 to ABCC TR 3-69 is used here to avoid the redundancies in the more complete listing given in that report by Hubbell, Jones, and Cheka.

Table 6. Estimates of hypocenter location for individual studies and combined result.

No. in Hubbell <i>et al.</i> Table 1	Source	No. of points measured	Angular error s.d. est from TR 3-69, deg	Angular error s.d. est this work, deg	Assumed error s.d. of coord's of meas. loc's	hypo X	hypo Y	Estimated s.d. of error in hypo X, m	Estimated s.d. of error in hypo Y, m
2	Kure Naval Base Team	3	3	4	25	26.639	-178.334	60	60
3	Arakatsu	3	3	4	25	26.639	-178.334	60	60
4	Watanabe et al	3	3	4	25	26.645	-178.414	60	60
5	Kimura & Tajima	7	1	2	15	26.731	-178.393	9	19
7	Kanai	14	1	5.5	15	26.714	-178.465	25	16.5
10	Tanaka	5	1	2	25	26.736	-178.412	25	25
11	Manhattan Engr District	5	1	2	20	26.639	-178.334	22	22
13	"British" quoted by USSBS	5	1	2	25	26.753	-178.42	25	25
14	Oughterson-Warren Report	5	1	2	25	26.722	-178.356	25	25
16	USSBS	6	1	2	20	26.682	-178.405	20	20
17	US Navy Bureau of Yards & Docks	5	1	2	20	26.761	-178.419	22	22
18	Woodbury & Mizuki	7	1	5.5	15	26.715	-178.418	19	20
20	First ABCC Hypocenter, Wright & Brewer	5	1	2	25	26.675	-178.339	25	25
22	Arakawa & Nagaoka	37	5	2.3	10	26.716	-178.415	8.3	8.3
Hypo-center estimate					variance of weighted mean, km ²			4.21E-05	7.59E-05
This work			26.716	-178.407	standard deviation of wtd mean, km			0.00649	0.008711
4 main studies only			26.722	-178.421					
					standard deviation of wtd mean, m			6.489517	8.711441

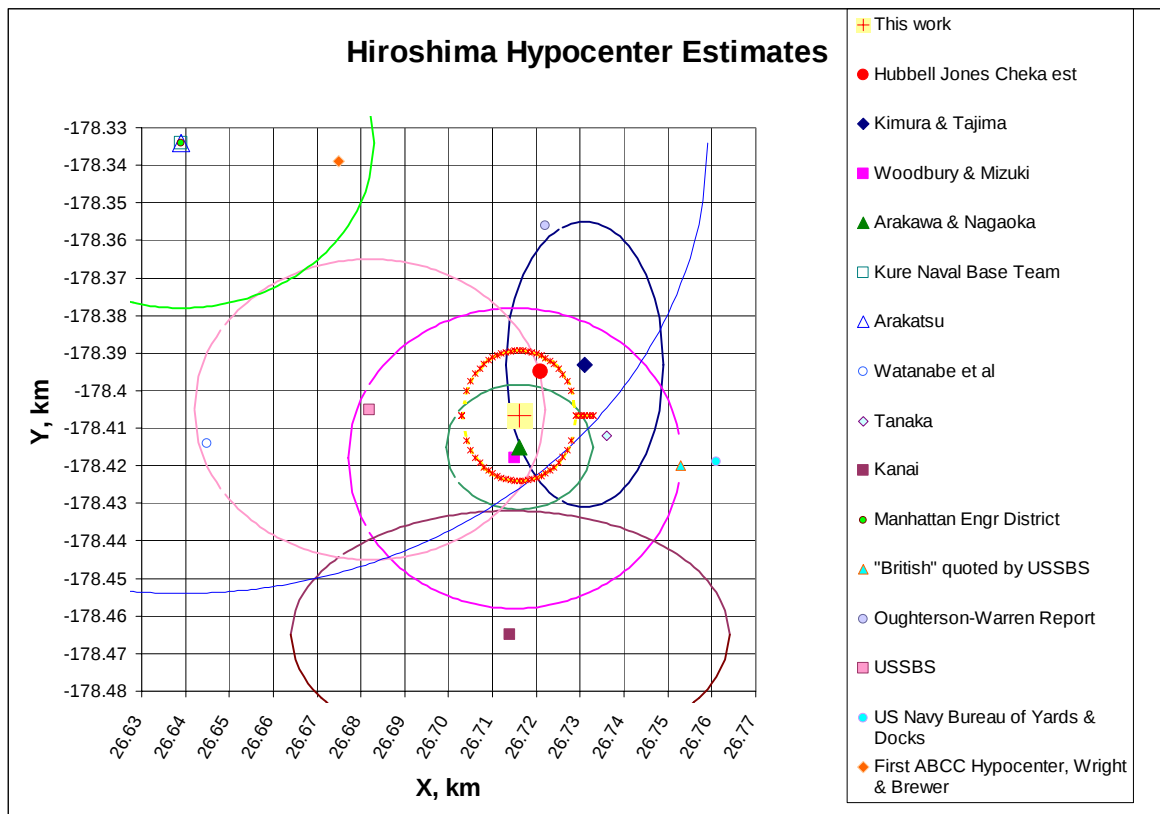


Figure 11. Estimates of individual studies and combined result. Confidence ellipses depicted are 2σ .

As may be seen in Figure 11, there is a remarkable concordance between the results obtained by the methods used here for the reanalysis of the data of Arakawa and Nagaoka and those of Woodbury and Mizuki. Both are somewhat south and west of the result of Kimura and Tajima, and somewhat south of the combined estimate of Hubbell *et al.* as given in ABCC TR 3-69 (1969). Kanai's data remain somewhat apart, despite many efforts, beyond what are described in this work, to investigate possible sources of error, but it is certainly not established that they represent a statistical outlier. Many of the smaller studies shown here are subject to the consideration that, in addition to their large estimated uncertainty based on the initial application of the methods suggested here, their results were specified only very inexactly and were never intended to be used in an effort such as the present work. Although additional work would certainly refine the estimate shown here, it seems likely that the methods and philosophy suggested in this work would result in an estimate generally south of the estimate of Hubbell *et al.*, by a few meters to a few tens of meters.

Conclusions

- Modern computationally intensive methods allow new and better solutions to the problems of interpreting the original measurement data on the location of the Hiroshima hypocenter, with regard to
 - the penumbra problem, and
 - the estimation of the uncertainty in the coordinates resulting from studies for which the measured angles and locations are recorded.
- More statistical research is needed to determine the uncertainty of the results of very small (i.e., about three measured locations) studies with undocumented locations and angles, and to decide what weight, if any, should be given to such results in a combined analysis.
- The method of statistical weighting originally suggested by Land in Appendix 1 of ABCC TR 3-69 is a preferable one and should be used in making combined estimates of the hypocenter location based on the results of various studies.
- Initial results as shown here suggest that estimates of the Hiroshima hypocenter location should be generally south of the location given by Hubbell, Jones, and Cheka in ABCC TR 3-69, by roughly 10 to 25 m.

References

- Arakawa ET, Nagaoka S. Determination of the Burst Point and Hypocenter of the Atomic Bomb in Hiroshima. Hiroshima, Japan: Atomic Bomb Casualty Commission; 12-59, Part I; 12-59, Part I; 1959.
- Bevington PR, Robinson DK. Data Reduction and Error Analysis for the Physical Sciences. Second ed. New York, NY: WCB McGraw-Hill; 1992.
- Draper NR, Smith H. Applied Regression Analysis. Second Edition ed. New York, NY: John Wiley & Sons; 1981.
- Hubbell HH, Jr., Jones TD, Cheka JS. The Epicenters of the Atomic Bombs: Reevaluation of All Available Physical Data with Recommended Values. Hiroshima and Nagasaki, Japan: Atomic Bomb Casualty Commission; 3-69; 3-69; 1969.
- RERF. US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki: Final Report. Hiroshima: Radiation Effects Research Foundation; 1987.
- Woodbury LA, Mizuki M. Determination of the Burst Point and Hypocenter of the Atomic Bomb in Hiroshima. Hiroshima, Japan: Atomic Bomb Casualty Commission; 12-59, Part II; 12-59, Part II; 1959.
- Young RW, Kerr GD. Report of the Joint U.S.-Japan Working Group on Dosimetry, Reassessment of the Atomic Bomb Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki - DS02. Hiroshima: RERF.

環境中性子の IN-SITU 測定

遠藤 暁*

広島大学原爆放射線医科学研究所・国際放射線情報センター

はじめに

環境中の中性子は、主に宇宙線によって生成されるため、環境中性子束の評価は、宇宙線研究において行われてきた。中性子線束は太陽の生成する磁場に関連づけられる、そのため線束測定は太陽の活動の良いモニターとなっている。したがって、環境中性子束は参考文献^{1,2,3)}で論じられているように、周期的に変動し、問題とする地点の緯度にも依存している。

他方、JCO 臨界事故^{4,5)}及び広島・長崎原爆の中性子線量推定^{6,7,8)}において、放出された中性子線束を評価するために中性子による誘導核種の低放射能測定が利用されている。このような研究においては、極低レベルの誘導放射能を評価しなければならないため、誘導放射能を決定するには上述のような環境中性子線の効果を正確に知っておく必要がある。国際連合科学放射線委員会(UNSCEAR)の報告書では、環境の中性子線束は $0.008 \text{ n/cm}^2 \text{ s}$ ⁹⁾と報告されている。 ^{197}Au の放射化の例をとって、 ^{198}Au 飽和放射能を前述の線束で見積もると、およそ 2 mBq/g である。この放射能値は、広島大学工学研究科の低バックグラウンド Ge 検出器¹⁰⁾や金沢大学低放射能実験施設尾小屋実験室の Ge 検出器において測定可能である。これは環境中性子が広島大学や金沢大学の低放射能測定においてバックグラウンド γ 線となる可能性を示している。

大学院工学研究科と広島大学原医研には原爆被爆試料保管室があるため、この部屋での環境中性子線束を評価することは、原爆中性子の線量評価において重要である。

本報告では、環境中性子線束を測定し、環境中性子が被爆試料中の誘導放射能を決定する際にどの程度の寄与をするかについて報告する。

材料と方法

^3He ガス比例計数管の校正

4 気圧の ^3He ガスを封入した比例計数管 (ロイターズトク、モデル P4-810-204) を測定に用いた。Fig.1 に示すように、比例計数管を減速材ナイロンブロック(50mm 厚)で囲み ^{252}Cf 核分裂中性子源 ($\sim 120 \text{ kBq}$) からの中性を 1 週間照射した。熱中性子束の評価にはカドミウムカットを用いるため、比例計数管表面に $20 \mu\text{m}$ の金箔を裸で 3 枚また、カドミウム (0.5mm 厚) でカバーした 3 枚の計 6 枚を貼り付けてある。金原子核は $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$

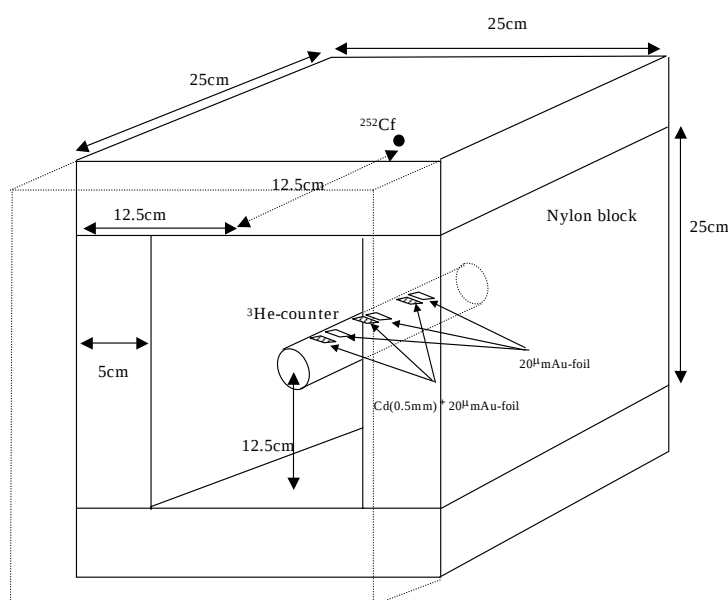


Fig. 1. ガス比例計数管測定効率校正の実験配置図。モデレータとしてナイロン板 (厚さ 5cm、 $25 \times 25 \text{ cm}^2$) を使用した。

* ENDO Satoru, Hiroshima University; andos@hiroshima-u.ac.jp

反応で放射化され、不安定な ^{198}Au 原子核が誘導される。この ^{198}Au は 411.8keV の γ 線を放出するため、低バックグラウンド Ge 検出器を用いて測定し、中性子線束を求め比例計数管を校正する。

熱中性子束 (ϕ_{th}) は、次式で決定できる。

$$\phi_{th} = \frac{\varepsilon A_{th}}{N_{Au} \sigma} \quad (1)$$

ここで、 N_{Au} は金原子核の数、 σ は $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応の熱中性子に対する断面積、また ε は用いた 20 μm 厚の金箔に対する自己遮蔽因子である。熱中性子のみによって誘導された放射能 A_{th} は、裸の金箔の放射能(A)とカドミウムカバーした金箔放射能(A_{Cd})を用いて、次式で決定できる。

$$A_{th} = A - F_{Cd} A_{Cd} \quad (2)$$

ここで、 F_{Cd} はカドミウムカバーによる吸収因子ある。 ε 及び F_{Cd} は次節で示すように、モンテカルロ計算で見積り使用する。

^3He カウンターの生スペクトルを Fig.2 に示す。実線及び破線は、それぞれ、 ^{252}Cf のあるなしでのスペクトルに対応する。764keV 付近のピーク構造が熱中性子を示している。線源からの熱中性子ピーク計数率は、線源無しの計数率を補正すると $147.9 \pm 0.5\text{cps}$ であった。

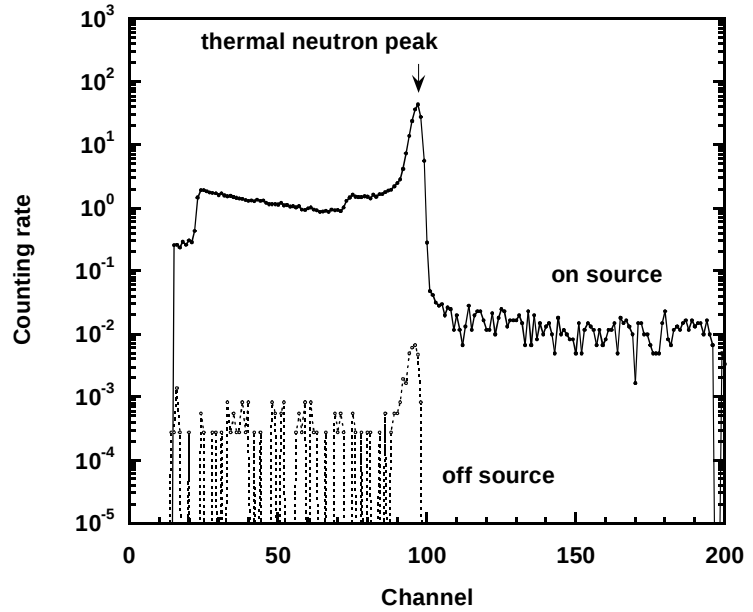


Fig. 2. ^3He ガス比例計数管生スペクトル。実線と破線はそれぞれ ^{252}Cf 線源あるなしに対応する。

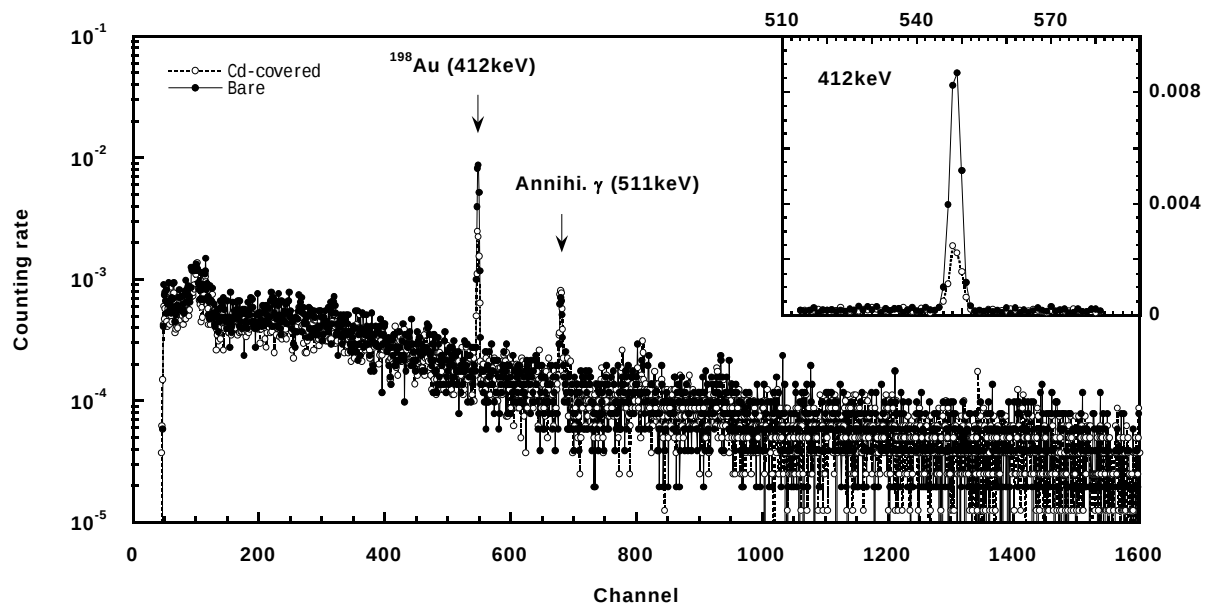


Fig. 3. 比例計数管表面に貼りつけた金箔中に 2 週間照射で誘導された ^{198}Au 放射能からの 412 keV γ 線がはっきりと見える。実線は裸の金箔、破線はカドミウムカバーの金箔を示す。

カウンター表面上貼り付けた金箔は相対的効率 23% の Ge 検出器 (E G & G ORTEC 社、GWL-120230S) を用いて測定した。測定した γ 線スペクトルを Fig.3 に示す。中性子によって誘導された ^{198}Au からの 411.8keV γ 線が測定できていることがわかる。●が裸の金箔、○がカドミカバーした金箔である。それぞれの誘導放射能は 0.153Bq ($\pm 3\%$) 及び 0.051Bq ($\pm 6\%$) であった。

補正因子の計算

自己遮蔽因子およびカドミカバー因子は A General N-Particle Monte Carlo Code 4C (MCNP4C)¹¹⁾を用いた中性子輸送計算で見積もった。計算効率を上げるため、2つのステップで計算

を行った。まず、Fig.1 に示した幾何形状を考慮し、マクスウェル分布 ($N(E) \propto \sqrt{E} \exp(-E/1.42)$)

を仮定した ^{252}Cf からの核分裂中性子を輸送計算し、カウンター表面におけるエネルギー Spektral を求めた。次に、カウンター表面のエネルギー Spektral を仮想球(半径 10cm)の表面から発生し、中心部においた厚さ 20 μm の裸

の金箔中中性子束: ϕ_{Au}^b 、及び 0.5mm のカ

ドミウムカバーした金箔中の中性子束: $\phi_{\text{Au}}^{\text{Cd}}$

を求めた。カドミウムカバーの補正因子は以下の式で計算した。

$$F_{\text{Cd}} = \frac{\int_{E_c}^{\infty} \phi_{\text{Au}}^b \sigma dE}{\int_{E_c}^{\infty} \phi_{\text{Au}}^{\text{Cd}} \sigma dE} \quad (3).$$

ここで、 E_c はカットオフエネルギーとして

0.5mm のカドミウムの値 0.55eV を用いた。

自己遮蔽因子 ε も同様に空気中での中性子

束: $\phi_{\text{Au}}^{\text{air}}$ 及び金箔中での中性子束: ϕ_{Au}^b を

用いて

$$\varepsilon = \frac{\int_0^{\infty} \phi_{\text{Au}}^{\text{air}} \sigma dE}{\int_0^{\infty} \phi_{\text{Au}}^b \sigma dE} \quad (4)$$

として求めた。

計算で得られた 20 μm 金箔中の Spektral

を Fig.4 に示す。同様の計算を 0、1、10、

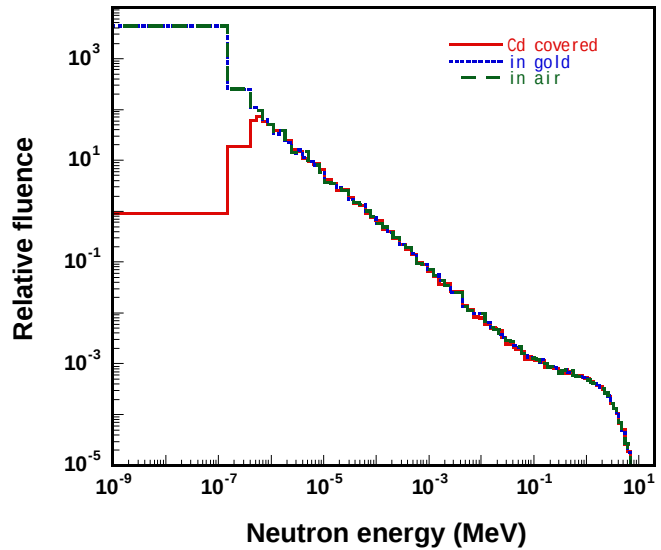


Fig. 4. 20 μm 金箔中の中性子線束のモンテカルロ計算結果。実線: カドミウムカバー金箔、点線: 裸の金箔、破線: 空気中の中性子エネルギー分布を示す。

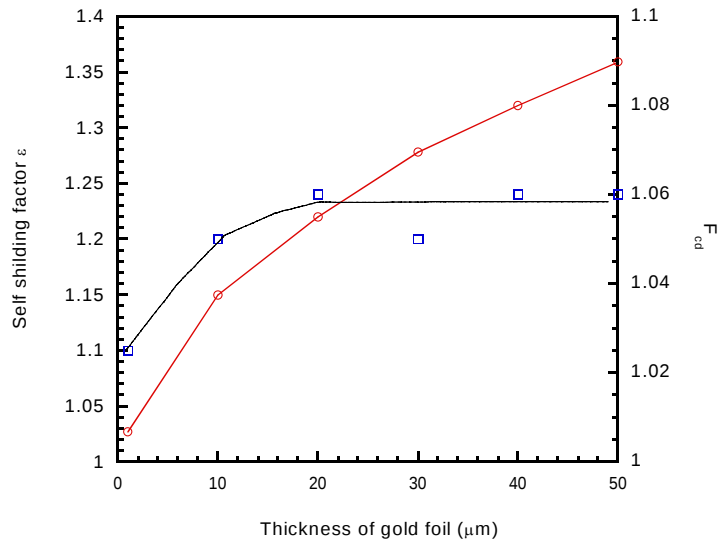


Fig. 5. MCNP4C 計算で求めた自己遮蔽因子(□)、カドミウムカバー補正因子(○)。

20、30、40 及び 50 μm で行い、得られた自己遮蔽因子 ε 、カドミウム補正因子 F_{Cd} を Fig.5 に示す。
20 μm 金箔に対する自己遮蔽因子及びカドミウム補正因子は、それぞれ 1.22 及び 1.06 が得られた。

環境の中性子測定

我々は被爆試料保管室のある、海拔およそ 250m の広島大学大学院工学研究科 A3 棟の 10 地点において環境中性子測定を行った。測定は棟中心の地階から屋上までの 8 点及び保管室のある 6 階西端と比較のために東端の 2 点である。また更に、海拔およそ 60m の広島大学原爆放射線医科学研究所においても、被爆試料保管室及びその周辺 2 点(装置運転室及び照射室隣室)で測定した。原医研においては ^{252}Cf 中性子照射装置(7.14GBq)が設置されている。そのため、照射装置の稼働時、非稼働時についても測定した。

結果と考察

比例計数管の校正

金箔中の熱中性子による誘導放射能 0.153Bq ($\pm 3\%$) より熱中性子束は $4.2 \pm 0.5 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ と見積もることが出来た。この値と ^3He カウンターの計数率 $147.9 \pm 0.5\text{cps}$ より ^3He カウンターの測定効率は等方照射に対し 0.27、平行ビームに対し 0.99 の値が得られた。

工学研究科における環境中性子測定

工学研究科の測定結果を熱中性子束に換算した値を Fig.6(a)及び(b)に示す。環境中性子線束は階数とともに増加する傾向が認められる。地階の中性子線束が最も小を示し、地階から屋上までに $0.00017\text{--}0.00092 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ と変化した。これは床の遮蔽効果のためと考えられる。類似した傾向は 6 階の東と西端の測定結果である Fig.6(b)でも見られ、中心部で低く、建物のはずれでは高くなっている。これらの値は UNSCEAR に報告されている $0.008 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ と比較すると小さい値を示している。

花崗岩コアと鉄鋼材の被爆試料を保管している 6 階東端の部屋では、熱中性子線束として $0.00071 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ が得

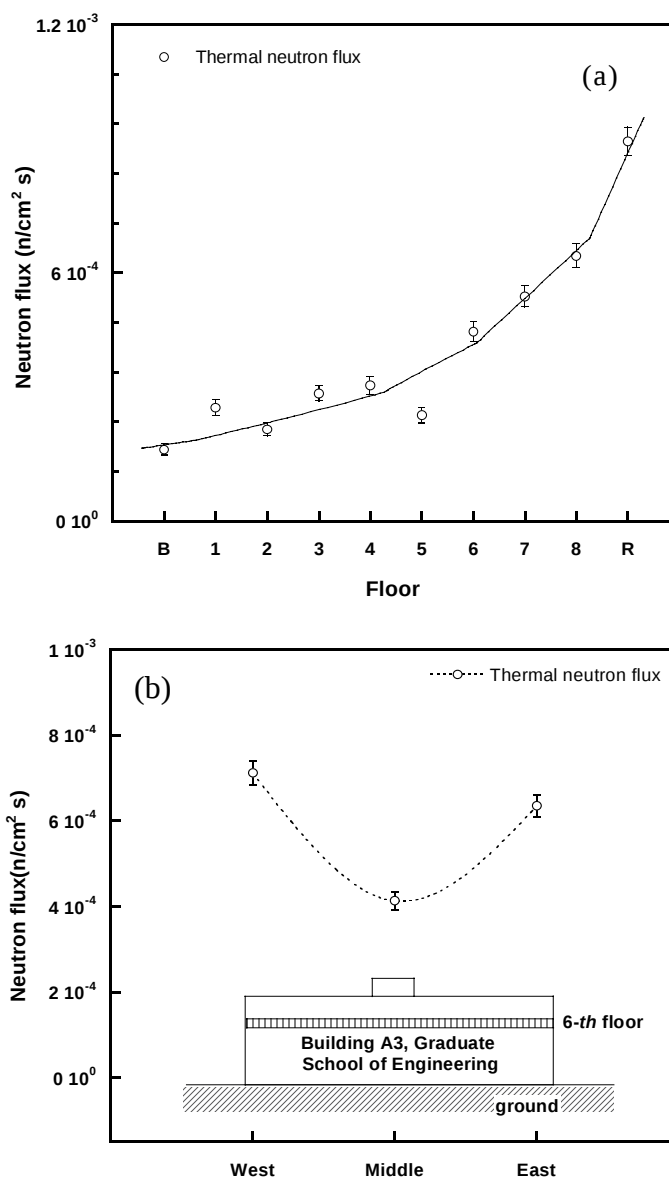


Fig. 6. (a): 工学研究科の環境熱中性子線束の階依存性 . (b): 被爆試料保管室のある 6 階での位置依存性 .

られた。鉄材中に $^{59}\text{Co}(\text{n}, \gamma)$ 反応を通して誘導される ^{60}Co 放射能は 0.27 mBq/gCo と見積もられる。原爆被爆試料の測定にどの程度寄与するか評価するために、原爆中性子誘導放射能に行う崩壊補正を行ったところ 487 mBq/gCo であると推定された (Table 1)。同様に、花崗岩コアに $^{151}\text{Eu}(\text{n}, \gamma)^{152}\text{Eu}$ 反応で誘導される ^{152}Eu 放射能は 7.9 mBq/gEu と見積もられ、更に原爆被爆時換算で 147 mBq/gEu と推定される。これらの値は、DS02 計算の 1200m での評価値 $1.13 \times 10^4 \text{ mBq/gCo}$ 及び $9.91 \times 10^4 \text{ mBq/gEu}$ と比較した場合、それぞれ 1/20 及び 1/670 と無視できる。

Table. 1 環境中性子によって誘導される ^{60}Co および ^{152}Eu 比放射能 . 2001 年に測定を行った際の比放射能を原爆被爆当時への崩壊補正を行い比較した . 統計誤差は $\sim 8 \%$ 、系統誤差は $\sim 20 \%$ である .

	^{152}Eu activity induced by background neutron	DS02 calculation
$^{60}\text{Co}/\text{Co}$	0.27 mBq/gCo	5.5 mBq/gCo
$^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$	7.9 mBq/gEu	$5.3 \times 10^3 \text{ mBq/gEu}$

原医研における環境中性子測定

原医研測定の結果を Fig. 7 に示す。核分裂中性子照射装置非稼働時の中性子線束は、工学研究科 6 階被爆試料保管室での値とほぼ同じであった。照射装置稼働時には運転室の線束は、非稼働時の 10 倍高い結果となった。原医研被爆試料保管室の中性子線束は、照射装置稼働時におよそ 22% 高くなり照射装置の影響があることが示された。しかしながら、この効果は照射装置常時稼働している場合である。実際には、照射装置の使用条件である週最大 40 時間を考慮すると最大でも 5% 以下と見積もられる。

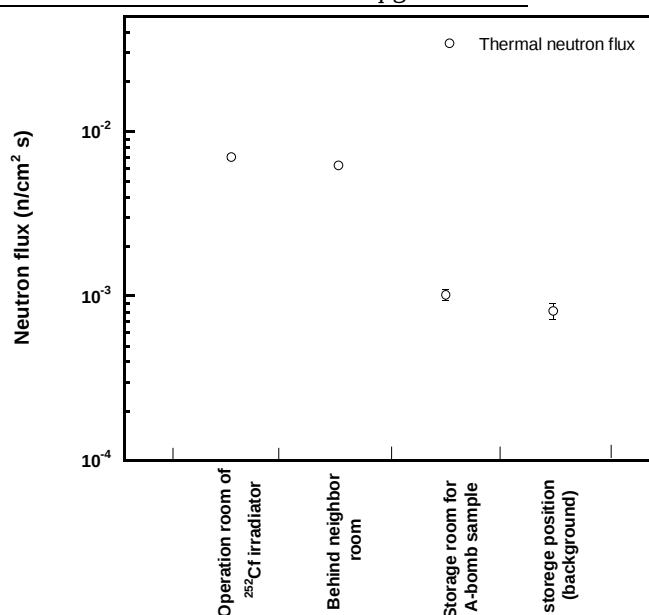


Fig. 7. 原医研被爆試料保管室近傍の稼働時の環境中性子束 .

石川によるガス比例計数管データとの比較

広大原医研石川は、同種のガス比例計数管を用いて、試料採取場所近くでの環境中性子測定を行った。データを Table 2 にまとめる。中性子束はおよそ $6\text{-}9.7 \times 10^{-4} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ であり本測定の値と同様の

Table 2. 石川等によるガス比例計数管の結果.

Location		Measuring time (sec)	Count	Thermal neutron flux ($1/\text{cm}^2/\text{s}$)	^{152}Eu activity induced (mBq/gEu)	Error (mBq/gEu)
Rooftop at RIRBM	5F	50,913	2,648	9.16×10^{-4}	10.3	0.2
		412,232	21,247	9.08×10^{-4}	10.2	0.07
Higashi-Senda (Old Fac. Science)	Ground	3,600	188	9.20×10^{-4}	10.3	0.75
		3,600	200	9.79×10^{-4}	11.0	0.78
Rooftop at Takeichi clinic	5F	3,600	123	6.02×10^{-4}	6.77	0.61
Roof at NHK building	27F	3,600	142	6.95×10^{-4}	7.82	0.66
		3,600	146	7.14×10^{-4}	8.04	0.67
		3,600	175	8.56×10^{-4}	9.63	0.73

結果が得られている。

小村による金放射化データとの比較

金沢大 LLRL の小村は、金シートを用いた環境中性子線による誘導放射能を、極低バックグラウンド Ge 検出器（尾小屋）を用いて測定した。試料となる金シート(厚さ 0.1mm、質量 ~ 12g)を広島大学、長崎大学へ配布し、およそ 3 週間保管し、カドミウムカバーし金沢大学へ送り返した。 ^{198}Au の半減期は 2.695 日であるので、飽和放射能の 99.5%となる。測定結果を Table 3 に示す。誘導放射能はおおよそ 50 ± 10 ^{198}Au atom/g-gold であった。0.1mm 厚の金の自己遮蔽因子として星等による 0.4 を仮定すると熱中性子束として $(8.8 \pm 1.0) \times 10^{-4}$ n/cm² s と見積もることが出来る。この値は、 ^3He 計数管による測定結果と矛盾しないことがわかる。

Table 3. 小村による金の放射化測定結果 .

					¹⁹⁸ Au atoms		Cd ratio	
Location		Target form	Irradiation	Target weight (g)	atom/g-gold error		atom/atom error	
Hiroshima	Nisseki Hospital	0.1mm sheet	bare	12.00	50.5	4.1	1.56	0.29
		0.1mm sheet	Cd-covered	12.07	32.2	5.3		
	Honkawa Prim. Sch.	0.1mm sheet	bare	12.00	41.7	5.1	1.4	0.30
		0.1mm sheet	Cd-covered	13.22	29.7	5.1		
	RERF	0.1mm sheet	bare	12.00	42.3	4.0	1.53	0.30
		0.1mm sheet	Cd-covered	12.00	27.7	4.7		
	Saijo	0.1mm sheet	bare	13.00	55.0	5.6	2.68	0.45
		0.1mm sheet	Cd-covered	12.59	20.5	2.7		
Nagasaki	Nagasaki U	grain	bare	20.03	55.5	7.0	1.60	0.46
		grain	Cd-covered	20.00	34.6	8.9		
Reference	LLRL	grain	bare	20.00	52.4	5.8		
	MRI, Tsukuba	0.7 mm plate	bare	11.50	77.6	11.4		

結論

^3He ガス比例計数管を 120kBq の ^{252}Cf 核分裂中性子線源を用いて測定効率の校正を行った。構成済みの計数管を用いて広島大学大学院工学研究科及び原爆放射線医科学研究所被爆試料保管室の環境中性子線の測定を行った。

環境中性子は工学研究科の建物で地下室から屋上までの 10 地点で測定したところ、環境中性子は熱中性子線束で $0.00017 - 0.00092$ n / cm²・s が得られた。被爆試料保管室での熱中性子束は、 0.00071 n/cm²・s であった。環境中の熱中性子で誘導される爆心から 1200m の被爆花崗岩、鉄材試料測定への寄与は、原爆当時換算した場合 ^{152}Eu と ^{60}Co 放射能について、それぞれ 1/650 及び 1/20 が得られた。

謝辞

実験を行うにあたり、広島大学原爆放射線医科学研究所先端放射線実験施設スタッフ及び工学研究科量子エネルギー工学研究室一同のご協力に感謝する。

REFERENCES

- 1) M. Yamashita, L.D. Stephens and H.Wade (1966) Patterson, Cosmic-ray-produced neutrons at Ground level: Neutron Production rate and flux distribution, J. Geophys. Res. 71, 3817-3834.

- 2) H. Schraube, V. Mares, S. Roesler and W. Heinrich (1999) Experimental Verification and Calculation of aviation route dose, *Radiat. Prot. Dos.* **86**, 309-315.
- 3) H. Kornmayer, H. H. Mielke, J. Enger and J. Knapp (1995) High-energy cosmic ray neutrons at sea level. *J. Phys. G Nucl. Part. Phys.* **21**, 439-447.
- 4) S. Endo, N. Tosaki, K. Shizuma, M. Ishikawa, J. Takada, S. Suga, K. Kitagawa, M. Hoshi (2000) Radioactivity of ^{51}Cr in stainless steel collected from residences in the JCO neighborhood, *J. Environm. Radioact* **50** (1-2), 83-88.
- 5) S. Endo, N. Tosaki, K. Shizuma, M. Hoshi (2000) Neutron dose equivalent estimation from the specific activity of ^{51}Cr , *J. Environm. Radioact.* **50** (1-2), 88-96.
- 6) K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, S. Endo, J. Takada, M. Hoshi, S. Fujita, T. Watanabe (1998) Residual ^{60}Co activity in steel samples exposed to the Hiroshima atomic-bomb neutrons, *Health Phys.* **75**(3): 278-284.
- 7) Nakanishi, K. Miwa and R. Ohki (1998) *J. Radiat. Res.* **39**, 243-250.
- 8) K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka and H. Morishima (1993) Residual ^{152}Eu and ^{60}Co activities induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb, *Health Phys.* **65**, 272-282.
- 9) United Nations Science Committee on the Effects of Atomic Radiation (1988) Sources, effects and risks of ionizing radiation. New York: United Nations. P.107.
- 10) Shizuma, K., Fukami, K., Iwatani, K. & Hasai, H., Low-background of Ge detectors for the measurement of residual ^{152}Eu radioactivity induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb, *Nucl. Inst. Method.* **B66**, 459-464, 1991.
- 11) Briesmeister, J. F. (Ed.) (2000) Los Alamos National Laboratory (Los Alamos, NM, USA) report LA-13709-M.

放射化学的手法による $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応の励起関数の測定

高宮幸一*

京都大学原子炉実験所

[はじめに]

銅に速中性子を照射した際に起こる反応 $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ は、速中性子線量の見積りに利用することができる。この反応で生成する ^{63}Ni は γ 線を放出せず、低エネルギーの β 線 ($Q_\beta = 67 \text{ keV}$) のみを放出して壊変する。このため放射能の測定および定量は容易ではないが、半減期が約 100 年と長いので、原爆により放出された速中性子線量の見積りには非常に有効である。しかし定量的に線量を得るためにはこの反応の励起関数が必要であるが、 ^{63}Ni の定量の困難さゆえに励起関数に関する実験データは少なく、その実験値の誤差および実験値間の相違は大きい^{1, 2)}。そのため統計モデル計算による評価済核データである JENDL-3.3³⁾, ENDF/B-VI⁴⁾, FENDL/A-2.0⁵⁾ による励起関数にも相互に不一致が見られる。そこで原爆から放出される速中性子線量の見積りにあたって、特に影響の大きいエネルギー領域 ($E_n < 7 \text{ MeV}$) での励起関数を詳細に得るために、銅試料に対する速中性子の照射実験を行った。

[実験]

照射実験は東北大学高速中性子実験室(FNL)の 4.5 MV ダイナミトロン加速器を用いて重陽子もしくは陽子を加速し、重水素もしくは三重水素を吸蔵したカドミウム箔に照射し、 $\text{D}(d,n)$, $\text{T}(d,n)$, $\text{T}(p,n)$ 反応で生成する速中性子を銅試料に照射して行った。計 7 回の照射実験を行ったが、照射には二種類の方法を用いた。まずひとつの照射実験は、中性子源のまわりに銅板 ($20 \text{ mm} \times 20 \text{ mm} \times 1 \text{ mm (t)}$) を配置することにより行った。もうひとつの照射実験では、中空の銅球をその中心が中性子源となるよう配置し、銅球の内側から中性子の照射を行った。銅球の大きさは 1 回目と 2 回目の実験では外径が 60 mm のものを、3 回目の実験では 80 mm のものを、そして 4 回目の実験では 110 mm のものを用い、すべての実験において銅試料の厚さは 3 mm のものを用いた。これらの銅球は中性子源からの立体角が等しくなるようあらかじめ分割されており、分割された各照射試料は同じ中性子エネルギーで照射される。銅試料には純度の高い無酸素銅を用いた。図 1 にこれらの照射実験における照射試料などの配置を示す。また 7 回の照射実験における照射条件を表 1 に示す。

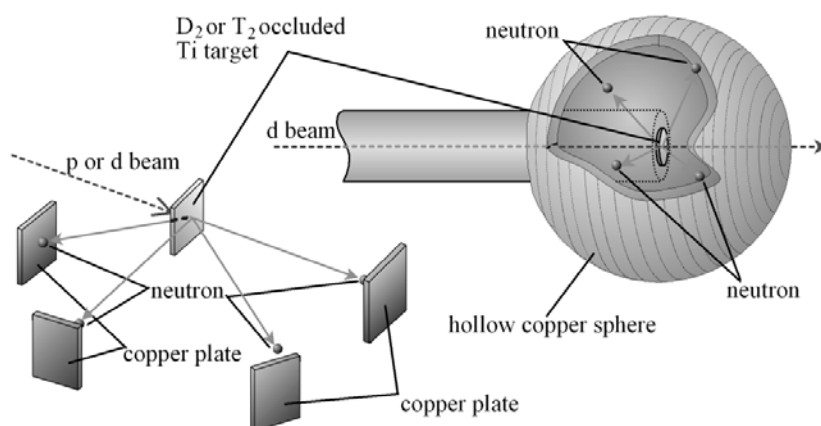


図 1 銅板 (左側) および中空銅球 (右側) を用いた照射実験における中性子源および銅試料の配置。

* TAKAMIYA Koichi, Kyoto University; takamiya@HL.rri.kyoto-u.ac.jp

表 1 銅の照射実験に用いた試料の形状、中性子生成反応、および中性子エネルギー．

ID	shape	reaction	E_n (MeV)
1	plate	$D(d,n)^3\text{He}$	1.8 - 6.46
2	plate	$T(d,n)^4\text{He}$	13.43 - 14.85
3	plate	$T(p,n)^3\text{He}$	0.35 - 1.55
4	sphere	$D(d,n)^3\text{He}$	1.88 - 6.73
5	sphere	$D(d,n)^3\text{He}$	1.75 - 6.58
6	sphere	$D(d,n)^3\text{He}$	1.75 - 6.58
7	sphere	$D(d,n)^3\text{He}$	1.77 - 6.48

銅試料に照射される中性子のエネルギーは、加速器からのビームに対して 0° 方向に放出される中性子のエネルギーをプラスチックシンチレーションカウンターを用いた飛行時間測定法により求め、その値をもとに幾何学的な計算により各銅試料に照射された中性子エネルギーを見積もった。また照射を行ったすべての銅試料の内側と外側には Ni 箔 ($5\text{ mm} \times 5\text{ mm} \times 1\text{ mm}$ (t)) を中性子モニターとして貼付し、 $^{58}\text{Ni}(n,p)^{58}\text{Co}$ で生成する ^{58}Co を定量することにより、照射した中性子線束を見積もった。中空の銅を用いた照射では、銅試料中の位置に依存せず中性子線束が均一であることを確認するために、Ni 箔を 4 箇所貼ることにより一試料あたり 8 箇所での中性子モニターを行った。ただし 7 回目の銅球を用いた照射実験では、飛行時間測定によって $D(d,n)$ により放出される中性子以外に $^{12}\text{C}(d,n)$ による中性子のスペクトルが観測されたので、Ni モニターによる中性子線束の見積もりの際に $^{12}\text{C}(d,n)$ の寄与を計算によって見積もることで、 $D(d,n)$ 反応による中性子の線束を得た。

照射後、試料中に生成した ^{63}Ni を定量するために、化学分離により銅試料から Ni 成分を単離した。化学分離の手順は以下のとおりである。1) 混酸 ($\text{HNO}_3\text{:H}_2\text{SO}_4\text{:H}_2\text{O} = 3\text{:}4\text{:}16$) に銅試料を溶解し、Ni 1 mg と Co 5 mg をキャリアとして加えた。2) 無酸素銅板を陰極、白金線を陽極として、3 V の定電圧で溶液を電気分解した。これによって溶液中のほとんどの銅を銅板へと析出させた。3) 溶液に水酸化ナトリウムを加えることで溶液をアルカリ性とし、Cu, Ni, および Co を水酸化物として沈殿させ、ろ過により沈殿を回収した。4) 沈殿を温水で洗浄した後に 6 N HCl に溶解し、陰イオン交換樹脂 DOWEX 1X8 (100 – 200 mesh) に着点し、9 N, 4 N, および 0.1 N の HCl でそれぞれ Ni, Co, および Cu を分離、溶出した。5) Ni 溶液を一旦蒸発乾固した後に少量の 1 N HCl に溶解し、25% NH_4OH を加え pH 8 に調製した。これにジメチルグリオキシム/エタノール溶液 (0.5 g/50 mL) を加えることにより生成した Ni 錯体をクロロホルムによって抽出し、さらに 1 N HCl で逆抽出を行うことで Ni を精製した。6) Ni 溶液に濃硝酸を加えて加熱することにより溶液中の有機物などの不純物を除去し、最終的に塩酸溶液として Ni を調製した。Ni フラクションと Co フラクションから一部を分取し、ICP-AES によりその濃度を測定し、化学収率を求めた。どちらの化学収率もほとんどの試料について 60 – 100% であったが、特に収率の低いものについては最終的に反応断面積のデータから省いた。Co フラクション中には $^{63}\text{Ni}(n,\alpha)^{60}\text{Co}$ によって生成した ^{60}Co が存在するので、Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリを行うことで放射能を測定し、化学収率を考慮して照射によって生成した ^{60}Co を定量した。

^{63}Ni の β 線測定は、東京大学アイソトープ総合センターにおいて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。 β 線測定のための液体シ

ンチレーターカクテルは、試料の塩酸溶液を蒸発乾固し 1 mL の水で希釈し、5 mL の液体シンチレーター(clearsol-I)を加え攪拌することで調製した。また各試料の測定条件(Ni 濃度)でのクエンチング効果を見積もるために、さまざまな濃度の Ni 溶液に ^{63}Ni 標準溶液を添加した溶液を調製し、前述の液体シンチレーターカクテルと同様の方法でカクテルを調製し β 線の測定を行った。クエンチング効果を含んだ検出効率 は 50 – 60%程度であった。

[結果]

液体シンチレーションカウンターによる β 線測定で得られたスペクトル、クエンチング効果を含むその検出効率、Ni モニターの測定により得られた中性子束、および ICP-AES での測定により得られた化学収率から各試料における ^{63}Ni の存在量を見積もり、照射終了時からの核壊変の補正を行うことで各照射エネルギーに対する $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の反応断面積を求めた。すべての実験から得られた $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の励起関数を図 2 に示す。銅板を用いた照射実験の結果を四角で、中空の銅球を用いた照射実験の結果を丸で示している。また実線、破線、および一点鎖線はそれぞれ JENDL-3.3、ENDF/B-VI、および FENDL/A-2.0 による計算結果を示している。それぞれのデータにおける横軸方向の誤差棒は、銅試料に照射された中性子エネルギーの範囲を示している。

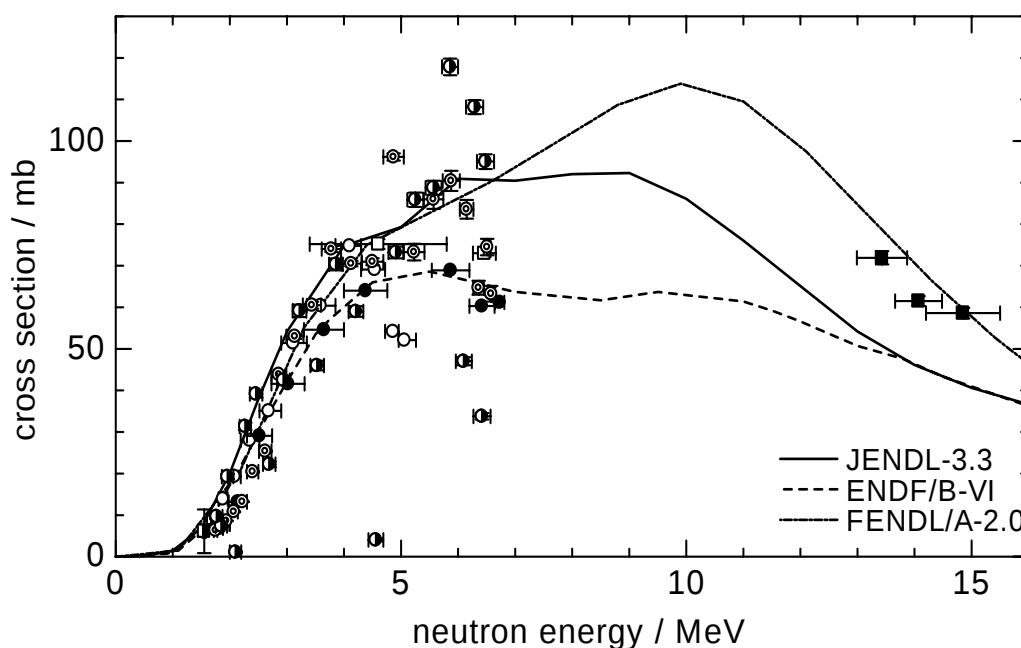


図 2 すべての実験により得られた $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の励起関数。四角が銅板を用いた照射実験の、丸が中空の銅球を用いた照射実験の結果を示す。線は統計モデル計算による励起関数を示す。

[考察]

図 2 の励起関数測定の結果をみると、各照射実験において中性子エネルギーが比較的低い領域($E_n < 5$ MeV)では再現性の高い結果が得られた。しかしエネルギーの高い領域(5 – 7 MeV)ではデータ間の差異が大きく、すべての実験において中性子エネルギーが高くなるにつれて反応断面積の値が大きくなり、照射した中性子の最大エネルギーが近づく値が小さくなる傾向が見られることがわかった。この傾向は、照射の際に中性子源と銅試料の設置位置が本来の位置と異なる場合に、照射される中性子

エネルギーが計算値と実際の照射実験とで異なること、もしくは中性子の照射の際に銅試料により散乱された低エネルギーの中性子と銅試料との反応に起因するものではないかと推測し考察を行った。

まず、照射を行った銅試料の位置が銅試料の本来の位置と異なる場合に、実験結果にどの程度影響を与えるかを計算により見積もった。例として照射する中性子の最大エネルギーが 6.5 MeV であり、外径 80 mm の中空の銅球を用いた照射実験において、試料の位置がビーム軸方向に 2 mm 上流側もしくは下流側に移動していた場合に得られる反応断面積の値と、正しい反応断面積の値の比を図 3 に示す。この結果から、わずかな試料位置の差が、実験によって得られる反応断面積の値に大きな影響を与え、照射するエネルギー領域の最大値と最小値の付近で差異が最も大きくなることがわかった。このような傾向は試料の照射位置を、ビーム軸に垂直な方向へ移動させて計算した結果でも同様に現れるので、本実験のような試料配置では照射エネルギーの高い領域と低い領域で誤った断面積が観測される可能性もあることがわかった。また、銅試料による中性子の散乱の影響をモンテカルロ法によって計算したが、散乱中性子との反応の結果生じる ^{63}Ni は非常に微量であり、反応断面積の測定には影響しないことがわかった。

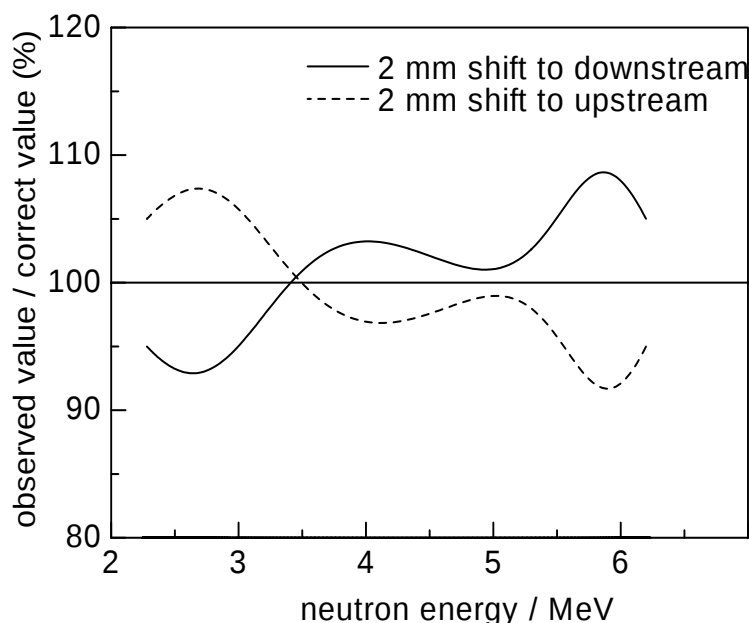


図 3 照射する銅試料の位置が本来の位置からビーム軸方向に 2 mm 移動した際に観測される反応断面積と本来得られる反応断面積の比。

そこでこれまでの実験で得られた反応断面積の値のうち、照射実験に用いた中性子エネルギーの高い領域と低い領域のデータ、および前述した低い化学収率でのデータなどを削除し、信頼性の高いデータのみを抽出した。この結果得られた励起関数を図 4 に示す。図中の ▲ は Tsabaris らの実験結果を、

は Qaim らの実験結果を示す。本実験の結果を統計モデル計算の結果と比較すると、中性子エネルギーが 4 MeV より大きい領域においては、ENDF/B-VI よりも JENDL-3.3 および FENDL/A-2.0 に近い傾向がみられた。4 MeV より小さいエネルギー領域においては、JENDL-3.3 の値が本実験の結果に最も近いことがわかった。しかし、原爆から放出される速中性子線量の見積もりに大きな影響を与える低エネルギー領域の中性子に対する反応断面積の値は、どの統計モデル計算の結果を用いても実験値との大きな差異はないことが明らかとなった。

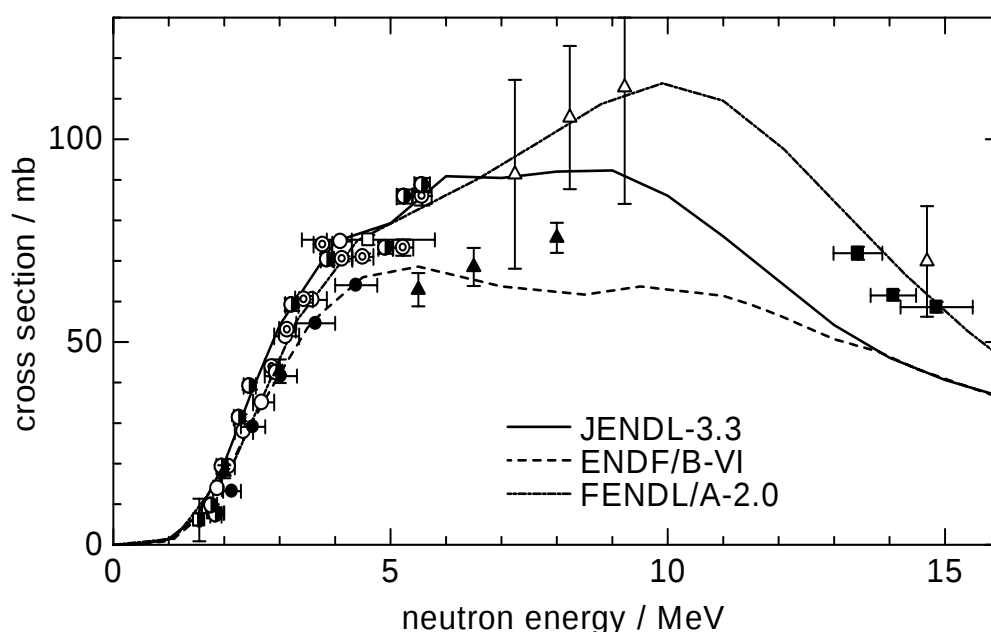


図4 不確実と考えられるデータを削除した $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の励起関数．
 ▲は Tsabaris らの実験結果を、△は Qaim らの実験結果を示す．

[まとめ]

二種類の照射方法による計7回の銅試料の中性子照射実験を行い、 $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ の反応断面積について多くの実験データを得た。これらのデータをもとに実験値の妥当性の検討を行い、 $E_n < 6$ MeV および $E_n \sim 14$ MeV のエネルギー領域において $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応の詳細な励起関数を得た。得られた実験結果は、原爆から放出される速中性子線量の見積もりに大きく影響するエネルギー領域において、JENDL-3.3 や ENDF/B-VI などの統計モデル計算による励起関数と大きな差異はなく、ENDF/B-VI を用いた DS02 における $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 反応による速中性子線量の検証が妥当であることがわかった。

[参考文献]

1. Tsabaris, C., Wattecamps, E., Rollin, G., and Papadopoulos, C., Nucl. Sci. Eng., 128, 47-60 (1998).
2. Qaim, S. M., Spellerberg, St., Cserpák, F., and Csikai, J., Radiochim. Acta, 73, 111-117 (1996).
3. Shibata, K., Kawano, T., Nakagawa, T., Iwamoto, O., Katakura, J., Fukahori, T., Chiba, S., Hasegawa, A., Murata, T., Matsunobu, H., Ohsawa, T., Nakajima, Y., Yoshida, T., Zukeran, A., Kawai, M., Baba, M., Ishikawa, M., Asami, T., Watanabe, T., Watanabe, Y., Igashira, M., Yamamuro, N., Kitazawa, H., Yamano, N., and Takano, H., J. Nucl. Sci. Technol., 39(11), 1125-1136 (2002).
4. Cross Section Evaluation Working Group, ENDF/B-VI Summary Document, Report BNL-NCS-17541 (ENDF-201) (1991).
5. Pashchenko, A. B., Wienke, H., Kopecky, J., Sublet, J.-Ch., and Forrest, R. A., "FENDL/A-2.0, Neutron Activation Cross Section Data Library for Fusion Applications," IAEA-NDS-173, Rev. 1 (October 1998).

花崗岩中水分の測定

- 原爆中性子線量の再評価に関連して -

岩谷和夫*（広島県立保健福祉大学）

葉佐井博巳（広島国際学院大学）

静間清（広島大学大学院工学研究科）

星正治、遠藤暁（広島大学原爆放射線医科学研究所）

岡隆光（呉大学）

今中哲二（京都大学原子炉実験所）

1．まえがき

私達は原爆中性子再評価研究の一つとして、広島爆心地から 128 m の距離にあった元安橋の橋柱岩石をくり貫いて、中性子誘導放射能 ^{152}Eu の岩石中深さ分布を測定した¹⁾。またその一方で中性子輸送計算コード MCNP を用いて、橋柱の場所での中性子分布を 1986 年線量システム DS86 で計算されたもので仮定して岩石中の ^{152}Eu の深さ分布を計算し、実測分布と比較検討した²⁾。この際、岩石の主組成成分量が計算に必要であるが、特に、水成分量(含水率)については、水素と中性子との反応断面積が大で水素の中性子減速効果が大きいため、正確に見積もる必要が生じた。この課題について、二、三の実験を基に岩石の基本的な含水特性を調べて含水率を見積もり、中性子輸送計算に供したので、その考え方と手法を報告する。

2．見積もり方針の設定

長い年月屋外に置かれた橋柱について 50 年以上前に戻って含水率を推定すること、並びに、そのサイズが $82.5 \times 82.5 \text{ cm}^2$ の水平断面を持ち高さが 179 cm という大きな橋柱岩石の各部の含水率を推定すること、は極めて困難な課題である。

そこで私達は、次の 2 つの仮定を設けるとともに、地球化学分野での含水率の取り扱いを詳細に検討し、かついくつかの実験を行って含水率を推定することにした。

2.1 仮定

「橋柱岩石の含水特性はこの 50 数年間に変化していない。」

橋柱は一体の花崗岩から成っていて、雨水・露等による濡れと日射・風による乾燥を繰り返し経験しており、柱の極く表面では何らかの風化が進行している。しかし 50 数年という年月は岩石全体が風化作用を受けて変化する期間としては、無視できるほど短いと考える。また、被爆直後に元安橋周辺で起こった火災による橋柱の加熱変化も少なかったと仮定する。

2.2 仮定

「橋柱の一部小サンプル片に関するデータから橋柱ブロック全体の含水率を推定する。」

* IWATANI Kazuo, Hiroshima Prefectural College of Health Sciences; iwatani@hpc.ac.jp

含水率測定用サンプルには、 ^{152}Eu γ 線測定用の円盤状サンプルと主成分分析用の扇形サンプル(文献 1 に詳細な記述がある。)を用いた。これらのサンプルの外見観察と主成分分析結果によれば、橋柱岩石の組成はその内部でほぼ均一と考えてよい。含水率の橋柱深さ分布は求めず、複数の小サンプルの測定実験から含水率の上・下限を決めることにした。

2.3 吸着水と化合水

水分のうち、吸着水($\text{H}_2\text{O}^{(-)}$)と化合水($\text{H}_2\text{O}^{(+)}$)はその概念および測定法が地球化学研究分野で確立している^{3,4)}。前者は鉱物粒子に吸着している層間水などの水分、後者は OH^- イオン、 H^+ イオンの状態で構造的に結合している水分とされている。これらの合計量は岩石の地質年代的研究において風化度の指標となっている。また花崗岩は、安山岩や玄武岩などに比較してこの水成分が少なく一般に含水率が約 1 % またはそれ以下と報告されている^{5,6)}。この二つの水成分は、20 年前までは重量法で、現在ではカールフィッシャー滴定法(2 炉法)により精度よく測定され、測定手順の詳細は JIS や ISO で定められている^{7,8)}。吸着水と化合水の区別は脱水温度によりなされる。前者はサンプルを常温から 105 ± 2 °C まで加熱した時に遊離する水分、後者は 105 °C から 950 ± 20 °C に加熱する時に遊離する水分である。

この測定法において注意すべき点は測定サンプルの調整にある。すなわち、測定サンプルとしては岩石ブロック自体ではなく、それを摩砕(100 メッシュ以下)して粉末とし、さらに吸湿水を除いたものを用いる。吸湿水の除去には普通デシケータ中にて乾燥剤で乾燥させる。(例えばシリカゲルで 4 日間以上) このように調整されたサンプルを対象とすることにより、環境因子を可能な限り除去し、岩石種固有の含水特性を引き出す工夫がなされているのである。

2.4 対象とする岩石と方針

さて、私達が対象としているサンプルは岩石ブロック自体である。従って上に述べた水成分に加えて他に何らかの水成分がありそうである。あるとしたらどのような成分であろうか。またそれを定量する方法はあるだろうか。そこで私達は、これらに関するいくつかの実験を試みるにより水成分の種類を明確化し、その基礎に立って橋柱内水分全量を推定することにした。

3 . 特性実験とその結果

上記の仮定に基づいて行った含水特性実験とその結果について記述する。

3.1 岩石の吸湿特性

岩石の含水量は大気湿度の変化によってどの程度の影響を受けるであろうか。このことを調べる目的で、二つの円盤状サンプル(文献 1 の南北ぬきサンプル番号 No.3 と No.11 , 直径 6.8 cm 厚さ 1.8 cm) を空調していない室内に放置して重量変化を測定した。重量の測定には 1 mg 精度の電子天秤を用いた。測定期間は 11 日、この間の平均気温は 25 °C であった。測定は 1 サンプル当たり 10 回行い、この間の湿度変化 60% - 90% に対して重量変化は 0.007% と極めて少量であった。この結果から、ブロックサンプルを対象とする以下の実験・考察において、大気湿度の変化による影響は無視してよいことが判明した。ただし、粉末サンプルの場合には吸湿量は多く、他の水成分と比較して無視できない。

吸湿および乾燥の時間的速さはブロックサンプルの 表面積 / 体積 比にほぼ比例すると考えられる。

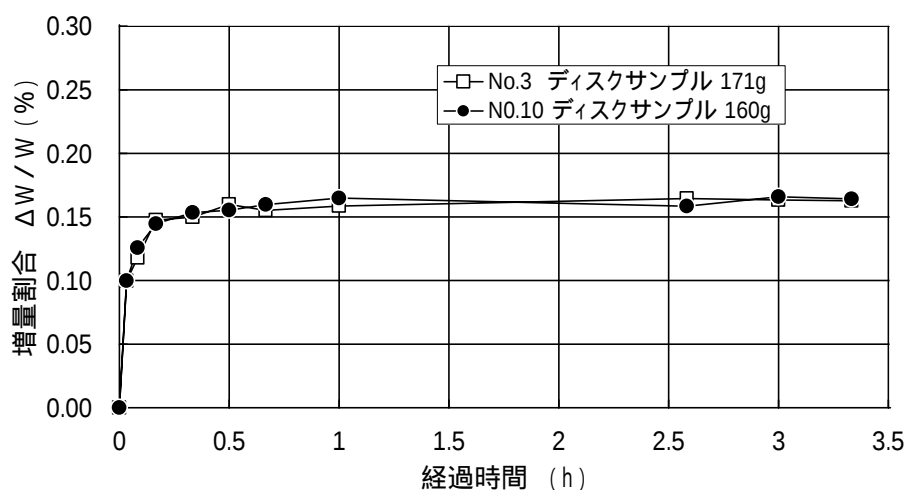


図1 浸水増量テスト - 元安橋橋柱サンプル -

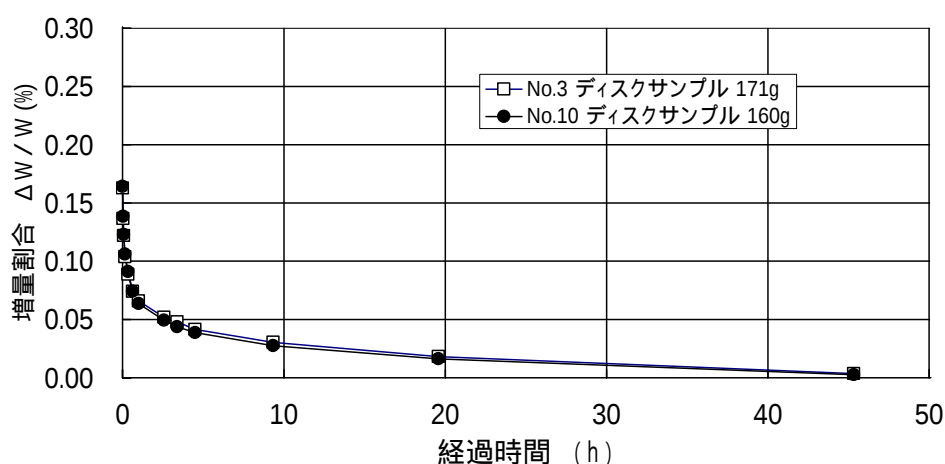


図2 浸水後室内放置乾燥テスト

従って測定に用いたサンプルに比較して圧倒的に大きな橋柱の場合には、表面積 / 体積 比 はより小さく(約 1/20)、大気湿度の影響はさらに微小であると考えられる。

3.2 岩石の吸水・乾燥特性

雨・露などにより岩石表面が濡れたときの吸水特性、およびその後の乾燥過程について調べるため、簡単なモデル実験を行った。その方法は、円盤状のブロックサンプル全体を水に浸し、その後室内に放置して変化を見るというものである。サンプル No.3 と No.11 を水に浸した時の経過時間毎の重量変化(吸水量)を図 1 に示す。図の曲線から、浸水開始より 1 時間後にはほとんど飽和していることが分かる。そして飽和値は 2 つのサンプルについて同量で $0.16 \pm 0.01\%$ であった。ここで特徴的なことは、浸水開始の 5 分後にはすでに飽和値の 75%、10 分後には 90% に達している点である。この吸水特性は、水が毛細管現象により急速に岩石のひび・割れ目に浸透したことを示している。岩石のひび・割れ目は岩石生成時においてすでに存在し(特に石英の場合)その後の風化によっても発生するとされている。以下この水のことを浸透水と呼ぶことにする。

次に、浸水開始から 3 時間 20 分後にこのサンプルを水から引き上げ、室内(気温 26、湿度 65%)で放置した時の重量変化を図 2 に示す。吸水特性と同様この場合も 2 つのサンプルで全く同一の乾燥特性を示した。このことから仮定に述べた岩石組成の均一性が確かめられる。

放置開始後 3 時間で約 70% の浸透水が大気中に逃げることが図より分かる。また、このあと長時間放置したままにしたところ、数日でほぼ浸水前の状態に戻った。

吸水または乾燥の 70% の変化に要する時間を時定数と呼ぶことにすれば、乾燥時定数はこの場合吸水時定数の 30 倍以上である。両時定数のサンプルサイズ依存性を調べるため、このサンプルと同種類の重量の異なる(約 1:2)非被爆花崗岩で同様の実験をした。結果は、両サンプルで吸水時定数はほとんど変化しないのに対し、乾燥時定数は重量にほぼ比例した。このことから、橋柱全体については、両時定数の比はさらに大きな値(数 100 以上)をとるものと考えられる。これらの事実から、次のような定性的ではあるが重要な知見が得られた。

「雨や露などが橋柱表面に付着した時、岩石内部に浸透する速度は速く、乾燥は遅い、つまり浸透水が内部で保持される傾向が存在する。その保持量は降雨、降雪の頻度に依存する。」

ところでこの結論に拘わらず、この吸水・乾燥実験はもう一つの知見を与える。それは、岩石が再び濡れない限り、浸透した水は常温常湿環境中でその全量が脱水されることである。これは、浸透水が以下に述べるような岩石ブロックを構成するに必要な吸着水とは基本的に異なることを意味し、たんに岩石のひび・割れ目に浸透した水であるとする描像の適切さを証明している。

3.3 サンプルのデシケータ中乾燥実験

円盤状サンプル(文献 1 の東西ぬきサンプル番号 No.15 と No.24, 直径 6.8 cm 厚さ 1.8 cm)をデシケータに入れてシリカゲルで強制的に乾燥させ経過時間毎の重量変化を調べた。ただしこのサンプルは、この実験開始前の少なくとも 100 日間室内に放置していたので、浸透水は含まれていないと考えられる。

実験結果は両サンプルで同一で、5 日間で 0.05%、18 日間で 0.08% 脱水された(図 3)。この方法では容易に完了しないことが分かった。

次に、脱水したサンプルを室内に放置すると、脱水中止時の重量からほとんど変化は無く、50 日間経ても 0.005% の重量変化しか認められなかった。つまり、18 日間の強制脱水により 0.08% の水が失われ、常温常湿環境中では脱水前の状態に回復しないという結果になった。なお、粉末サンプルについて同様の脱水・吸湿実験を行って相違を見た。脱水・吸湿量はいずれも約 0.10% で、この間に失われる水は 0.01% 以下であり、関与した水の大部分は吸湿水であったことがうかがわれる。

さて以上のことから、ブロックサンプルについてここで問題としている水成分が浸透水や $H_2O^{(・)}$

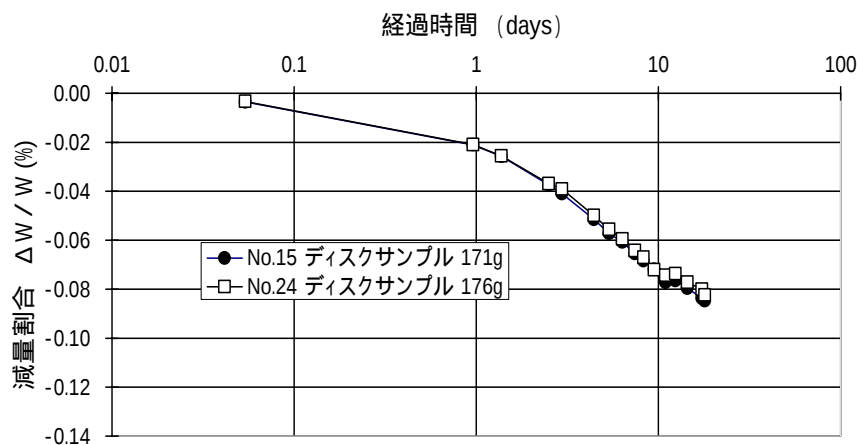


図3 デシケータ乾燥テスト

とも性質を異にするものであることは明らかである。 $H_2O^{(-)}$ が微粉末鉱物結晶などに含まれるミクロな層間水とすれば、この水成分は粗粒鉱物または鉱物間に存在するマクロな層間水と考えることができる。この種の水成分を以後粗粒吸着水と呼ぶ。他のサンプルを用いたデシケータ中乾燥実験から、橋柱サンプルの粗粒吸着水の下限は 0.10% であった。

4．ブロックサンプルに含まれる水の種類分け

以上 3 つの実験・考察の結果をまとめると次のように要約することができる。

- 1) ブロックサンプルについて、吸湿水は少量で無視できる。
- 2) ブロックサンプルに含まれる水の大部分は次の 4 種類、すなわち、浸透水、粗粒吸着水、吸着水($H_2O^{(-)}$)、化合水($H_2O^{(+)}$)で構成される。あるサンプルについてこれらの重量をそれぞれ順に、 W_p , W_b , W_- , W_+ とし、その和を W_{H_2O} 、水以外の成分の重量を W_s 、サンプル全重量を W_0 とすれば、次式が近似的に成り立つ。

$$W_0 = W_s + W_{H_2O}$$

$$W_{H_2O} = W_p + W_b + W_- + W_+$$

- 3) 橋柱サンプルについて浸透水 W_p の被爆時の量を推定することは至難である。ここでは

飽和浸透水の測定量が分かっている(3.2 節)ので、 W_{H_2O} としてこの値を加えない場合

と加える場合の 2 値を示し、それぞれ下限と上限を与えることとする。

5． W_{H_2O} の定量

5.1 $W_b + W_-$ の定量

粗粒吸着水(W_b)がデシケータ乾燥の方法ではその下限しか求まらないことをすでに述べた。そこで W_b を定量する代わりに次に述べる W_b と W_- との和で求める乾燥方法を採用した。

これは、ブロックサンプルを粉砕して全量を 105℃ 加熱乾燥し、その前後の重量変化を測定するものである。まず、ブロックサンプルは 60 日以上室内で放置乾燥させる。これにより浸透水は全量除去されたと考える。このサンプルの重量 W_1 を測定したあと厚いビニール袋中で粉砕し、注意深い操作によりサンプル全量を秤ピンにとる。秤ピンに入れた微粒サンプルを高温加熱槽で 105℃ に熱し、減量が恒量となった時(約 4 時間)のサンプル重量を測定する。これを W_2 とする。 W_1 と W_2 はそれぞれ次式で表される。

$$W_1 = W_s + W_b + W_- + W_+$$

$$W_2 = W_s + W_+$$

従って両者の差は

$$W_1 - W_2 = W_b + W_- \quad (1)$$

と計算され、粗粒吸着水と吸着水($H_2O^{(-)}$)の和が求まることになる。

実際には、サンプルを粉砕する過程でビニール袋に強く付着して秤ビンに移せない微量の粉末があるので、その量を測って初期重量 W_1 にその分の補正を行った。また、粉砕は最大粒径 0.3 mm 程度になるまでしか行っていないため、 $H_2O^{(-)}$ 測定時のサンプル調整の状態(100 メッシュ以下)とは異なる。従って (1) 式には系統的誤差が含まれていると考えられる。

以上の手法を用いて 2 つの扇形サンプル(文献 1 のサンプル番号 E12 と E19 , 幅 2.0 cm 厚さ 1.8 cm)について行った測定の結果は次のとおりである。

$$\frac{W_b + W_-}{W_0} \times 100 \approx \frac{W_b + W_-}{W_1} \times 100 = 0.39\% \quad (E12)$$

$$= 0.23\% \quad (E19)$$

このデータを平均して、 $0.31 \pm 0.10\%$ を粗粒吸着水と吸着水($H_2O^{(-)}$)の和とする。ただし、誤差は重量測定誤差と粒径に関する系統的誤差を含む。

5.2 W_b の定量

5.1 節の結果から、次に述べる 5.3 節の W_- データを差し引くと粗粒吸着水(W_b)は 0.18% となる。

この量は下限値 0.10% と矛盾しない。

5.3 W_- と W_+ の定量

3 個の扇形サンプル(文献 1 のサンプル番号 W3, W12, W19)について、カールフィッシャー滴定法による W_- と W_+ の測定を、川鉄テクノリサーチ(株)(千葉市)に依頼した。その結果、3 個のサンプルについてそれぞれ順に、 $W_- (H_2O^{(-)})$ が $0.12, 0.13, 0.13\%$ 、 $W_+ (H_2O^{(+)})$ が $0.19, 0.20, 0.22\%$ であった。3 個のデータを平均して、橋柱のデータとして前者が $0.13 \pm 0.01\%$ 、後者が $0.20 \pm 0.01\%$ を得た。誤差は 1 つのデータに関する測定誤差 0.01% をそのまま平均値にも適用した。

5.4 合計含水率

浸透水を除く含水率は以上のデータを合計することにより $0.51 \pm 0.10\%$ と求められる。浸透水の最大値は吸水特性実験から $0.16 \pm 0.10\%$ であった。前にも述べたように、橋柱内における浸透水の保持量は環境因子で大きく変化し、また表面からの深さによっても異なるものと見られ、被爆当時の状態を再現して考察することは困難である。このため、被爆当時の橋柱の含水率として、上限・下限を設定するという考えに立てば、下限値は $0.51 \pm 0.10\%$ 、上限値は $0.67 \pm 0.10\%$ となる。中性子輸送計算には、結局、含水率としてこれらの中間値 0.59% を用いた。

6. 考察

岩石ブロック中の水分に関し、従来から知られていた鉱物中の水成分 2 種、吸着水($\text{H}_2\text{O}^{(-)}$)と化合水($\text{H}_2\text{O}^{(+)}$)に加えて、岩石表面が水に濡れたときに内部に浸透して保持される浸透水と、ブロック状態から粉末になる過程で遊離するマクロな吸着水(粗粒吸着水)を考慮する必要があることを示した。文献 2) で記述したように、この含水率を使った中性子輸送計算結果は、元安橋の ^{152}Eu 深さ分布について実測分布を完全には再現せず、実測凹分布よりやや浅い傾向を示した。著者の一人今中の予備的な計算によると、この分布の形は含水率に依存して変わり、たとえば含水率が 1.5 %程度であれば計算分布は実測分布をかなりよく再現することが分かっている。しかし今回の推定値 0.59 % は 1.5 % より十分小さく、また推定誤差もそう大きくないことから、計算と実測の違いは他の因子によるものと考えられる。例えば、岩石組成中計算で考慮した主組成成分 11 元素以外の中性子反応断面積が大きい微量元素の影響などである。

ここで取りあげたような岩石中の水分分析手法に関して、クロスチェックができる新たな手法開発を含め、さらなる発展が望まれる。

7. あとがき

広島原爆中性子の再評価研究に関連して、爆心地付近にあった大型花崗岩被爆試料(元安橋・橋柱)の中性子誘導放射能の深さ分布から中性子量を推定しようという試みがなされ、その過程で、岩石中の水分量をはかる必要が生じた。そこで、従来から地球化学分野で知られ確立している水分析手法($\text{H}_2\text{O}^{(-)}$ と $\text{H}_2\text{O}^{(+)}$)を詳細に検討するとともに、さらにその範疇に入らない別の、この研究で浸透水、粗粒吸着水と名付けた、2 種の水成分があることを、橋柱岩石片を用いた含水特性実験により導びき出した。この手法で求めた含水率値は中性子誘導放射能 ^{152}Eu の深さ分布計算に用いられた。

参考文献

- 1) H. Hasai et al., Health Physics, Vol. 53, No.3, pp. 227-239, 1987.
- 2) S. Endo et al., J. Radiat. Res., Vol. 40, pp. 169-181, 1999.
- 3) 日本鉱物学会編、「実験鉱物学」、共立出版 1966 年。
- 4) W.M. Johnson, J.A. Maxwell, Rock and Mineral Analysis 2nd ed., John Wiley & Sons, New York, 1981.
- 5) 柴田秀賢編、「日本岩石誌」、深成岩(2)、朝倉書店 1967 年。
- 6) 地学団体研究会編、「新地学教育講座 4、岩石」、東海大学出版会、1984 年。
- 7) 日本工業規格、鉄鉱石中の化合水定量方法、JIS M8211, 日本規格協会、1984 年。
- 8) 日本工業規格、マンガン鉱石中の化合水定量方法、JIS M8231, 日本規格協会、1982 年。

Measurement of Water Component in the Granite Rock

K. Iwatani, H. Hasai, K. Shizuma, M. Hoshi, T. Oka, S. Endo, T. Imanaka

Abstract: Concerning reevaluation research of the Hiroshima atomic bomb neutron, there was the necessity of measuring amount of moisture in the exposure rock. The moisture analysis technique which is ever known in the geochemistry field is examined in detail and the water-content characteristic experiments were carried. It was deduced that there were other two kinds of component of the conventional water content as a result.

陽子弾性散乱同時計数法による花崗岩の水素分析

小松原哲郎*、笹公和、石井聡、大和良広、宮川一尚、佐藤健一郎

(筑波大学 研究基盤総合センター応用加速器部門)

黒澤正紀

(筑波大学 地球科学系)

広島原爆による中性子の放射線量は、現在でも放射性同位元素として残存する ^{152}Eu などの放射化物の測定により推定する事が可能である。爆心直下に位置する元安橋の花崗岩では ^{152}Eu の精密な放射線測定が報告された。80cm にわたって深さ分布が精密に測定され、欄干の中央部では放射化された ^{152}Eu の量が表面より少ない事が解明された^[1,2]。この ^{152}Eu の深度分布を再現し中性子線量を算出する為には、花崗岩中の元素の濃度を知り中性子の吸収を求める必要がある^[3]。特に水素は中性子を散乱吸収する効果が高く非常に重要であるが、測定が難しい元素の一つである。そこで、新たに陽子弾性散乱同時計数法 (Elastic Recoil Coincidence Spectrometry; ERCS) を開発し、元安橋の花崗岩の水素濃度を測定した。

元安橋の花崗岩は瀬戸内海の広島県安芸郡倉橋町から産出され、主な鉱物は石英、正長石、斜長石、黒雲母である。石英は透明な結晶でほとんど水素を含まない。また、正長石は顕微鏡下で白く濁って観察され、粘土鉱物など水素を含む鉱物がわずかに混在している。一方、黒雲母は結晶の組成に水素を含むので非常に水素濃度が高く、水に換算した質量比でおよそ 1.8 %w.t. (H_2O) 程度含んでいる。さらにこの黒雲母の一部は地中で変成を受け緑泥石に変質しているが、この緑泥石は黒雲母に比べ5倍程度の高い濃度で水素を含む事が可能である。つまり、花崗岩中の水素の分布は様々ではない。この点を考慮し、岩石の薄片上で無作為に測定点を選び多数回の測定を行い平均値を求めた。今回測定した花崗岩はU4-1のラベルがあり、南北に抜いたコアサンプルの北側から4番目、深さ6-8cm、上方の部分である。この花崗岩サンプルから厚さ0.2mmの薄片を11枚作成しこのうちの5枚を用いて測定を行った。

水素濃度の測定は筑波大学加速器センターにおいて行われ、12UDベロトロン加速器により加速された20MeVの陽子ビームを用いて弾性散乱同時計数法により測定した。岩石鉱物試料の主成分は SiO_2 であり、このなかに微量に含まれる水素を検出しなければならない。通常の弾性散乱法では主成分のSiやOなどによる弾性散乱、非弾性散乱により散乱陽子のスペクトルは非常に複雑になる。一方、今回新たに採用した同時計数法は、散乱された入射陽子とターゲットからの反跳陽子を同時に検出する為、検出条件を満足する水素だけが観測される画期的な手法である^[4]。

花崗岩の薄片は図1に示すターゲット支持台に2~3枚ずつ装着し真空散乱槽内にセットした。ビームの大きさは、直径約2mmである。0.8nAのビームを約10分間照射して測定を行なった後、2.5mm間隔でターゲット支持台を上下させ、照射位置を移動させて測定を繰り返した。

同時計数の為の2つの検出器は図2の様に前方45度左右に配置した。散乱中心から61mmの位置にφ4mmのスリットを配置し立体角を3.4msrとした。エッジ散乱を減少させる為にスリットから66mm

* KOMATSUBARA Tetsuro, University of Tsukuba; komatsubara@tac.tsukuba.ac.jp



図1 ターゲット支持台に装着した
花崗岩サンプル



図2 45度に配置された2台の
荷電粒子検出器

の位置にφ10mmのパッファーを設置し、この後方に検出器を設置した。陽子同士の同時検出は TAC を用いて行い、同時測定の時間分解能を 20nsec とした。

実験中、回路系の数え落としを補正する為約 2 Hz のパルサー信号を加えて測定した。この信号は同時測定されたスペクトルに取り込み、この数の数え落としから dead time を補正した。実験中、この dead time はおよそ 1.5 % であった。

実験結果の一例として、図3に2次元スペクトルを示す。この照射位置は水素濃度の高い測定箇所であるため、黒雲母であると推定される。図4(a)はこの2次元スペクトルを45度方向に射影して得た Sum spectrum である。この図の横軸は二つの散乱陽子のエネルギーの和に相当するが、散乱前後で陽子の阻止能が大きく変化する為、このスペクトルは水素の深度分布を反映している。また、ビーム入射側に近い位置で散乱された陽子は散乱後に透過するターゲットの厚みが厚い為、ターゲットによる自己吸収により散乱強度が指数関数的に減少する。この試料の自己吸収を補正する為に花崗岩試料の前面および後面に 5.7μm マイラーを密着させて測定を行った。マイラー中の水素からの散乱ピークは図4(c)の様に得られ、この2つのピーク面積 Y_{IN} と Y_{OUT} から自己吸収補正係数を得た。図4(b)はこの自己吸収の強度を補正したスペクトルであり、0.2mm の試料中でほぼ均等に水素が分布している例である。

測定箇所は花崗岩の薄片上で無作為に選び、44カ所について測定をおこなった。ビーム照射量を 500 nC に設定し散乱水素の測定を繰り返した。2次元スペクトルから45度方向の射影スペクトルを作成し、これを積分した。測定の結果は水素濃度の不均一を反映し、散乱陽子の個数は数百個から1万個まで大きく変動した。この測定結果の度数分布を図5に示す。低いカウント数に対応するピークは水素濃度のほとんどない石英に対応し、また、高いカウント数の測定値は緑泥石の可能性もある。

水素弾性散乱の測定感度を求める為に、図6に示した様に、30μmのポリエチレンフィルム、0.9、2.5、5.7μmのマイラーフィルム、及び水分を含んでいるガラスサンプル T-1030 (135 ppmw.t. (H₂O))^[5]を用いて検量線を導出した。陽子の散乱個数と水密度 (H₂O として換算した質量面密度) の関係は、ビーム照射量を 500 nC として水 (H₂O) 1μg/cm²あたり 25.7 ± 2.3 カウントと測定された。

44回の測定の平均値は $Y = 1900 \pm 700$ である。ただし、この測定誤差は水素濃度の不均一性を考慮し標準偏差から導いた誤差の2倍の値 (2σ) とした。これに自己吸収係数 $f = 2.07 \pm 0.04$ および測定感度係数 $k = 25.7 \pm 2.3$ により水換算 (H₂O 換算) の水素量は $d = Y \times f / k$

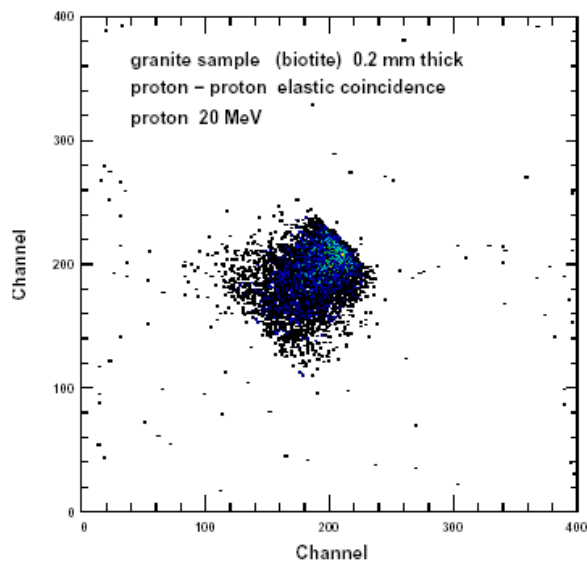


図3 花崗岩に20 MeV陽子ビームを照射して得られた散乱陽子の同時測定2次元スペクトル

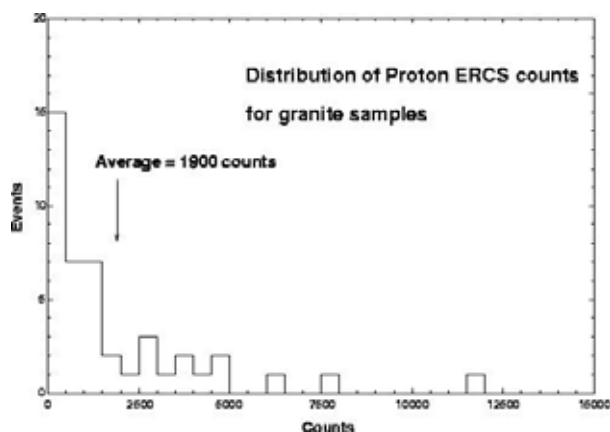


図5 弾性散乱陽子数の度数分布．花崗岩は照射位置により水素濃度が著しく異なる為、照射位置を変えて44回測定した．

$= 153 \pm 58 \mu\text{g}/\text{cm}^2(\text{H}_2\text{O})$ と計算された。御影石の密度を $2.64 \text{ g}/\text{cm}^3$ ^[1] とし、水分量の質量比は $0.29 \pm 0.11 \text{ \%w.t.}(\text{H}_2\text{O})$ と求められた。(陽子弾性散乱同時計数法は水素のみに感度があるので、本来の測定結果は水素の質量比である。しかし、他の測定方法による結果と比較する為、水(H_2O)の質量比に換算して示した。)

Iwatani ^[1] は表1に示した様に、灼熱減量法およびカール・フィッシャー法により求めた水素濃度を「penetration water」、「adsorptive water (I)」、「adsorptive water (II)」、「bound water」の4項目に分類して示した。今回の測定では、これらのうちの、雨水や露による水分の浸透に由来する「penetration water」と粗粒吸着水「adsorptive water(I)」の一部または全部がサンプル作成の際に散失してしまったと考えられる。従って、比較すべき水分量は、 $0.33 \pm 0.01\%$ または $0.51 \pm 0.10\%$ であり、誤差範囲内で今回の測定と一致した。

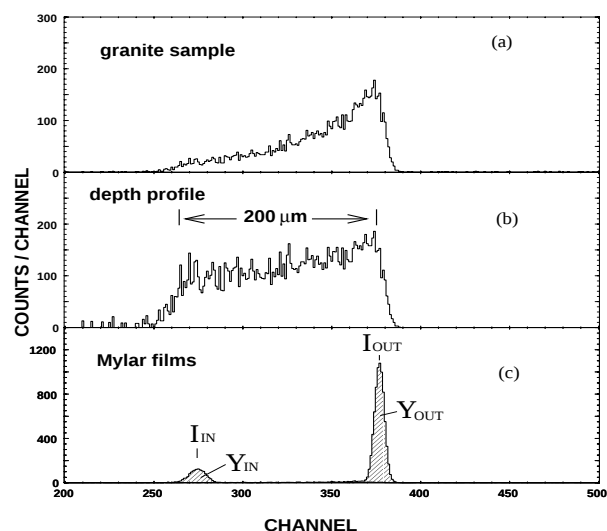


図4 同時測定した2個の陽子エネルギーのサムスペクトル(a)．このスペクトルを指数関数で補正して得られた水素濃度分布(b)．花崗岩試料の前後に密着したマイラーからの散乱陽子(c)．

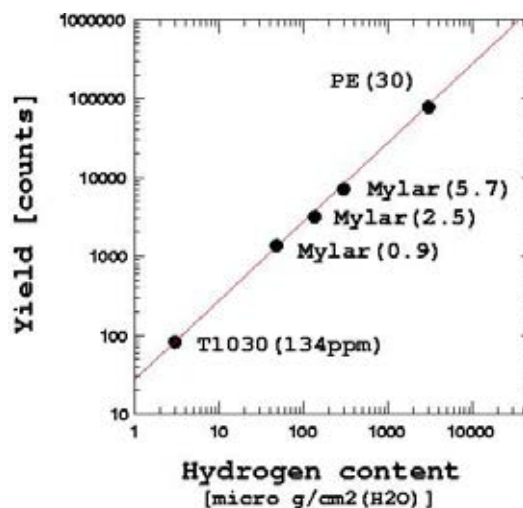


図6 水素面密度と散乱陽子数の関係

表 1 文献 1 の結果と陽子弾性散乱同時計数法との比較．数値は水分質量比であり、陽子弾性散乱同時計数法の結果は水素の収量を水に換算して示した．

分類（文献[1]）		水分量（文献[1]）	
Penetration water	雨水、霧などによる浸透水	0.08% (上限 0.16%, 下限 0 %)	$\left. \begin{array}{l} 0.33 \pm 0.01\% \\ 0.51 \pm 0.10\% \end{array} \right\}$
Adsorptive water I	粗粒吸着水	$0.18 \pm 0.10\%$	
Adsorptive water II (H_2O^-)		$0.13 \pm 0.01\%$	
Combined water (H_2O^+)	結合水	$0.20 \pm 0.01\%$	
合計		$0.59 \pm 0.10\%$ (上限 0.67%, 下限 0.51 %)	
陽子弾性散乱同時計数法による結果			$0.29 \pm 0.11\%$

最近、我々はこの水素分析方法を発展させ地球科学分野の研究に応用するために、マイクロビーム照射装置に陽子弾性散乱同時計数装置を組み込んだ。図 7 に 1 2 UD タンデム加速器のビームコースに設置されたマイクロビーム照射システムを示す。このシステムのターゲット支持台は、図 8 に示した様な $x y z$ 方向に移動可能なターゲット駆動機構になっている。この照射装置を用いて元安橋サンプルの再測定をテスト的に行いほぼ同じ結果がえられた。

文献

- [1] H. Hasai, K. Iwatani, K. Shizuma, M. Hoshi, K. Yokoro, S. Sawada, T. Kosako, H. Morishima, Health Phys. 53 (1987) 227
- [2] K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, M. Hoshi, T. Oka, Health Phys. 72 (1997) 848
- [3] S. Endo, K. Iwatani, T. Oka, M. Hoshi, K. Shizuma, T. Imanaka, J. Takada, S. Fujita, H. Hasai, J. Radiat. Res. 40 (1999) 169
- [4] B.L. Cohen, C.L. Fink, J.H. Degnan, J. Appl. Phys. 43 (1972) 19
- [5] H. Yurimoto, M. Kurosawa, S. Sueno, Geochim Cosmochim Acta 53 (1989) 751

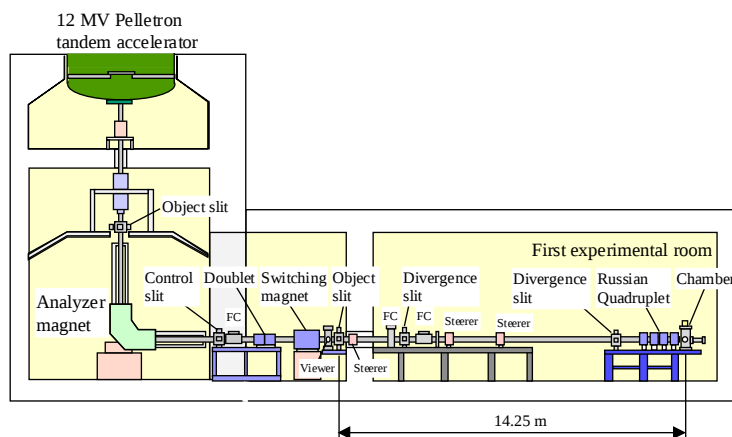


図 7 筑波大学 1 2 UD ペレトロン加速器に設置されたマイクロビーム照射コース

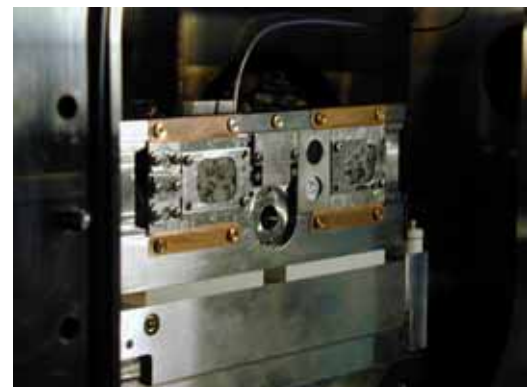


図 8 マイクロビーム照射コースに設置した花崗岩サンプル

DS02 原爆線量計算システムの概要とその検証計算

今中哲二*

京都大学原子炉実験所

1. はじめに

広島・長崎被爆生存者の放射線被曝量の推定に最初に用いられたのは、ネバダの核実験データを基に定式化された T57D (1957 年暫定線量) であった⁽¹⁾。しかし、ネバダの核実験データをそのまま広島・長崎に適用するのは不適当と考えられ、広島・長崎の放射線量評価のために ICHIBAN プロジェクトが実施された⁽²⁾。このプロジェクトでは、ネバダの砂漠に約 500m の鉄塔をたて、そこに裸の原子炉や ^{60}Co 線源を設置して、周辺への放射線伝播の測定が実施された。この ICHIBAN プロジェクトを基に T65D (1965 年暫定線量) が作られ、被爆生存者の個人線量が推定された。1980 年頃になって、T65D に疑問が投げかけられた。東西冷戦のさなか、中性子爆弾の開発が進められていた頃で、広島原爆の中性子スペクトルを計算してみたら、T65D とはかなり違った線量になりそうだ、というものであった。そこで、日米に原爆放射線量再評価検討委員会が設置され、1987 年に DS86 (Dose System 1986) が発表されるに至った⁽³⁾。DS86 は、原爆の爆発から人体臓器の被曝までの物理的プロセスを、各ステップに分けてシミュレーションしたもので、当時最先端の計算機技術を用いている。

1990 年代に入って ^{60}Co や ^{152}Eu の測定と計算が合わない中性子放射化不一致問題を契機に DS86 の見直しが始まり、一連の作業ののち新たな原爆放射線量評価システムとして DS02 がまとめられた^(4,5)。DS02 の計算システムとしての構造は基本的に DS86 と同じである。ひと言で言うなら、計算機技術の進歩と新たな断面積ライブラリーを反映した、DS86 のバージョンアップ版が DS02 である。ここでは、DS02 計算システムの概要と、今中らが行っているその検証計算について紹介する。

2. 原爆放射線の分類

原爆からの放射線は、その発生メカニズムと特性から、表 1 のように分類される。DS02 で扱っているのは初期放射線のみで、残留放射線は扱っていない。初期放射線は、即発放射線 (prompt radiation) と遅発放射線

表 1 原爆放射線の分類

(delayed radiation) に分けられる。即発放射線は原爆発時の核分裂反応の際に放出される放射線で、遅発放射線は、上昇する火球の中の核分裂生成物から放出される放射線である。ガンマ線は、線源項から直接放出される 1 次ガンマ線と、中性子の非弾性散乱や吸収にともなう 2 次ガンマ線とに分

放射線の種類	有効時間	被曝への寄与
< 初期放射線 initial radiation >		
- 即発放射線 prompt radiation -		
即発ガンマ線 prompt primary γ	< μsec	中
即発中性子線 prompt neutron	< msec	小
即発 2 次ガンマ線 prompt 2ndary γ	< 0.1 sec	大
- 遅発放射線 delayed radiation -		
遅発ガンマ線 delayed γ	< 30sec	大
遅発中性子線 delayed neutron	< 10sec	微
遅発 2 次ガンマ線 delayed 2ndary γ	< 10sec	微
< 残留放射線 residual radiation >		
誘導放射能 induced radioactivity	< months	小
フォールアウト (黒い雨) fallout	< months	?

* IMANAKA Tetsuji, Kyoto University; imanaka@rri.kyoto-u.ac.jp

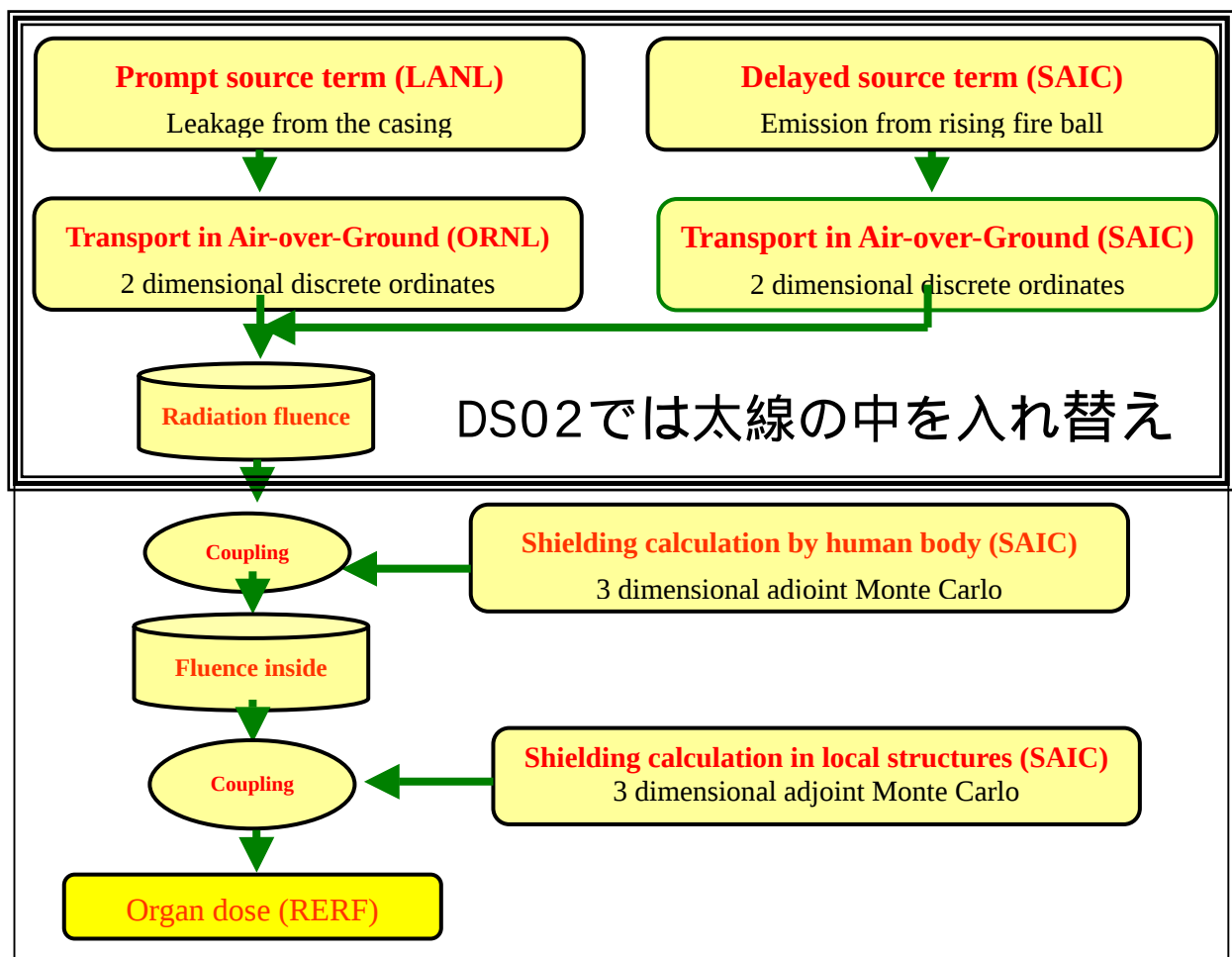


図1．DS02の計算モジュールと流れ

かれる。表1に示したように、被爆生存者の被曝に主に寄与しているのは、即発2次ガンマ線と遅発1次ガンマ線（FPガンマ線）である。

3．DS02 計算システム

3-1．全体の流れ

DS 計算システムの特徴は、放射線の発生源から人体組織の被曝までの各計算プロセスがモジュール化され、必要に応じてモジュールの入れ替えが可能になっていることである。図1は、その計算の流れを示している。各ステップの計算結果は、別のモジュールの計算結果とカップリングさせられたりしながら、次のモジュールのインプットとして用いられる。計算プロセスは大きく分けると、次の4つである。

- a．線源項の計算
- b．大気・地上系での長距離輸送計算
- c．地上構造物での遮蔽計算
- d．人体の自己遮蔽と組織線量計算

DS02では、上記4つのうち、aの線源項とbの長距離輸送計算が全面的に入れ替えられた。cの遮蔽計算では、広島のと比治山、長崎の金比羅山などによる地形の影響がモデル化され、長崎の工場や広島の学校校舎といった建物モデルが追加されている。

線源項パラメータについてDS02では、広島原爆の出力と爆発高さが16ktonと600m（DS86では15kton、580m）に変更された。長崎については21kton、503mでDS86のままである。

表 2 . 即発線源に関する計算結果の比較

	単位	DS02	DS86	DS02/DS86
< 広島 >				
放出中性子数	moles/kt	1.768E-01	1.773E-01	0.9972
平均中性子エネルギー	MeV	0.3106	0.3059	1.0153
放出ガンマ線数	moles/kt	6.665E-03	5.043E-03	1.3216
平均ガンマ線エネルギー	MeV	1.3979	1.4137	0.9888
< 長崎 >				
放出中性子数	moles/kt	2.640E-01	2.734E-01	0.9657
平均中性子エネルギー	MeV	0.0126	0.0201	0.6242
放出ガンマ線数	moles/kt	9.022E-02	6.296E-02	1.4330
平均ガンマ線エネルギー	MeV	1.2667	1.3495	0.9387

3-2 . 即発線源項の計算

ロスアラモス研究所 (LANL) の White らにより、広島 Little Boy と長崎 Fatman の爆発プロセスを模擬したモンテカルロ計算が行われ、中性子とガンマ線の放出スペクトルが再計算された⁽⁶⁾。計算には、Hydrodynamics を組み込んだ 3 次元モンテカルロコード MCNP と断面積ライブラリー ENDF/B6.2 が用いられた。DS86 では、計算機能力の都合上、爆弾の尻尾の構造は省略されたが、今回はフルモデルの計算になっている。計算結果は、中性子 199 群ガンマ線 42 群の爆弾放出エネルギースペクトルで与えられ、円筒形である Little Boy については、さらに鉛直方向角度に 40 分割されている。DS86 での線源計算に比べて約 60 倍の計算量であった。ちなみに DS86 では、計算結果は中性子 38 群ガンマ線 20 群、Little Boy の角度 20 分割であった。表 2 は、線源項に関する計算結果を DS02 と DS86 で比較したものである⁽⁶⁾。

中性子放射化データ不一致問題との関連で注目されていた、Little Boy の中性子スペクトル方向分布を図 2 に示す。DS02 では、計算精度がよくなった分、DS86 に比べなめらかな方向分布が得られている、基本的な形に大きな変化はない。方向を積分した中性子とガンマ線のエネルギースペクトルを、Fatman も加えて図 3 a ~ d に示す。Fatman は球対称で扱われており、方向分布はない。中性子スペクトルは、広島・長崎ともに、DS02 と DS86 でほぼ同じである。モンテカルロの追跡時間が長

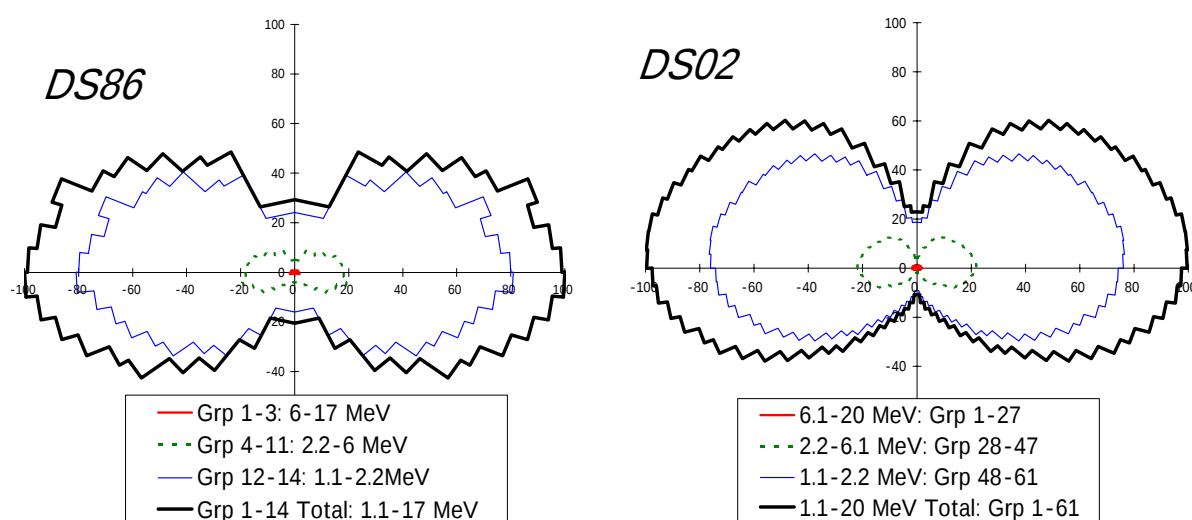


図 2 . Little Boy 中性子スペクトルの方向分布 .
1MeV 以上、最大値を 100 とした相対強度 . 下側が爆弾の頭方向 .

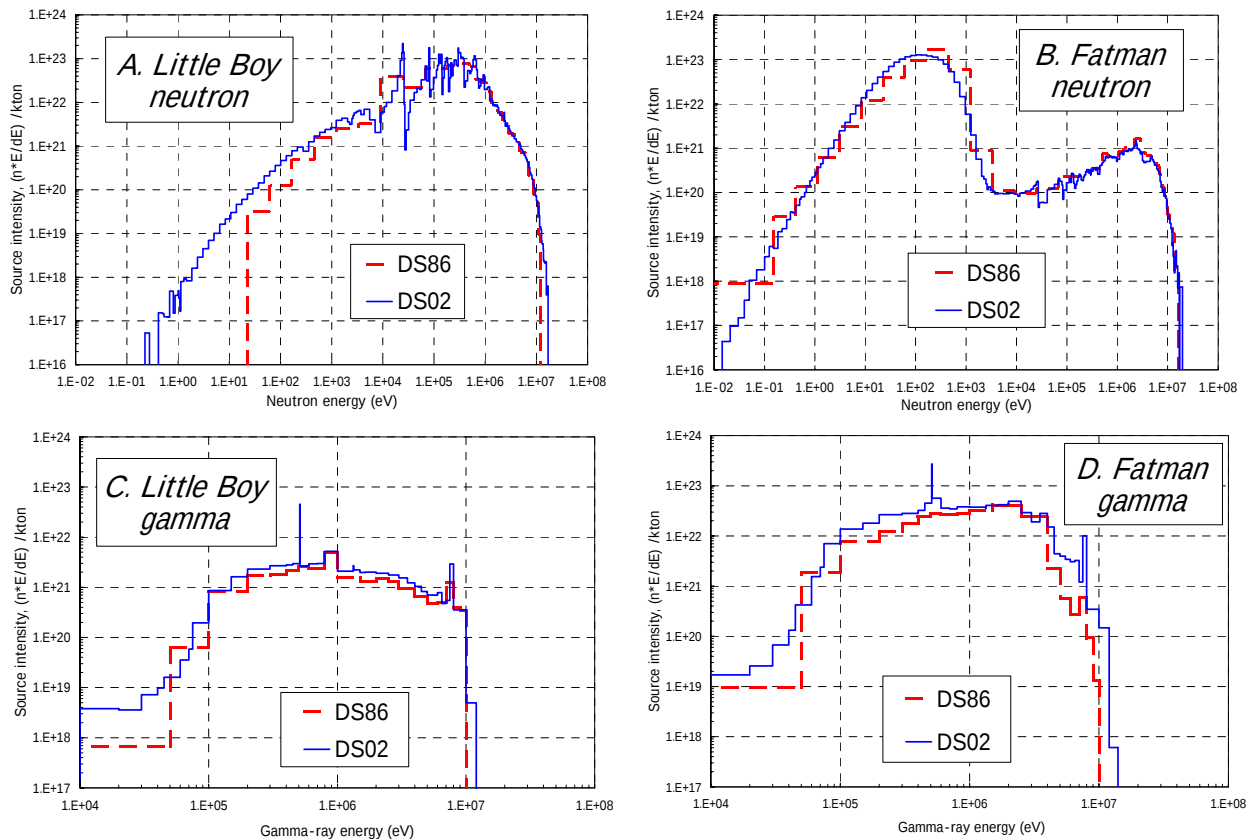


図3．広島・長崎原爆の中性子・ガンマ線放出スペクトル：DS86 と DS02．

くなった分（DS02 は爆発 1 秒後まで） Little Boy のスペクトルが低エネルギー側に広がっている。ガンマ線では、Fatman の高エネルギー側が増えている。これは、断面積ライブラリーが ENDF/B5 から ENDF/B6 への変更にともなった変化である。

3-3．遅発線源項

遅発線源項は、爆発後の火球の中に存在する核分裂生成物からのガンマ線と遅発中性子である。爆発後の火球の成長や上昇の様子は、STLAMB hydrodynamics コードで計算されている。図4は、DS86 の計算結果であるが、広島 2.028 秒後の大気密度の状態を表している⁽⁷⁾。STLAMB の計算結果によると、広島・長崎ともに、火球は爆発 1 秒後くらいから上昇をはじめ、8 秒後に約 900m、16 秒後に約 1300m の高さに達している。DS02 の遅発線源項は、爆発から 30 秒後までを、中性子については 12 区分、ガンマ線については 18 区分の時間区分に分け、それぞれの区間ごとに線源項を決めている。線源スペクトルの決定には ENDF/B6 を用いている。線源の形状は、4 秒後までは火球中心の点線源とし、そ

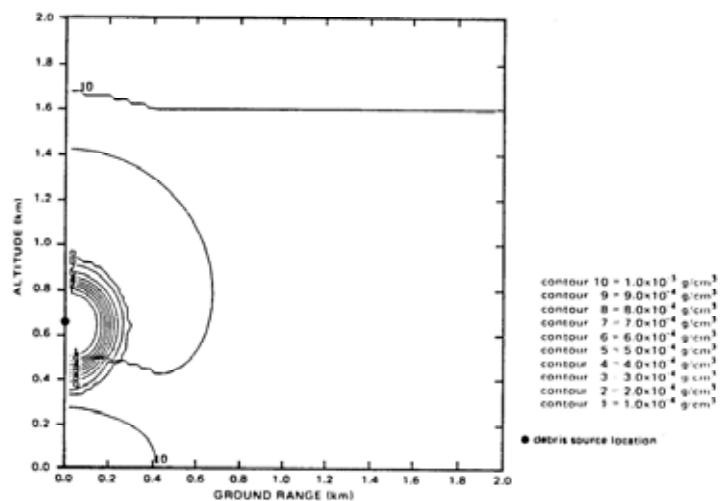


図4．広島原爆 2.028 秒後の大気密度．
STLAMB 計算結果による等密度線(DS86 報告書)．

れ以降はトーラス（円環）な分布を仮定している⁽⁸⁾。

3-4．大気・地上系長距離輸送計算

DS02 での線源項からの地表へ到達する放射線の計算は、2 次元輸送計算コード DORT を用いて行われている⁽⁸⁾。図 5 に、DORT 計算の大気・地面 RZ 2 次元系を示す。図の中の円柱は、ローカルな遮蔽計算を行うときの Forward-adjoint カップリング境界面を表しているが、DORT 計算では地上構造物は考慮せず無遮蔽モデルである。DORT の計算結果は、各メッシュ中点での（エネルギー別、方向別）放射線束として得られる。即発放射線の計算は、Z 軸上（広島 600m、長崎 503m）に点線源を置いて 1 回の run で計算結果が得られる。大気組成は、地上 2000m までが 7 層の組に分けられ、最上層以外は DS86 と同じである。遅発放射線については、爆発後 30 秒までが時間区分に分けられ、それぞれの時間区分に対応する状況（線源、高さ、大気密度）での計算が行われている。表 3 に、DS86 での DOT4 計算と DS02 での DORT 計算の比較をまとめておく。

表 3．DS02 と DS86 の大気・地面系輸送計算の比較

	DS86	DS02
< 即発放射線 >		
・ 計算コード	2 次元 DOT4	2 次元 DORT
・ 断面積	ENDF/B5 (中性子 46 群、ガンマ 22 群)	ENDF/B6 (中性子 199 群、ガンマ 42 群)
・ RZ 形状	R2800m × Z1500m R メッシュ巾：25m	R3000m × Z2000m R メッシュ巾：25m
< 遅発放射線 >		
・ 計算コード	1 次元 ANISN	2 次元 DORT
・ 断面積	EFDF/B4 (中性子 46 群、ガンマ 22 群)	EFDF/B6 (中性子 174 群、ガンマ 38 群)
・ タイムステップ	300 区間	中性子 12 区間、ガンマ 18 区間
・ 形状	STLAMB による line-of-sight 密度	STLAMB の 2 次元計算結果

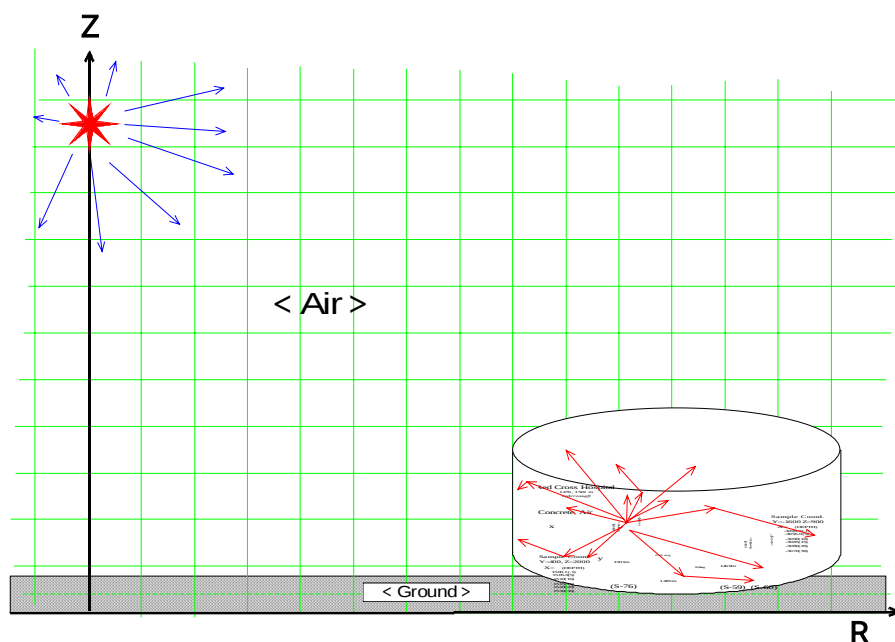


図 5．大気・地面系長距離輸送計算に用いられる RZ 座標系

3-5．計算結果

表 1 に示した 6 種類の初期放射線の計算結果を図 6 に示す⁽⁹⁾。図の値は空气中組織カーマ (Gy) で、DORT 計算で得られた無遮蔽地上 1 m での放射線束値に、Kerr らによる換算係数⁽¹⁰⁾をかけて算出されたものである。図からわかるように、広島・長崎ともに、遅発ガンマ線と即発 2 次ガンマ線が主要な放射線成分である。長崎では、即発ガンマ (prompt primary) による線量が DS86 に比べ約 2 倍になり、全線量の 17% 程度になった。中性子線量の全線量に対する割合は、広島 1000m で 5.8%、1500m で 1.7%、2000m で 0.5% である。生存者の臓器吸収線量では、家屋透過係数と人体透過係数はともにガンマ線の方が大きいので、中性子の割合はさらに小さくなり、空气中組織カーマの割合の約 1/3 になる。長崎での中性子割合は、広島よりさらに少ない。

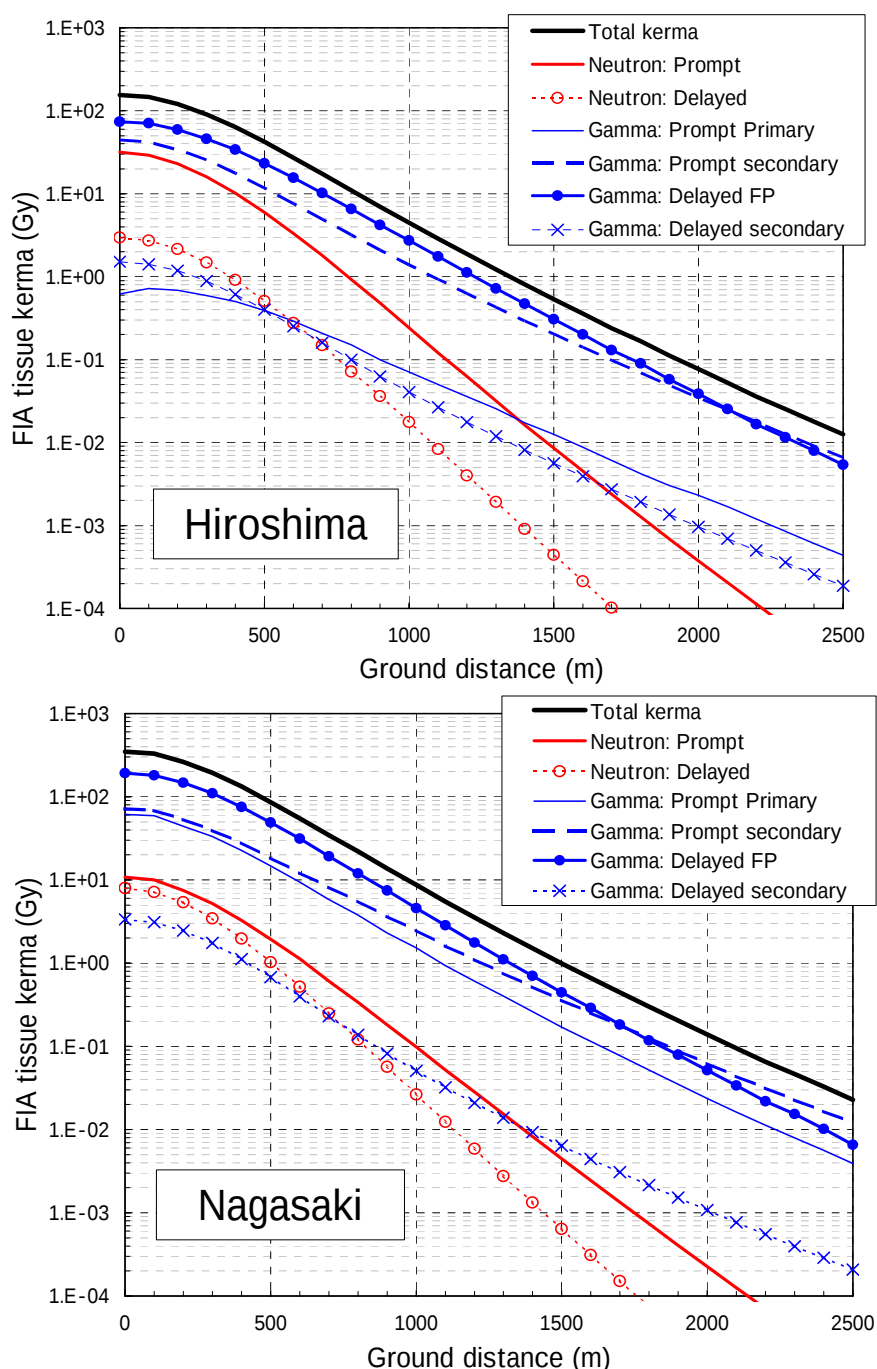


図 6． 初期放射線の計算結果：地上 1 m での空气中組織カーマ (Gy)。

図7は、地上1m放射線量(空气中組織カーマ)をDS02とDS86と比較したものである。図7(上)のように、爆心距離と放射線量との関係を片対数でプロットすると、DS02とDS86はほとんど重なってしまう。図7(下)にはDS02/DS86比をプロットしてある(ラインが少々ガタついているのは、DORT計算法の弱点であるray effectのため)。一番大きく変わったのは長崎の中性子線量で、2000m以遠ではDS86の70%程度に減っている。この減少の主な理由は、ENDF/B6で窒素の断面積データが変わったためである。しかし、長崎の中性子線量はガンマ線に比べてもともと小さく、大勢には影響しない。広島はDS02/DS86比が爆心地近くで下がっているのは、爆発高さが580mから600mに変更されたことが反映している。総線量で言えば、DS02とDS86の違いはせいぜい10%と言ってよいであろう。

4. Forward-adjoint カップリングによる遮蔽計算

地上の建物などによる遮蔽効果の計算では、まずローカルな構造全体を図5に示したような円柱の中に3次元で設定し、構造物内の着目点と円柱界面から入射する放射線束との「関係性」をAdjointモードのモンテカルロによって計算する。次に、その「関係性」をDORT計算で得られた放射線束(Forward計算結果)とcouplingさせて、着目点での放射線束を求める。DS02では、 ^{152}Eu 、 ^{60}Co 、 ^{36}Cl 、 ^{63}Ni といった中性子放射化生成物サンプル、またタイルや瓦といったTL測定サンプルについても、サンプリング場所の遮蔽計算を実施し、遮蔽効果を考慮した計算値を基にして測定値と比較する議論が行われている。

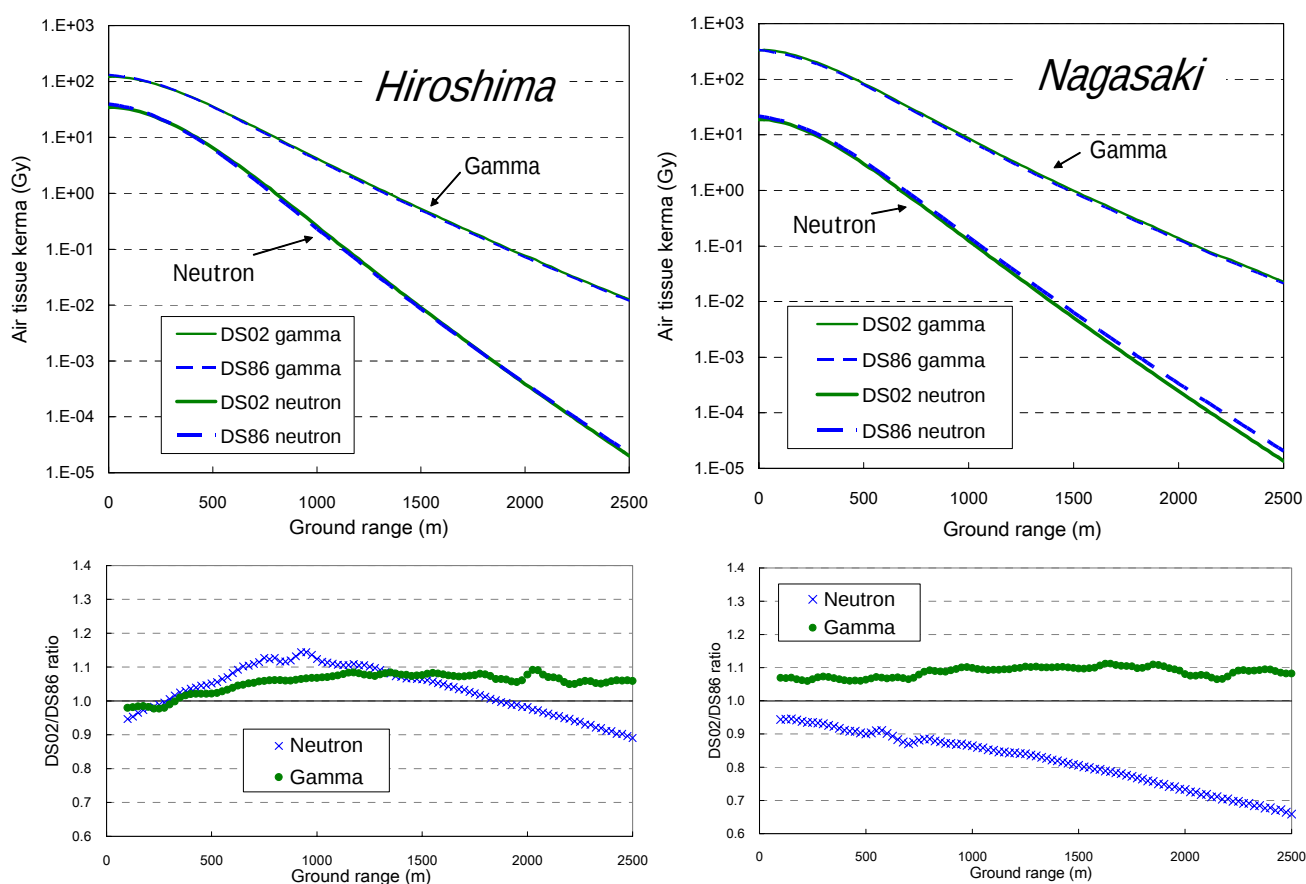


図7. DS02とDS86の無遮蔽地上1m放射線量の比較。
(上) 空气中組織カーマ、(下) DS02/DS86比。

5 . DS02 の検証計算

日米原爆線量ワーキンググループの作業は、米国側 WG が DS02 による計算を行い、その結果を、日本側 WG を中心とする TL や中性子放射化の測定結果で検証する、という進め方で行われてきた。米国側 WG の計算能力は、LANL、ORNL、SAIC といった組織により長年の核開発の中で培われてきたものである。計算に関する彼我の力量差は明らかであるが、日本側でもできる範囲で DS02 の計算を確かめておくべきであろう、ということで検証計算に取り込んでみた。

これまでに今中らは、比較的計算の簡単な即発放射線 (prompt gamma、prompt neutron、prompt 2ndary gamma) について、DS02 と同じ線源項を用いて大気・地面系の輸送計算を行い、米国側の計算結果と比べてみた。計算コードには 3 次元モンテカルロ MCNP4C を用い、断面積ライブラリーには、米国側と同じ ENDF/B6 と日本の原研から出されている JENDL3.3 を用いた。以下に、これまでの結果をいくつか紹介しておく。

5-1 . 即発ガンマ線

即発ガンマ線に関する MCNP 計算結果と DS02 計算値の比較を図 8 に示す。地上 1 m での空気中組織カーマの比をプロットしたものである。DS02 は、先に述べた DORT コードによる計算である。MCNP のガンマ線断面積には、MCNP4C パッケージに入っている MCPLIB02 を用いた。ちなみに、JENDL には独自のガンマ線断面積ライブラリーはない。図からわかるように、MCNP (MCPLIB) の計算結果は、2000m まで DS02 とよく一致している。

5-2 . 即発中性子と即発 2 次ガンマ線

図 9 に即発中性子、図 10 に即発 2 次ガンマ線に関する計算結果の比較を示す。中性子線量では、MCNP (ENDFB6) は DS02 とまずまず一致しているが、MCNP(JENDL33)は、DS02 の値より距

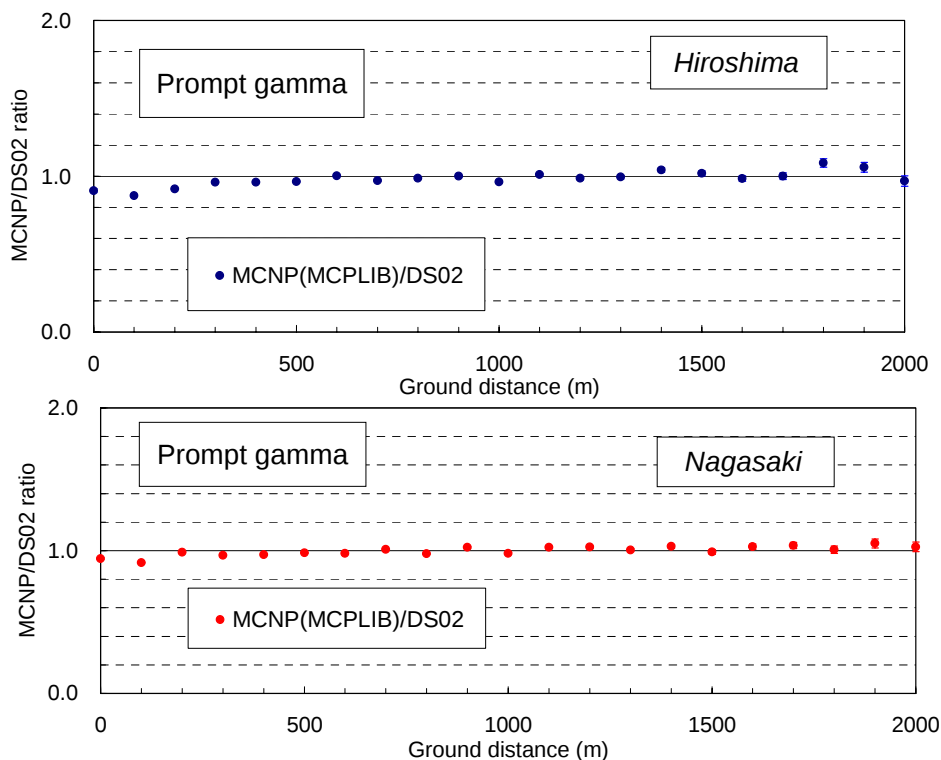


図 8 . MCNP による DS02 の検証計算：即発ガンマ (prompt primary gamma) .

離とともに大きくなる傾向が認められ、1500mでは4割程度大きくなっている。

この違いの理由を確認するため、JENDL 計算の空気中の窒素、酸素、水素をひとつずつ ENDF と置き換えてみたところ、酸素や水素の置き換えでは結果に変化はなかったが、窒素を置き換えた場合に DS02 とよく一致した。すなわち、JENDL3.3 と ENDF/B6 の窒素断面積の違いが中性子線量の差

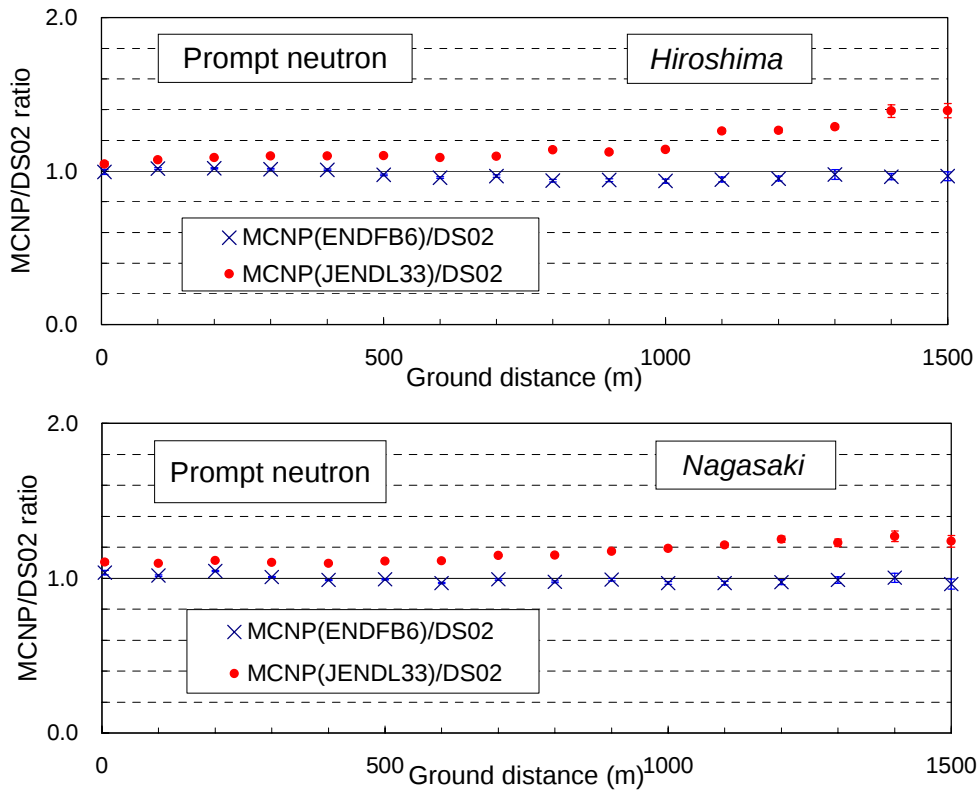


図9 . MCNP による DS02 の検証計算：即発中性子 .

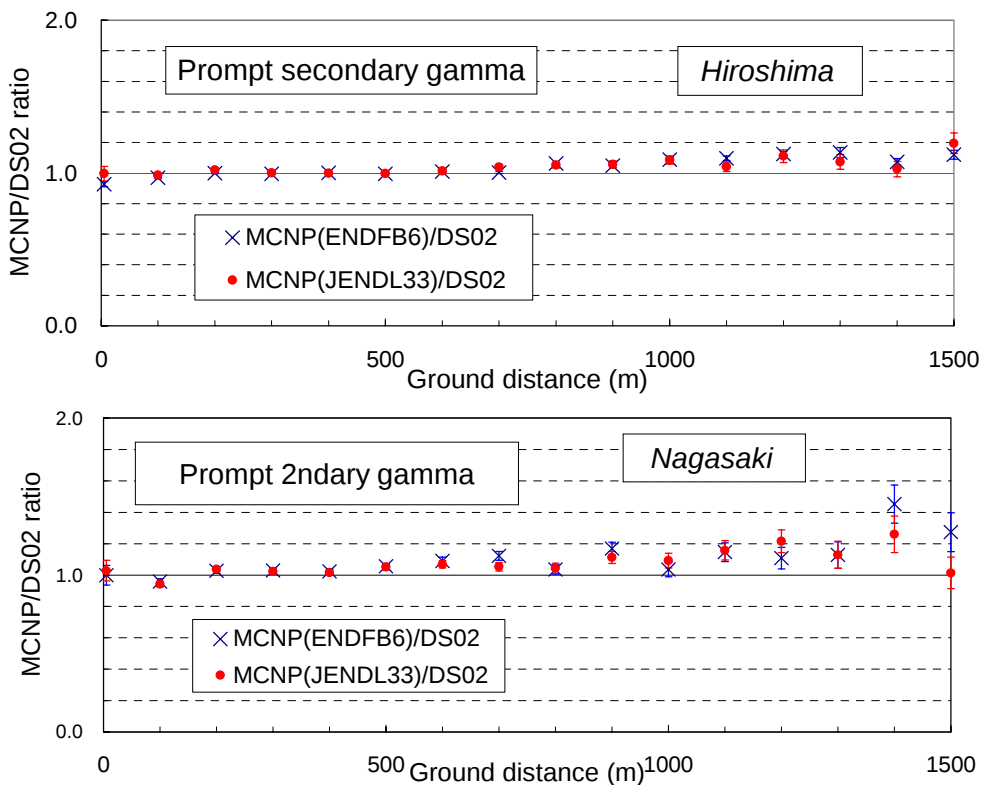


図10 . MCNP による DS02 の検証計算：即発2次ガンマ線 .

に反映しているものと考えられる。

図 10 の 2 次ガンマ計算では、MCNP の計算結果が遠距離で若干大きめになっている。ENDF と JENDL の両方ともその傾向があるが、その理由は今のところ不明である。

5-3 . 今後の検証計算

遅発放射線については、大気状態の Hydrodynamics な計算はできないが、Static な大気条件での近似計算なら可能であろう。また、中性子放射化データについても、3 次元-3 次元で Forward-adjoint カップリングコードを開発し、独自計算を行って DS02 との比較を試みる予定である。

参考文献

- 1 . R.H. Ritchie, G.S. Hurst ; 核兵器放射線の透過性：広島・長崎調査への応用、ABCC TR 26-59, 1959 .
- 2 . J.A. Auxier, “ICHIBAN: Radiation Dosimetry for the Survivors of the Bombings of Hiroshima and Nagasaki”, TID-27080, 1977.
- 3 . “US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki”. (DS86 Final Report) Vols. 1&2. RERF, 1987.
- 4 . 原爆放射線量評価検討会、「DS02 に関する原爆放射線量評価検討会日米会議報告書」厚生労働省健康局総務課、2003 年 3 月 .
- 5 . US-Japan WG; “Reassessment of the A-bomb Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki – Dosimetry System 2002” (DS02 Report), RERF (in preparation)
- 6 . S.W. White, P.P. Whalen, A.R. Heath; “Hiroshima and Nagasaki Bomb Output Calculation”, Chapter 2, DS02 Report (draft).
- 7 . D.C. Kaul et.al.; “Delayed Gamma Rays”, Chapter 3 Appendix 4, DS86 Final Report Vol.2, 1987.
- 8 . R.T. Santoro, S.E. Egbert et.al.; “Radiation Transport Calculations”, Chapter 3, DS02 Report (draft).
- 9 . Private communication with S.E. Egbert about the results of DS02 calculation in EXCEL sheets.
- 10 . G.D. Kerr; J.V. Pace III; “Fluence-to-Kerma Conversion Coefficients”, Chapter 12A, DS02 Report (draft).

DS02 計算と測定値の比較

遠藤 暁*

広島大学原爆放射線医科学研究所・国際放射線情報センター

はじめに

1945 年 8 月 6 日に広島に世界で初めての原子爆弾が投下され、その 3 日後である 8 月 9 日には 2 番目の原子爆弾が長崎に投下された。その後、広島の被爆者において、白内障と白血病が高頻度で発生するようになり、被爆者の被曝線量推定が必要となった。最初の線量評価体系は 1957 年に Tentative 1957 Dose (T57D)、1965 年に Tentative 1965 Dose (T65D) としてまとめられた¹⁾。これらの体系はその名の通り Tentative な体系で、将来的に修正が必要と考えられていた。1981 年に実質的な原子爆弾線量再評価へ向け動き出し 1987 年に再評価の結果が Dosimetry System 1986 (DS86)としてまとめられるに至った²⁾。この再評価において広島の中性子線量は、1/5 - 1/9 に減少した。

DS86 完成直後、葉佐井、星、静間を中心とした広島グループは、Eu-152 の測定値と DS86 計算の間の系統的なずれを見出した³⁻⁸⁾。特に遠距離で測定値が 5 - 10 倍も高い場合もあったため被曝線量への影響が心配された。その原因を明らかにするため、更なる測定を行い DS86 の検討を開始した。その結果、DS86 の計算値と被曝試料の測定値には、計算値が近距離で高く遠距離で低い系統的なずれが確認された。この問題を再検討することをアメリカ側に働きかけた結果、1996 年には日米の研究者による合同研究会が開催され、共同研究が開始され、新しい線量評価体系に向けての検討が行われ始めた。

再評価作業においてアメリカ側は、10Tflops の演算能力をもつ世界でも最高速クラスの計算機を用いて原爆ソースタームの再計算を行った。この計算では、より新しい断面積ライブラリー ENDF B6 を用いて、中性子エネルギービンが 27 ビンから 200 ビンへ、 γ 線エネルギービンを 20 から 46 ビンへ、中性子 γ 線放出角を 20 ビンから 40 ビンへとより細かい計算を行っている。また、アメリカの加速器質量分析法を用いた CI-36 の新しいデータも報告された。これに対し、日本側では、それまで報告している Eu-152、Co-60 のデータの見直し、環境中の中性子によるバックグラウンドの測定、更に日本、アメリカ、ドイツのそれぞれのデータを相互比較するプログラムを提案し、共同で実行した。

線源スペクトル

新しいソース計算の詳細は明らかにされていないが、Hydrodynamics を用い、DS86 の計算量の 60 倍に相当する計算を行った。使用した断面積は、ENDF B5 からより新しい評価済みライブラリー ENDF B6.2 に換えている。新しいソースターム(LB2001)を DS86 ソースタームと比較した図 1 を示す。図 1(a)、(b)は広島原爆ソース、(c)、(d)は長崎原爆ソースを示す。また、(a)、(c)は中性子線、(b)、(d)は γ 線である。表 1 にまとめるように、DS86 と DS02 ソース特に中性子には大きな違いは無いが、エネルギーごとに比較した場合、2-10 倍の違いがある。更に、図 2 に、広島原爆の中性子・ γ 線の放出角分布を示す。中性子線に関しては、ほとんど一致しているが、 γ 線では 30% 程度の改定が認められる。これらの図から、新しいソースタームの再計算の計算精度は DS86 に比較し格段に向上した

* ENDO Satoru, Hiroshima University; andos@hiroshima-u.ac.jp

ことがわかる。

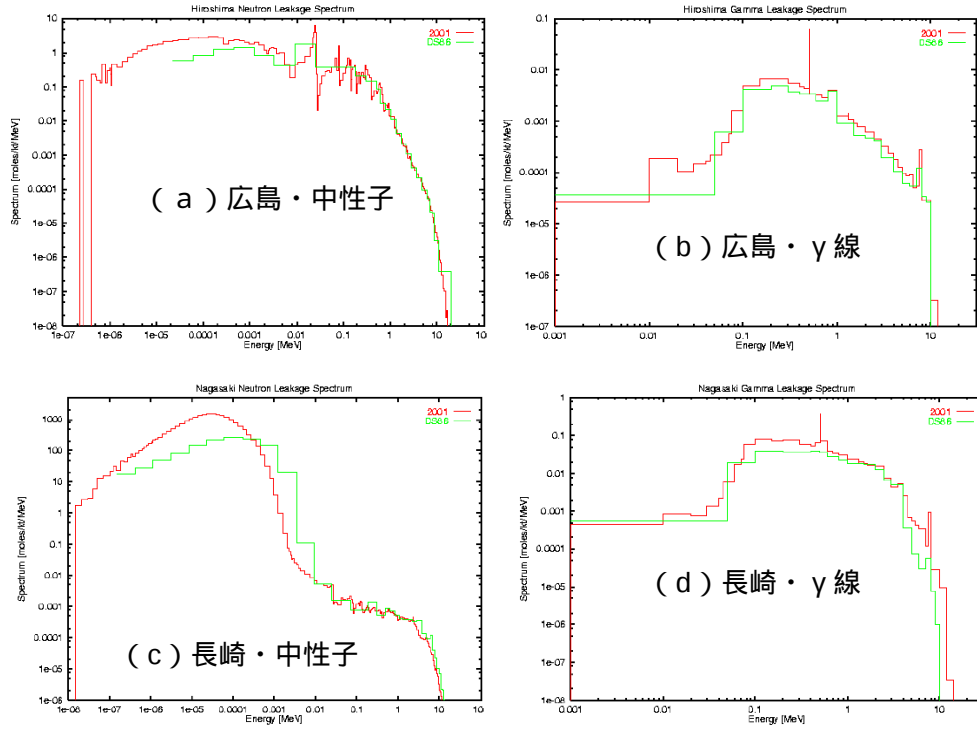


図1．広島・長崎原爆放出中性子・γ線のソースターム

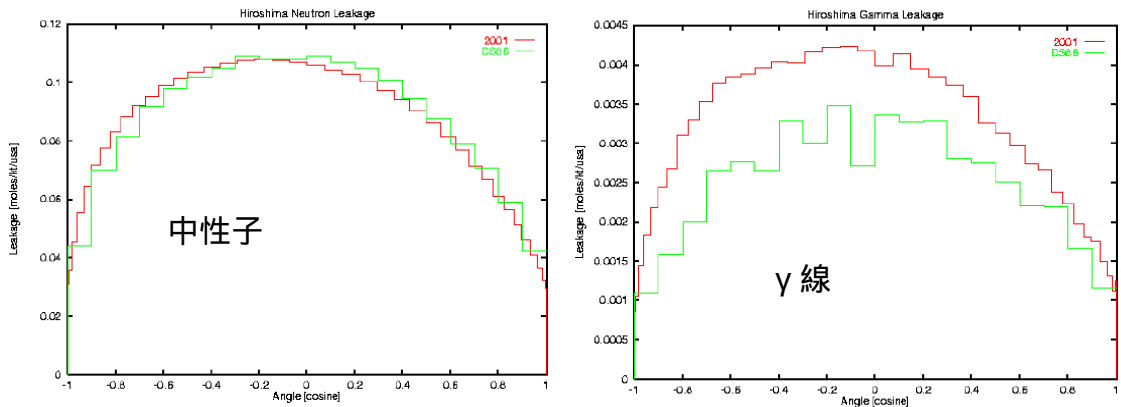


図2．広島原爆中性子・γ線の放出角分布：DS86 vs DS02 (US ワーキンググループによる)

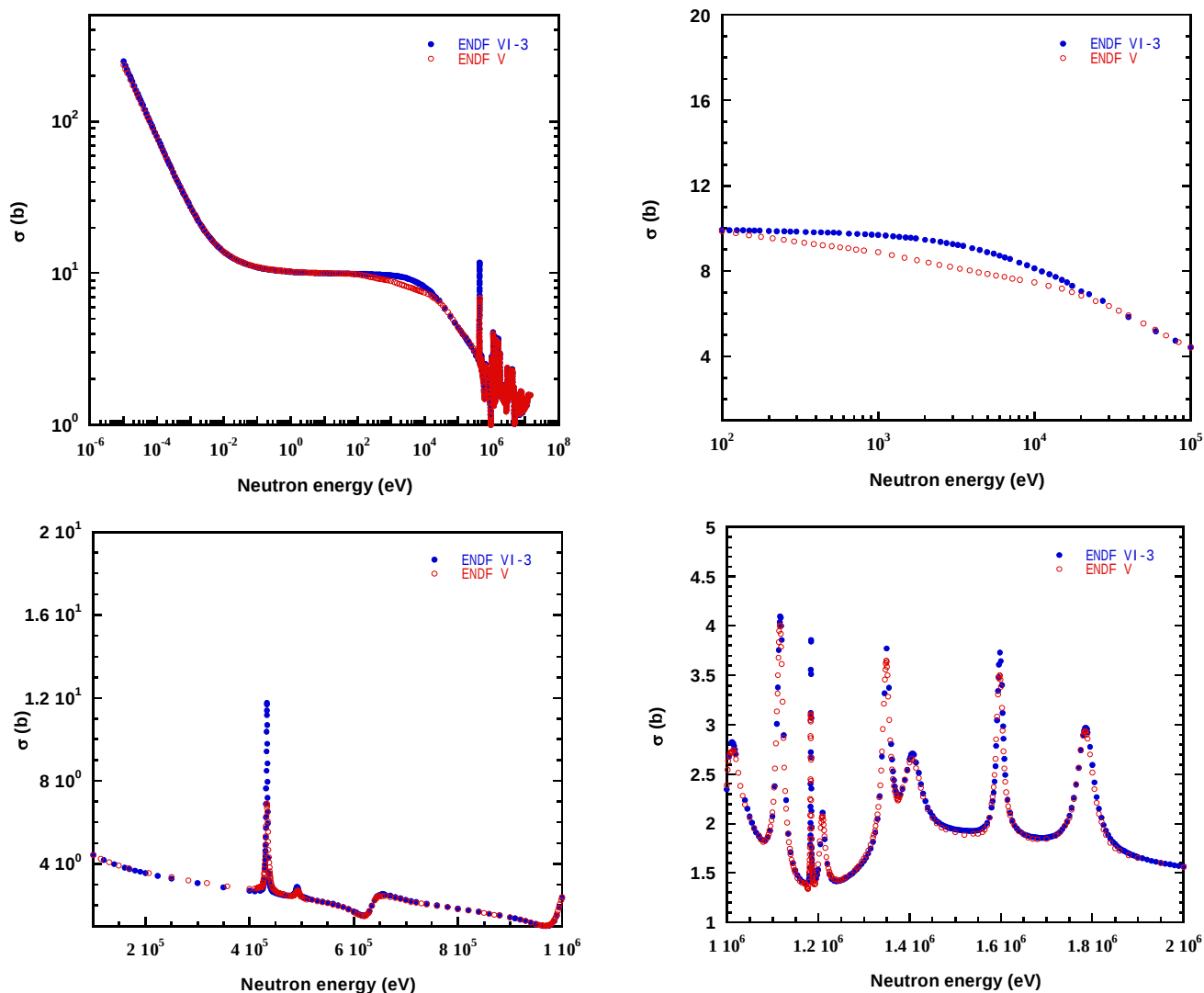
表1 線源項パラメータ (US ワーキンググループによる)

	Hiroshima			Nagasaki		
	DS02	DS86	DS02/DS86	DS02	DS86	DS02/DS86
Total Neutrons (Moles/kt)	1.768E-01	1.773E-01	0.9972	2.64E-01	2.73E-01	0.9660
Neutron energy (Average MeV)	0.3106	0.2976	1.0437	0.0126	0.0150	0.8401
Total γ rays (Moles/kt)	6.665E-03	5.043E-03	1.3216	9.022E-02	6.296E-02	1.43
γ ray energy (Average MeV)	1.3979	1.392	1.00	1.2667	1.335	0.949
Yield (kt)	16	15		21	21	

輸送計算

原爆から放出された中性子・ γ 線がどのように輸送され、被爆者や被爆試料まで到達するかを評価するためには輸送計算が必要である。この輸送計算においても、DS02では改良が加えられた。主たる改良点は、最新の断面積データ ENDF B6 を考慮していることである。地上 2000m、地表 50cm を半径 3000m、25m メッシュで DS86 と比べるとより細かいメッシュで計算を行っている。大地組成、空気組成などは DS86 と同様の値を用いている。

ENDF B6 と ENDF B5 の断面積の違いを窒素の断面積を例に図 3 に示す。窒素は、空気の主要成分であり、輸送計算においては最も計算結果に寄与すると考えられる。図 3 (a)は、 $10^{-6} - 2 \times 10^7$ eV の領域を比較したものである。(b)、(c)及び(d)は違いの大きなエネルギー領域を示している。 $10^2 - 10^4$ eV の領域で 20%程度、その他には共鳴ピーク上で数% - 40%程度の違いが認められる。アメリカ側に LB2001 の線源項を提供してもらい広島グループにおいて中性子輸送計算を用いて確認したが、この断面積の違いが、輸送計算全体に及ぼす影響は数%以下であった。



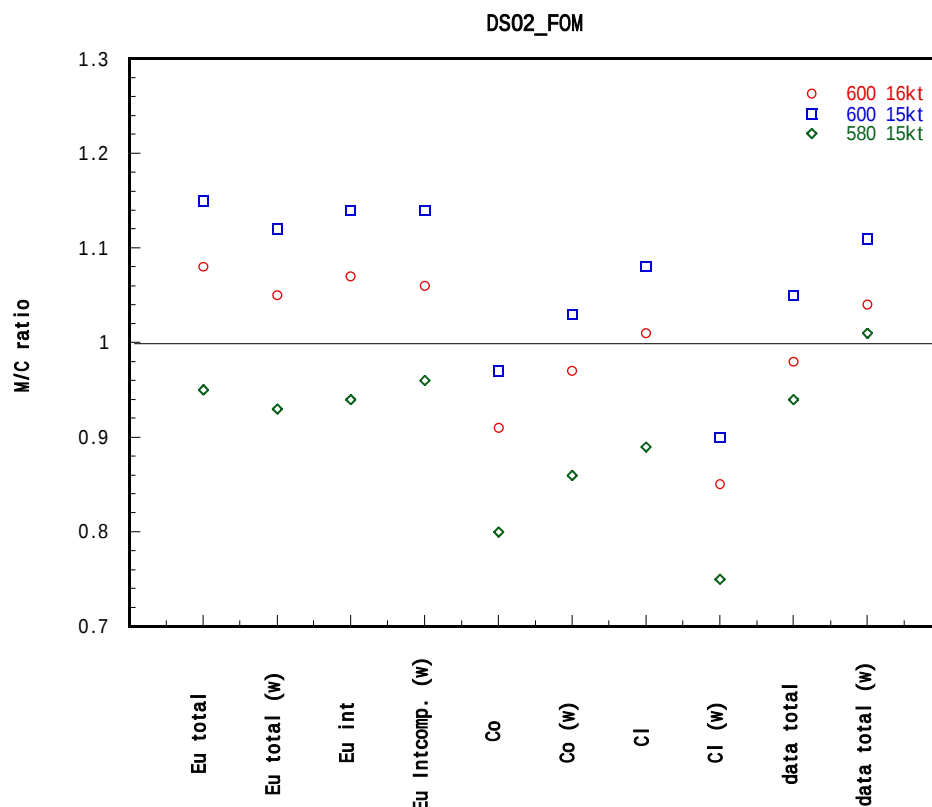


図3 爆発高度を変えたときの M/C 比の変化

爆発高度

爆発高度は熱線によりできた影を測定し評価されている。T57D の際の評価は 580m、T65D では 577m、DS86 では 580m の値が使われた。他にも数多くの測定があるが、その中でも荒川と長岡は 1169 の数多くの地点で測定し、606m の結果を得ている。Hubell ら¹⁰⁾はこれらの値を評価した結果 580±20m としている。DS02 では、爆発高度の再検討に DS86 以前の評価値、原爆出力計算の結果、誘導放射能の実測値などの結果をすべて考慮に入れ、高さ、出力を変化されて最良値を推定した。その際、輸送計算も爆発高度 580m、600m、610m に対して行った。各々の爆発高度ごとに計算した中性子スペクトルを基に Eu-152、Co-60、Cl-36、P-32、Ni-63 の誘導放射能を算出した。実測値と比較する際には、計算が空気中 1m での中性子の分布を与えることから、実測に用いた測定試料の遮蔽状況をできる限り考慮し、透過係数を別途見積り補正した値との比較を行っている。

図3に計算値を測定値で割った M/C 比を 1)580m、15kT、2)580m、16kT、3)600m、16kT の 3 種類について示す。図より 600m で 16kT とした場合最も M/C 比が全体として 1 に近いことがわかる。実際の作業ではその他の Ni-63、P-32 についても考慮しているが、P-32 の場合測定値の誤差が大きく、Ni-63 ではデータ点が少ないために大きく寄与しない。これらの結果より、爆発高度の評価値内でもっとも良く再現する高度として 600m を採用した。なお、爆発高度の評価は熱線で生じた陰影でも行われているが、その評価の範囲内である。また、爆発点の座標は、従来旧アメリカアーミーマップが使われてきたが、より正確な都市計画地図と比較解析し、広島で 15m 西に、長崎で 2m 西に移動することとした。DS86 と DS02 のソースタームの違いを表2にまとめておく。

表 2 . DS86 と DS02 の相違点

	広島		長崎	
	DS86	DS02	DS86	DS02
出力	15kT	16kT	21kT	変化無し
爆発点の高度	580m	600m	503m	変化無し
爆心の位置	-	15m 西へ移動	-	2m 西へ移動

放射化計算値と実測値の比較

広島原爆について新しいソースタームの条件での計算値と実測値の比較を図 4 に示す。左上から順番に、Eu-152, Co-60, Cl-36, Ni-63, TLD, P-32 を示す。実線は新しいシステム DS02 を示し破線は DS86 を示している。近距離で過大評価していた計算値が、よく合うようになっていることがわかる。

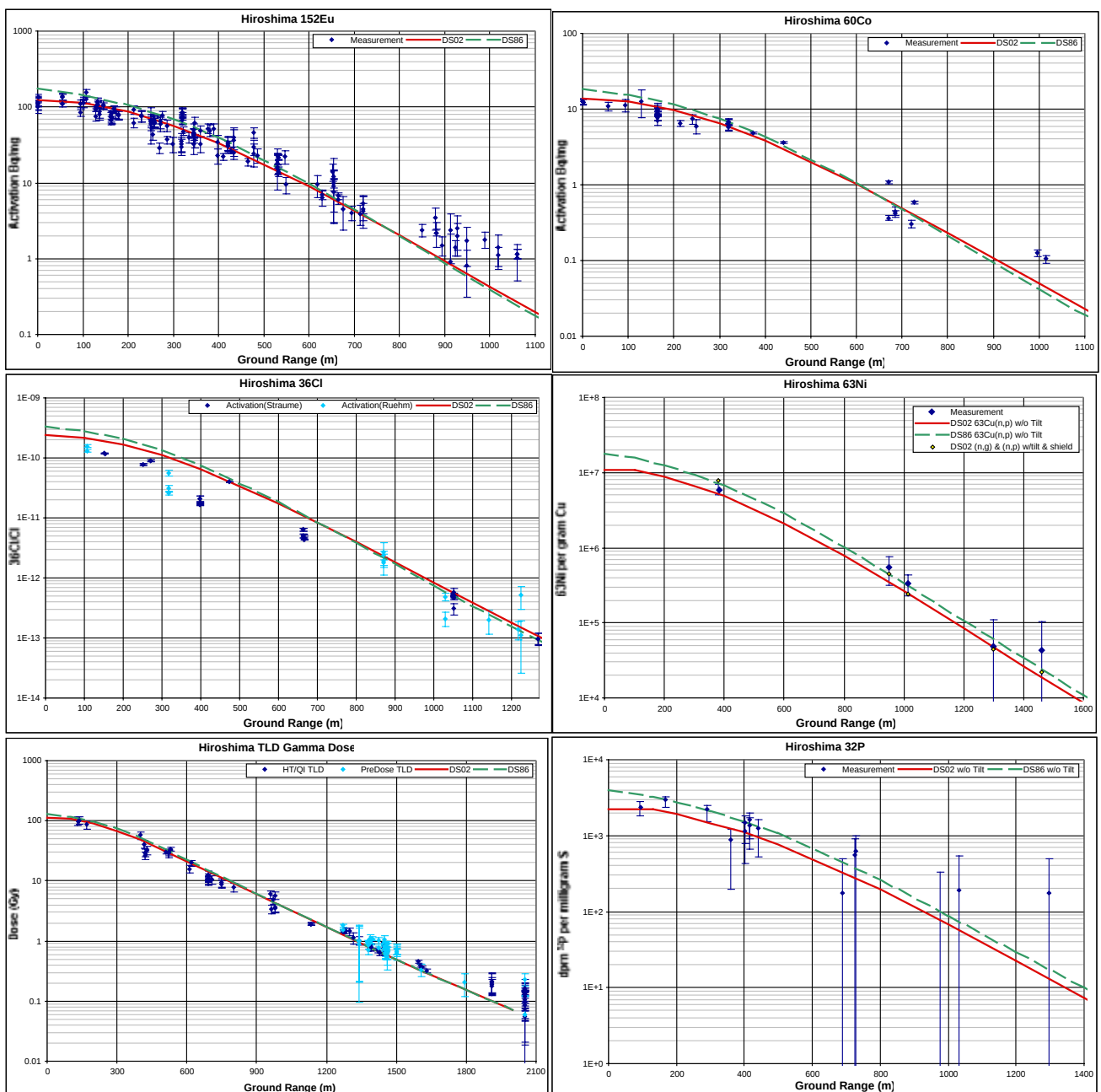


図 4 誘導放射能、TLD 測定値と DS02 及び DS86 計算値の比較 (USWG による)

遠距離の測定データについては、極々僅か改善したものの本質的に DS86 時と同じであった。これについては、当初 1200m 以遠のデータ誤差が大きいこと物理的な解釈が難しいことなどの理由で DS02 ではこれ以上の議論をしないという方向を選択することとなった。しかしながら、その後相互比較によって、この方向性は変わることとなる。

相互比較

図 4 に示したように、計算と実測は改善されたが、遠距離の問題と Eu-152 と Cl-36 の間の因子としてのずれの傾向があることから、相互比較が広島大星より提案され行われることとなった。相互比較には、Cl-36 測定に、アメリカ（ストローメら）、ドイツ（リュームら）また筑波大学（長島ら）の 3 施設、Eu-152 測定には、金沢大学（小村ら）が参加した。

相互比較試料は、原爆被爆試料を近距離 140m から遠距離 1400m までのおよそ 17 試料を選択し、同一サンプルを 4 つの施設で測定する。更に、既知の 1000ppm の Eu 及び 10000ppm の標準塩化ナトリウム標準溶液を加えた標準溶液を Cf-252 の中性子場で照射した試料においても相互比較を行った。

これまでは Eu-152 の確認の測定は、岩石を溶解して抽出する作業が必要で、労力を要するため、測定試料の再測定が行われていなかった。今回は日本分析センターがその作業を行うことで了解が取れ、今までの 10 倍の 1kg の試料を溶解しユーロピウムを抽出してもらった。さらに金沢大学の小村が尾小屋実験室のトンネル内での、強力な遮蔽中での低バックグランド測定のシステムを使って Eu-152 の測定を行った。その結果、遠距離の Eu-152 の測定結果は DS02 に近いことが示された。また、それまで、Eu-152 の同定に使用していた 344keV γ 線の極近傍の 342.5keV の Ac-227 γ 線があり、この γ 線が混入していた可能性が小村によって指摘された。これらの結果は、尾小屋実験室という強力な遮蔽中での低バックグランド測定によって確認できたものである。

Cl-36 の測定においては、アメリカ、ドイツ、筑波大のデータは、アメリカの測定値が 2 点、他施設測定値の 2 倍を示した他は、ほぼ一致し、Cl-36 値は確認された。更に、Cl-36 と Eu-152 を比較すると 14%程度で一致した。

元安橋深さ分布の計算値と測定値の比較

葉佐井らは、広島原爆中性子のエネルギースペクトル推定のため、1987 年元安橋の橋脚花崗岩から採取したコア中に精製された Eu-152 を深さの関数として測定した³⁾。その結果は、DS86 に基づいた計算では再現できず DS86 の見直しを迫る 1 つの材料であった。

この元安橋橋脚中 Eu-152 の深さ分布がどの程度改善したかを見るために、MCNP4C を用いて輸送計算を行った。計算では、DS02 の線源項を仮定し、600m 上空から原爆中性子を発生する。元安橋橋脚を囲むように 132m に半径 10m の仮想半球をもうけてこの半球上での中性子分布を計算した。次に仮想半球上より、中性子の輸送計算を開始し中止に定義した橋脚中の中性子分布を 4cm ごとに計算した。得られたスペクトルから Eu-151 の(n, γ)放射化断面積を用いて比放射能を計算した。葉佐井らによる測定値との比較するため結果を図 5 に共に示す。比較のため今中による計算結果を載せている。DS02 を仮定した計算では表面において 20%程度の違いがあるが、5cm より深部ではほぼ測定値を再現している。

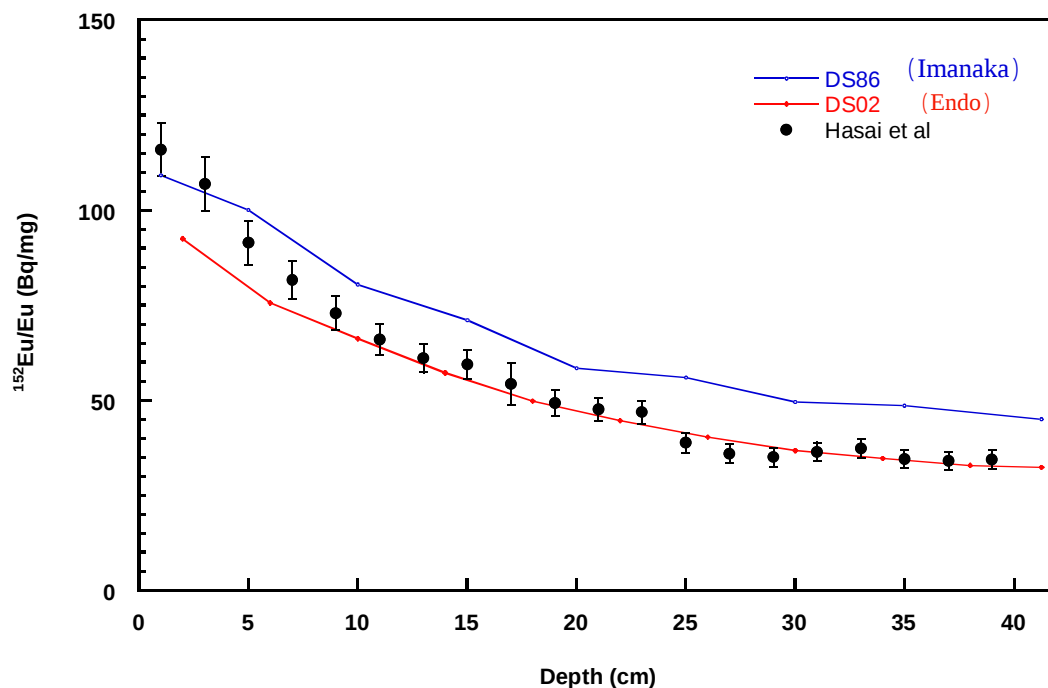


図 5：元安橋 Eu-152 比放射能の深さ依存性。プロットは葉佐井らによる測定値。DS86 は今中による計算、DS02 は本計算

まとめ

広島長崎原子爆弾の新しい線量評価体系 2002 (DS02) が構築された。その結果、DS86 に見られた実測値と計算値の系統的なずれは、ほぼ理解できた。実測値は計算値によって 10～20%程度で見積もることができる。今後 DS02 は、放影研で行われている疫学調査へ取り込まれ、放射線のリスク評価へと利用されることが考えられる。

参考文献

1. Hashizume, T., Maruyama, T., Shiragai, A., Tanaka, S. Estimation of the air dose from the atomic bombs in Hiroshima and Nagasaki. Health Phys. 13, 149-169, (1967).
2. Radiation Effects Research Foundation. In, Roesch, W. C., ed. US-Japan joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, final report. Hiroshima, Radiation Effects Research Foundation, Vol. 1 and 2. (1987).
3. Hasai, H., Iwatani, K., Shizuma, K., Hoshi, M., Yokoro, K., Sawada, S., Kosako, T., Morishima H. Europium-152 depth profile of a stone bridge pillar exposed to the Hiroshima atomic bomb, ^{152}Eu activities for analysis of the neutron spectrum. Health Phys. 53, 227-239 (1987).
4. Hoshi, M., Hasai, H. and Yokoro, K. Studies of radioactivity produced by the Hiroshima atomic bomb: 1. Neutron-induced radioactivity measurements for dose evaluation. J. Radiat. Res. Suppl., 20-31 (1991).
5. Shizuma, K., Iwatani, K., Hasai, H., Oka, T., Morishima, H. and Hoshi, M. Specific activities of ^{60}Co and ^{152}Eu in samples collected from the atomic-bomb dome in Hiroshima. J. Radiat. Res. 33, 151-162 (1992).
6. Shizuma, K., Iwatani, K., Hasai, H., Hoshi, M., Oka, T. and Morishima, H. Residual ^{152}Eu and ^{60}Co activities induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb. Health Phys. 65, 272-282 (1993).

7. Shizuma, K., Iwatani, K., Hasai, H., Hoshi, M. and Oka, T. ^{152}Eu depth profiles in granite and concrete cores exposed to the Hiroshima atomic bomb. *Health Phys.* 72, 848-855 (1997)
8. Nakanishi, T., Morimoto, T., Komura, T. and Sakanoue, M. Europium-152 in samples exposed to the nuclear explosions at Hiroshima and Nagasaki. *Nature* 302, 132-134 (1983).
9. Ichikawa, Y., Nagatomo, T., Hoshi, M. and Kondo, S. Thermoluminescence dosimetry of gamma rays from the Hiroshima atomic bomb at distances of 1.27 to 1.4 kilometers from the hypocenter. *Health Phys.* 52, 443-451(1987).
10. Hubbell, H. H., Jones, T. D. and Cheka, J. S. The epicenters of the atomic bombs: 2. Reevaluation of all available physical data with recommended values. ABCC-TR 3-69(1969).

放影研における被爆者の DS02 線量計算

藤田正一郎*、H. Cullings、D. Preston、船本幸代、
寺西幸子、E. Grant、渡辺忠章
放射線影響研究所

1. 序

放射線影響研究所（以下、放影研と略、前身は ABCC）では、原爆放射線の健康後影響の調査を行っており、その主要調査には寿命調査（Life Span Study、LSS と略）がある⁽¹⁾。この調査集団に属する個々の被爆者が浴びた被曝線量を推定するために、日米の物理学者がその時点で最善と考えられる線量推定方式を構築してきた⁽²⁻⁵⁾。これまで DS86 と呼ばれる方式が用いられてきたが、この方式が導入された時から熱中性子放射化に関する計算値と測定値に矛盾があることが指摘されており、その後約 15 年にわたりこの問題を中心に DS86 の再評価が行なわれてきた^(6,7)。2003 年に日米実務研究班（班長は日本：葉佐井博己、米国：Robert Young）により新たに DS02 と呼ばれる線量推定方式が開発された^(8,9)。ここでは、放影研に導入された DS02 の概要および方式を、LSS を中心とする放影研の調査対象者に適用する方法について説明し、計算結果を DS86 との比較により見てみる。

2. 線量計算の対象者

放影研における主要な調査には、寿命調査（LSS）、胎内被爆者の調査、被爆二世調査がある。その他の調査対象者も含めて約 25 万人のデータベースを整備してきた。放影研では、原爆の炸裂時に爆心から 10km 以内にいた人を被爆者と定義しており、線量計算の対象者は、このうちの約 14 万人の被爆者である。また胎内被爆者の場合はその母親、被爆二世の場合はその父親および母親が線量計算の対象となる。現寿命調査は約 12 万人で構成されており、うち被爆者は 1950 年国勢調査で確認された約 28 万人の生存被爆者から選ばれた約 9.4 万人となっている。

図 1 (広島)・図 2 (長崎)は、放影研の寿命調査を中心とする調査対象者のうち 1966 年時点で T65D 被曝線量が計算されていた被爆者一人一人の原爆時の位置を示している⁽¹⁰⁾。T65D は、LSS 全体に始めて適用された線量推定方式で、線量計算はこの時点では詳しい遮蔽情報が分かっている被爆者(爆心地から約 2km まで)に限られていたが、その後の工夫により計算可能な範囲を拡大していった。T65D の計算は 1968 年時点で完了し、健康後影響の量的な評価が可能となった⁽³⁾。

3. 線量計算方法の歴史的経緯

被爆者の被曝線量が推定されなかった初期の調査研究では、相対的な被曝の程度を決めるのに、爆心からの距離、大まかに分けた遮蔽の軽重、放射線症状の重篤度の組み合わせによる指標が用いられた。1956 年以降、米国オークリッジ国立研究所（Oak Ridge National Laboratory、ORNL と略）保健物理部により被爆者一人一人の線量評価のための物理学的な方法の開発が進められた⁽¹¹⁾。1963 年以降、日本の放射線医学総合研究所も独自の研究を行ってきた。

1957 年に最初の個人被曝線量推定方式 T57D（暫定 1957 年線量）が開発され、爆心からの距離別の線量（空気中カーマ）曲線が作成され、放射線の木造家屋による遮蔽効果の計算がガンマ線および中

* FUJITA Shoichiro, Radiation Effects Research Foundation; fujita@rerf.or.jp

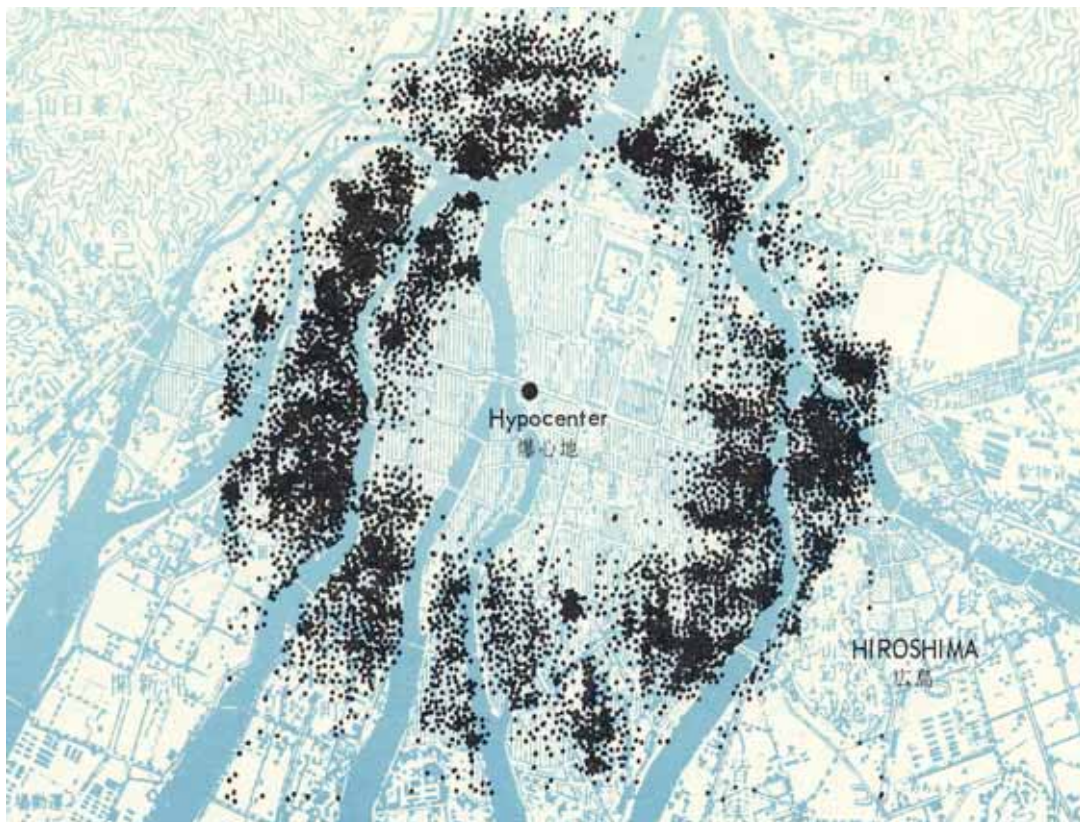


図1 1966年までにT65Dが計算された被爆者の被爆位置の分布、広島。

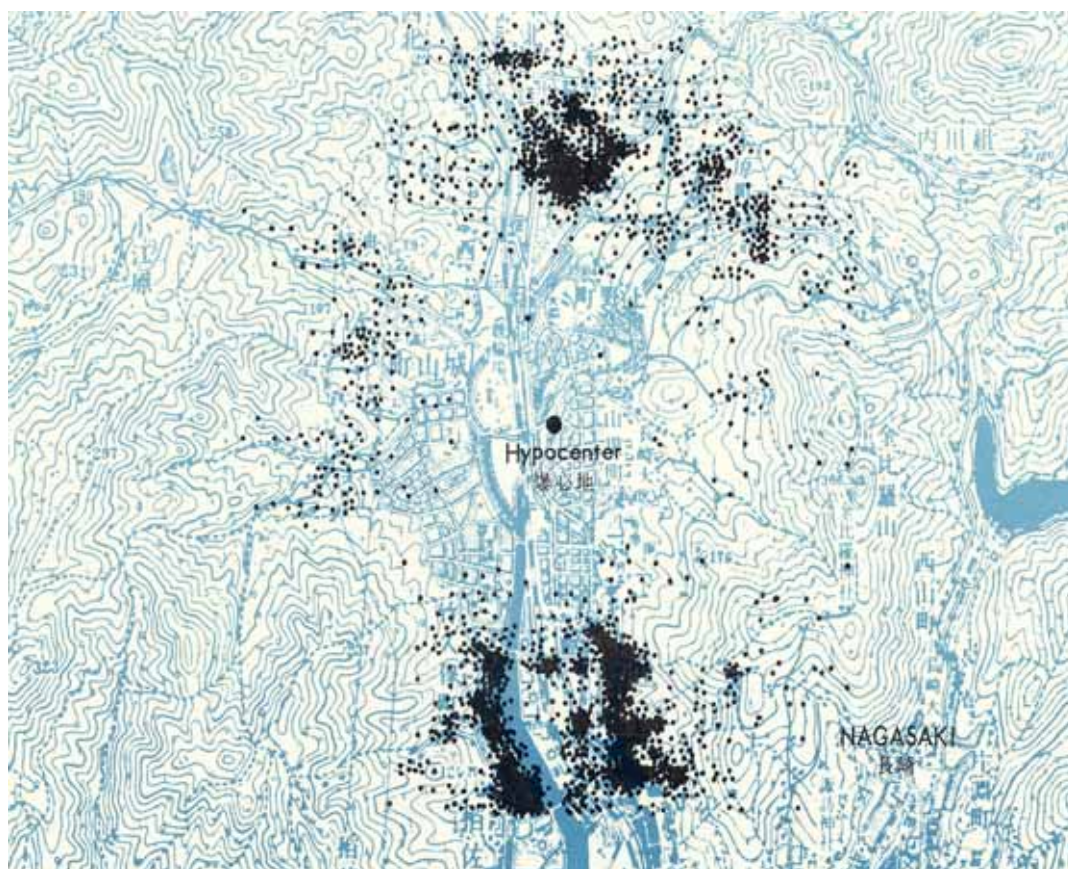


図2 1966年までにT65Dが計算された被爆者の被爆位置の分布、長崎。

性子別にできるようになった⁽²⁾。その後、この方式が改善されて1965年にT65D（暫定1965年線量）と呼ばれる方式が開発され、この個人被曝線量がその後約20年間健康後影響の評価に使われてきた。

T57D、T65D は共に米国での核実験などの実験に基づく計算式により線量計算をおこなうものである。

1978 年に到りこの T65D に対する疑問が提起され、これをきっかけに日米の物理学者が共同で原爆被曝放射線量推定方法の再評価を行った。1986 年に新しい線量推定方式 DS86 (1986 年線量評価体系) が開発された^(4,5)。導入された時から熱中性子放射化に関する計算値と測定値に矛盾があることが指摘されており、その後約 15 年にわたりこの問題を中心に DS86 の再評価が行なわれてきた。2003 年に日米実務研究班 (班長は日本：葉佐井博己、米国：Robert Young) により新たに DS02 と呼ばれる線量推定方式が開発された^(8,9)。

4. 被爆者の遮蔽情報

放影研の調査対象者について、初期においては基礎情報として被爆位置と簡単に分類された個々の遮蔽状況のみが記録されている。その後、1950 年代を中心に被爆者との面接調査により、原爆投下前後の航空写真を利用して被爆者が被爆時にいた正確な位置を街区図に示し、家屋の間取り図や断面図を作成するなど正確な遮蔽状況の把握に努め、加えて被爆時の姿勢と爆心に対する向きについてもより詳細な遮蔽情報を記録してきた (遮蔽歴と呼ぶ)。爆心地から 2 km 以内の全調査対象被爆者を目標としたが、広島は作業量の都合で途中から 1.6 km に縮小された。現在までに約 2 万 8 千人 (広島 2 万人、長崎 8 千人) の詳細な遮蔽歴が得られている。

木造家屋内で被曝した場合、遮蔽状況は 9 つの数値に要約してコード化され、T65D 線量の計算に用いられた。この数値は「9 - パラメ - タ」デ - タと呼ばれる。この対象となる遮蔽歴は両市で約 1 万 8 千件ある。9 つのパラメ - タとは、階層数、直接透過距離 (家屋入射点より被爆者までの距離)、内部前壁数、内部側壁数、前方遮蔽建築物の有無、その大きさ、爆心方向の遮蔽されていない窓からの距離、床上の高さである。遮蔽歴のうち遮蔽状況の部分を図 3 に例示する⁽¹⁰⁾。戸外にいて木造家屋

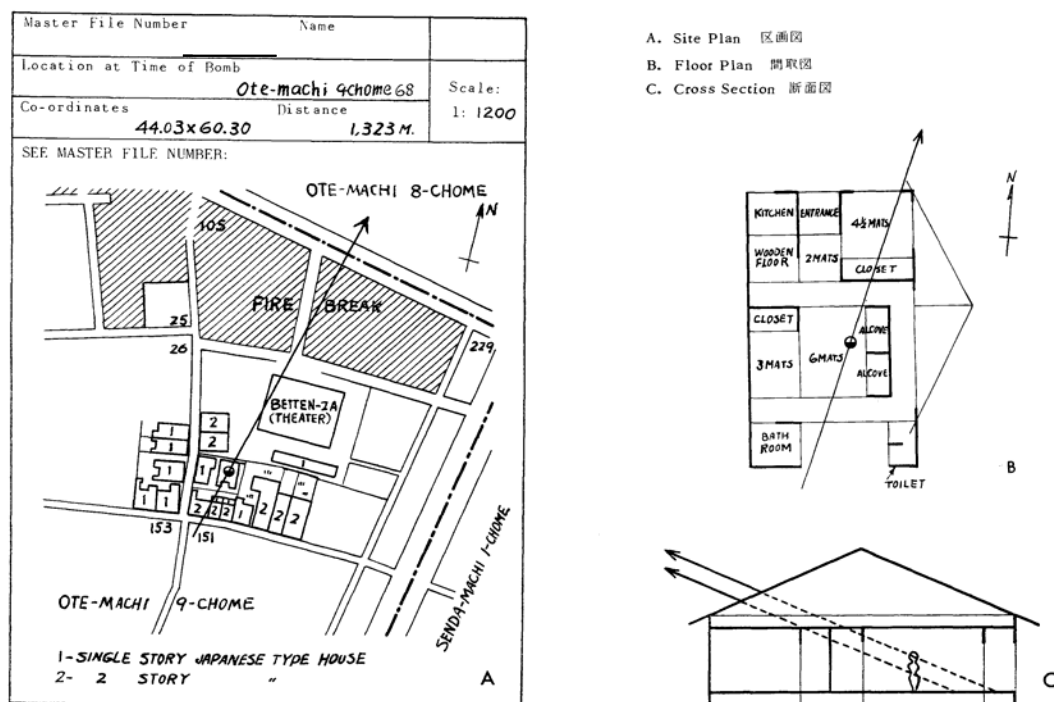


図 3 被爆者の詳細な遮蔽状況の例。

により遮蔽されていた場合には、被爆者を中心とする球面上で遮蔽された部分の割合を再現データをもとに計算し、「グロ - ブ」デ - タとしてコード化された。このケースは約 4 千件ある。その他の線量計算に必要な情報もすべてコンピュータで使えるようにコード化され、T65D 線量の計算に使われた。DS86 線量推定方式開発の際も、被爆者に関するこの詳細な遮蔽データベースの活用を前提に遮蔽効果の計算方法が開発された。DS02 についても同様であるが、遮蔽効果の計算を改善する際に不可欠な情報を遮蔽記録等から新たに抜き出して遮蔽データベースに追加した。

5 . DS86/DS02 方式

DS86 は核物理学の理論に基づくコンピュータ・シミュレーションにより線量計算をおこなう。DS02 も同様で DS86 を改良したものと考えられる。便宜上、DS86/DS02 方式と呼ぶことにする。線量計算の方法を、木造家屋内での被曝の場合を例にとって示す(図 4 参照)。線源(原爆)から数万个の放射線粒子を放出し、大気・家屋・人体組織(すべて実物に似せたコンピュータ模型を使用)を通過して特定の臓器に到達するまで一個一個の放射線粒子を追跡することにより特定の臓器が受けた臓器線量が計算できる。DS86/DS02 方式では、大気、家屋(被爆者の外部の遮蔽)、人体組織(特定臓器に達するまでの被爆者自身の組織を遮蔽と考える、自己遮蔽と呼ぶことにする)のそれぞれについて別個に放射線粒子の追跡計算を行い、その後それらを結合できるように工夫されている。遮蔽力 - マは、人体模型の部分を考えずに、大気・家屋を通過して被爆者のいた地点の地上 1 m の所まで到達した放射線による線量(力 - マ)である。空気中力 - マは、更に家屋模型の部分も考慮からはずした状態で、同一点まで大気を通して到達した放射線による力 - マ線量である。DS86/DS02 方式はこのシミュレーションを行なうためのコンピュータ・プログラムとデータベースからなるが、放影研への導入には工夫がなされた。

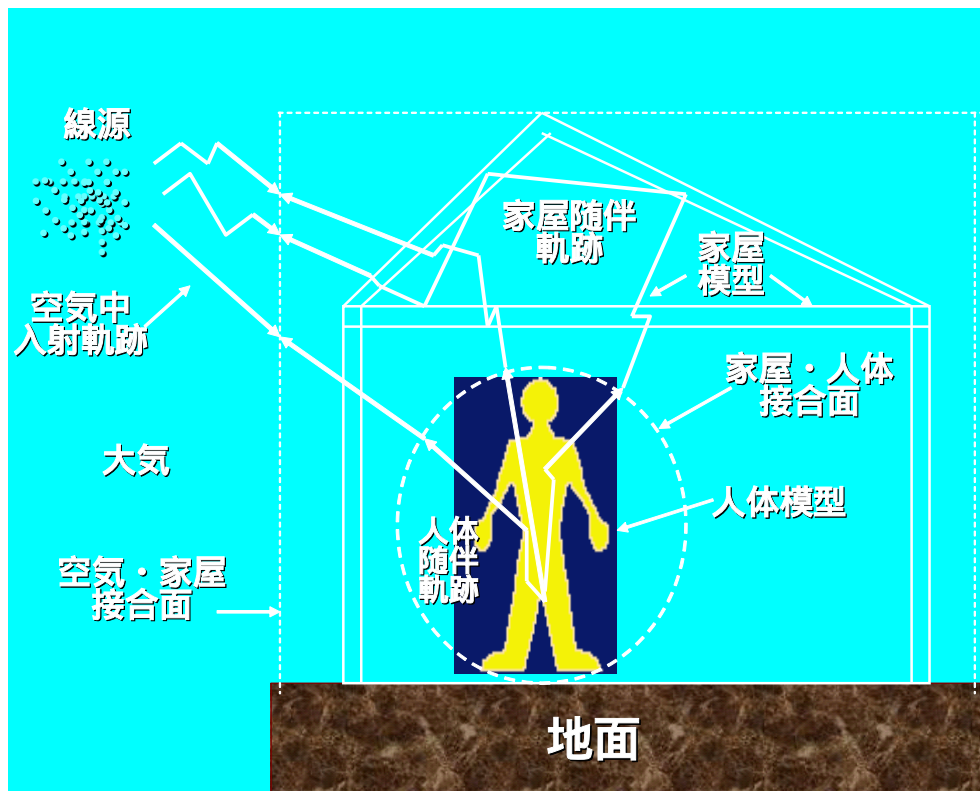


図 4 DS86/DS02 方式による個人被曝線量の計算方式 .

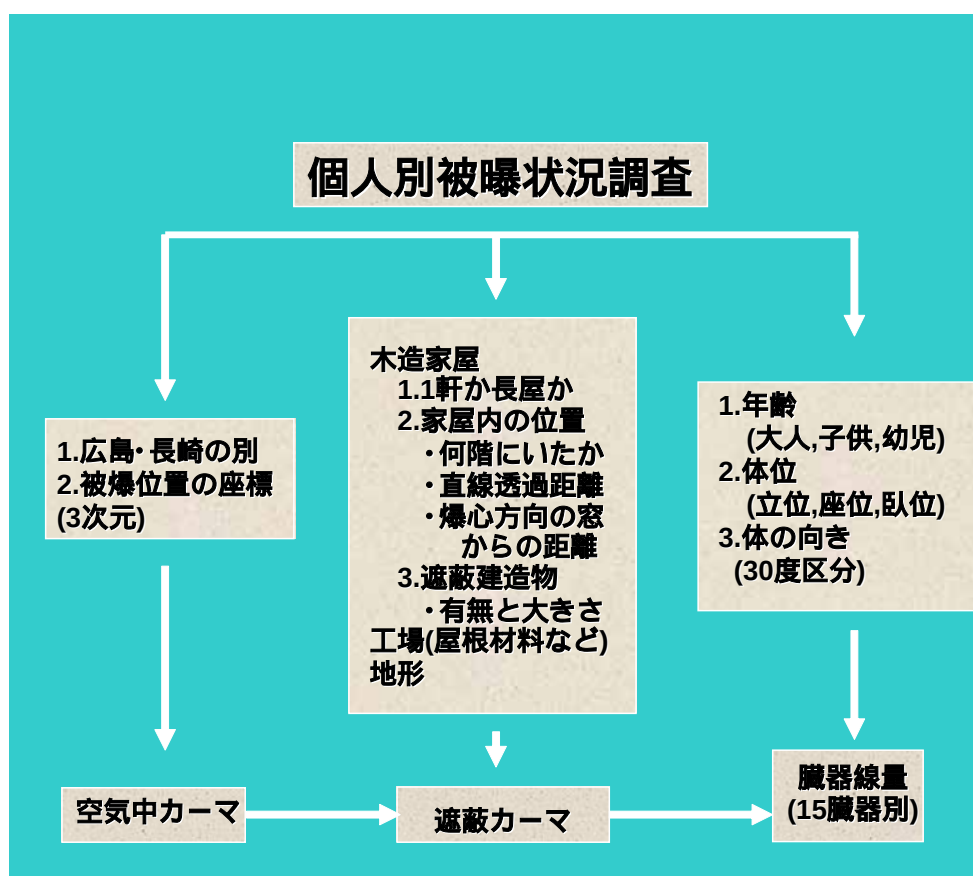


図5 DS86/DS02 方式による個人被曝線量の計算。

6. 放影研における DS86/DS02 の計算方法

DS86 が開発された当時の放影研が使用していた中型コンピュータ(現在はユニックス上で PC を使用)ではこの計算を行なうには無理があり、相当な工夫がなされた。放影研に導入された DS86/DS02 方式は、ス - パーコンピュータによる計算結果の膨大なデータベースと計算プログラムとからなっている。データベースは、自由空間データベース、家屋遮蔽データベース、臓器遮蔽データベースからなる。自由空間データベースには、広島・長崎別に、爆心地からの距離別 (100m から 2,500m まで 25m 毎) エネルギー別 (ガンマ線 21 群、中性子 37 群) 角度別 (240 群) 線量要素別 (即発および遅発中性子、即発および遅発ガンマ線) のフルエンスが与えられている。家屋遮蔽データベースには、数千の遮蔽状況 (家屋内、戸外で家屋により遮蔽、地形による遮蔽、等) に対応する粒子追跡結果 (外部遮蔽別伝達関数) が与えられており、特定の被爆者の遮蔽に対応する結果と上記自由空間データベースからのフルエンスと連結して遮蔽フルエンスを計算する。臓器遮蔽データベースには 15 の臓器について年齢別 (3 群) 体位別 (立位、座位、臥位) 爆弾に対する向き別 (30 度毎) に粒子追跡結果 (自己遮蔽別伝達関数) があり、遮蔽フルエンスと連結して臓器フルエンスを計算する。DS02 では、エネルギー分布の区分がより詳細になっていること、線量要素もより細分されているが、放影研における DS02 の計算の際は、DS86 に用いられた区分に要約されたデータベースが用いられた。別にフルエンスからカーマまたは臓器線量への変換のための加重係数があり、線量を計算する。個々の被爆者の遮蔽状況に関する情報に基づき、個人被曝線量 (空気中カーマ、遮蔽カーマ、臓器線量) を計算する過程を図 5 に示す。

7. DS86 から DS02 へ

新しく導入された DS02 は、DS86 よりも中性子放射化に関する計算値と測定値の一致が特に近距離において良くなった。爆弾の線源およびその空中伝播の推定に変更が加えられたが、特に広島爆弾については、炸裂点高度が 580m から 600m に、出力が 15kt から 16kt に変更された。

個々の被爆者の線量計算に関しては、遮蔽関連の強化が挙げられる。地形として広島は平地であり、DS86 では地形の評価は長崎に限られていた。DS02 では、広島の比治山および長崎の金毘羅山が新たに遮蔽効果の計算が可能な範疇に加えられた。比治山および金毘羅山は爆心地から見て比較的遠方に位置しておりこれまでは推定線量として空気中カーマがそのまま用いられてきた。近年低線量領域における放射線の健康影響への感心が高まり、山による遮蔽効果への考慮が求められていた。個人情報データベースに山の陰にいた被爆者の情報を追加し、DS02 遮蔽カーマ等の計算が行われた。

その他の改善としては、個人の情報をより活用することにより従来の遮蔽効果の計算がより精密に行われた。木造家屋・学校・工場（長崎のみ）内被曝の場合の一部がこれに含まれる。木造家屋内で被曝の場合に爆心地方向にある一定の基準を満たす建造物の遮蔽効果を追加考慮すること、工場内被曝の場合に工場内の被曝位置や設置された作業台の遮蔽効果を考慮すること、木造校舎内被曝は木造家屋内被曝と区別して計算することなどが新たにくわわった。必要な情報は個人の遮蔽記録等から抜き出し数値化して個人情報データベースに加え DS02 に基づく推定線量が計算された。

8. 計算結果の比較：DS02 対 DS86

空気中カーマについて、DS02 の DS86 に対する変動の割合（パーセント）を、爆心地から 2.5km 以内の距離別、広島・長崎別、中性子カーマおよびガンマ線カーマ別に図 6 に示した。データベースのテーブルに示されている値を直接比較してみると、ガンマ線カーマは、広島の爆心地付近（対象となる被爆生存者がいない）を除けば、両市とも 10% の範囲内の増加が見られる。中性子カーマは広島では約 10% の範囲で減少から増加してまた減少しているが、長崎では 10% から 40% へと減少割合が増加している。

2.5km 以内の LSS 対象者一人一人について、実際に外部遮蔽と自己遮蔽を考慮して 15 の臓器について被曝線量の計算を行なった。例として結腸を選び（固形がん全体をまとめて解析する際に結腸線量を使用している）、結果を中性子線量およびガンマ線量別に図 7 に示した。爆心地付近には対象者はいない。ガンマ線量に関しては、図 7 に見るように DS02 結腸ガンマ線量は DS86 線量よりも約 10% 増加している。ガンマ線に対する遮蔽効果の変動が少なく図 6 に見るガンマカーマの変動割合と似ている。長崎の 2km 以遠における DS02 結腸ガンマ線量の減少は、金毘羅山の遮蔽効果を計算に追加した結果を反映している。広島は比治山の影響を受けた対象者の割合が少ない。中性子線量に関しては、空気中カーマの変動に加えて中性子線に対する遮蔽効果も DS02 で増加しており、図 7 に見るように DS02 結腸中性子線量は DS86 線量よりも減少している。

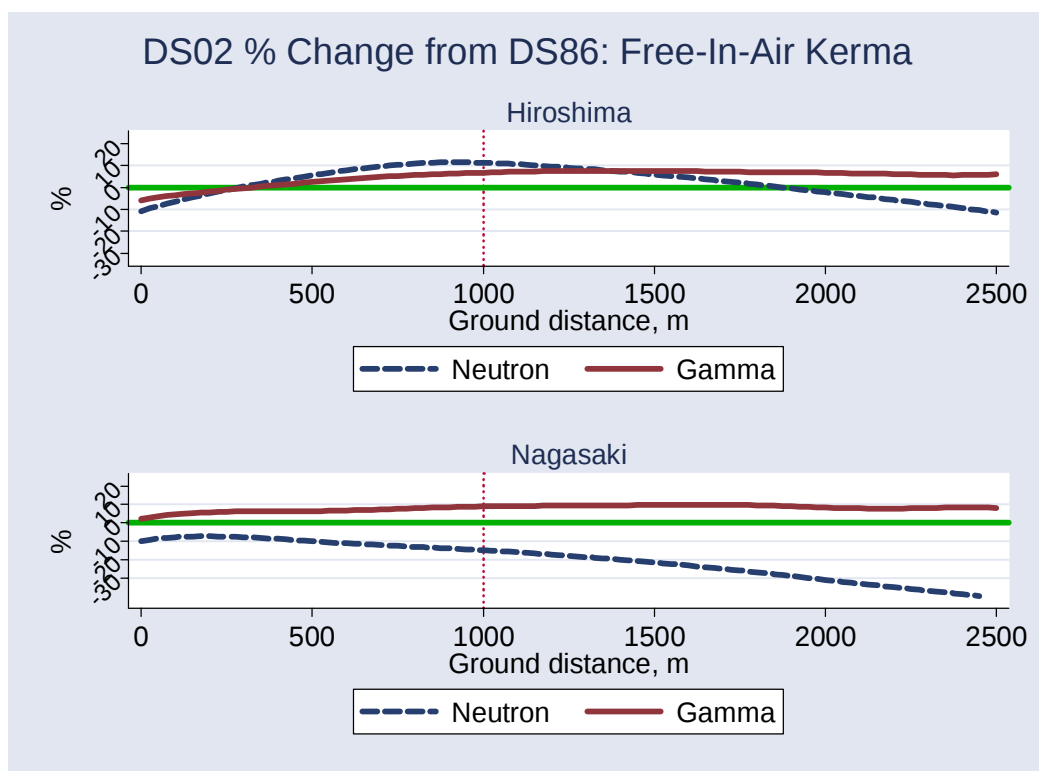


図 6 . DS02 の DS86 に対する変化割合 (%): 空気中カーマ

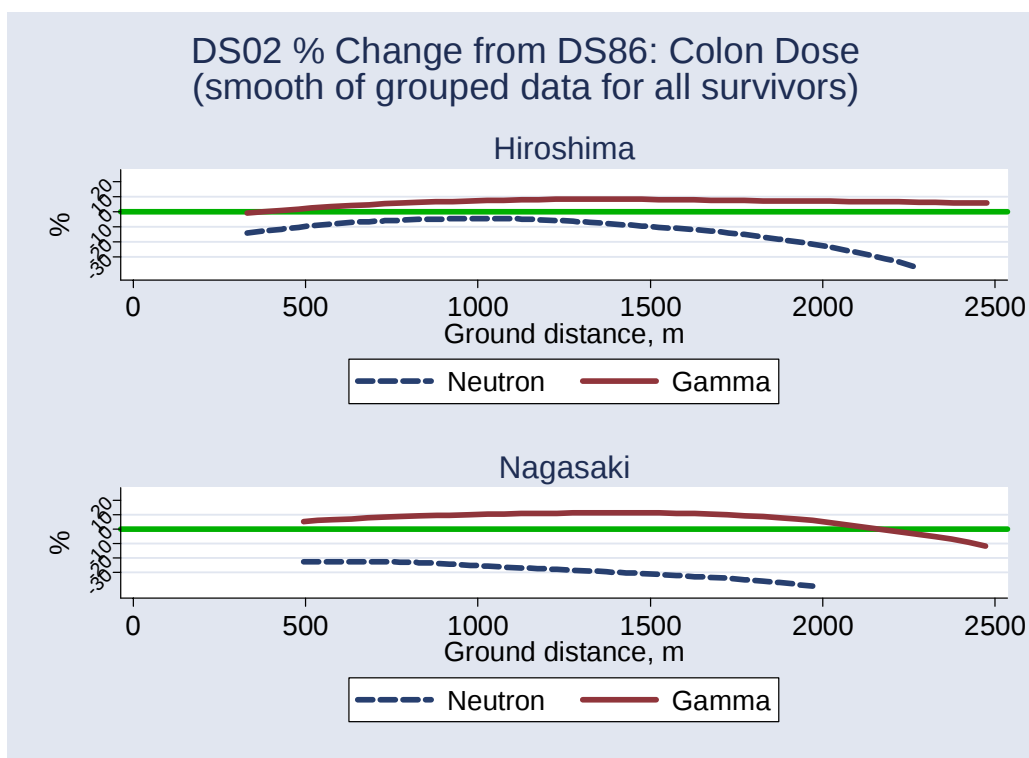


図 7 . DS02 の DS86 に対する変化割合 (%): 結腸線量

参考文献

1. Preston DL et.al. Studies of Mortality of Atomic Bomb Survivors. Report 13: Solid Cancer and Nonsolid Cancer Disease Mortality: 1950-1997. Radiation Research 160:381-407 (2003).
- 2 .Ritchie RH, Hurst GS 核兵器放射線の透過性：広島・長崎調査への応用、ABCC TR 26-59, 1959 .
- 3 . Milton RC, Shohoji T Tentative 1965 radiation dose estimation for atomic bomb survivors, Hiroshima and Nagasaki. ABCC Technical Report 1-68, 1968
- 4 . Roesch WC, (ed). US-Japan reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki: Final Report, vol. 1. RERF Hiroshima, 1987.
- 5 . Roesch WC, (ed). US-Japan reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki: Final Report, vol. 2. RERF Hiroshima, 1988.
- 6 . Fujita S Version of DS86. RERF Update 1(2):3, 1989.
- 7 . Preston DL, Pierce D, Vaeth M. Neutrons and radiation risk: a commentary. RERF Update 4 (3): 5, (1992-93) [Issues]
- 8 . 原爆放射線量評価検討会、「DS02 に関する原爆放射線量評価検討会日米会議報告書」厚生労働省健康局総務課、2003 年 3 月 .
- 9 . US-Japan WG; “Reassessment of the A-bomb Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki – Dosimetry System 2002” (DS02 Report), RERF (in preparation)
10. Noble KB (ed). Shielding survey and Radiation Dosimetry study plan, Hiroshima and Nagasaki. ABCC Technical Report 7-67, 1967
- 11 . Auxier JA. “ICHIBAN: Radiation Dosimetry for the Survivors of the Bombings of Hiroshima and Nagasaki”, TID-27080, 1977.

DS02 に基づく誘導放射線量の評価

今中哲二*

京都大学原子炉実験所

1. はじめに

広島・長崎原爆による残留放射線被曝は、土壌や建物が原爆中性子により放射化したことによる誘導放射能からの被曝と、核分裂生成物やウラン・プルトニウムといった原爆材料の fallout、いわゆる「黒い雨」ともなう被曝とに分類される。残留放射線による被曝は、被爆当時の位置や行動に大きく依存し、初期放射線による被曝に比べ、個人被曝量の正確な評価は困難である。DS86 では、Okajima らが残留放射線被曝に関するそれまでの仕事のレビューを行っている⁽¹⁾。その結果によると、誘導放射能については爆心地での最大外部被曝量として、広島で 80R、長崎で 30～40R という値になり、黒い雨にともなう外部被曝量としては、長崎・西山地区で 20～40R、広島の己斐・高須地区で 1～3 R という値を示している。一方、Gritzner らは、輸送計算を用いて土壌中に生成する放射エネルギーを求め、爆心地での無限積算外部被曝量として、広島で 140cGy、長崎で 70cGy という値を報告している⁽²⁾。

DS02 では、初期放射線に関してのみ見直しが行われ、残留放射能については検討されていない。残留放射線による被曝は、初期放射線による被曝に比べ、一般的にはかなり小さいものと考えられているが、特殊な例では無視できない被曝があったと思われる。本報告では、DS86 報告書にある Gritzner らの計算結果を DS02 に応用することにより、距離と時間の関数として誘導放射能による地上 1 m での外部被曝（空气中組織カーマ）を求めた。また、放射化された粉塵の吸入にともなう被曝量についても簡単に見積もってみた。

2. 評価方法

2-1. DS86 での誘導放射能被曝計算

DS86 では、2 次元輸送コード DOT4 などを用いて、原爆炸裂点で発生する即発中性子や上昇する火球からの遅発中性子の地上への伝播計算が行われている⁽³⁾。DOT4 の計算体系は R-Z 円筒 2 次元で、R 方向 120 メッシュ (0～2800m)、Z 方向 99 メッシュ (-0.5～1500m) に分割され、そのうち 50cm の地面層は Z 方向に 21 メッシュに刻まれている。DOT4 計算では、各メッシュ中点での中性子エネルギー束が得られる。Gritzner らは、その中性子束と土壌組成から、土壌各メッシュでの中性子放射化生成量を計算し、各核種からのガンマ線による地上 1 m での被曝量を計算した。表 1 に、Gritzner らが誘導放射能計算の対象とした核種とその土壌中組成を示す⁽²⁾。

Gritzner の計算によると、誘導放射線に寄与する主な核種

表 1 誘導放射能計算の対象元素

元素	原子密度 (× 10 ⁻²⁴ atom cm ⁻³)	
	広島	長崎
Na	5.451E-4	2.556E-4
Al	2.061E-3	2.816E-3
Si	9.315E-3	6.806E-3
P	4.247E-6	2.424E-5
K	7.191E-4	1.150E-4
Ca	1.583E-4	2.267E-4
Sc	8.708E-8	3.483E-7
Ti	2.567E-5	1.034E-4
Cr	3.087E-6	2.289E-6
Mn	6.659E-6	1.796E-5
Fe	2.482E-4	8.247E-4
Co	4.916E-8	2.950E-7
Ni	6.668E-8	7.201E-7
Cu	4.436E-7	6.284E-7
Mg	8.180E-5	2.367E-4
V	3.428E-7	2.628E-6

* IMANAKA Tetsuji, Kyoto University; imanaka@rri.kyoto-u.ac.jp

は、 ^{27}Al (半減期 2.24m) ^{56}Mn (2.58h) ^{24}Na (15.0h) ^{46}Sc (83.8d) で、時間とともに主役が交代する。Gritzner らの計算結果は、DS86 報告書 Vol. 2 I に図表で示されている。

2-2 . DS86 と DS02 の放射化量比

DS02 では土壤中放射化量の計算は行われていないが、無遮蔽地上 1 m での放射化量を Santro らが計算している⁽⁴⁾。ここでは、DS86 と DS02 の地上 1 m での ^{60}Co 放射化量の比をそのまま誘導放射線量の比として採用する。誘導放射線に寄与する核種はいずれも主に熱中性子反応によって生成するものであり、第 1 近似としてはこの方法で十分であろう。図 1 は、DS86 と DS02 での ^{60}Co 生成量の比である。広島は爆心近辺で比が 1 より小さいのは、爆発点高さが 580m から 600m に変わったため、遠距離で 1 より大きい理由のひとつは、15kt が 16kt に変わったためである。長崎の比が 0.8 ~ 0.9 になっている理由のひとつは、断面積ライブラリーが ENDF/B5 から ENDF/B6 になったためと思われる。図 1 の DS02/DS86 比を、Gritzner らによる DS86 報告書の値に掛けることにより、DS02 に基づく誘導放射線量を求めた。

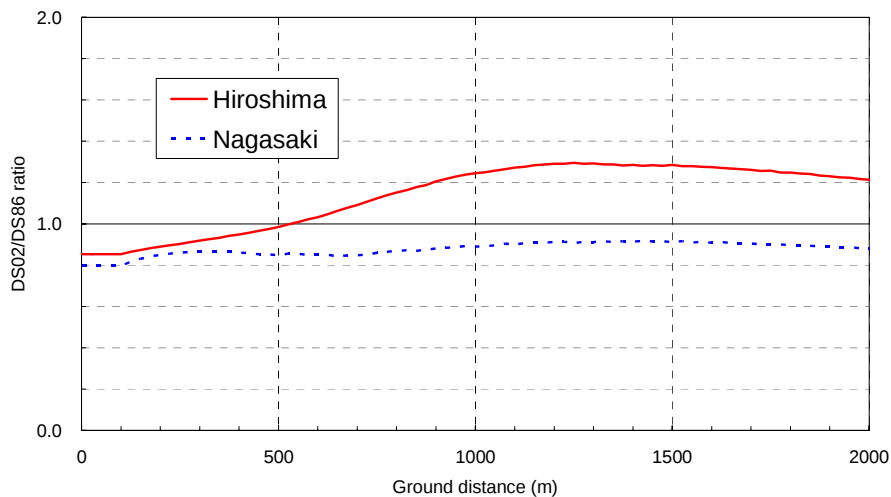


図 1 地表 1 m での ^{60}Co 放射化量比 : DS02/DS86

3 . 計算結果

3-1 . 誘導放射線量率

誘導放射能による地上 1 m での放射線量率が変化する様子を、図 2 と図 3 に広島と長崎について示した。図からわかるように、放射線量率は時間とともに急速に減衰する。爆発 1 分後の爆心地での放射線量率は、広島で約 600 cGy/h、長崎で約 400 cGy/h となっているが、広島・長崎ともに、1 日後にはその 1000 分の 1 に、1 週間後には 100 万分の 1 にまで減少している。それでも、自然放射線レベルを 1×10^{-5} cGy/h 程度とすると、爆心近辺では約 1 年近く自然レベル以上の放射線量率が続いていたことになる。図には、爆心近辺での測定値をいくつか示した。Pace & Smith は米軍調査団の GM 管による測定値である⁽⁵⁾。米軍調査団は、長崎と広島での爆心近辺と黒い雨地帯で広範なサーベイをおこなっている。広島の宮崎と増田⁽⁶⁾、長崎の増田ら⁽⁷⁾の測定はネイヤ型宇宙線計、篠原ら⁽⁸⁾はローリッツェン検電器による測定である。これらの測定値と計算値を比較すると、広島はまずまずであるが、長崎では篠原らや増田らの測定値に比べ計算値はその 6 ~ 8 倍である。違いの理由は定かではないが、一応、計算の方が大きめの方向である可能性を示唆している。

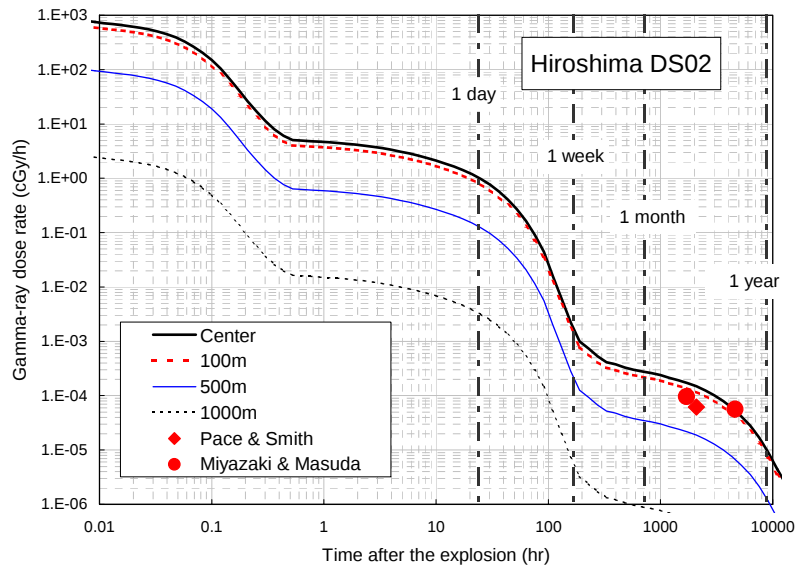


図2 誘導放射能による放射線量率の時間変化：広島
 曲線は、爆心地からの距離別．Pace & Smith、Miyazaki & Masuda は測定値．

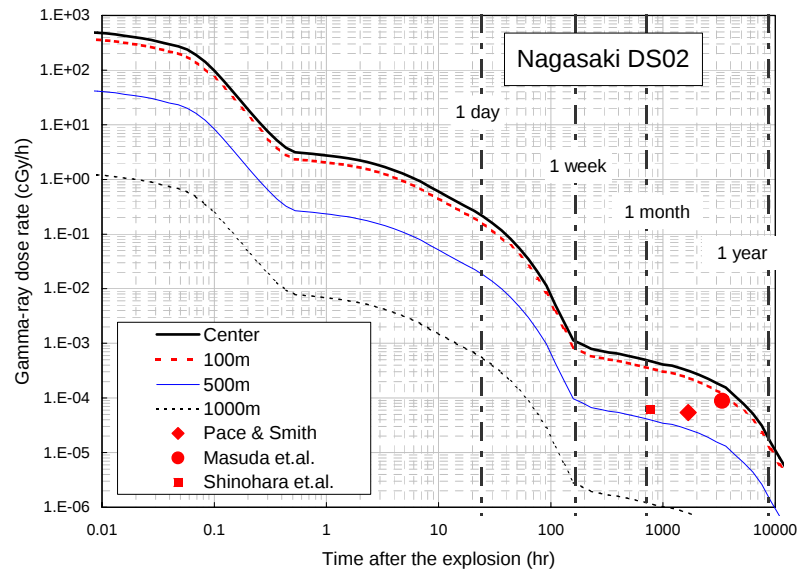


図3 誘導放射能による放射線量率の時間変化：長崎
 曲線は、爆心地からの距離別．Pace & Smith、Masuda et.al.、Shinohara et.al.は測定値．

3-2．積算放射線量

図2と図3に示した放射線量率を、各爆心距離について、無限時間まで積分した値を図4に示す。無限時間積分とは、爆発直後からずっと同じところに居続けたときの放射線量である。積算線量値は、爆心からの距離とともに速やかに減少する。爆心地での積算線量は、広島 120cGy、長崎 57cGy であるが、爆心から 1000m では広島 0.39cGy 長崎 0.14cGy となり、爆心地のそれぞれ 1/300 と 1/400 である。1500m では広島 0.01cGy、長崎 0.005cGy となり、これ以上の距離での誘導放射線被曝は無視して構わないだろう。

図5は、「ある時刻以降の積算線量」の「時刻ゼロからの積算線量」に対する比である。たとえば、図5の 1 day 値は広島 0.16、長崎 0.097 である。したがって、広島爆心地に1日後に入って、それからずっと滞在した場合の線量は $120 \times 0.16 = 19$ cGy となり、長崎の場合は、 $57 \times 0.097 = 5.5$ cGy

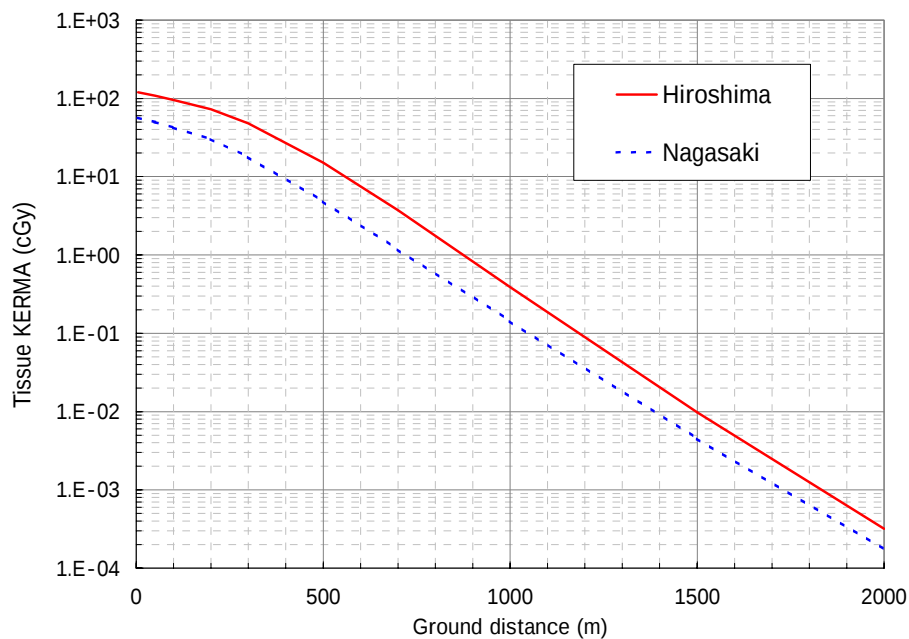


図4 爆発直後から無限時間までの積算放射線量

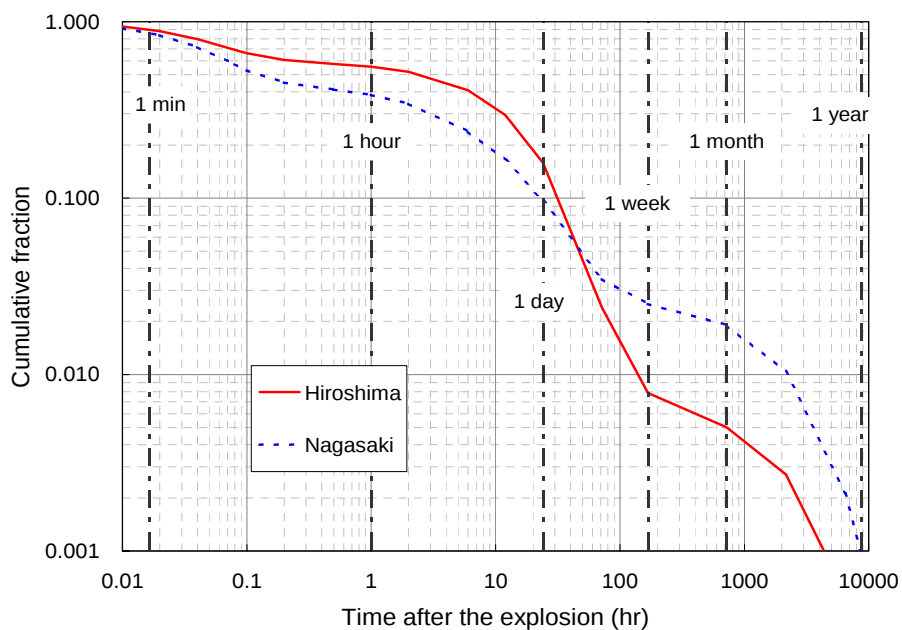


図5 「ある時間以降の積算線量」の「時間ゼロからの積算線量」に対する比

となる。1 week 値は広島 0.0078 長崎 0.025 なので、1 週間後に爆心地に入らずと滞在した場合は、それぞれ 0.94cGy と 1.4cGy となる。図5の途中から長崎の値の方が大きくなっているのは、表1に示されているように、Scの土壌中密度が広島に比べ約4倍もあるためである。

3-3．放射化された塵埃の吸入による被曝

誘導放射能の体内取り込みにともなう内部被曝の正確な評価は、外部被曝以上に困難である。それでも、おおざっぱな仮定を基にどの程度の被曝になりそうか見積もってみることにし、それなりの意味があろう。ここでは、焼け跡の片づけに従事した人々の塵埃吸入を想定して、内部被曝評価を試みた。吸入の対象とした放射能は土壌中の ^{24}Na と ^{46}Sc である。放射化生成量は、DS02 検証計算で得られたMCNPによる地上1m中性子束を用いて、1km以内の平均値を計算した。塵埃吸入量は、NHK

テレビ特別番組⁽⁹⁾での後かたづけ模擬作業を参考に、塵埃濃度を 2 mg/m³ と想定した。表 2 に計算パラメータと計算結果をまとめた。この計算は、原爆当日に広島で 8 時間の片づけ作業に従事したとして、内部被曝を評価してみたものである。その結果 0.06 μSv という値になった。この値は、考えられる外部被曝に比べ無視できるレベルである。

表 2 後片づけ作業にともなう吸入被曝計算

計算項目	²⁴ Na	⁴⁶ Sc	備考
A = 生成比放射能量 (Bq/g 元素)	5.0×10^6	9.6×10^5	1 km 以内平均値 (爆弾直後)
B = 土壌中濃度 (重量%)	1.22	0.0005	DS86 報告書より
C = 空气中塵埃濃度 (g/m ³)	0.002		NHK 模擬作業より
D = 呼吸率 (m ³ /min)	0.04		重労働相当 (ICRP30)
E = 作業時間 (min)	480		8 時間作業
F = C × D × E : 塵埃吸入量 (g)	0.0384		
G = A × B × F : 吸入放射能量 (Bq)	230	0.018	
H = 実効線量換算係数 (μSv/Bq)	2.6×10^{-4}	5.5×10^{-3}	ICRP30
I = G × H : 実効線量 (μSv)	0.06	0.0001	

4. まとめ

DS86 での誘導放射能の計算結果を基に、DS02 での外部被曝を評価してみた。その結果、個人線量の正確な評価は困難であるものの、誘導放射能による被曝が問題となるのは、爆心地から 1 km 以内に 1 週間以内に入った人々である、と言ってよいであろう。また、焼け跡の片づけ作業に従事した人々の塵埃吸入にともなう内部被曝を見積もってみたが、外部被曝に比べ無視できるレベルであった。

文献

1. S. Okajima, S. Fujita, H. Harley; Radiation doses from residual radioactivity, Chapter 6, DS86 final report, Vol 1 (1987).
2. M. I. Gritzner, W. A. Woolson; Calculation of doses due to atomic bomb induced soil activation. DS86 final report Vol. 2 (1987).
3. G. D. Kerr et.al.; Transport of initial radiations in air over ground. Chapter 3, DS86 final report Vol. 1 (1987).
4. R. T. Santoro et.al.; Radiation transport calculations for Hiroshima and Nagasaki. Chapter 3 (Draft), DS02 report (in preparation).
5. N. Pace, R. E. Smith; 広島および長崎の原子爆弾被爆地域における残留放射能の強さの測定、ABCC TR 26-59(1959)。
6. 宮崎友喜雄、増田時男；原子爆弾により惹起された広島市内およびその附近の放射能について（その 2）。原子爆弾災害調査報告集、第 1 分冊、pp35-38。日本学術振興会、1953。
7. 増田時男、坂田民雄、中根良平；長崎およびその隣接地区における原子爆弾による放射能。原子爆弾災害調査報告集、第 1 分冊、pp38-40。日本学術振興会、1953。
8. 篠原健一ほか；長崎市およびその近傍における土地の放射能 第 1 部 爆心地附近の放射能。原子爆弾災害調査報告集、第 1 分冊、pp41-44。日本学術振興会、1953。
9. NHK 広島局・原爆プロジェクト・チーム；ヒロシマ・残留放射能の 42 年。日本放送出版協会、1988 年。

「黒い雨」にともなう積算線量

静岡 清*

広島大学大学院工学研究科

1. はじめに

DS86 最終報告書¹⁾では残留放射能による積算線量について中性子誘導放射能によるものとフォールアウトによるものについて評価が行われている。集積線量は原爆の1時間後から無限時間その場所に滞在した場合の被爆線量を表す。集積線量の推定は文献1においては2通りの方法で推定されている。一つは原爆の初期調査で行われた線量率の測定データに基づく方法で、他の一つは土壌中の¹³⁷Csの降下量の測定データに基づく方法である。残留放射能による集積線量の推定はこれまで、Arakawa²⁾、庄野³⁾、Takeshita⁴⁾、Hashizume⁵⁾、Okajima⁶⁾らにより行われている。庄野は己斐、高須付近、および、旧市内でのフォールアウトによる放射線量について、旧市内においては己斐高須地区の約1/10と推定した。

DS86 最終報告書ではDS86のフォールアウトについては原爆から経過時間t時間後の線量率は1時間後の地上1mの線量率を X_1 として

$$X_t = X_1 t^{-1.2}$$

とし、

$$\int_1^{\infty} X_t dt = X_1 \int_1^{\infty} t^{-1.2} dt = 5X_1$$

で与えられる。

¹³⁷Csの降下量に基づく方法では¹³⁷Cs降下量1mCi/km²が1時間後から無限時間までの集積線量で300mRに相当するとしている。ただし、Fractionationにより異なるが、原爆の場合は不明とされている。

初期調査の線量率測定データから推定された長崎西山地区の集積線量を表1に示す。これらのデータから長崎西山地区でフォールアウトによる集積線量は20-40Rと推定された¹⁾。

表1 長崎西山地区のフォールアウトによる集積線量推定値 (文献1)

Investigator	Days after bomb	Measured Exposure Rate (mR/h)	Kind of Measurement	Exposure Rate at 1 h (R/h)	Cumulative Exposure (R)
¹³ Shinohara et al	N+53	0.1-2.7	Range	0.5-14	2.5-70
¹⁴ Tybout (¹⁶ Wilson)	N+57	1	-	5.8	29
(¹⁷ McRaney)	N+48	1-1.8	Max.	4.7-8.5	24-43
¹⁵ Pace and Smith	N+73	1.08	Max.	8.4	42
	N+96	0.7	Village	7.6	38

* SHIZUMA Kiyoshi, Hiroshima University; shizuma@hiroshima-u.ac.jp

表2 土壌中の ^{137}Cs から推定された集積線量（文献1）

Investigator	Year Taken	Year Measured	Deposition of ^{137}Cs (mCi/km ²)				Cumulative Exposure (R)
			Nishiyama	Nagasaki	Net	1945 ^a	
¹⁹ Miller	1956	1982	62	7	55	130	40
²² Mahara and Miyahara	1981	1981	600	200	400	900	270
^{23,24} Okajima et al	1969	1970	1520 ^b	1040	480	760	230
	1969	1970	740 ^c	290	450	710	210

^a The extrapolation of measured values back to 1945 includes only radioactive decay of ^{137}Cs .

^b Uncultivated soil.

^c Arable soil.

また、土壌中の ^{137}Cs の測定データから推定された集積線量を表2に示す。西山地区の土壌中の ^{137}Cs 降下量から長崎市内の値を引くことにより西山地区での原爆フォールアウトによる降下量が推定されている。しかしながら、原爆以後1950年から1960年にかけて各国は大気圏核実験を繰返した。これらの核実験によるフォールアウトは日本を含めて世界中に広がった。このため、現在では広島、長崎の原爆のフォールアウトより、核実験のほうが圧倒的に大きい。表2において土壌の採取年が1969年以降ではすでに核実験フォールアウトの影響が大きく、正確な評価は困難である。DS86報告書では西山地区のフォールアウトによる集積線量は40Rと推定された¹⁾。

長崎の場合と同様に広島初期調査による線量率から推定された己斐・高須地区における集積線量の推定値を表3に示す。DS86報告書では広島の己斐・高須でのフォールアウトによる集積線量は1～3Rと推定された。

表3 広島の己斐・高須地区のフォールアウトによる集積線量推定値（文献1）

Investigator	Days after bomb	Exposure rate at time of measurement			Exposure rate at 1 h (R/h)	Cumulative exposure (R)
		Gross		Net		
²⁸ Miyasaki and Masuda	H+188	22 I	Max.	17 I ^a	0.6	3
		20 I	Average	15 I	0.5	2.3
²⁹ Fujiwara and Takeyama	H+49	6 × Bkg.	Max.	40 μR/h	0.19	1
	H+920	2.4 × Bkg.		11 μR/h	1.8	9
¹⁴ Tybout (³⁰ Arakawa)	H+60	45 μR/h	Max.	37 μR/h	0.23	1.2
¹⁵ Pace and Smith	H+87	19-20 μR/h Range		11-34 μR/h	0.11-0.33	0.6-1.6

^aI, the unit of ionization obtained with the Neher electrometer is about 1.5 μR/h.

土壌中の ^{137}Cs データからも集積線量の推定が可能であるが、広島の場合には、評価に使用される ^{137}Cs データがない。広島のフォールアウトによる ^{137}Cs の測定はこれまで多くの研究者により行われてきた^{6・8)}。しかし、現在では原爆フォールアウトより、核実験のほうが圧倒的に大きい。従って、原爆由来の痕跡を調べるためには、原爆に被爆したままの状態で作成されており、核実験フォールアウトをあげていない試料を入手するしかない。本研究ではそのような貴重な試料として3種類：1) 理学部岩石学教室の被爆試料、2) 理研の土壌試料、3) 原爆資料館の「黒い雨」壁面についての測定結果を報告する。DS86 報告書においてはフォールアウトについての線量評価が詳細に行われたが、近くまとめられる DS02 においては中性子、ガンマ線の評価に中心がおかれており、フォールアウトについての再評価は行われていない。

2. 広島原爆の初期調査およびその後の調査

初期調査については主として原子爆弾災害調査研究特別委員会の報告書にまとめられている。この委員会は原子爆弾の災害を総合的に調査研究するために、1945 年 9 月に文部省学術会議により設立され、物理化学地学科会をはじめ 9 分科会で構成された。

1945 年、8 月 8 日に理化学研究所の仁科芳雄氏は陸軍調査団とともに空路、広島に入った。8 月 9 日には仁科氏の指導のもとに陸軍関係者により爆心から 5km 以内の 28 カ所から土壌試料が採取された⁹⁾。試料は使用済みの封筒などに入れられて 8 月 10 日に東京に空輸されて、その日の内に理研において測定され、銅線から放射能が検出された。これにより原爆であることが確かめられた。この他、初期調査としては 8 月 10 日に大阪調査団¹⁰⁾ が入市し、携帯用箔検電器を使用して西連兵場の砂から放射能を検出した。翌 11 日には市内の数箇所から砂を採取し、己斐駅付近で放射能が高いことが確かめられた。8 月 10 日には京都大学調査団¹¹⁾ も入市し、市内で砂を採取して 11 日に帰京ののち放射能を検出した。そして、9 月 3 日、4 日には山崎文男氏¹²⁾ (理研) がローリッツェン検電器を自動車に乗せて外部放射線量の現場測定を行った。

渡辺武男氏 (東京帝国大学教授) は地学班長として 1945 年 10 月 11 日に広島に入り、11, 12, 13 日に広島の調査を行った¹³⁾。14 日には長崎に向かい、15-19 日に長崎の調査を行った。さらに、1946 年 5 月 7 日に広島、13 日に長崎を再調査した。渡辺氏の収集した試料は東京大学総合研究試料館 (現、東京大学総合研究博物館) で保管されていた。これらの試料は平成 16 年 1 月 24-4 月 12 日に「石の記憶-ヒロシマ・ナガサキ」として初めて特別展示されるとともに、写真集¹⁴⁾ にまとめられている。渡辺氏の調査のあと小島丈児氏 (広島文理大) らは独自に調査を行った。実際の現地調査と試料収集は 10 月 27 日、11 月 4, 5, 9, 13 日、12 月 2, 3 日に当時学生であった秀 敬氏 (広島大学名誉教授) が行った。これらの試料は岩石学的調査のあと、広島大学理学部岩石学教室で保管されていた。

原爆後、1945 年 10 月 3 日～7 日には、日米合同調査団の調査¹⁵⁾ が行われた。この調査では携帯用ガイガーミュラー計数管を用いて広島の 100 箇所、その後、長崎で 900 箇所について行われた。そして、両爆心地と風下にあたる広島市の西方 3.2km の高須地区、長崎市の東方 2.7km の西山地区で高いことが確かめられた。

近年の調査として、昭和 51 年度および 53 年度に厚生省は広島において爆心地から半径 30km の範囲の 107 地点、長崎で 98 地点について土壌を採取し、フォールアウトに含まれる ^{137}Cs 、 ^{90}Sr の調査を実施した⁸⁾。しかしながら、当時はすでに核実験フォールアウトの影響があり、広島原爆に起因する明らかなデータは得られなかった。また、黒い雨地域と他の地域との違いも認められなかった。

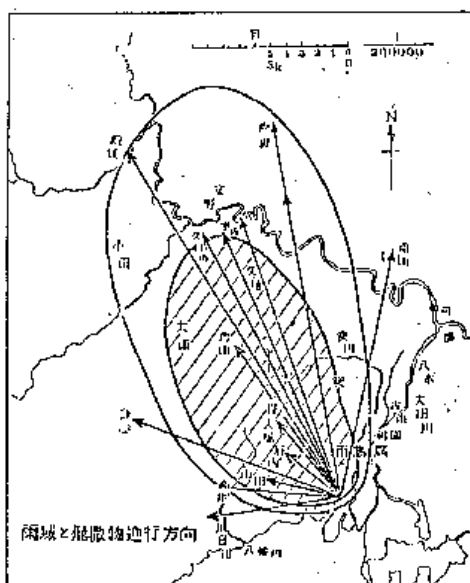


図1 宇田雨域（文献16）

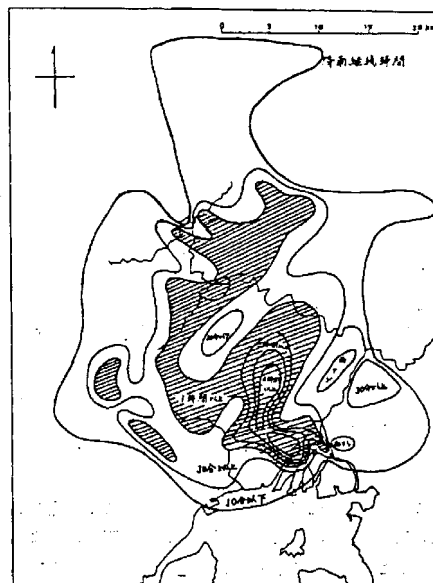


図2 増田雨域（文献17）

爆発の20～30分後から黒い雨が降ったことが知られている。1953年、宇田道隆氏ら¹⁶⁾は、雨域、降雨開始時刻、降雨継続時間などの聞き取り調査を行った。宇田氏らによると、1時間ないしはそれ以上激しい降雨のあった区域は長径19km、短径11kmの楕円ないしは長卵型で、少しでも降雨のあった区域は長径29km、短径15kmの長卵型の区域であった。この降雨地域を図1に示す。その後、1987年に増田善信氏は宇田氏の調査データに加えて再度、アンケート調査を実施し、降雨地域は従来よりも広い説¹⁷⁾を発表した。その降雨地域を図2に示す。

3. 広島のフォールアウト調査試料

3.1 理学部岩石学教室の調査試料

原爆線量の見直しが1980年頃から日米で開始された。その結果は1986年にDS86線量システム¹⁸⁾としてまとめられた。我々は1985年頃から原爆中性子による残留放射能の測定を行っていた。その間、1987年に、広島大学理学部岩石学教室に被爆試料が保管されていることを知った。これらの試料は倉庫のなかに14箱、別の部屋に3箱の合計17箱あった。これらの試料採取を行った秀氏はフィールドノートと地図を保管されていた。フィールドノートから全サンプル115のうち、40～50個の採取場所を確認できた。これらの試料は原爆の熱線による岩石学的調査の目的のために集められたので、己斐、高須付近の試料は含まれていなかったが、現在では存在していない爆心付近にあった広島郵便局、清病院、島病院などの建物の試料が数多く含まれていた。我々はこれらの試料についてまず、非破壊のままで、試料表面に付着しているフォールアウト成分 ^{137}Cs の測定を行い、続いて原爆中性子誘導放射能 ^{152}Eu の測定を行った。試料の採取位置と ^{137}Cs の662keV付近のガンマ線スペクトルの例を図3に示す。 ^{137}Cs が検出されたのは爆心付近の5サンプルのみであった。

3.2 理研の土壌試料

我々はその後も己斐、高須付近の被爆試料を探して回った。そして仁科氏により集められた土壌試料を岡野真治氏が保管されていることを知った。これらの試料は1992年に広島市に返還された。我々は低バックグラウンドガンマ線スペクトロメータを使用して ^{137}Cs の測定を行い、爆心から5kmの範

圏内のフォールアウトの分布を調べた。そして、宇田雨域および増田雨域との比較を行い、旧広島市内においては降雨域は増田雨域により近いと推定されることを示すとともに、フォールアウトによる放射線量の推定²⁰⁾を行った。試料の採取位置と、ガンマ線スペクトルの例を図4に示す。また、降雨地域との比較を図5に示す。しかしながら、仁科試料においても、もっともフォールアウトの激しかった、己斐、高須付近のサンプルは無かった。最も近いのは己斐橋付近（図4のNo.7）であったので、そこでの測定をもとに己斐、高須付近でのフォールアウトを推定した。

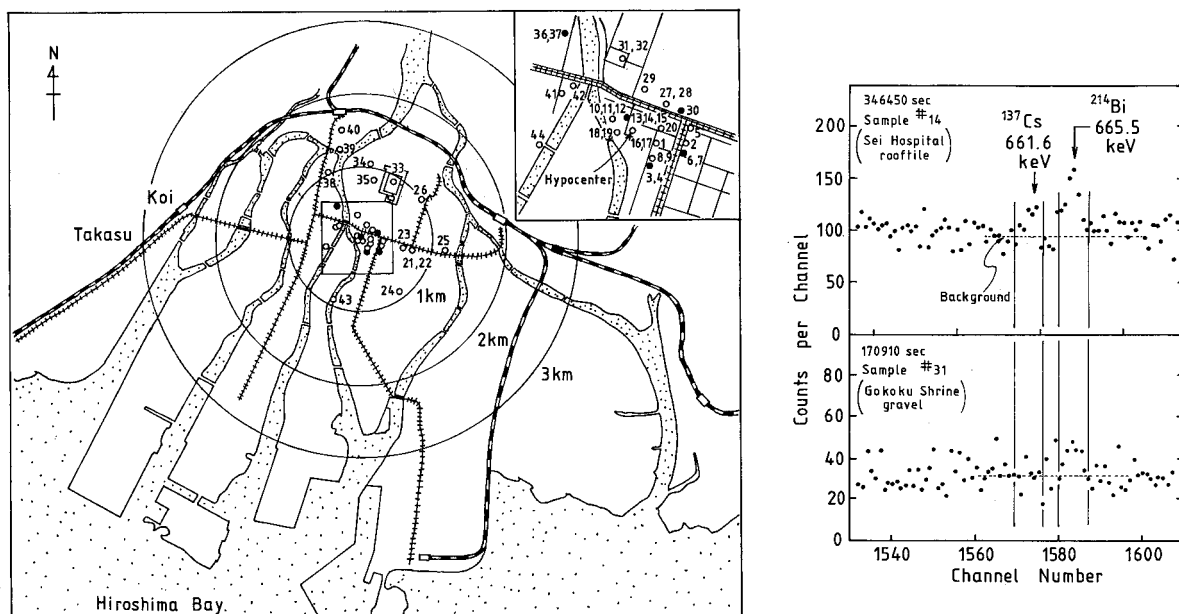


図3 理学部岩石学教室の被爆試料とガンマ線スペクトルの例¹⁹⁾

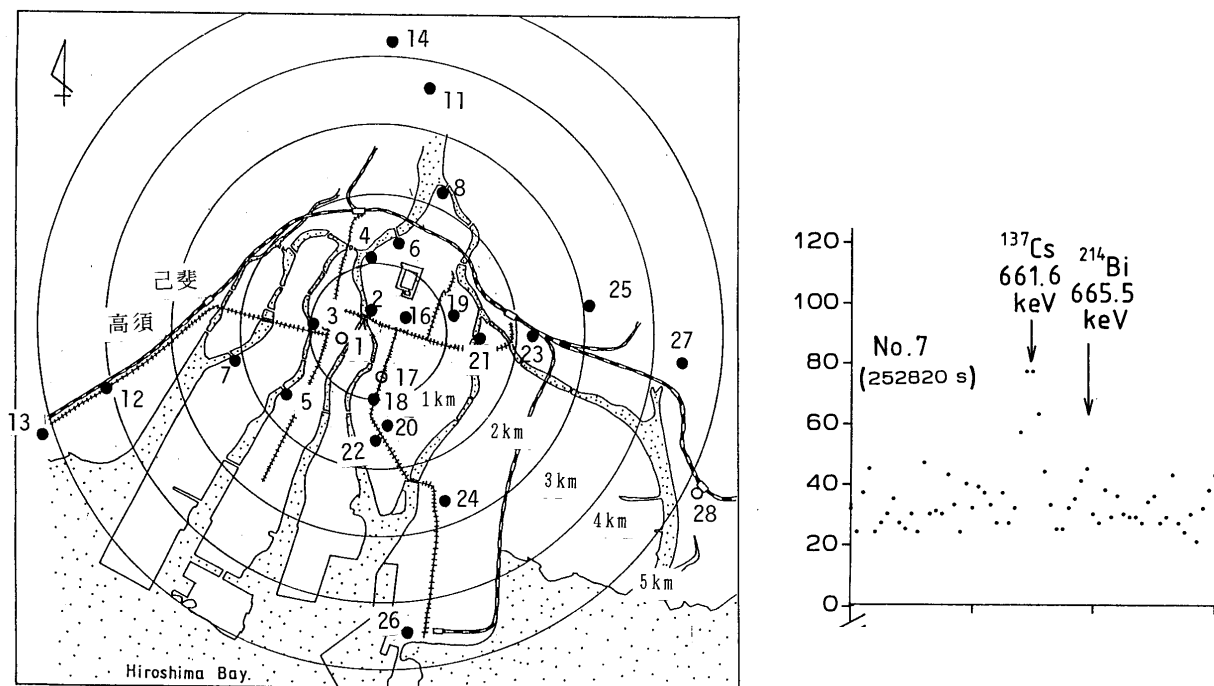


図4 仁科芳雄博士らにより集められた土壌試料(白丸は現存しない試料)

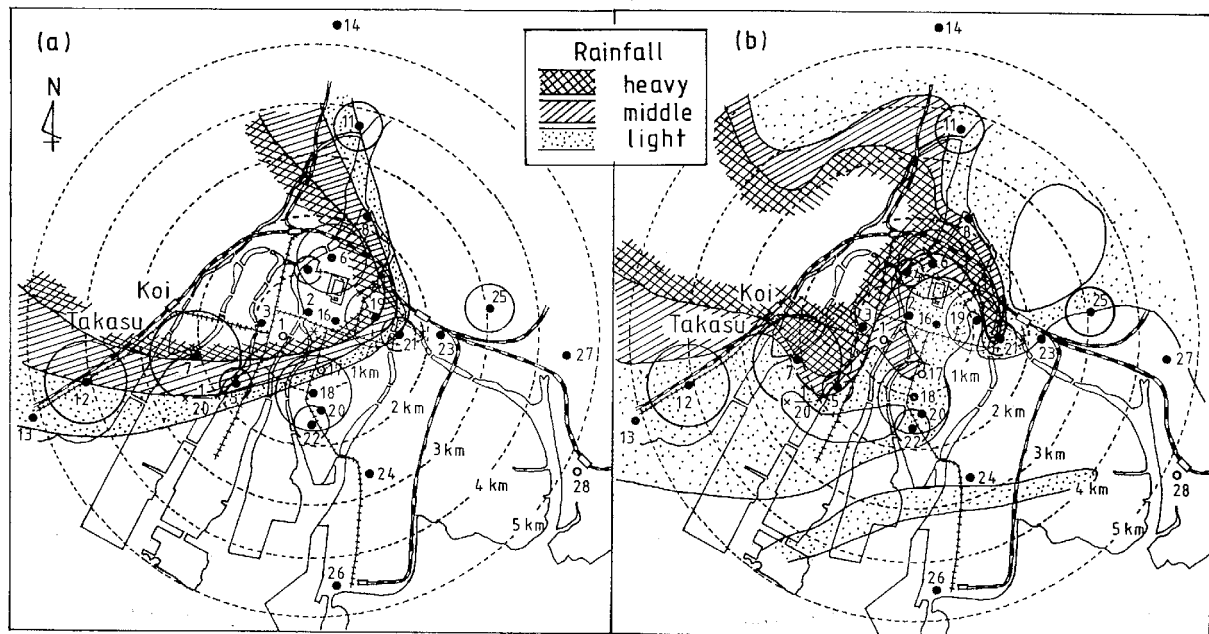


図5 広島市内における ^{137}Cs の分布と宇田雨域（左）および増田雨域（右）との比較

3.3 原爆資料館の「黒い雨」壁面

現在、原爆資料館（平和記念資料館）には黒い雨の痕跡の残る壁が2つ所蔵されている。いずれも広島市西区高須の八島秋次郎氏（故人）から寄贈されたものである。原爆による爆風で八島氏宅の屋根がずれ、屋根と洋間の内側の壁の間に隙間ができて、そこから黒い雨が降り込んで壁に跡が残った。雨は粘着性が強く、跡は少し厚みがあった。その跡を雑巾で拭いたので、現在は平らになっている。昭和42年に自宅改装の際、壁の一部が切り取られて原爆資料館に寄贈された。

その後、昭和60年にNHKにより黒い雨の特集番組が製作・報道された。その際、壁の一部が切り取られた。この壁の写真を図6に示す。そして、イメージングプレートを用いてオートラジオグラフィを行った結果、黒い雨に原因する放射線像が検出された²¹⁾。この壁は平成12年5月に原爆資料館に寄贈された。我々はこの壁について1)高須地区の黒い雨の痕跡を残していることから、己斐・高須地区における ^{137}Cs の降下量を推定できること、2)広島原爆に由来する濃縮ウランが検出できる可能性があることの2点を研究目的として調査を行った。広島原爆は濃縮したウラン ^{235}U （U-235）を使用した唯一の爆弾であった。使われたウランは約51kgであり、そのうち核分裂を起こしたのは1kg程度で残り約50kgは爆弾のケース、核分裂片とともにガス化し、原子雲に含まれて飛散したと考えられている。黒い雨に原爆由来のウランが含まれていれば ^{235}U と ^{238}U の原子数比が天然比（0.00726）よりも高くなることが予想される。ウランの原子数比を測定するには誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）が最適であるので、広島の黒い雨地域の土壌の分析を試みていた藤川陽子氏（京都大学原子炉実験所）と共同研究を進めた。まず、この壁の端から耳搔き一杯程度の小片（重量0.017g～0.275g）を採取した。採取位置を図6に示す。これらの試料をガンマ線検出器で測定することにより、黒い雨部分から ^{137}Cs が検出された。

平成14年に原爆資料館の展示がリニューアルされた。このとき、西館に展示されている壁面の一部から6個の小片を採取することの許可を得た。この壁の写真と試料の採取位置を図7に示す。これ

らの試料には、壁の前面だけでなく、天井との間にあった部分から採取した試料（No. 3）が含まれている。この部分は前面からは見ることはできないので、拭き取られずに黒い雨のあたった当時のままに残った部分である。この部分からは高い濃度の ^{137}Cs が検出された。

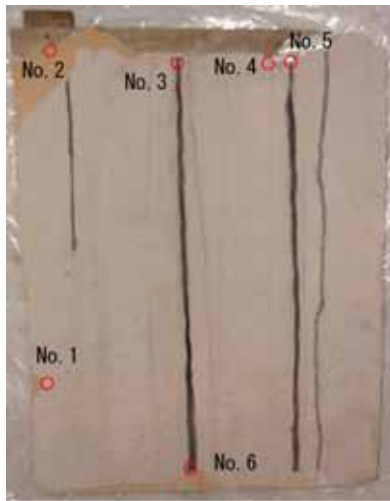


図6 昭和60年に切り取られた壁面

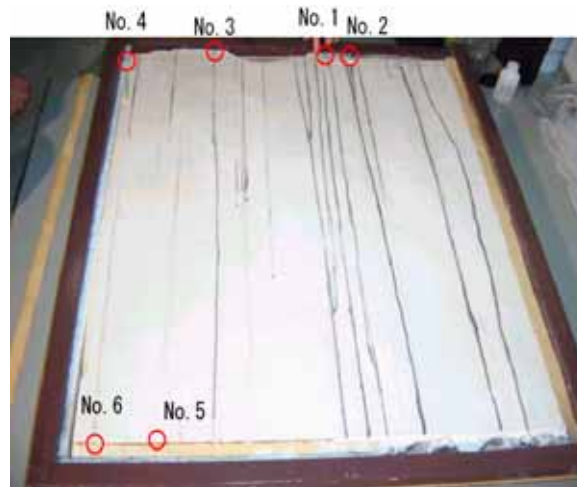


図7 昭和42年に切り取られた壁面

4. 己斐・高須地区のフォールアウトによる集積線量

広島における ^{137}Cs 測定データのまとめを表4に示す。数値は原爆直後に半減期補正をした値である。理学部岩石学教室の被爆試料のうち ^{137}Cs が測定された5サンプルから推定した爆心近くでの ^{137}Cs の降下量は $0.13 \times 10^8 \text{ Bq/km}^2$ であった。理研土壌試料のうち、己斐に近いNo.7を除く試料から推定した ^{137}Cs 降下量は $0.15 \times 10^8 \text{ Bq/km}^2$ であり、前者とよく一致した。次に「黒い雨」壁面から求めた ^{137}Cs の平均表面密度は $4.9 \times 10^8 \text{ Bq/km}^2$ であった。この値は理研土壌試料のうちで、己斐に近いNo.7試料から推定した ^{137}Cs の降下量とよく一致した。

^{137}Cs 降下量の相対的比較のために己斐・高須でのフォールアウト中の ^{137}Cs 降下量を1とすると、土壌試料のうち、No.7を除く試料から推定した旧広島市内の平均値の38倍、核実験フォールアウトの1/8である結果が得られた。

表4 広島における ^{137}Cs 測定データのまとめ

サンプル	^{137}Cs 濃度		強度比
1) 爆心付近	$1.3 \pm 0.7 \text{ mBq/cm}^2$	$0.13 \times 10^8 \text{ Bq/km}^2$	1/37
2) 理研土壌サンプル			
・10サンプル平均（No.7を除く広島市内）	$1.5 \pm 0.2 \text{ mBq/cm}^2$	$0.15 \times 10^8 \text{ Bq/km}^2$	1/32
・No.7	$49.3 \pm 5.2 \text{ mBq/cm}^2$	$4.9 \times 10^8 \text{ Bq/km}^2$	1
3) 「黒い雨」壁面	$48.5 \pm 22.5 \text{ mBq/cm}^2$	$4.85 \times 10^8 \text{ Bq/km}^2$	1
4) 核実験フォールアウト （1980年以前、北緯30 - 40° UNSCEAR1982）		$37 \times 10^8 \text{ Bq/km}^2$	7.6

次に ICP-MS 分析による U-235/U-238 同位体比として黒い雨の部分で天然比より有意に高い値であることがわかった^{2,2)}。(この結果については本研究会の藤川氏の報告を参照のこと)

¹³⁷Cs の降下量をもとに集積線量の評価を試みた。表 5 にその結果を示す。ここで、中性子誘導放射能による集積線量とは爆心地に無限時間とどまった場合の(最大の)集積線量を表し、表の数値は DS86 報告書からの引用である。フォールアウトについての集積線量のうち、初期調査の線量率データに基づく値は DS86 報告書からの引用である(数値は旧単位 R)。長崎の西山地区では広島の高須・己斐に比べて約一桁高いことがわかる。¹³⁷Cs 測定データからの集積線量の推定値も基本的には線量率からの推定値と一致すべき値である。長崎の場合、DS86 報告書の ¹³⁷Cs 測定データからの集積線量の推定値は線量率からの推定値とよく一致している。広島の場合には ¹³⁷Cs 測定データからの集積線量の推定値がこれまで報告されていなかったが、本研究でそのデータを得ることができた。その値は 3.7R となり、線量率からの推定値よりやや高いがほぼ一致している。また、己斐・高須以外の広島市内のフォールアウトの線量は平均として約 0.10 R と推定された。この値は爆心付近での集積線量の約 1/100 であり、爆心から約 2km 付近における誘導放射による集積線量に相当する。

表 5 広島・長崎の中性子誘導放射能およびフォールアウトによる集積線量の推定

残留放射能	広 島		長 崎	
	爆 心	己斐・高須	爆 心	西 山
1.誘導放射能	80 R ^a	0	30-40 R ^a	0
2.フォールアウト				
(a) 線量率	-	1-3 R ^a	-	20-40 R ^a
(b) ¹³⁷ Cs	0.10 ± 0.05 R	3.7R		40 R ^a

a: DS86報告書

参考文献

- 1) Okajima, M., Fujita, S., Harly, J.H. Radiation doses from residual radioactivity. In W.C. Roesh (ed), US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, Final report. Hiroshima RERF, Vol.1, pp.205-226, 1987.
- 2) Arakawa, E.T., Residual Radiation in Hiroshima and Nagasaki, Hiroshima, RERF; ABCC TR 2-26 (1962)
- 3) 庄野直美: “ 残留放射能について ” 広島医学 20 巻 No.2.3 号 (1967) pp.75-91.
- 4) Takeshita, K. Dose estimation from residual and fallout radioactivity 1. Areal survey, J. Radiat. Res. Suppl. 24-31(1975)
- 5) Okajima, S. Dose estimation from residual and fallout radioactivity-3. Fallout in the Nagasaki-Nishiyama district, J. Radiat. Res. Suppl. 35-41(1975)
- 6) Takeshita, K., Sunayashiki, T., Takeoka, S., Kato, K. ¹³⁷Cs in soil of the black rain area northwest of the Hiroshima hypocenter. Research Institute for Nuclear Medicine and Biology, Hiroshima University, 1976, 1090-115.
- 7) Takada, J., Hoshi, M., Sawada, S., Sakanoue, M., Uranium isotopes in Hiroshima black rain soil. J. Radiat. Res. 24: 229-236; 1983.

- 8) 橋詰雅他：“広島、長崎の残留放射能について” 広島医学 31 巻 4 号 (1978) pp.455-458.
- 9) 「原子爆弾 広島・長崎の写真と記録」 仁科記念財団 (風光社、昭和 48 年)
- 10) 山岡静三郎、山田正明、桑田岩雄、中田、浅田常三郎、尾崎誠之助：“広島原子爆弾災害報告” 原子爆弾災害調査報告集、第一分冊理工学編 (日本学術振興会、1953) pp.1-4.
- 11) 荒勝文策：“爆発後数日間に行える広島市の放射能学的調査に関する報告” 原子爆弾災害調査報告集、第一分冊理工学編 (日本学術振興会、1953) pp.5-10.
- 12) 山崎文雄：“原子爆弾爆発後、広島西方に残った放射能について” 原子爆弾災害調査報告集、第一分冊理工学編 (日本学術振興会、1953) pp.25-33. および広島原爆戦災誌、第五巻資料編 (広島市、昭和 46 年) p.899.
- 13) 渡辺武男、山崎正男、小島丈児、長岡省吾、平山 健：“広島および長崎両市における原子爆弾災害物の地質学および岩石学的観察” 原子爆弾災害調査報告集、第一分冊理工学編 (日本学術会議、1953) pp.143-158.
- 14) 田賀井篤平編「石の記録 - ヒロシマ・ナガサキ」(東京大学出版会、2004)
- 15) N. Pace, R.E. Smith：“Measurement of the Residual Radiation Intensity at the Hiroshima and Nagasaki Bomb Sites” Hiroshima, ABCC TR26-59, 1959
- 16) 宇田道隆、菅原芳生、北勲：“気象関係の広島原子爆弾被害調査報告” 原子爆弾災害調査報告集、第一分冊理工学編 (日本学術振興会、1953) pp.98-135.
- 17) 増田善信：“広島原爆の黒い雨はどこまで降ったか” 天気、Vol. 35, No.2 (1989) pp.69-79
- 18) W.C. Roesh (ed), US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, Final report. Hiroshima RERF, Vol.1 and 2, 1987.
- 19) K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, M. Hoshi: Fallout in the Hypocenter Area of the Hiroshima Atomic Bomb, Health Phys. 57 (1989) 1013- 1016.
- 20) K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, M. Hoshi, T. Oka and M. Okano: “Cesium-137 Concentration in Soil Samples from an Early Survey of Hiroshima Atomic Bomb and Cumulative Dose Estimation from the fallout” Health Phys. 71 (1996) 340-346.
- 21) 宮原諄二：“オートラジオグラフィとラジオグラフィ” Radioisotopes, 47 (1998)143-154.
- 22) Y. Fujikawa, K.. Shizuma, S. Endo and M. Fukui: “Anomalous U-235/U-238 Ratio and Metal Elements Detected in the Black Rain from the Hiroshima A-Bomb” Health Phys. 84(2003) 155-162.

広島原爆黒い雨の中の U-235/U-238 比

藤川 陽子* (京都大学原子炉実験所)

静間 清 (広島大学大学院工学研究科)

遠藤 暁 (広島大学原医研国際放射線情報センター)

福井 正美 (京都大学原子炉実験所)

1 はじめに

広島原爆由来のローカルフォールアウトに関する報告は少ない^{1,2}。一方、爆心から 3 km 以上離れ、直接ガンマ線や中性子線の被ばくの可能性の低い地域で、魚の斃死や住民の下痢等があったとする証言が存在する等、原爆による被害の実像と理論的に推定されうる被害の間には、依然として乖離がある。被害の正当な評価には、放射性降下物の分布も含めた被ばくの全貌の解明が必要である。更に、原爆被ばく者の疫学データは、放射線規制の枠組みを作るうえでの基礎資料となっていることから、放射性降下物の寄与を考慮した正確な線量評価の必要性は高い。例えば爆心 3 km 圏内で比較的被ばく線量の低かった被ばく者の発ガン率から 0.05 - 0.1 Sv 域線量でのリスクを計算した報告があるが³、放射性降下物による被ばく (広島では集積線量にして最大 4 レントゲン程度と推定²、わが国での数十年分の自然放射線被ばく線量に相当) を含めてリスクを試算することで更にデータの信頼性を高められる可能性がある。また、この 0.05-0.1 Sv の被ばくレベルは現今の放射線規制で問題にしているレベルに近く、今後の規制のあり方を考えていく上で、そのリスクに関する基礎データの充実は実用的にも重要である。

本研究の概要を図 1 に示す。広島原爆の放射性降下物は以後の大気中核実験由来の放射性降下物の総和より少ないために、環境試料中の放射能の分析から広島原爆由来のものとそれ以外のものを区別することが難しく、フォールアウトの分布を明らかにする事後調査が困難という問題がある。広島原

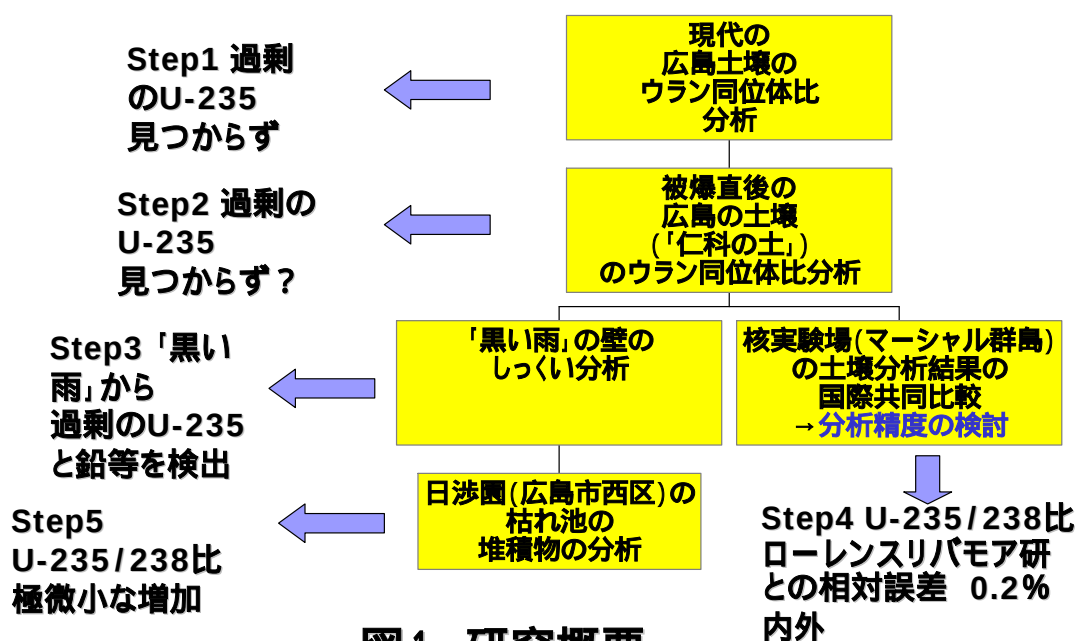


図1 研究概要

* FUJIKAWA Yoko, Kyoto University; fujikawa@rri.kyoto-u.ac.jp

爆は 51.55 kg の U-235 搭載 (U-235 平均濃縮率 80.4 %) のウラン原爆でありそのうち、核分裂に使われた U-235 は 1kg 程度に過ぎない。一方グローバルフォールアウトには過剰のウラン 235 はあまり認められない。そこで、本研究では、原爆由来の放射性降下物等の行方を広島において追跡する指標として U-235/U-238 同位体比を用いることができると考え、過剰のウラン 235 を広島の環境試料中に検出することを目指した。そのため、様々な機関から提供を受けた関連試料を分析するとともに、U-235/U-238 の分析の品質保証も行った。

2 黒い雨の壁の分析 - ウラン 235 は広島に降下した

広島平和記念資料館より、展示資料である黒い雨の痕跡の残る壁の一部の提供を受け、誘導結合プラズマ質量分析法 (ICP-MS) を適用し、試料中のウラン同位体比等の分析を行った結果を表 1 に示す。表から明らかなように、黒い雨の痕跡のあるしっくいからは U-235/U-238 天然同位体比 0.00726 (原子数比) を上回る値がえられ、被爆時にウラン 235 が降下したことは疑いない、という結果が得られた。U-235 が検出された箇所では表 2 に示すように Cs-137 も検出された (静間らのデータによる) 。まだ、同時に、黒い雨には鉛なども高濃度に含まれていることも明らかになった⁴。白もしくは赤茶

表1 黒い雨試料中のU-235/U-238比 分析結果
「黒い雨」試料中 U-235/U-238 (原子数比) >0.00726
→ 黒い部分は広島原爆由来のU-235含む

	試料		U-235/U-238原子数比			試料中ウ ラン量 ng
No. 3	黒い雨	硝酸抽出	0.00762	±	*1	3.9
No. 3	黒い雨	硝酸抽出後、フッ酸抽出	N. D.	±	N. D.	N. D.
No. 5	黒い雨	硝酸抽出	0.00741	±	0.00010	2.4
No. 5	黒い雨	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00765	±	0.00017	0.6
No. 6	黒い雨	硝酸抽出	0.00743	±	0.00004	7.9
No. 6	黒い雨	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00779	±	0.00006	2.1
No. 3	しっくい	硝酸抽出	0.00738	±	0.00000	2.1
No. 3	しっくい	硝酸抽出後、フッ酸抽出	N. D.	±	N. D.	N. D.
No. 4	しっくい	硝酸抽出	0.00724	±	0.00000	6.6
No. 4	しっくい	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00726	±	0.00004	29.2
No. 5	しっくい	硝酸抽出	0.00722	±	0.00003	6.0
No. 5	しっくい	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00720	±	0.00018	1.6
No. 6	しっくい	硝酸抽出	0.00722	±	0.00002	45.0
No. 6	しっくい	硝酸抽出後、フッ酸抽出	0.00731	±	0.00001	34.7
	ブランク	硝酸抽出	N. D.	±	N. D.	N. D.
	ブランク	硝酸抽出後、フッ酸抽出	N. D.	±	N. D.	0.3
*1 試料不足のため測定回数1回 (通常3回)						

表2 黒い雨の壁のU-235およびCs-137の分布

壁試料	壁面積 (cm ²)	壁試料 量 (mg)	原爆由来の ²³⁵ U (μ Bq/cm ²)		Cs-137 (mBq/cm ² 壁)	
No.3 黒	0.25	6.39	0.455	± 0.010	25.6	± 0.9
No.5 黒	0.13	4.67	0.390	± 0.174	84.9	± 18.6
No.6 黒	0.55	19.36	0.366	± 0.052	34.0	± 4.9
ブランク		0	検出限界以下			

表3 仁科の土の分析結果
U-234/U-238同位体比:高い地点があるが抽出法によるartifactと判定

U-234/U-238 放射能比				U-234/U-238 放射能比			
Hiroshima2	0.95	±	0.03	Hiroshima16	1.11	±	0.01
Hiroshima3	0.86	±	0.01	Hiroshima18	1.10	±	0.03
Hiroshima4	1.15	±	0.02	Hiroshima19	1.02	±	0.01
Hiroshima5	1.21	±	0.07	Hiroshima20	0.99	±	0.02
Hiroshima6	0.85	±	0.42	Hiroshima21	1.06	±	0.01
Hiroshima7	1.11	±	0.00	Hiroshima22	1.11	±	0.02
Hiroshima8	1.16	±	0.04	Hiroshima23	1.06	±	0.02
Hiroshima11	1.10	±	0.02	Hiroshima24	1.01	±	0.01
Hiroshima12	0.98	±	0.02	Hiroshima25	0.91	±	0.02
Hiroshima13	0.84	±	0.01	Hiroshima26	1.08	±	0.03
Hiroshima14	0.90	±	0.01	Hiroshima27	1.02	±	0.03

238放射能比1.0は原子数比の0.0000541に相当

色の雨の筋のあった部分からは過剰の U-235 は検出されず Cs-137 もわずかしき含まれなかったことから（静岡他、公表準備中）U-235 は「黒い」雨に限って含まれていたことが推定される。

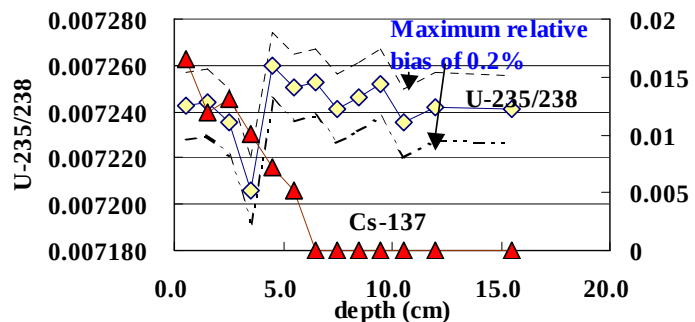
3 「仁科の土」の分析

広島市の被爆直後に理化学研究所のグループにより収集された土（「仁科の土」と略称）は静岡ら²によって広島原爆のフォールアウト

Cs-137 を含むことが証明された。意外なことに土壌の硝酸抽出物のウラン 235/238 同位体についての分析結果は、過剰のウラン 235 の存在を必ずしも示さなかった⁵。最近の広島市の土についても同様であった（Step1 の分析）。仁科の土の硝酸抽出物の U-234 は U-238 に比して高く放射非平衡を示した（表 3）。しかし、原爆の影響を受けていない熊取地区の土壌等の分析結果から、硝酸抽出操作により土壌では U-234 は U-238 に比して高い値を示しやすいことがわかり、過剰の U-234 は必ずしも原爆の影響とは判定できなかった⁵。

4 日渉園の分析結果

もと広島藩の薬草園で、戦後、私有地として非公開であった日渉園では、被爆当時に黒い雨がふり、園内の枯れ池に流れ込んだことが知られてい



Profile of U-235/238 and Cs-137 at station No.2

図2 乱されていない土壌コアのU-235/238 および Cs-137 の深さ方向分布(地点2)
U-235/238 比は深い層(1960年代以前?)でわずかに高い しかし、期待されたほどではない。

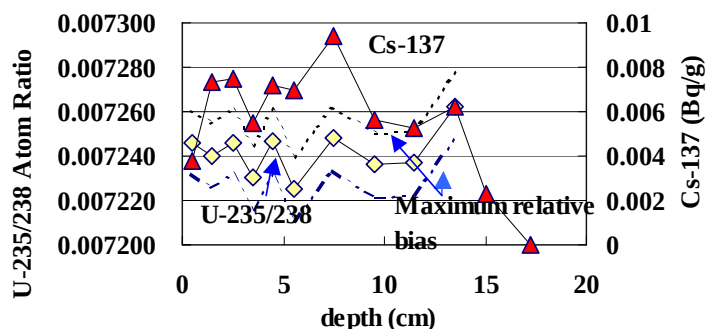


Fig. Profile of U-235/238 and Cs-137 at station No.4

図3 擾乱のある土壌コアのU-235/238 および Cs-137 の深さ方向分布(地点4)
U-235/238、Cs-137 の分布 共に擾乱

る。この池底の土壌から柱状試料を採取し、分析した（分析手法については6番の文献を参照）。擾乱されないコア試料と擾乱されたコア試料についての結果を図2および図3に示す。擾乱されないコアでは1960年以前と見られる深さでU-235/U-238比にわずかながら上昇が認められた。しかし、その上昇程度はわずかであった⁷。原爆に搭載された約50kgのU-235（大部分が核分裂せずに残った）が半径5kmに均等分布して降下すれば、土壌中のU-235/U-238比の数割アップが期待できるはずである。このようにわずかなU-235しか検出できなかった原因については、現段階では確定できないものの幾つかの可能性が考えられる。すなわち(1)日渉園に降った雨は本当の（U-235の多い）黒い雨ではなかった、(2)広島に局地的に降下したU-235は爆弾の搭載していたU-235のうちごく一部で、そのため原爆のウランは土壌の天然ウランにより「希釈」されてしまった、(3)原爆と共に降下したU-235は土壌に吸着保持されずその後の降雨などにより流れてしまった、等である。現時点では(1)および(2)が原因の可能性が高い。(3)については、ウラン自体は酸性で有機物の多い土壌（日渉園の池の土やわが国の天然土壌）によく吸着することが一般に知られており、粒子状のウランも過剰効果で土壌に捕捉されることが考えられることから、やや可能性が低い。(3)が起こるとすれば、ウランの雨中での化学的存在形態が特殊なものであったことが考えられる。

5 U-235/U-238 同位体比分析の 相互比較

ローレンスリバモア研究所との間で、マーシャル群島の土壌を用い、ウラン235/238および234/238同位体測定の国際比較を行った。京大炉側の装置は四重極型の普及型ICP-MS、リバモア側の装置は同位体比測定精度と感度に優れるマルチコレクター型のICP-MSであった。土壌を受領後、試料前処理・分析方法に関する打ち合わせを一切行わず、互いに目隠し状態で分析を行った。京大炉側とリバモア側の分析値はU-235/U-238比については相対誤差で0.2%、U-234/U-238比については相対誤差で2%以内の差におさまる。京大炉の装置によっても広島原爆の試料の分析に支障ないことが確認できた（図4、図5）。

図4 U-235/238比の分析値比較

図5 U-234/238比の分析値比較

6 まとめ

- 1) 広島原爆の黒い雨には、核分裂生成物の Cs-137、天然存在比に比べて過剰の U-235、鉛等の重金属が含まれていた。ただし、白い雨、赤い雨には Cs-137 は少なく、U-235 は検出されなかった。
- 2) 被爆直後に採取された広島 of 土壌（硝酸抽出画分）からは、ほぼ天然比の U-235 が検出された。本当は過剰の U-235 が検出されるはずであったので意外な結果であった。
- 3) 被爆直後に採取された広島 of 土壌（硝酸抽出画分）からは、過剰の U-234 が検出された。ただし抽出方法の artifact の可能性が高い。
- 4) 現代の広島 of 土壌（日渉園）からは極微量の過剰の U-235 の存在の可能性が示唆された。
- 5) しかし日渉園で発見された U-235 は期待された量より少なかった（50kg U-235/半径 5 km 均等分布で、U-235/U-238 比の数割アップが期待できる）。
- 6) U-235/238 同位体比測定精度は、ICP-QMS(四重極 MS、京大側)と MC-ICP-MS(マルチコレクター ICP-MS、ローレンスリバモア研)との相対誤差にして 0.2% 内外に収まり、広島原爆関連の試料については京大炉の装置で支障なく分析できることが確認できた。

謝辞

本研究の分析試料については、広島平和記念資料館、および広島大学・原田前学長から提供を受けた。また、研究経費については科学研究費補助金によって執行した。ここに記して感謝します。

参考文献

1. Okajima S, Fujita S, Harly JH, Radiation doses from residual radioactivity. In: Roesch, WC ed. U. S. – Japan joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki Final report Vol. 1. Radiation Effects Research Foundation; 1987: 205 – 226.
2. Shizuma K, Iwatani K, Hasai H, Hoshi M, Oka T, Okano M., ¹³⁷Cs concentration in soil samples from an early survey of Hiroshima atomic bomb and cumulative dose estimation from the fallout. Health Physics 71 (1996) 340-346.
3. Pierce D A., Preston D L, Radiation-related cancer risk at low doses among atomic bomb survivors. Radiation Research, 154 (2000) 178-186.
4. Fujikawa Y, Shizuma K, Endo S, Fukui M, Anomalous ²³⁵U/²³⁸U Ratios and metal elements detected in the Black Rain from the Hiroshima A-bomb. Health Physics, 84 (2003) 155-162.
5. Fujikawa Y, Shizuma K., Ikeda E, Baba T, Fukui M *et al.*, Uranium and plutonium isotope ratio measurement as a tool for environmental monitoring - Experiences in Osaka, Gifu and Hiroshima, Japan. Journal of Nuclear Science and Technology, Supplement 3 (2002) 564-567
6. Fujikawa Y, Sugahara M, Ikeda E, Fukui M, Analysis of trace actinide elements in soil organic matter - Optimization of sample processing to improve chemical separation of U and Pu. Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry 252 (2002) 399-405.
7. Fujikawa Y, Shizuma K., Endo S, Ikeda E., Fukui M. Uranium isotope analyses of soil samples collected from Nisshoen, Hiroshima – Implication on the fate of U-235 discharged from the Hiroshima A-bomb. JAERI-conf 2003-10, (2003) 314-319
8. Hamilton T, Fujikawa Y, Williams R. et al., Comparative measurements of ²³⁸U, ²³⁵U, ²³⁴U (and ²³⁶U) in soil samples from the Marshall Islands using Inductively Coupled Plasma- Mass Spectrometry. Proc. MARCVI Conference (submitted to Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry) (2004).

長崎原爆による Pu フォールアウトの環境中での分布と挙動

長崎でのローカル・フォールアウト調査と アガシ・アイス・キャップでのグローバル・フォールアウト調査

馬原 保典* (京都大学原子炉実験所)

工藤 章 (京都大学名誉教授)

1. はじめに

1945 年 8 月 9 日長崎に Pu 原爆が投下されて 59 年が経つ、この原爆によって多くの人命が奪われたと同時に Pu による人間環境の汚染も始まった。59 年という歳月は、人にとっては非常に長い、しかしながら、フォールアウト Pu にとってはどうであったのだろうか？焼結 Pu は、非常に不溶性であることは周知の事である。しかし、地上に降下し土壌と接触したフォールアウト Pu は、各種の風化(化学的、物理的、微生物学的)現象に遭遇しても非常に安定だったのだろうか？この質問に対しては、現在の研究レベルでは、十分に満足のいく答えを与えることはできない。長崎における土壌中の Pu の分布調査結果は、現存するデータの中では最も長い間土壌環境に存在し、土壌と相互反応して得られたデータである。この点から、先ほどの困難な答えに対して何か示唆できる可能性を含んでいるのではないだろうか？また、このように長崎のデータは、土壌と人工放射性核種が相互反応して得られた最も古いものの一つであることを考慮すると、1986 年 4 月 26 日に起きたチェルノヴィリ原発事故によって環境に放出された人工放射能の環境中での挙動とその後の影響評価にも活用できるであろう。

この報告では、 $^{239+240}\text{Pu}$ を中心に長崎原爆で放出されたフォールアウト核種 ($^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr) の内で局所フォールアウト(Local Fallout)の降下範囲とその環境媒体(土壌、底質、樹木)中での濃度・分布と土壌中での移動速度、とグローバル・フォールアウトの痕跡について述べる。

2. 長崎原爆フォールアウト Pu 調査の概要

本研究のために、長崎におけるフォールアウト Pu 調査は、1981 年より開始した。調査は、環境に放出された Pu の地球規模でのマス・バランスを取るために 土壌¹⁻³⁾、底質(貯水池、海底土)⁴⁾、地下水⁵⁾、生物(農作物、樹木、魚類)⁶⁾、と 北極氷床の氷柱^{7,8)}、を対象に国際共同研究として実施した。 、 、 と の一部樹木についての調査は、局地フォールアウトが集中的に降下したと考えられている長崎市西山を中心に実施した。局地フォールアウト Pu の降下範囲を調べるために 1945 年 8 月 9 日の午前 11 時に爆心地周辺で吹いていた南西の風下方向に爆心から 20 km まで 1 km ごとに同心円状で、また 80 km ~ 120 km の範囲で未攪乱表層土壌 (~5 cm) を採取した。さらに、茸雲が通過したと考えられている近傍の橘湾においても海底土を採取し調査した。Fig.1 に局地フォールアウト降下調査領域を示す。局地フォールアウト降下量の多い西山水源地周辺において土壌、底質、地下水と樹木を含めた生物試料の採取を行った。貯水池底質試料は、西山貯水池と比較のために爆心地から南南東 7 km にある小ヶ倉貯水池においても採取した。調査対象と調査範囲を Fig.2 に示す。これらのうちで、フォールアウト Pu の土壌中での移動速度を調べるためにフォールアウト降下量の多い 2

* MAHARA Yasunori, Kyoto University; mahara@HL.rri.kyoto-u.ac.jp

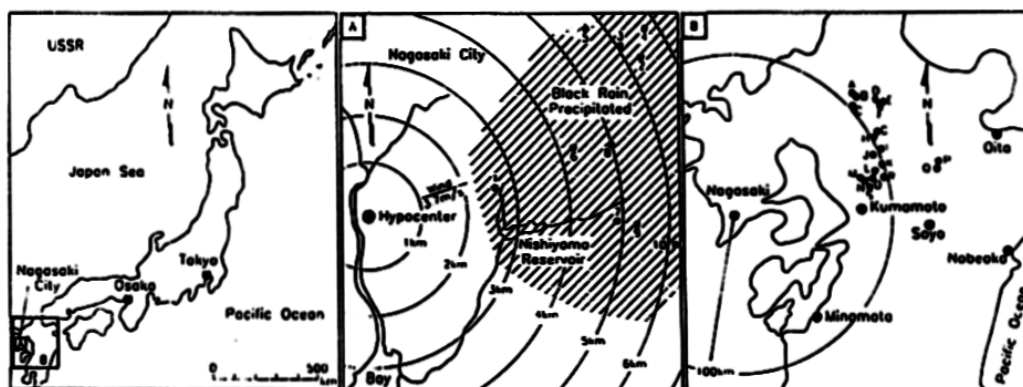


Fig. 1. Location of Nagasaki city and sampling sites for surveying the deposited

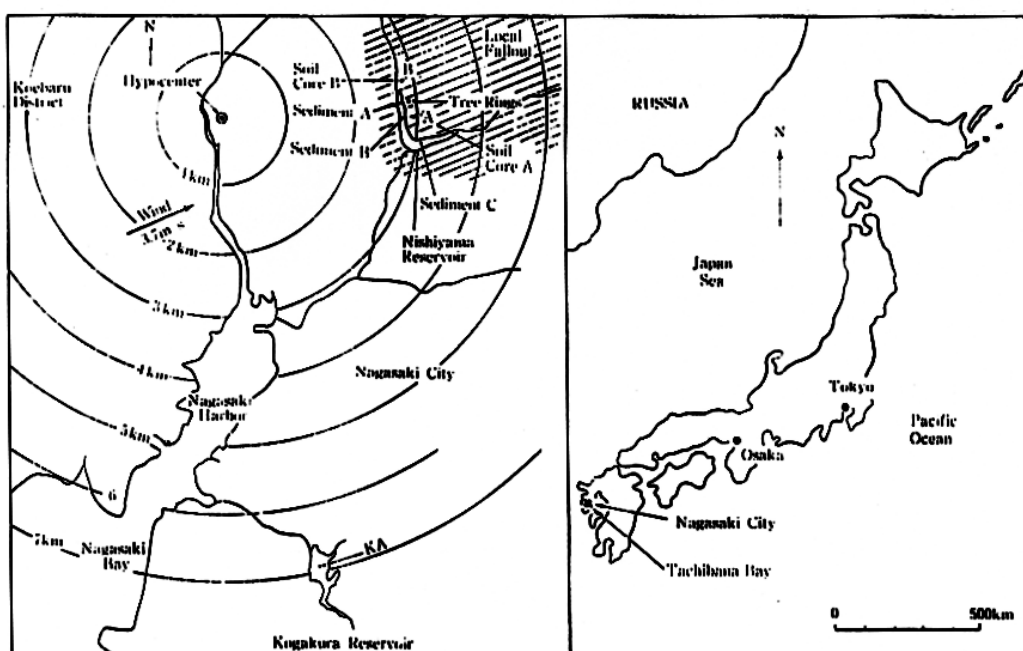


Fig. 2. Location of the local fallout deposited area in Nagasaki and the sampling sites for soil cores, sediments cores and the tree rings of Sugi.

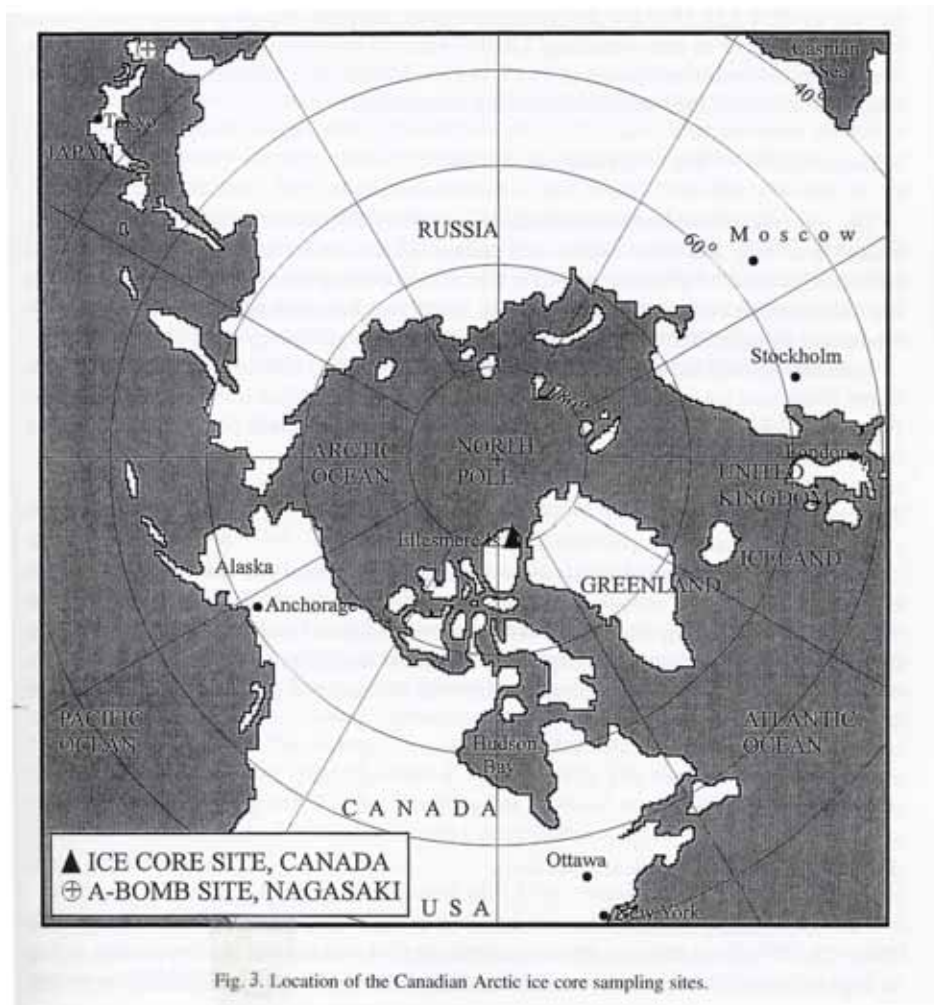
地点で最大深度 500 cm 迄の土壌 ($\phi = 30$ cm) を連続採取した。地下水については、沢の湧水ならびに土壌採取後の堀削孔より採取した。生物試料については、西山貯水池とその周辺で樹齢 78 年の杉を伐採しその年輪と、その他に魚やさつまいもを採取した。特に、杉の年輪中の分布について年輪の中にフォールアウトの降下履歴が記録されているかを確認するために調査を行った。

長崎原爆からのグローバル・フォールアウト Pu 痕跡を確認するために、北極圏に位置するカナダ領エルズミア島のアガシ氷原 (Fig.3) から 14m 長さの氷柱を採取し、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の降下履歴を調査した。

3. 環境試料の調整と放射能分析

3.1 分析試料の調整

各環境試料中の ^{137}Cs , ^{90}Sr , $^{239+240}\text{Pu}$ の分析のために土壌試料は、植物の根茎や落ち葉を除去した後 110 °C で 48 時間乾燥し、ボールミルで粉砕し調整した。底質試料については、土壌試料同様に調整した。杉の年輪サンプルについては、樹齢 78 年の樹幹を厚さ 10 cm 程度の 100 枚程の円盤に切断し 3



年毎に年輪を分離しそれを 1 試料とした。各試料は、350 で灰化し測定試料とした。

3.2 放射能の分析方法

(1) $^{239+240}\text{Pu}$ 分析

$^{239+240}\text{Pu}$ の濃度は ^{236}Pu をスパイク用トレーサーとして添加した後アメリカ、ドイツ、日本で行われている通常の化学分離の手法に準拠し分離電着し、 α 粒子スペクトロメータを用いて計測を行った。また、化学分離手法と α 粒子スペクトロメータのキャリブレーションは、IAEA の標準土壌 (SD-N-1/1, Soil-6) を同様に処理をしカナダの放射線計量局のスタンダード ^{241}Am を用いて行なった。測定限界は、0.01 kg の土壌、底質、灰化試料当たり 0.05 Bq/kg である。

(2) ^{137}Cs 分析

^{137}Cs の濃度は、鉛、陸奥鉄、銅とアクリルで多重遮蔽したピュアー Ge 検出器をもつ γ 線スペクトロメータを用いて $\text{max. } 5 \times 10^5$ 秒で測定した。測定限界は、0.1 kg の土壌、底質、灰化試料当たり 0.05 Bq/kg である。

(3) ^{90}Sr 分析

^{90}Sr の濃度は、HASL-300⁹⁾ に準拠して土壌、底質試料から ^{90}Sr を分離し、放射線の計測には、 ^{90}Y を ^{90}Sr より水酸化鉄共沈法により分離し 2π ガスフロー・カウンターで 1000 分 (100 分 10 サイクル) 測定した。この方法での検出限界は、0.1 kg 試料当たり 0.2 Bq/kg である。

なお、 $^{239+240}\text{Pu}$ 分析は、カナダ国立化学研究院環境化学研究所において行った。

4. 調査結果とその評価

4.1 局地フォールアウト Pu の降下範囲とプルトニウムの物質収支

1945 年 8 月 9 日 11 時に長崎市浦上上空 500m で炸裂した Pu 爆弾からの放射能を含んだ黒い雨が、長崎市の北東地域の広い範囲で観測されている。しかしながら、この黒い雨と局地フォールアウト Pu の降下範囲が、一致するのかは今までの調査では、明らかにされていなかった。まず Fig.4 にフォールアウト Pu の未攪乱表層土壌 (~ 5 cm) 中の蓄積量を示す。爆心地から東側 2.8 km の地点で最高濃度 64.5mBq/g を観測した。この点を境に東側、西側ともに Pu の濃度は、急激に減少しており、20 km 地点では、長崎原爆の局地フォールアウトの降下が無かったと予想される爆心から 100 km の地点での

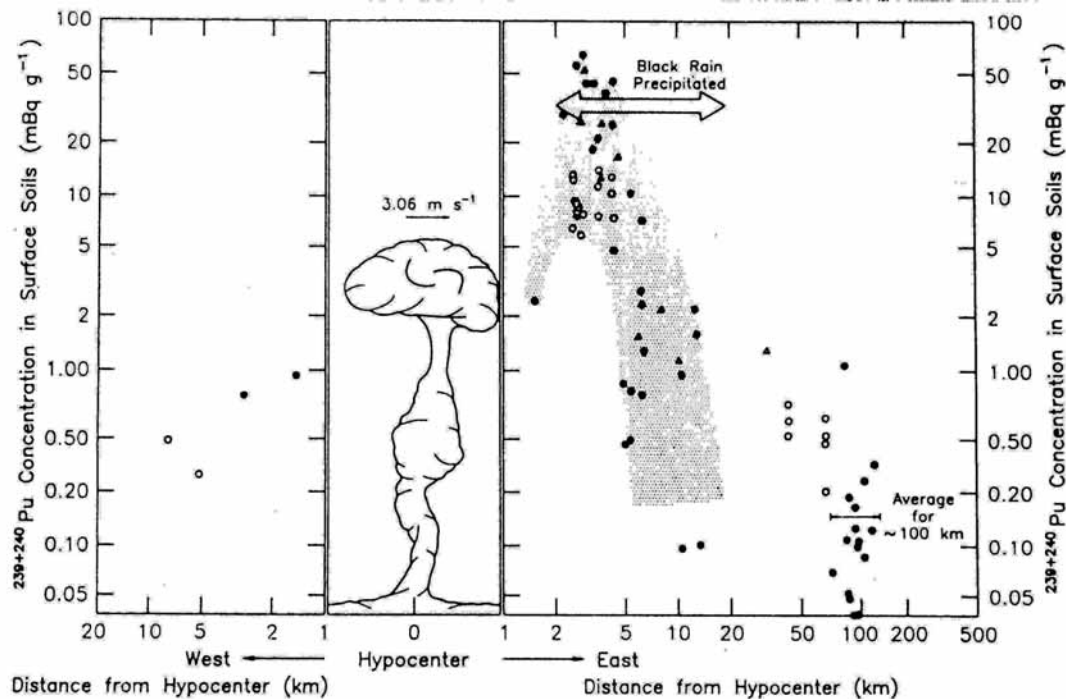


Fig. 4. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ concentrations in surface soils as a function of distance from the hypocenter.

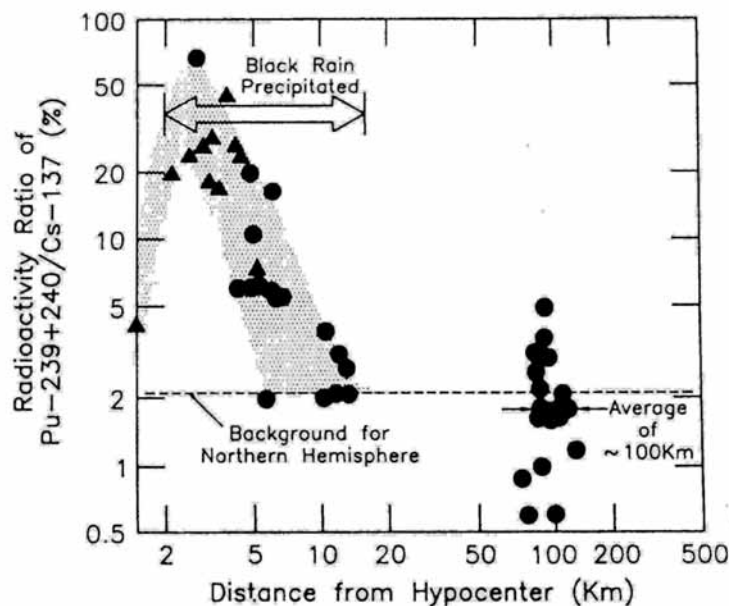


Fig. 5. Radioactivity ratio between $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs .

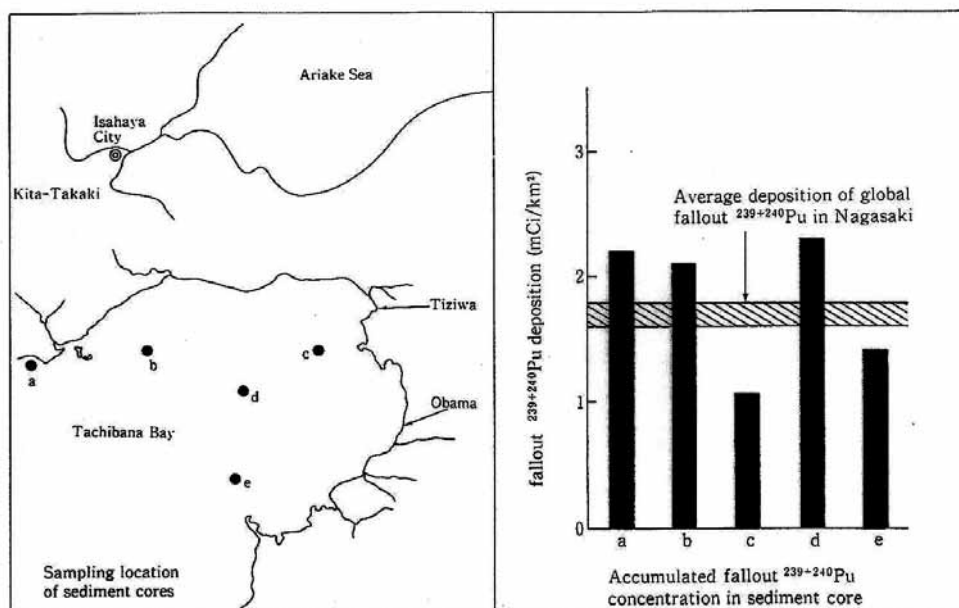


Fig. 6. Distribution of the accumulated fallout Pu concentration in sea sediments in the Tachibana Bay and comparison with the global fallout $^{239+240}\text{Pu}$ accumulation in the Nagasaki area

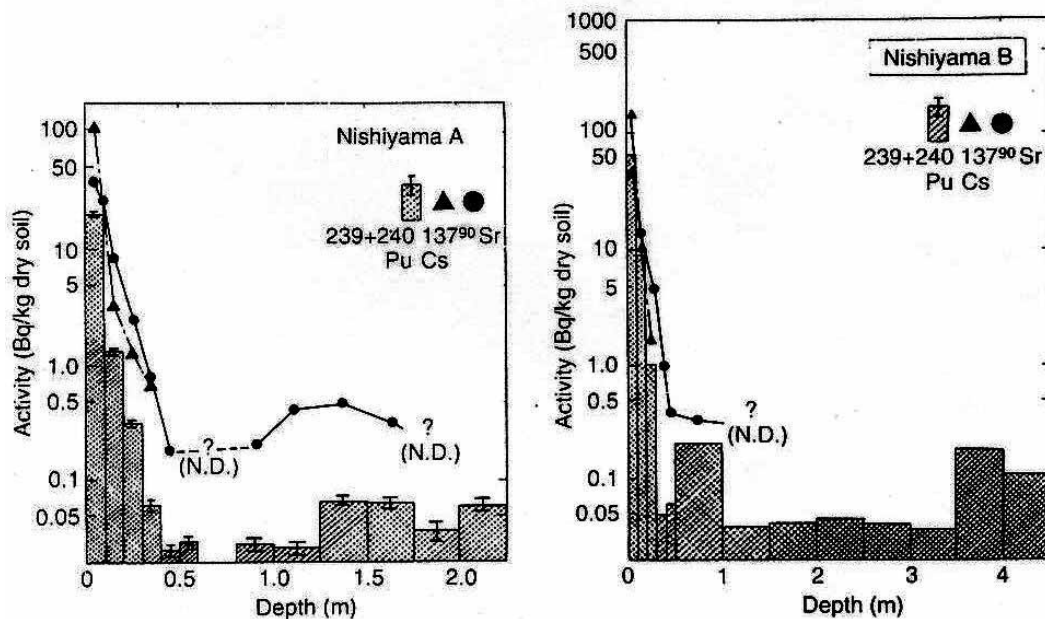
平均的な観測値 0.2mBq/g と比較しても大差無い結果であった。また、爆心の西側については、爆心から 1.5 km と 3 km の地点の表層から 30 cm の深度まで未攪乱土壌を採取して調査をした結果、局地フォールアウトの降下は殆ど認められなかった。さらに各観測地点での $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比を北半球のグローバル・フォールアウトの $^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ 比 (2.13%) と比較して Fig.5 に示す。この結果を見ると局地フォールアウト Pu の降下範囲としては、爆心地の東側 2 km から 18 km の範囲のかなり狭い範囲であることが明らかとなった。また、原爆の茸雲が上空を通過したと予測されている長崎市の北東側に位置する橘湾において海底土中 30 cm までの $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の鉛直分布を調べた。今回調査した海域は、橘湾の中でも海水の交換性が低い停滞性の水塊域であることを考えると周辺の陸地部に降下したフォールアウト Pu の蓄積が比較的大きく、陸上の降下履歴を反映した結果が得られるものと推察される。この海域での Pu の蓄積分布の結果を Fig.6 に示す。結論的には、橘湾奥全体での $^{239+240}\text{Pu}$ の降下量は、平均で 64Bq/m^2 で長崎と同緯度でのグローバル・フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の降下量 (60Bq/m^2 ¹⁰⁾ にほぼ等しく、この結果から局地フォールアウト Pu の降下は、殆どなかったものと推測できる。

長崎原爆に用いられたプルトニウムの量については、未だに機密扱いであるのでさだかではないが、プルトニウムの臨界質量が約 5 kg であることを考慮すると $10\sim 15\text{ kg}$ 程度と推測される¹¹⁾。仮に、 15 kg と考えると核爆発のエネルギーの推定値¹²⁾ 22 Kt を基に核分裂に用いられたプルトニウムの量を推定すると 1.2 kg となり全体の 8% となる。一方、西山地区を中心に降下した局地フォールアウト・ $^{239+240}\text{Pu}$ が、爆心から東北東に $1\sim 18\text{ km}$ の扇形の範囲に降下したと仮定し、表層土壌中の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度を基に表層土壌中に蓄積されている $^{239+240}\text{Pu}$ を推定するとその量は、約 0.038 kg となり全体の僅か 0.25% に過ぎない。残りの 91.75% はグローバル・フォールアウトとして地球全体に広がったと推定される。

ここで述べた内容の詳細については Water Science and Technology, Vol.22 を参照されたい。

4.2 土壌中フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の分布と移動速度

土壌中フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の鉛直分布を調べるために Fig.2 に示す A, B の 2 地点で最大深度 500



Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr in Soil of Nagasaki

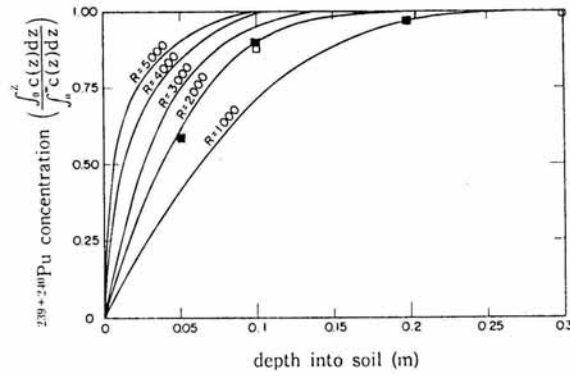
Fig. 7. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr into two undisturbed 30cm diam. soil cores collected from sites A and B in Nishiyama area. (N.D.: Not detected).

cmまでの土壌コアを連続的に採取して $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr の濃度を測定した。測定結果を Fig.7 に示す。フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr の大部分は、地表から深度 30 cm までにその大部分が吸着されており、総吸着量のそれぞれ 97%, 99%, 95% であった。フォールアウト ^{90}Sr は、30 cm 以深でも観測され $^{239+240}\text{Pu}$ は、コア A, B でそれぞれ孔底まで観測された。また ^{90}Sr は、コア A では、200 cm 深度にまで、コア B では 100 cm 深度まで分布しているのが確認された。一方、 ^{137}Cs は 40 cm 深度以深では存在が確認されなかった。

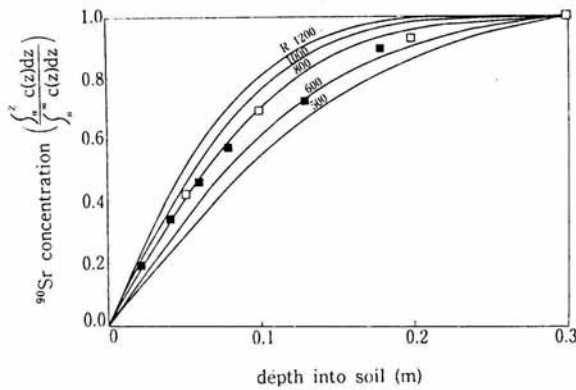
大部分のフォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr が吸着されている 30 cm 深度までの不飽和土壌中での各核種の地中での移動速度を求めるため一次元移流拡散方程式の解析解を用いて核種の移動速度ならびに現位置条件で評価推定された分配係数 (K_d) をもとめた。その際、地下水の鉛直移流浸透速度は、降水中に含まれるトリチウム (HTO) の降下履歴と不飽和土壌中土中水のトリチウム濃度と比較して推定した値 2.5m/yr を用いた。この値は臭素イオンをトレーサーとして現位置で土中水の鉛直浸透速度を観測した値とほぼ一致した。

フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr の実測分布と解析結果との比較を Fig.8 に示す。また、この結果を基に推定した $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr の現位置での分配係数の大きさは、各々 960, 1200, 300 ml/g であった。これらの値は、同じ土壌と現場で採取した地下水を用いてバッチ法とカラム法によって室内実験によって測定した分配係数に比べて $^{239+240}\text{Pu}$ で一桁小さく、 ^{137}Cs , ^{90}Sr では、逆に 2 倍ほど大きくなる傾向が見られた。 $^{239+240}\text{Pu}$ で小さくなった理由としては、フォールアウト Pu の酸化状態は、高温で酸化されたために (V) と考えられるが、室内実験で用いた ^{239}Pu は、(IV) であったため、Nelson 等¹³⁾ が指摘したように Pu (V) が Pu (IV) よりも土壌に吸着されにくいことを反映した結果と考えられる。一方、 ^{137}Cs と ^{90}Sr でフォールアウトの分布から推定した分配係数の方が、室内実験で測定した分配係数より大きくなった理由としては、これらの核種が、酸化状態の違い、微生物の影響や溶存有

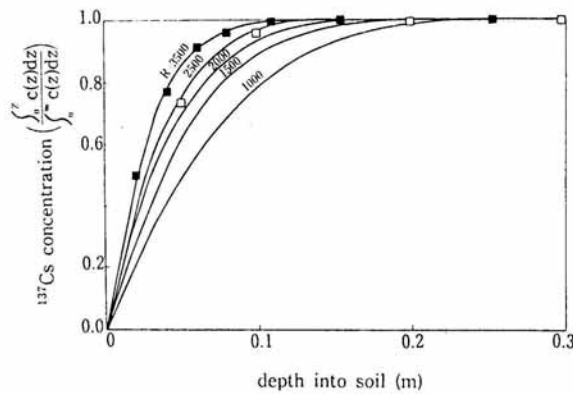
機物の影響を受ける度合いが低いことを考慮すると、この違いは、吸着時間の長さの違い、つまりフールアウト核種の場合は、40 年以上の interaction であるのに対し、室内実験での interaction の時間は、24 時間と極めて短い事がその原因の一つと考えられる。 ^{137}Cs と ^{90}Sr の吸着メカニズムが、土壌のイオン交換反応であると考えらるならば、24 時間という時間は、必ずしも短くはない。このことは、核種の土壌に対する吸着メカニズムは、短期間で終わるイオン交換反応とゆっくりと進行する不可逆



Estimation of Retardation Factor (R) of $^{239+240}\text{Pu}$



Estimation of Retardation Factor (R) of ^{90}Sr



Estimation of Retardation Factor (R) of ^{137}Cs

Fig. 8. Comparison between fallout ($^{239+240}\text{Pu}$, ^{90}Sr and ^{137}Cs) measured in undisturbed soil cores A and B and theoretical accumulation curves for fallout radionuclides analyzed by one-dimensional diffusion equation.

吸着を主体とする続性作用とから構成されていると考えられる。

なお、ここで述べた解析手法等については、J.Geophysical Research と J.Environmental Quality に発表した拙稿に詳細に述べてあるのでそれを参照にされたい。

4.3 地下水

ボーリング孔内より採水した地下水 200 l を $0.45\ \mu\text{m}$ の孔径を持つメンブラン・フィルターで濾過した地下水中の溶存 $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr の濃度を測定した。その結果、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{90}Sr は、各々 $0.024 \pm 0.005\ \text{Bq/m}^3$, $0.963 \pm 0.385\ \text{Bq/m}^3$ で検出されたが、一方、 ^{137}Cs は、検出限界以下であった。このことは、土壤中でこれら核種の移動性とも良い相関を持っており、 ^{137}Cs が $^{239+240}\text{Pu}$ や ^{90}Sr に比べてその移動速度が小さいことを示唆している。

4.4 底質

西山貯水池と小ヶ倉貯水池において底質コア内のフォールアウト核種の鉛直濃度分布を調査した。二つの貯水池の結果を比較すると西山貯水池の方は、1945 年の局所フォールアウトと 1963 年頃のグローバル・フォールアウトの一連のピークの降下履歴が明瞭に認められる。これに対し、小ヶ倉貯水池の底質の中では 1963 年頃と 1975 年頃にグローバル・フォールアウトの Pu ピークが明瞭に認められる。さらに、意外だったことは、1945 年頃の深度 (28 ~ 36 cm) から極めて小さいながら Pu のピークが認められる。この小さなピークが 1945 年の原爆ピークであることは、Excess ^{210}Pb 年代測定法から推定される 1945 年の年代とほぼ一致することから推定される。同一底質中では、深度 22 cm より深い部分では ^{137}Cs が、また底質や土壌の中ではその移動性が大きい ^{90}Sr も深度 28 cm より深い部分では、全く検出されなかったことも、この推定を支持している。

小ヶ倉の底質サンプル中に含まれる全 Pu の内で 1945 年の原爆フォールアウトの寄与率は、約 11% であった。この事からも爆心から南西にわずか 7 km しか離れていない地域においても局所フォールアウトの降下の影響が極めて小さかったことが確認された。この結果は、4.1 で述べたように局所フォールアウトの降下が極めて限られた地域に集中的に生じた事を支持している。Fig.9 に小ヶ倉貯水池底質中のフォールアウト核種の鉛直濃度分布を示す。一方、西山貯水池の底質内の $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr の鉛直濃度分布を Fig.10 に示す。これを見ると、貯水池の最も深い部分で採取した Sediment-C のサンプル中には、1930 年代から 1982 年頃までのフォールアウト

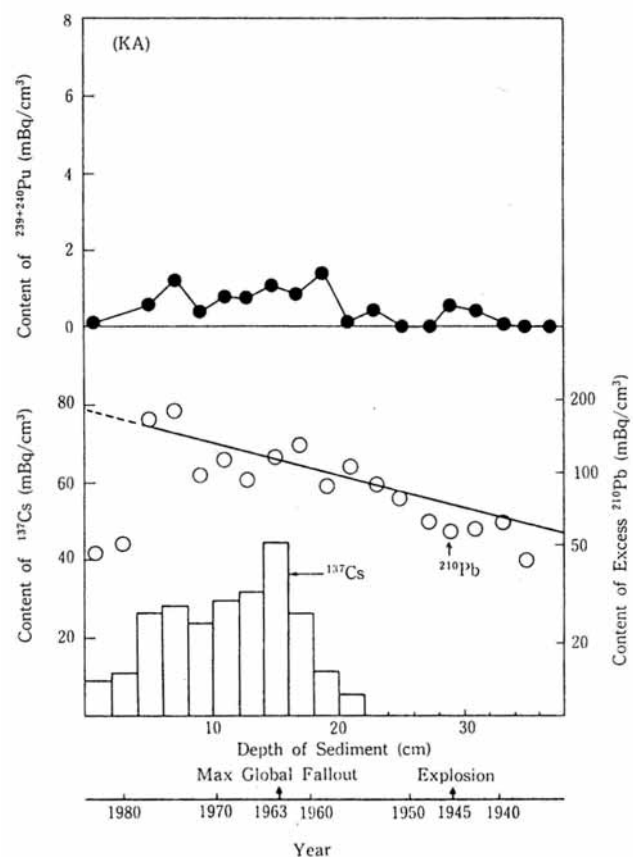


Fig. 9. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr and Ex. ^{210}Pb in the sediment core collected from Kogakura reservoir

トの降下履歴が比較的良好な状態で残されていることが分かる。特に ^{137}Cs はいずれの Sediment サンプルにおいてもその降下履歴は残されているが、Sediment-B と Sediment-A では局所フォールアウトのピークは明瞭であるがグローバルのピークは局所フォールアウトのピークと重なって余り明確ではない。Sediment-A と Sediment-B は、貯水池の中でも比較的水深が、浅い部分で採取された事もあって 1982 年に発生した大洪水の影響を強く受けてコアの浅い部分 (Sediment-A: ~ 30 cm, Sediment-B: ~ 10 cm) は、降下の履歴が乱されている可能性が高い。

既に述べたように ^{90}Sr は底質内での移動性が高いために降下の履歴は、余り明瞭でない。降下履歴の保存がよい Sediment-C の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の濃度分布と ($^{239+240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$) 比を活用することにより西山地区の土壤中に吸着されている降下フォールアウト ^{137}Cs と ^{90}Sr の起源(局所/グローバル)の割合を明らかにできる。その結果、1984 年時点で ^{137}Cs では、50%が局所フォールアウト成分であり、残りの 50%がグローバル・フォールアウト成分であるとの結果となった。また、 ^{90}Sr では、47%が局所フォールアウト成分であり残りの 53%がグローバル・フォールアウト成分であるとの結果となった。Sediment-A の 30 cm 以深の洪水の影響を受けていないコア部分の深度 50 cm 付近に局地フォールアウトの $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の大きなピークが見られる。 ^{137}Cs は、深度 57 cm までは検出されるがそれより以深では全く検出されない、一方 $^{239+240}\text{Pu}$ は、コアの最深部の 90 cm まで非常に濃度は低いながら検出される。特に、注目すべき点は、深度 65 ~ 75 cm の間に比較的高い濃度のピークが 2 ヶ

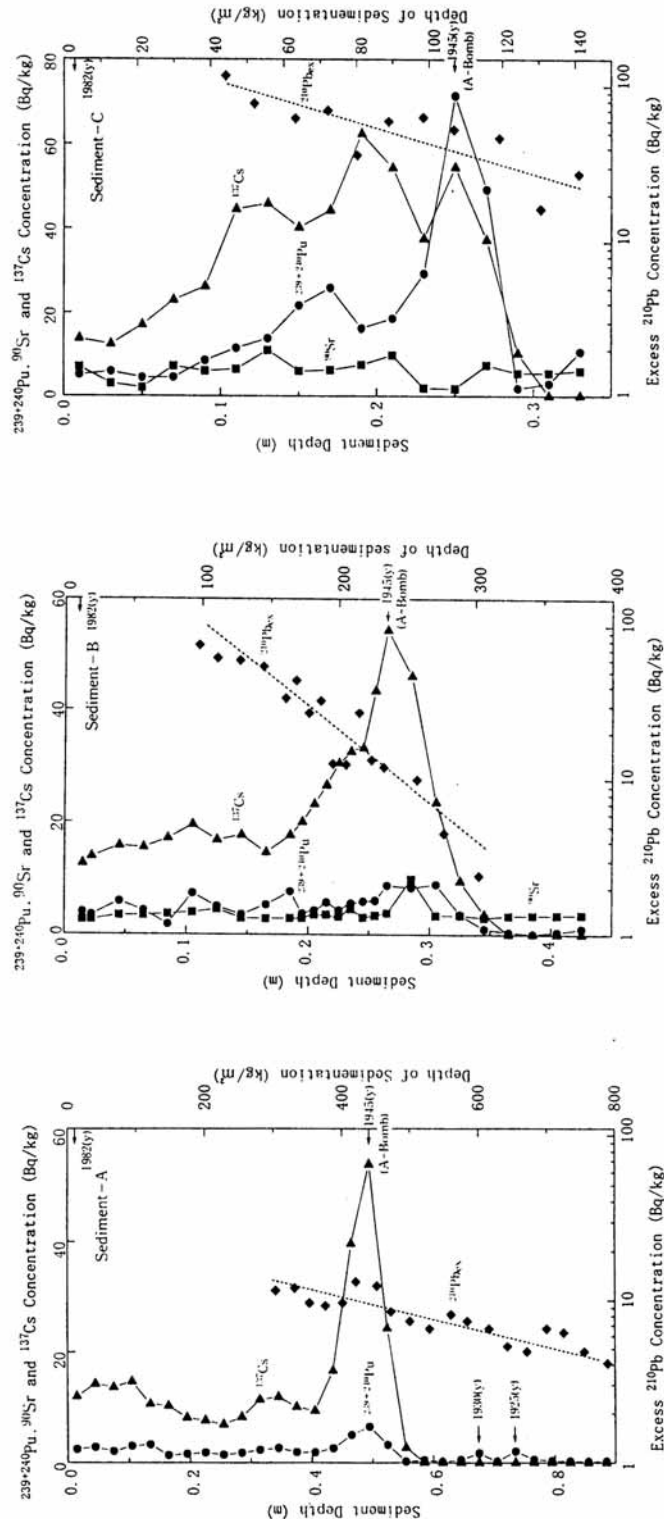


Fig. 10. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr and excess ^{210}Pb in sediment cores collected from Nishiyama reservoir

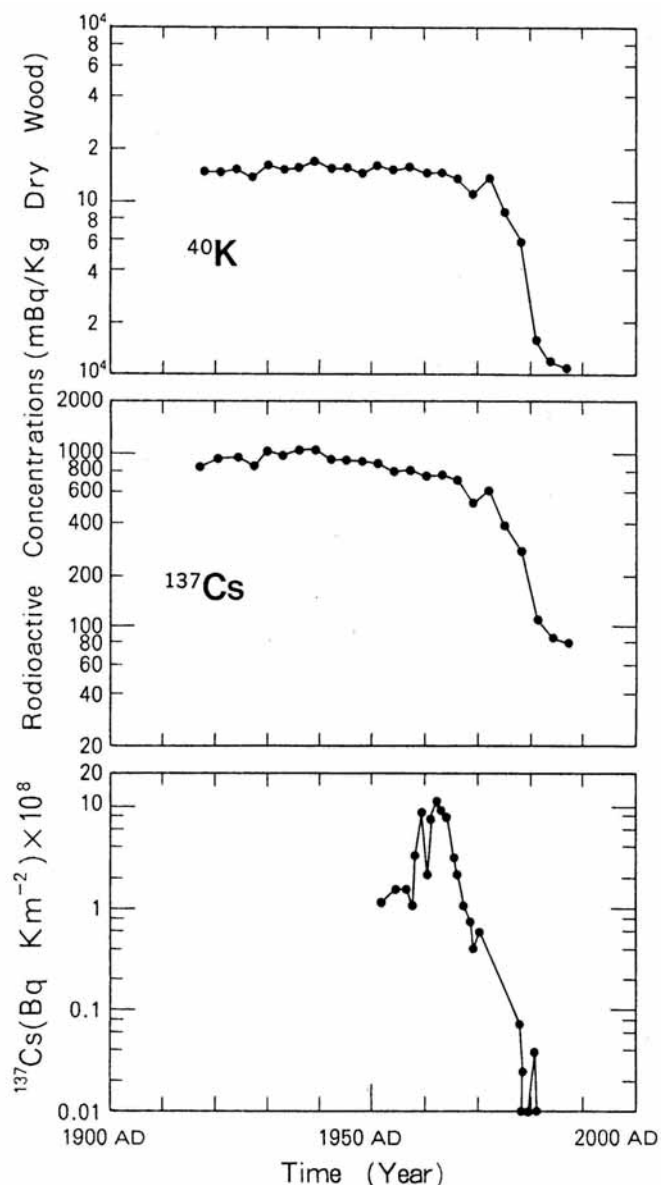
所見られることである。その濃度は、Sediment-A の最大 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度 6.43m Bq/g の $1/3 \sim 1/4$ に達するもので、同一深度の底質中で ^{137}Cs が検出されないこと、さらには、この深度の底質の堆積年代が 1925 ~ 1932 年頃であることを考慮すると移動性の異なる $^{239+240}\text{Pu}$ が、僅かながら存在することを示唆しているようである。また、貯水池の底で底質が、水の動きや微生物などの攪拌による水理学的あるいは生物活動に伴う機械的な乱れの大きさを表す底質混合拡散係数 (Particle Mixing Coefficients) D_e の大きさを、局地フォールアウトの $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs のモノピークを用いて評価すると、その値は、 $D_e = 0.078 \sim 0.12\text{cm}^2/\text{yr}$ あり太平洋の 5000m 以深の深海底で測定された値 $D_e = 0.03 \sim 0.4\text{cm}^2/\text{yr}$ と比較しても決して大きなものではなく、貯水池の底における底質の動きは、極めて小さいことが明らかとなった。

以上の詳細は、既報告の Health Physics, Vol.54 ならびに J.Environmental Quality, Vol.22 を参照されたい。

4.5 杉年輪

樹林 78 年の杉の年輪を 3 年毎に分け ^{40}K , $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の濃度分布を測定した結果を Fig.11 に示す。この結果を見ると極めて特徴的なことが分かる。 ^{40}K と ^{137}Cs は、非常に良く似た分布をしていることが分かる。また、 ^{137}Cs の分布にはフォールアウト ^{137}Cs の降下履歴的なものは認められず、樹皮・辺材部分から心材に向かって急激に濃度上昇が起こり心材の部分では、濃度がほぼ一定となる逆 S 字型の濃度分布を示す。濃度の上昇は、辺材から心材の遷移境界部分で著しい。 ^{40}K と ^{137}Cs が同様な分布を持つと言うことは、K と Cs がアルカリ金属であり化学的には極めて類似の挙動を取る可能性が高いことと、K は植物にとっては必須栄養元素であることを考慮すると樹木の中では、 ^{137}Cs の移動性の高い (mobile) ことは理解ができるところである。

$^{239+240}\text{Pu}$ の分布は、 ^{137}Cs の濃度分布とは著しく異なり樹木の違い、つまり辺材と心材の違いによってその濃度分布が左右されることは無いようである。 $^{239+240}\text{Pu}$ の分布は、Fig.11 に示す年代と核実験によって大気圏へ放出された



Distribution of ^{40}K and ^{137}Cs in Tree Rings at Nagasaki

Fig. 11. Pu history in Nagasaki tree rings along with other trace elements

^{137}Cs の降下量と比較すると良く似た分布をしていることが分かる。比較的大きな濃度ピークが 1944 ~ 1946 年、1956 ~ 1958 年、1965 ~ 1967 年に認められる。ピークの大きさは、1965 ~ 1967 年、1956 ~ 1958 年、1944 ~ 1946 年の順番で 1944 ~ 1946 年のピークつまり原爆ピークは、他のグローバルフォールアウト・ピークよりも低い。この事は、周辺土壤中の $^{239+240}\text{Pu}$ の大部分 (95%) が 1945 年の原爆の局地フォールアウトによってもたらされていることを考慮すると意外なことである。この事は、局地フォールアウトとグローバル・フォールアウトでは生物への吸収の度合いが異なることを示唆している。これらの原因としては、フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の粒径の違い、化学的な違いや暴露時間の違い等色々考えられるが明らかではない。

また、最もグローバル・フォールアウト $^{239+240}\text{Pu}$ の降下が大きかったと予想される 1963 年に最大濃度ピークが出現せず 2 ~ 3 年遅れで濃度ピークが現れているが、その理由も良く分かっていない。しかしながら、 $^{239+240}\text{Pu}$ の降下履歴が年輪中に残されていることを考えると $^{239+240}\text{Pu}$ の大部分が樹木の葉や根幹を通して吸収されたと考えるのが妥当であろう。何故ならば、地上に降下した $^{239+240}\text{Pu}$ は

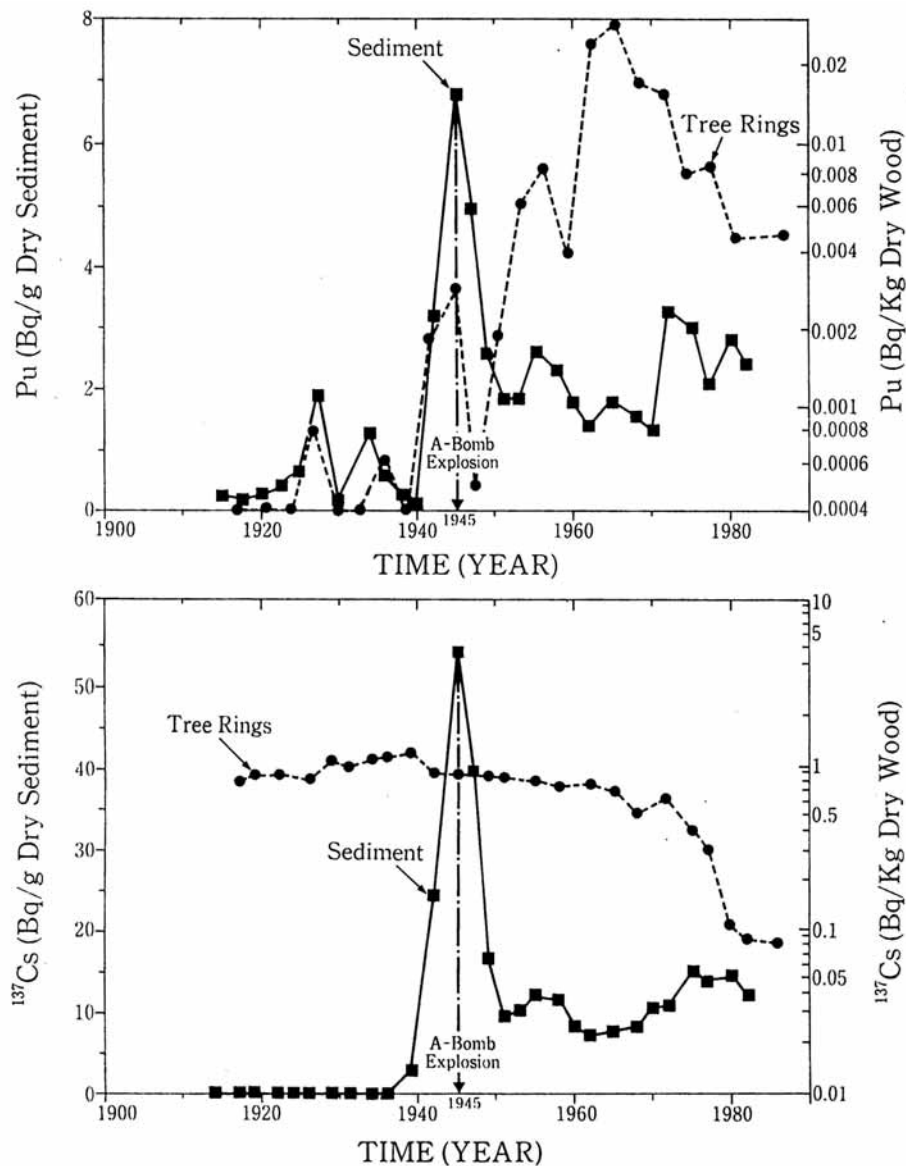


Fig. 12. Distribution of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs in sediment cores and tree rings

土壌に強く吸着されるのでその殆どは地表数センチメートルに蓄積され、主に杉の根が広がって吸収活性の高い深度よりも上方に蓄積されており直接樹根によって吸収される確率は非常に低いと思われるからである。

さらに $^{239+240}\text{Pu}$ の分布において注目すべき事は、前述の3つのピーク以外に小さいながら2つのピークが1932～1934年と1926～1928年に認められることである。これらのピークは、いずれも原爆フールアウトの降下が起こった1945年以前に観測されている。つまり $^{239+240}\text{Pu}$ がまだ環境に放出されない以前の年輪中に存在することを意味しており、この事は、我々が今までに得た知見とは矛盾するように思えるが、ここでの観測結果が $^{239+240}\text{Pu}$ の検出限界値である 0.45mBq/Kg と比較しても十分に有意な値であることを考慮すると $^{239+240}\text{Pu}$ の中には一部環境中では移動性の高い成分が来ると解釈できる。意外な事実として年輪中に残された $^{239+240}\text{Pu}$ の降下履歴と Sediment-A の中に残された $^{239+240}\text{Pu}$ の降下履歴とが極めて良く似ていることである。杉年輪のサンプルを採取した場所と Sediment-A を採取した場所とは、陸上と貯水池の中と言う違いはあるがほぼ同じ場所であり、その意味ではフールアウト核種の降下状態はほぼ同じであったと考えられる。Sediment-A の中でも1945年以前の1925～1932年に堆積した底質中に $^{239+240}\text{Pu}$ の2つの小さなピークが存在することは、既に述べたところである。Fig.12に年輪中の $^{239+240}\text{Pu}$ と Sediment-A 中の $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度分布を、年代を合わせて重ねて示す、また比較のために年輪中の ^{137}Cs と Sediment-A 中の ^{137}Cs の濃度分布を示す。これらの結果を比較すると、 $^{239+240}\text{Pu}$ は土壌や樹木の中では基本的には移動性は低い、 ^{137}Cs は土壌や底質の中では移動性は低い、樹木のように生物体の中では移動性は非常に高いという対照的な挙動を示すことが明らかとなった。

なお、ここで述べた詳細な内容については J.Environmental Radioactivity, Vol 21 ならびに Applied Radiation Isotopes, Vol. 46⁽¹⁴⁾を参照されたい。

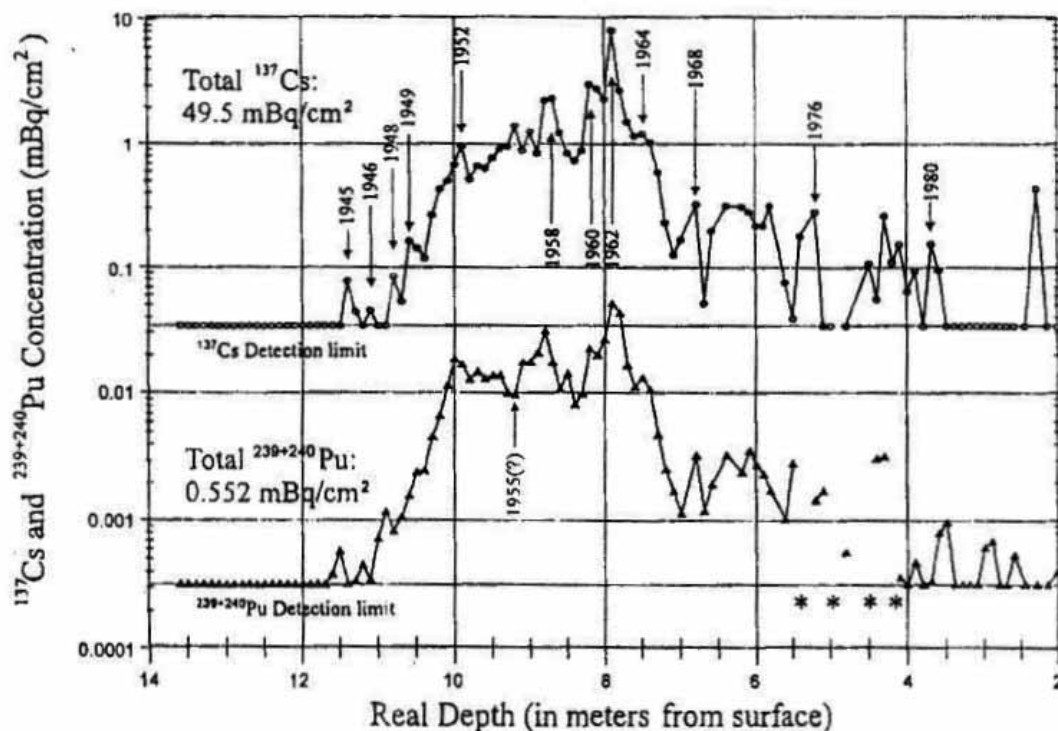


Fig.13. $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs concentrations in the ice layers at Ellesmere, Canada (after Kudo et al., 1998).

4.6 Ice Core

長崎原爆によって環境に放出されたグローバル・フォールアウト Pu の存在の確認と地球規模での物質輸送に関する知見を得るために、北極の Ice Core 内の $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の濃度分布を調べた。その結果を Fig.-13 に示す。グローバル・フォールアウトとしての $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の降下履歴が鮮明に残されている。最大濃度は、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs とともに 1962 年の層からである。この結果は、国内で観測された 1963 年の最大降下出現記録からは 1 年異なる。これは、1963 年に部分的な大気圏核実験が中止される直前の 1962 年に大量に行われた旧ソビエトの北極圏に位置するノバヤ・ゼムリア島での核実験からの寄与が大きいことと関係があり、中緯度に位置する我が国とはその降下の履歴に若干の時間的なずれが生じたのと判断される。また、11m 深度の氷層から、わずかながら 1945 年に環境に放出された Pu と Cs の明瞭な痕跡が認められる。

1945 年には、アラマゴード、広島、長崎での核爆発があり、1946 年ビキニで 2 回の広島・長崎クラスの核実験が行われたが、1947 年には実験は行われていない。また、アラマゴードでの核実験は、地表付近であり長崎原爆は、地上 560m であったことを考慮すると、距離的には離れているが、少なくともその半分は長崎原爆からのグローバル・フォールアウトの寄与と考えられる。長崎でのローカル・フォールアウトの寄与とこの分布と降下量を比較すると、 $^{239+240}\text{Pu}$ と ^{137}Cs の大気を通じた輸送メカニズムの違いを見ることができる。

なお、ここで述べた詳細な内容については J.Environmental Radioactivity, Vol 40 ならびに Kudo 著の Plutonium in the Environment (2001) を参照されたい。

5. まとめ

長崎原爆によって環境中に放出された未核分裂フォールアウト・プルトニウムの物質収支を踏まえ、局所フォールアウトの種々の環境媒体中での分布とグローバル・フォールアウトの痕跡を確認した北極 Ice Core 調査について報告した。結論的に言えば、フォールアウト Pu の大部分は、その移動性は小さく環境媒体中に長く留まる可能性が極めて高い。しかしながら、これら移動性が非常に小さい大部分の Pu とは別に移動性が高い Pu が環境中では僅かながら存在することも明らかとなった。その割合は、底質、土壌、生体（樹木）の中に含まれる全 Pu 中で、各々 9%, 3%, 1% であった。これら移動性の高い Pu の形成のメカニズムは明らかではない。ここで得られた結果は、フォールアウト Pu のような難溶性で半減期が極めて長い核種によって地上近傍が汚染された場合、その汚染は長く地上に留まり長く影響が続く事を示唆している。したがって、チェルノブイリ事故の火災によって環境に放出された核種の内で、とりわけ Pu は地上に長く留まりその影響は長く続くものと推論される。

また、地球規模での汚染物質の輸送に関しては、同じ事象の中で発生しても生成の起源が異なれば、輸送物質の化学特性によって輸送の割合もメカニズムも大きく異なることが、グローバル・フォールアウトの追跡調査から明らかとなった。

参考文献

- 1) Mahara, Y., Storage and Migration of Fallout Strontium-90 and Cesium-137 for Over 40 Years in the Surface Soil of Nagasaki, *J. Environ. Qual.*, **22**, 722-730, (1993)
- 2) Mahara, Y., and Miyahara, S., Residual Plutonium Migration in Soil of Nagasaki, *J. Geophys. Res.*, **89** (B9), 7931-7936, (1984)
- 3) Kudo, A., Mahara, Y., Kauri, T. and Santry, D. C., Fate of Plutonium Released from the Nagasaki A-Bomb,

- Japan, Wat. Sci. Tech., **23**, 291-300, (1991)
- 4) Mahara, Y., Kudo, A., Kauri, T. and Santry, D.C., and Miyahara, S., Mobile Pu in Reservoir Sediments of Nagasaki, Japan., *Health Phys.*, **54**, 107-111, (1988)
 - 5) Mahara, Y. and Matsuzuru, H., Mobile and Immobile Plutonium in a Groundwater Environment, *Water Res.*, **23**, 43-50, (1989)
 - 6) Kudo, A., Suzuki, T., Santry, D.C., Mahara, Y., Miyahara, S. and Garrec, J.P., Effectiveness of Tree Rings for Recording Pu History at Nagasaki, Japan, *J. Environ. Radioactivity*, **21**, 55-63, (1993)
 - 7) Kudo, A., Mahara, Y., Santry, D.C., Suzuki, T., Miyahara, S., Sugahara, M., Zheng, J., and Garrec, P.J., Plutonium Mass Balance Released from Nagasaki A-Bomb and Applicability for Future Environmental Research, *J. Appl. Radiat. Isot.*, **46**, 1089-1098, (1995)
 - 8) Kudo, A., Koerner, R.M., Fisher, D.A., Bouregeois, J., Santry, D.C., Mahara, Y. and Sugahara, M., Plutonium from Nagasaki A-bomb as a Possible Tracer for Global Transport, Using Existing Initial Conditions and Ice Cores, NATO ASI Series, Vol. I 30, *Ice Core Studies of Global Biogeochemical Cycles (ed. by Robert J. Delmas)*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg, (1995)
 - 9) Hardy, J.H. (ed.). Health and Safety Laboratory Procedures Manual. Rep. HASL-300. U.S. Energy Res. and Dev. Admin., New York., (1972)
 - 10) Hardy, E.P., Kery, P.W. and Volchok, H.L., Global Inventory and Distribution of Fallout Plutonium, *Nature*, **241**, 444-445, (1973)
 - 11) Kudo, A., Mahara, Y., Santry, D.C., Miyahara, S., and Garrec, P.J., Geographical Distribution of Fractionated Local Fallout from the Nagasaki A-bomb, *J. Environ. Radioactivity*, **14**, 305-316, (1991)
 - 12) 丸山隆司, 原爆線量再評価に関する諸問題, *日本原子力学会誌*, **27**, 112-119, (1985)
 - 13) Nelson, D.M. and Lovett, M.B., Oxidation States of Plutonium in the Irish Sea, *Nature*, **276**, 599-601, (1978)
 - 14) Mahara, Y. and Kudo, A., Plutonium Released by the Nagasaki A-Bomb: Mobility in the Environment, *J. Appl. Radiat. Isot.*, **46**, 1191-1201, (1995)
 - 15) Kudo, A., Zheng, J., Koerner, R. M., Fisher, D. A., Santry, D. C., Mahara, Y. and Sugahara, M., Global transport rates of ^{137}Cs and $^{239+240}\text{Pu}$ originating from the Nagasaki A-bomb in 1945 as determined from analysis of Canadian Arctic ice cores. *J. Environ. Radioactivity*, **40**, 289-298, (1998)
 - 16) Kudo, A., Mahara, Y., Zheng, J., sasaki, T., Yunoki, E., Sugahara, M., Santry, D. C., and Garrec, J.-P., Global transport of plutonium from Nagasaki to the Arctic: review of the Nagasaki Pu investigation and the future, In *Radioactivity in the Environment series, Plutonium in the Environment (Proceedings of the Second Invited International Symposium in 1999 at Osaka, Japan)* ed. by Kudo, A., Elsevier, pp. 233-250, (2001)

Distribution and Behavior of Fallout Plutonium Released by the Nagasaki A-Bomb:

-Surveys at the Nagasaki Area for the local fallout and at Agassiz ice cap for the global fallout-

Yasunori MAHARA and Akira KUDO

ABSTRACT

The first environmental release of $^{239+240}\text{Pu}$ in an area with a high population density came from nuclear explosion at Nagasaki in 1945. Unfissioned $^{239+240}\text{Pu}$ and various fission products (e.g., ^{137}Cs , ^{90}Sr) have been

interacting with various environmental materials (soils, sediments and plants) under humid and temperate conditions for about 50 years. To assess the mass balance of $^{239+240}\text{Pu}$ of the A-bomb and the environmental distributions of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs , ^{90}Sr from this release, the intensive environmental surveys were conducted in the Nagasaki area.

The local fallout $^{239+240}\text{Pu}$ was heavily deposited at Nishiyama 3Km east of the hypocenter. However, the total amount of local fallout was estimated to be only 0.25% of the A-bomb Pu. The remaining 91.65% was scattered in the world as the global fallout and only 8 % was fission in the nuclear explosion. The vertical distributions of $^{239+240}\text{Pu}$, ^{137}Cs and ^{90}Sr were determined in unsaturated soil cores up to 500 cm deep. Most radionuclides were found in the soil column 30 cm from the ground surface (95% of ^{90}Sr , 99% of ^{137}Cs and 97% of $^{239+240}\text{Pu}$). However, ^{90}Sr and $^{239+240}\text{Pu}$ were detected in the groundwater as well below a depth of 200 cm. No ^{137}Cs was found below 40 cm from the ground surface or in groundwater. These observations reveal that about 3% of total $^{239+240}\text{Pu}$ has been migrating in the soil at a faster rate than the remaining $^{239+240}\text{Pu}$. Sharp peak of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs , indicating heavy deposition from the Nagasaki local fallout of 1945, were found in sediment cores collected from the Nishiyama reservoir. On the other hand, since ^{90}Sr is mobile in fresh water sediments, there was no 1945 ^{90}Sr peak in the sediment cores. $^{239+240}\text{Pu}$ peaks were unexpectedly discovered in pre-1945 sediment core sections. Although ^{90}Sr was found in these sections, no ^{137}Cs was found. By contrast to the distribution in sediment cores, ^{137}Cs in tree rings had spread by diffusion from the bark to the heart of the tree without holding a fallout deposition record. Most of the $^{239+240}\text{Pu}$ was distributed in the tree rings following a similar deposition record to that found in sediment cores. Furthermore, a very small amount of $^{239+240}\text{Pu}$ (about 1%) was found in pre-1945 tree rings. The only reasonable explanation for these unexpected discoveries is the existence of mobile $^{239+240}\text{Pu}$ in the environment.

The precise deposition record of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs was found in the 14-meter-long ice cores drilled at the Agassiz ice cap in Canada. Deposition of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs were clearly recorded from 1945 to late of 1980 in them. We confirmed the small peak of $^{239+240}\text{Pu}$ and ^{137}Cs from nuclear explosions (of Alamogordo, Hiroshima and Nagasaki) in 1945. The Pu global fallout was released from the Alamogordo and Nagasaki explosions. At least, the Nagasaki explosion was contributed to the production of an approximate half of the global Pu peak in 1945.

広島原爆の黒い雨による残留放射能と被ばく線量

丸山 隆司* (放射線医学総合研究所)

吉川 友章 (気象研究所)

1. はじめに

1945 年 8 月 6 日および 9 日に相次いで投下された広島および長崎における原爆からの放射線被ばくについて、投下後ほぼ 1 分以内の初期放射線を中心に線量評価がすすめられてきた。戦後約 60 年の歴史を経て DS02 をもって漸く落着の兆しがみえてきた。放射線影響研究所を中心に推進されている LSS(寿命調査)は、DS02 による新しい線量に基づく再評価が進むことであろう。一方、両市には、初期放射線には遭遇しなかったが、投下後早い時間に肉親等の搜索、救助活動等のため市内に入った、いわゆる初期入市者などがいる。そして、原爆投下後、爆心地近くには放射性降下物(フォールアウト)や中性子による誘導放射能など残留放射能が存在し、それらからの放射線を被ばくしたのではないという不安を拭い切れない人々もいる。原爆からのフォールアウトである必要条件は核分裂生成物、とりわけ長寿命である ^{137}Cs が存在することである。この問題を解決するため、Ge 半導体検出器が実用化された 1975 年頃、厚生科学研究費により広島および長崎の爆心地を中心とした半径 30km の同心円内から採取した土壌試料について ^{137}Cs の残留放射能測定調査が行われた。しかし、この調査では 1960 年代に実施された米ソ中国などの大気圏核実験にマスクされ、長崎西山地区を除き 1945 年の原爆による残留放射能を同定することができなかった。その後も種々の調査研究は行われたが、1945 年の原爆による残留放射能を同定することはできなかった。DS86 報告書でも検討されたが、長崎の西山地区を除いては広島を含めて有意な放射性降下物の存在は認められず、中性子による誘導放射能による線量評価のみの議論に終わった。

1987 年、気象研究所の吉川らは、地球規模の気象モデルとランダムウォーク型の粒子拡散モデルを組み合わせ、1986 年 4 月のチェルノブイリ事故による北半球大気圏の放射能汚染の評価計算を行った¹⁾。われわれは、1991 年に、この計算法を応用して、広島および長崎における放射性降下物等のシミュレーション計算を行った²⁾。ここではそれらの結果の一部の一部として、広島の黒い雨に関して報告する。

2. 計算モデルの設定

2.1 原爆雲などの形成

広島および長崎の原爆は、地上 600m 近辺の上空で炸裂した。炸裂の瞬間は想像を絶するすさまじさであったであろう。このあたりの科学的記述については Glasstone and Dolan の報告書³⁾を参考にする。炸裂の瞬間、大量のエネルギーが狭い弾筒の中で放出されるため、核分裂生成物、爆弾の弾筒などの構造物は、太陽の中心に匹敵する物凄い高温となり、すべての物質はガス状になってしまうと考えられる。このようなガス状物質は、炸裂の瞬間、狭い爆弾構造の中に閉じ込められ、凄まじい圧力(大気圧の 100 万倍以上)に達する。100 分の 1 秒以下の炸裂時に、この極めて高温の残留物の大部分は、大気中で吸収されてしまう低エネルギー X 線としてそのエネルギーを放出する。それにより火の玉(Fireball)と呼ばれる、高温で強い光を発する空気とガス状残留物の球形の塊を形成する。

* MARUYAMA Takashi, National Institute of Radiological Sciences; t_maru@fml.nirs.go.jp

火の玉は形成直後に周りの空気を吸収しながら、大きくなり始める。それに伴い温度が低下し、同時に、火の玉は熱気球のように上昇する。20kt の原爆の火の玉は直径が 500m に達するといわれている。ここでは、火の玉が上昇、冷却しながら形成される雲を「原爆雲」と呼ぶことにする。

火の玉に続いて、地上では強烈な爆風の被害を受けた。これは衝撃波とも呼ばれ、20kt の原爆では、衝撃波の先端が炸裂後 1.25 秒で爆心から約 560m に達するという。この衝撃波によって、地上の物質は上空に巻き上げられて雲を形成する。ここでは、この雲を衝撃塵の雲、以下、「衝撃塵」という。火の玉からの輻射熱は、地上に大きな火災をもたらした。この火災による煙が上空に立ち昇り、低空に黒い雲「火災煙」を形成した。

原爆投下後にいろいろな場所から上空を撮影した写真が多数あるが、撮影場所や撮影時間が明確な写真、広島では、呉市若草町（爆心から約 20km）の海軍工廠砲類から爆発 40 分後、長崎では、香焼島 川南造船所（爆心から約 9 km）で、爆発後約 40 分後のものが、それぞれ原爆による雲のモデル化に用いられた。まず、撮影現場でトランシットを用いて地形、撮影されている建造物の仰角を撮影することによって、写真上の距離および角度を検証した。それらの結果および三角測量法などにより、原爆雲、衝撃塵および火災煙の雲の頂上の高さを推定した。

雲の中の放射性物質の粒子の種類や粒径分布などについては詳しいデータが不足しているため、計算上、粒径（球の直径）については大粒子（粒径 100 μm 以上、平均 200 μm ）、中粒子（10～100 μm 、平均 30 μm ）および小粒子（10 μm 以下）に分類した。計算機的能力上、各粒子数が一定量ずつ放出されるとした。重力落下速度は、大粒子が 100cm/sec、中粒子が 10cm/sec、小粒子が 1 cm/sec とした。

地上 600m での爆発した空気の圧力振動や衝撃波が地上に達し、反射して再び上空に跳ね返され、四方に拡がっていくことで、多くの家屋や樹木をなぎ倒し、煤塵や土砂を巻き上げる。これが衝撃塵であるが、それらの一部は中性子による誘導放射能をもっていると考えられる。衝撃波で生じた衝撃塵は舞い上がり、原爆雲の下側の雲を形成したと考えられる。衝撃塵は、土砂や日本家屋の壁土が主体（主に珪素）と考えられ、大気中では均質分布と考えられる。

原爆からの強烈な熱放射によって地上では、家屋や生活用品など可燃物が瞬時に着火し、煙や残留灰が上方に立ち昇った。この火災煙にも中性子による誘導放射能が含まれていたと考えられる。爆発 40 分後の写真の最下部に火災煙が確認されている。1991 年の湾岸戦争の後に真黒な雨（主体は石油の燃焼であろう）が観測されたが、日本でも大火の後に黒い雨が観測されている。大火の後には黒い雨が降るのは不思議ではない。煙の粒径や濃度については、火災実験などによって与えられている。火災では、煙粒が 1 μm 、煙中の煤の密度が平均 2g/m³ で均質の拡散する。従って、これらの放出量は、気流の上昇成分と放出濃度を用いて推定した。気流の計算には、海陸の熱分布に加えて、火災の放熱も考慮された。

2.2 気象シミュレーション

気象シミュレーションの計算の基本は、BOUSSINESQ 近似と静力学平衡を仮定した方程式系を用いた。この方程式は地面に沿った非直交座標系で書かれた運動量方程式、熱力学方程式、連続方程式、静力学平衡方程式、水蒸気量保存方程式、粒子の移流・拡散方程式からなる偏微分方程式の集合である。衝撃塵は自然界における土砂の上空への舞い上がりを参考にした計算モデルが用いられた。火災煙については、原爆投下当時の調査記録やデータを用いて、火災による熱と煙の発生を推定し、気流

および二次的放射性粒子の拡散計算に組み込んだ。複雑な偏微分方程式であるが詳しいことは気象専門書にゆだねる。

2.3.地上への降下量の表示

原爆雲、衝撃塵および火災煙から放射性物質は降下し、地上に堆積するが、降雨により流失するなどして、放射能分布は不均質になる。しかし、ここでは地上の単位面積、すなわち広島では、 1km^2 ($1\text{km} \times 1\text{km}$)、長崎では 0.25km^2 ($500\text{m} \times 500\text{m}$) に降下した放射性物質が流出したり、他所から流入することがなく、単位面積内に一様に分布するものと仮定した。

3．広島原爆の計算

3.1．落下粒子数分布

(a) 計算モデル

広島原爆は8月6日8時15分に爆発したが、粒子の拡散計算は、原爆の熱的、力学的な直接効果がなくなって、原爆雲が自然の風と市街地の火事の影響のみによって移動を始めたと思われる午前9時を計算の起点とした。

(イ)計算時間 気流は午前6時から15時まで、2分毎の時間積分をおこなった(9時からの放射性粒子の移流、沈着は15時頃に終わっている)。

(ロ)計算空間 爆心を中心とする $30\text{km} \times 40\text{km}$ の地域とし、鉛直方向は下層ほど密に15層とした。

(ハ)地域気象 広域気象条件を input として与え、局地気象が重なるとした。当日は、典型的な夏型配置であった。午前8時の天気図では、上空の南南東 $3\text{m}/\text{秒}$ の一般風のもとで海陸風が交替で吹き、この時点では陸風の領域にあった。原爆が投下された後の午前9時では、平野部の火災域に集まる収束渦が起こり、自然風とは別の風系が発達した。この渦はしばらく停滞していたが、10時には全域に海風が吹きはじめたため、海風に流されて北に移動しはじめた。市内の南側平野では、海風と火災に吹き込む流れが重なって、 $3\text{m}/\text{秒}$ を超える南ないし南南西の風が吹いている(注:初期の計算では、南南東の風としたが最終的には南南西に修正された)。11時以降さらに海風が発達すると平野には3乃至 $4\text{m}/\text{秒}$ の持続し、渦は北東から延びる山稜の裾を乗り越えて、北方の谷に入って衰えた。13時には海風が全域に吹き渡り、渦は消滅した。

このような気象の変動を考慮して、原爆に起因する粒子の着地分布を、9時を初期点として8時間にわたる計算を行ったが、15時までにほとんど地上に落下あるいは計算域から流れ去ったため、9時から15時までの種類別、粒径別の積算粒子数を出力した。

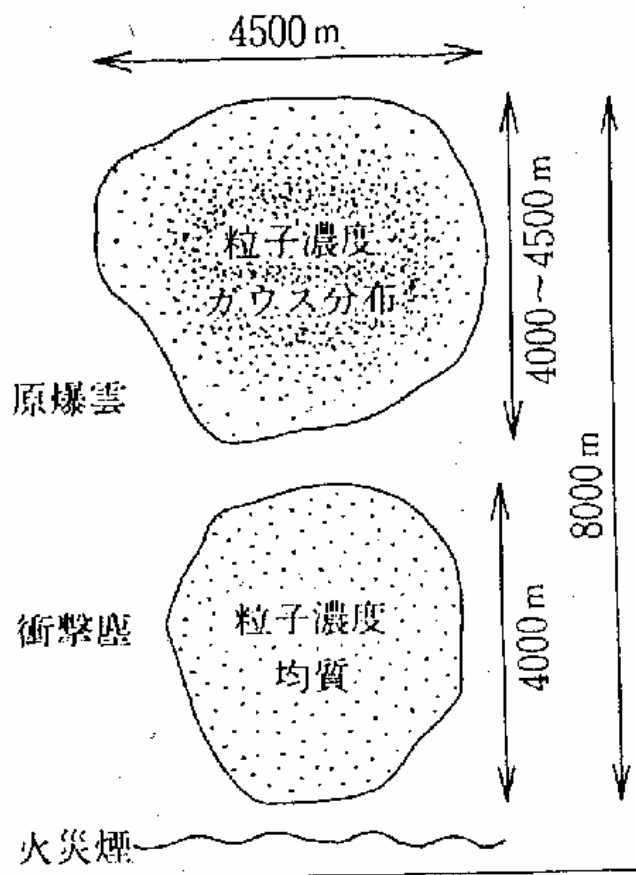
(b) 放射性粒子放出

計算の初期条件として、原爆雲、衝撃塵および火災煙は、図1に示す状況にあったとした。そして、原爆雲、衝撃塵および火災煙には、大粒子、中粒子および小粒子が10,000個ずつ存在し、それらの粒子が地上に落下したものとする。

原爆雲は、最初にその中心が爆心の上空 $5,750\text{m}$ で半径 $2,250\text{m}$ の球形内で粒子の数がガウス分布をしていると仮定する。

衝撃塵は、その中心が爆心から $4,000\text{m}$ 上空までの爆心を中心とする半径 $2,250\text{m}$ の円板状区域に均等に分布すると仮定し、原爆雲の粒子と同じ粒径区分でそれぞれが、10,000個ずつ存在するとした。

図1．計算モデル．計算の初期条件における原爆雲、衝撃塵および火災煙の大きさ、位置関係などを示す．



衝撃塵の全量は 3.80×10^3 トンと推定されているため、粒径別に各粒子1個の平均重量も既知である。

火災煙は、火災メッシュの最下層メッシュから上流気流に応じて5時間にわたり放出され、総量として 1.55×10^5 トンが放出されたとする。粒子の大きさの分布は、原爆雲や衝撃塵と同じとし、粒子数の初期条件も各粒子について10,000個とした。3区分の粒子について乾燥沈着と雨による沈着を分けて計算する。広島における火災燃焼率の時間配分は、表1のようにきめた。

表 1. 広島の火災燃焼率の時間配分

着火後の時間 (時間)	1	2	3	4	5
燃焼率 (%)	30	30	20	15	5

(c) 計算結果

計算結果の一例として、火災煙小粒子について乾燥落下および雨落下した粒子数分布を図2に示す。上空の放射性物質を含む雲、塵および煙から気象条件などにより、広島の場合は 1km^2 、長崎の場合は、 0.25km^2 のメッシュ内に落下した数が図に示すように数字で与えられる。これらの数字に基づいて、同一の落下数を線で結べば等落下粒子数曲線が得られる。該当する数がない場合は、まわりの数字から比例配分法で内挿する。この方法で、図のように等落下数曲線を求めた。

3.2．線量評価法

広島では、1945 年 8 月 6 日午前 9 時から午後 3 時までに地上に設定されたメッシュに落下した粒子数の積算数を用いて、メッシュ内での放射線被ばく線量を算定した。

(a) ソースターム

原爆に起因する降下物による線量を推定するために、線量に関係する線源の性質、すなわちソースタームを知る必要がある。

イ．原爆雲：原爆雲は、火の玉がまわりの空気を吸収したものである。核分裂生成物、未使用核分裂物質、原爆からの中性子によって放射化された弾頭構造物などは、炸裂時の創造を絶する核エネルギーによってガス状になっていた。ネバダでの核実験によれば、原爆の出力 1kt あたりの核分裂生成物の全放射能は、炸裂後 12 および 24 時間では表 2 のように与えられている。

表 2. 原爆出力 1kt あたりの核分裂生成物の放射能 (EBq / kt) ⁴⁾

核実験名称	炸裂 12 時間後	炸裂 24 時間後
アンニー	1.05	0.41
ビー	1.04	0.42
ガリレオ	1.01	0.36
ハリー	1.06	0.41
スモーキー	1.03	0.46
平均	1.04	0.41

Glasstone と Dolan³⁾ が報告している 24 時間後の値、0.55EBq に比べて、表 2 の数値は 25% 程度小さいが、本報では最新データである表 2 の平均値を採用する。DS86 では広島原爆出力は 15kt (DS02 では 16kt) なので、炸裂 12 および 24 時間後の原爆雲の全放射能は、広島では 15.6 および 6.15 EBq であったと考えられる。

ロ．衝撃塵：火の玉に続いて、地上に強烈な衝撃波が到達した。この衝撃波によって地上の物質は上空に巻き上げられ、雲を形成した。これが衝撃塵による雲である。衝撃波が到達する以前に、地上の物質は原爆からの中性子によって放射化され、放射能を帯びた。地上には種々の物資があり、衝撃波によって上空に舞い上がったと考えられる。衝撃塵が約 4000m の上空に達していたことから、その大部分は土砂の微塵であったと予想される。衝撃塵で巻き上げられた土砂の総量は、流体力学の計算によれば、3800 トンと推定される。巻き上げられた土壌は、すべて爆心地で放射化されたものとする。広島土壌の原爆中性子による誘導放射能の研究は、放医研でも DS86 においても行われている。

土壌試料に原子炉からの中性子を照射して、生成された放射性核種を調べた。原子炉中性子照射後の土壌の γ 線スペクトルでは、照射 5 分後では、 ^{28}Al (半減期 2.24 分) が支配的であるが、1 時間後には ^{56}Mn (半減期：2.58 時間) と ^{24}Na (半減期：15 時間) が顕著となる。48 時間後には ^{56}Mn のほとんどが壊変し、 ^{24}Na が支配的となる。比較的半減期の長い核種として、 ^{46}Sc (半減期：83.8 日)、 ^{60}Co (半減期：5.27 年) および ^{134}Cs (半減期：2.06 年) が土壌から検出された。しかし、これらの半減期の長い核種の放射能は微量である。従って、衝撃塵由来の放射性降下物からの γ 線の外部被ばくを考える場合には、 ^{56}Mn と ^{24}Na の 2 つのみを取扱えばよい。広島土壌などの元素組成を放射化分析法によって推定した。その結果を表 3 に示す。土壌や屋根瓦など 50 試料が広島および長崎市内

のいろいろな場所（爆心から 2km 以内）から採取された。土壌 1g あたりの ^{23}Na 含有量は広島および長崎では大差ないが、 ^{56}Mn 含有量は、長崎の方が大きいことがわかった。

表 3 土壌や屋根瓦などの ^{23}Na と ^{56}Mn の含有量：試料 1g あたりの含有量(mg)

試料	Na	Mn
土壌（広島）	18.1	0.9
土壌（長崎）	22.0	2.7
屋根瓦	17.1	4.9
レンガ	26.8	3.7
コンクリート	7.7	1.0
アスファルト	41.9	1.2
木材	7.0	0.12
土壌（広島）*	14	0.53
土壌（長崎）*	8	1.3

* 米国 ORNL

木材については、燃焼によって含有量が変わらないと考えられるので、灰になっても放射能は同一と仮定する。建築材については、その種類によって両元素の組成が異なる。

米国の ORNL のデータを表 3 に併記した。土壌の Na や Mn などの含有量は試料の採取場所などに大きく変動している。米国のデータは 2 つの試料に関して測定されたものである。従って、米国のデータを直接、われわれのデータと比較することができないが、両者はデータの変動の範囲内でよく一致していると考えられる。原爆からの中性子フルエンスは、DS86 では、46 エネルギー・グループについて計算されている。放射化に関係する低エネルギー領域のフルエンスは、広島爆心から 5m の地点で、地上 1m の高さでは、 $1.125 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2$ である。中性子捕獲反応断面積は ^{23}Na について 530 ミリバーン、 ^{56}Mn について 13.3 バーンである。これらの数値を用いて、生成される放射能を近似的に計算すると、炸裂後で土壌 1 g 当り ^{24}Na が 37kBq および ^{56}Mn が 111kBq となる。DS86 では、ORNL の土壌データに基づいて広島で ^{24}Na が 74kBq および ^{56}Mn が 185kBq としている。しかし、この量が再評価された中性子フルエンスを用いたものか不明である。

衝撃塵のソースタームとして、地表面での中性子フルエンスが地上 1m の値の 2 倍と仮定して、広島では土壌 1g あたりの放射能に ^{24}Na : 74kBq、 ^{56}Mn : 222kBq という数値を用いることとした。また、衝撃塵は、爆心の周りのかなり離れた距離からも上空に立ち昇ったと考えられるが、ここでは、爆心のごく近傍だけとして、爆心から 5m の位置での中性子フルエンスによる計算値をそのまま適用することにした。

ハ．火災煙： 全焼区域は、広島の場合、爆心を中心に半径がほぼ 2km の円形の地域である。この区域内には、建ぺい率 30% の割合で木造家屋が建てられており、木材の灰が火災煙と共に上空に舞い上がったとする。燃焼したものは家屋だけでなく、屋内に紙や衣料品などいろいろなものがあり、それらが灰となって上空に舞い上がったと考えられる。しかし、木材以外の物質については、推定が困難である。ここでは、火災煙が単純に木材の灰で構成されていたものとする。すべてが木材と仮定して、密度は 100 kg/m^2 とする。広島では、5 時間にわたって火災が続いたものとする。木材には表

3 に示す割合で Na と Mn が存在していたとすれば、爆心では、単位面積あたりの灰の放射能は、 ^{24}Na が 2.85GBq、 ^{56}Mn が 2.96GBq である。中性子フルエンスは爆心からの距離と共に減少するが、爆心から 1km では、爆心の値の約 500 分の 1 になる。2km では 500,000 分の 1 になる。ここでは、爆心の 100 分の 1 (爆心から焼く 800m の位置) のフルエンスに相当する地点での放射能を火災煙のソースタームとした。すなわち、炸裂直後に 1m^2 あたり ^{24}Na 、 ^{56}Mn とともに 29.6MBq (0.8 mCi) とした。

(b) 地上での放射能分布

気象シミュレーション計算では、雲から雨や塵の形で地上に落下する粒子の分布は、粒子の大きさに関係する。それぞれの初期雲の中に、大粒子 (平均 $200\mu\text{m}$ の直径)、中粒子 (平均 $30\mu\text{m}$ の直径) および小粒子 (10μ 以下の直径) の 3 種類の粒子がそれぞれ 10,000 個ずつ存在すると仮定した。地上に落下した粒子の放射能分布を求めるため、爆心地点を中心に広島市の地図上東西南北に 1km ずつに分割して、 $1\text{km} \times 1\text{km}$ を単位とするメッシュを考えた。それぞれの雲から各メッシュに落下した粒子の数の分布を 3 種の雲と 3 種類の粒径について、雨と塵の 2 種類について計 18 の場合について計算した。

イ．原爆雲

原爆雲に含まれる放射能がどのような粒径分布にあるのか確かなデータはないが、前述のネバダの核実験データは、3 種の粒径分類では各粒径がほぼ同一の割合で混在していることを示唆している。そこで、各粒径について、各メッシュに雨または塵として 1 個落下したとすれば、炸裂 12 時間後の地表放射能密度は、

$$15.6 \text{ EBq} \times (1/3) \times 1/10,000 (1/\text{個}) \times 1/10^6 (\text{km}^2/\text{m}^2) = 5.2 \times 10^8 (\text{Bq}/\text{m}^2) \text{ となる。}$$

ロ．衝撃塵

衝撃塵の粒度分布は、衝撃波で巻き上げられた土砂であり、その粒径分布は大粒子が 3,660 トン、中粒子が 75 トンおよび小粒子が 23 トンの合計 3,760 トンと推定された。メッシュあたり 10 個の粒子が降下したとすれば、放射能密度は表 4 のように計算される。

表 4 . 衝撃塵から降下した放射能密度の 1 例

粒子の種類	降下粒子数	重量	^{24}Na	^{56}Mn
大粒子	10/10,000 (/km ²)	$3.66 \times 10^3 \text{ kg}$	$27.0 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$	$81.4 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$
中粒子	10/10,000 (/km ²)	$7.5 \times 10 \text{ kg}$	$0.56 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$	$1.7 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$
小粒子	10/10,000 (/km ²)	$2.3 \times 10 \text{ kg}$	$0.17 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$	$0.51 \times 10^4 \text{ Bq}/\text{m}^2$

ハ．火災煙

火災実験や火災のデータから、広島市街地の火災では、総量で 1.55×10^5 トンの煙が立ち昇ったと推定される。粒径別では、大粒子が 3.21×10^3 トン (重量比 : 0.0207)、中粒子が 1.55×10^4 トン (重量比 : 0.100) および小粒子が 1.36×10^5 トン (重量比 : 0.875) と推定された。全焼区域を半径 2km の円内とすれば、その全面積は $1.256 \times 10^7 \text{m}^2$ と推定される。従って、その全放射能は、3 . 2.a.ハに述べた区域内の平均の放射能を用いて、 ^{24}Na および ^{56}Mn とともに 372TBq と算定される。これは木材の灰のみの放射能である。その他の物質の灰に関する情報がなく、また木材の灰がすべて火災煙になったという証拠もない。そこで、ここでは火災煙では全放射能として、木材の放射能を適用した。火災煙の比放射能の比放射能は、 $372\text{TBq}/1.55 \times 10^{10} \text{ g} = 2.40 \times 10^4 \text{Bq} / \text{g}$ とした。火災煙から地上の

メッシュに降下した粒子数が、それぞれ 100 であったとき、その放射能密度は表 5 のように計算される。

表 5 火災煙から降下した放射能密度の一例

粒子の種類	降下粒子数	比率	^{24}Na	^{56}Mn
大粒子	10/10,000 (/km ²)	0.0207	7.7×10^4 Bq/m ²	7.7×10^4 Bq/m ²
中粒子	10/10,000 (/km ²)	0.100	38.9×10^4 Bq/m ²	38.9×10^4 Bq/m ²
小粒子	10/10,000 (/km ²)	0.875	325×10^4 Bq/m ²	325×10^4 Bq/m ²

(c). 外部被ばく線量

気象シミュレーション計算では、1945 年 8 月 6 日午前 9 時から午後 3 時までに降った雨や塵が、降雨によって地上に流出することなく、それぞれのメッシュ内に一様に分布したものと仮定している。表 3,4 および 5 のような放射能密度で分布している放射性物質から人体が受けた γ 線量を推定する。人体の受けた線量は、地表から 1m の高さにおける照射線量率で評価する。

イ. 原爆雲

米国のローレンス・リバモア国立研究所では、1 メガトンの核兵器によるフォールアウトからの γ 線量を計算している。地上に堆積した原爆からの 152 種類の核分裂生成核種と 25 種の中性子放射化核種について炸裂後のいろいろな時間における単位地表面放射能密度 ($\mu\text{Ci}/\text{m}^2$) あたりの照射線量率が計算されている。核分裂生成物は 152 種の半減期のことなる核種から構成されているため、炸裂後の時間 (t) による放射性壊変の補正は $t^{-1.2}$ によって行われている。

本線量推定では、ローレンス・リバモア研究所⁵⁾の報告している炸裂後 24 時間における数値、 $126 (\mu\text{Ci}/\text{m}^2) / (\text{mR}/\text{h})$ を換算係数として採用し、原爆雲から落下物による線量を計算した。

ロ. 衝撃塵および火災煙

炸裂後 12 時間における ^{24}Na からの線量換算係数として、 $19.16 (\mu\text{Ci}/\text{m}^2) / (\text{mR}/\text{h})$ 、 ^{56}Mn からの換算係数として $40.5 (\mu\text{Ci}/\text{m}^2) / (\text{mR}/\text{h})$ を用いた。

4. 結果と考察

原爆雲からの粒子は、雨となって一部が爆心から北西方向に落下した。塵としては、大粒子の一部が北西方向に落下したが、中小粒子は計算範囲内には落下しなかった。図 3 a は原爆雲から落下した放射性降下物の炸裂 12 時間後の広島における放射能密度分布を示す。単位のない数字は、放射能密度 (mCi/m^2) を表す。上記の換算係数を用いて算定した地上 1m における照射線量を照射線量の単位 mR で示す。

衝撃塵は雨となって北方向に落下したが、塵としては北西方向に広がっている。図 3 b および 3 c はそれぞれの衝撃塵から塵および雨となって落下した放射能密度 ($\mu\text{Ci}/\text{m}^2$) を示す。

火災煙は、黒い雨となって北方向を中心に扇形の広い区域に落下したが、塵としては北東方向に降下している。図 3 d および 3 e は火災煙から塵および雨となって落下した放射能密度分布を示す。

原爆雲から落下した放射能密度の最大は、約 $1,600\text{mCi}/\text{m}^2$ であり、照射線量率に換算して $12.7\text{R}/\text{h}$ である。衝撃塵では、最大が ^{24}Na で約 $450\mu\text{Ci}/\text{m}^2$ であり、照射線量率で $23\text{mR}/\text{h}$ である。火災煙では、最大が約 $150\mu\text{Ci}/\text{m}^2$ で線量率に換算して、 $8\text{mR}/\text{h}$ である。これらの最大値は、いずれも異なるメッシュであるが、広島市内における炸裂 12 時間後の被ばく線量率は約 $13\text{R}/\text{h}$ であると推定され

る。これらの数値については今後、さらに解析する必要があると考えている。

図3 . 広島に投下された原子爆弾により 8 月 6 日午前 9 時から同日 15 時までに地上に降下した放射性物質からの投下 12 時間後における被ばく線量率 (mR/h) . 照射線量 1 mR は、8.7 μ Gy として空気カーマに換算できる .

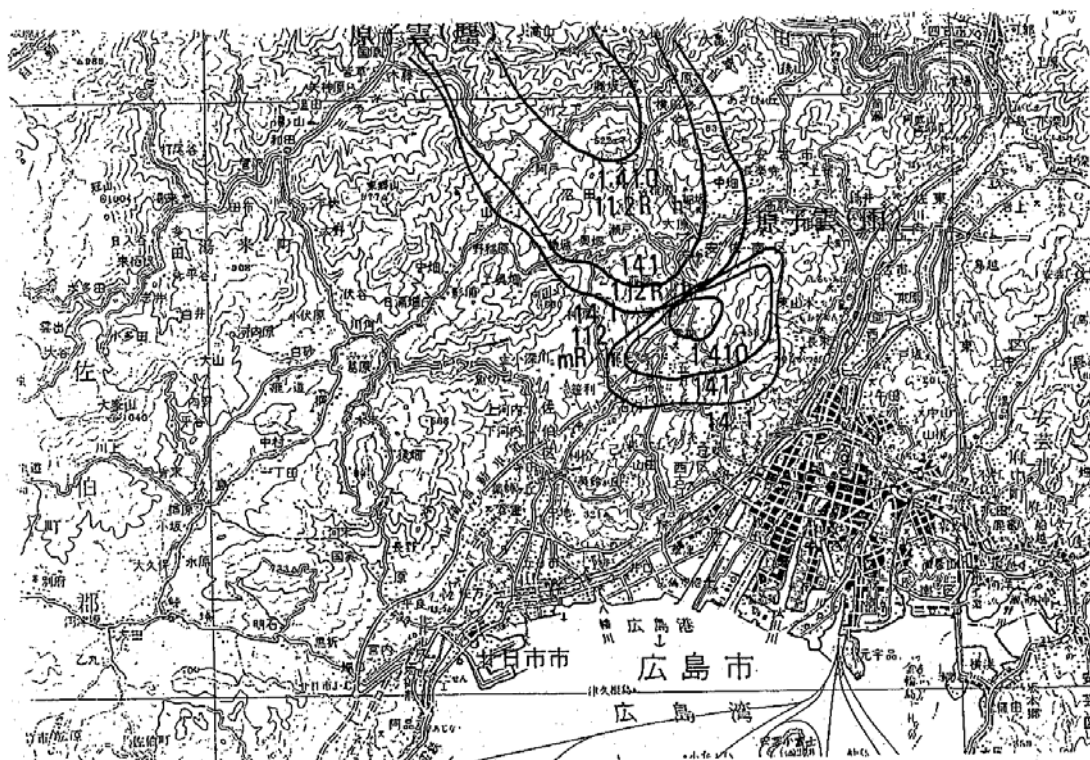


図3 a 原爆雲から塵および雨としての落下した放射性物質 .

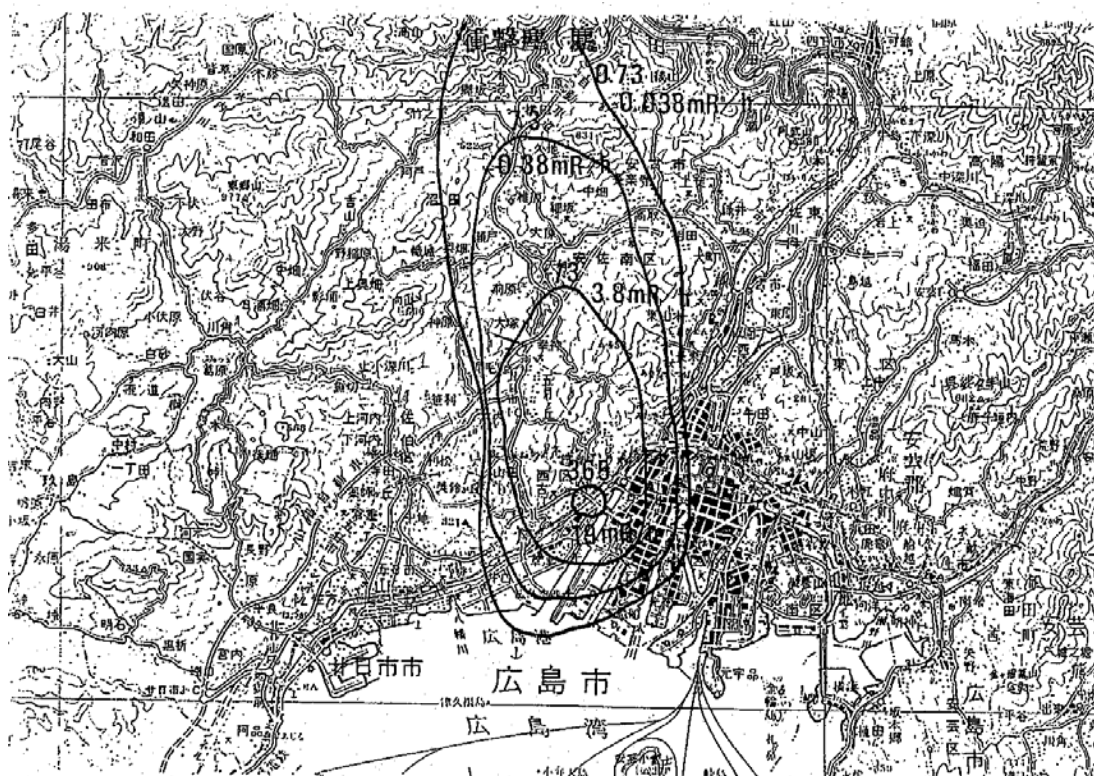


図3 b 衝撃塵から塵として落下した放射性物質 .

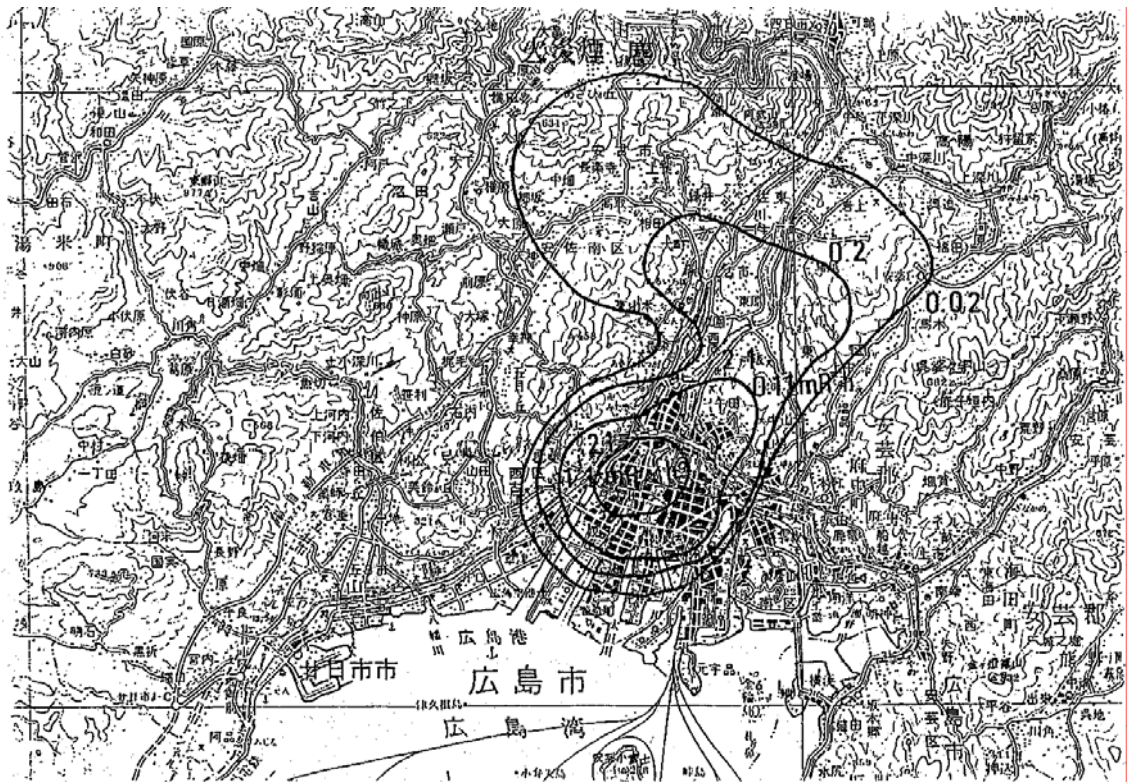


図 3 c . 衝撃塵から雨として落下した放射性物質 .

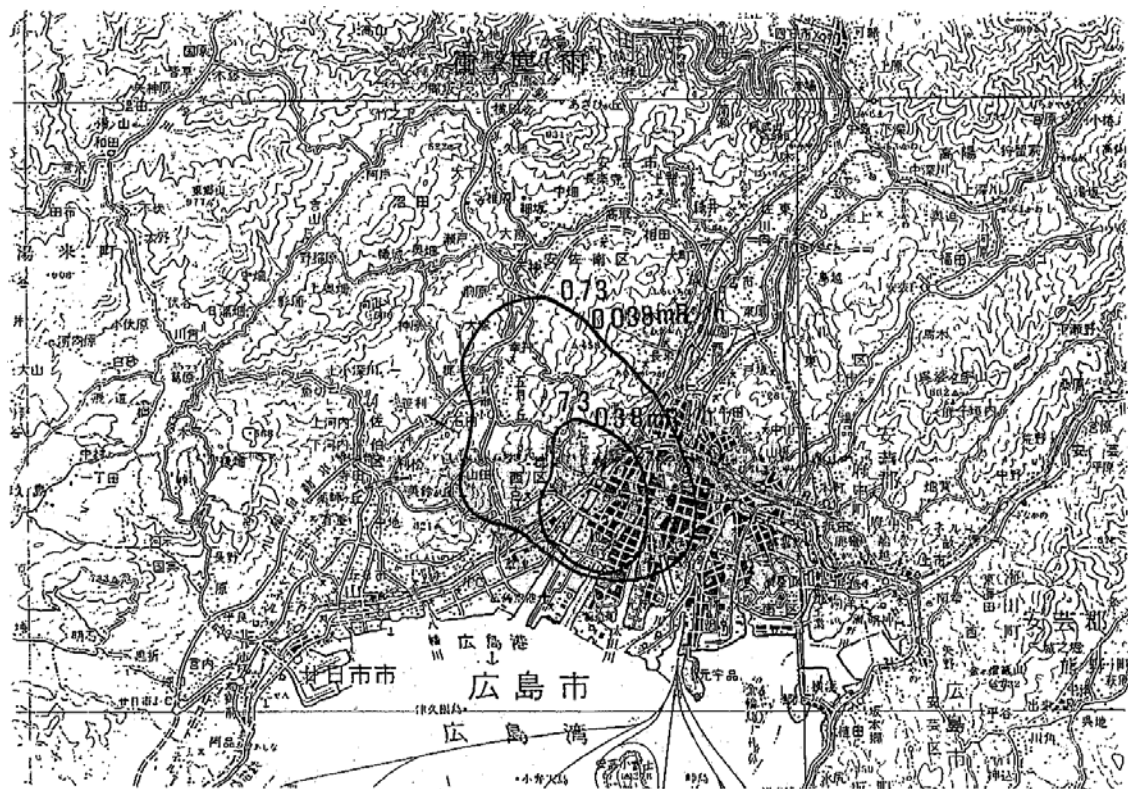


図 3 d . 火災煙から塵として落下した放射性物質 .

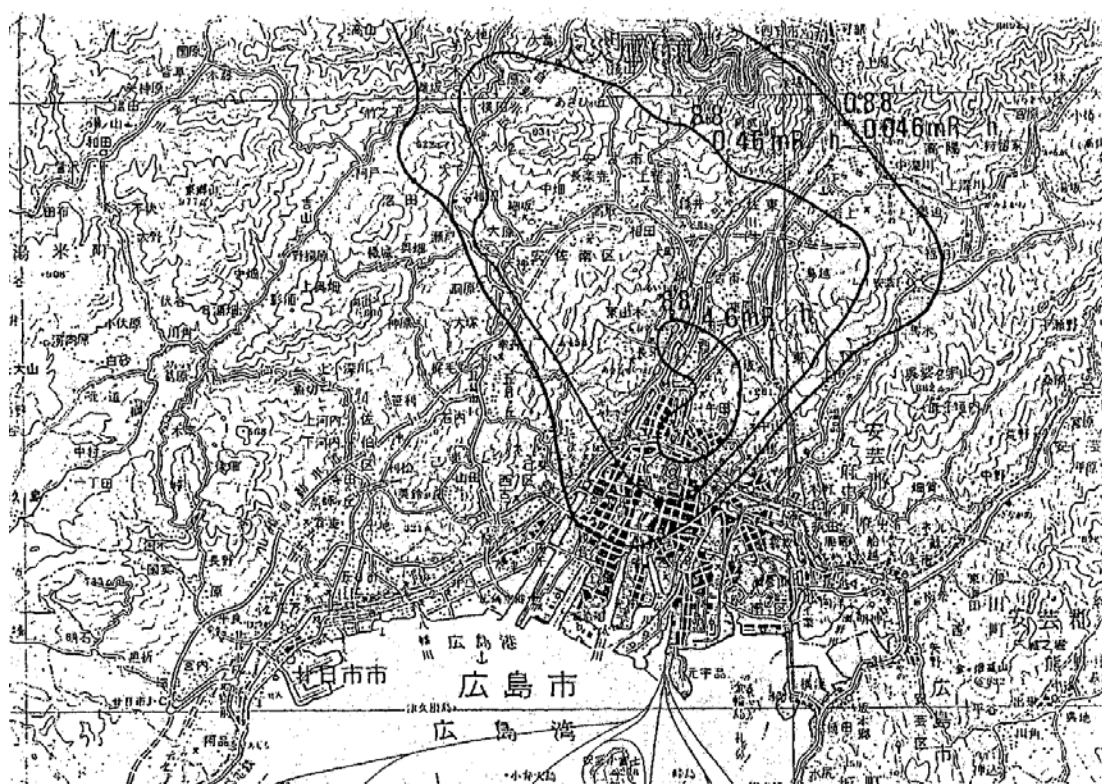


図 3 e . 火災煙から雨として落下した放射性物質 .

稿を終わるにあたり、広島および長崎の市民、放射線影響研究所の関係者各位のご協力に感謝するとともに、報告書整理にご協力をいただいた放射線医学総合研究所重粒子医科学センター医学物理部の西沢研究室長ならびに研究室の各位に深甚の謝意を表します。

参考文献

- 1) 吉川 友章：保健物理学会誌、22、104 - 110、1987 .
- 2) 黒い雨に関する専門家会議編、黒い雨に関する専門家会議報告書 資料編、1991 年 5 月 .
- 3) Glasstone S. and Dolan P. : The Effects of Nuclear Weapons, 3rd Edn., US. DPO. 1977.
- 4) Hicks H.G. : Health Physics、585-600 42 (5) 1982 .
- 5) Hicks H.G. : UCRL 53569. Lawrence Livermore NL. 1984 .

Appendix. Free-in-air kerma and neutron activation at 1 m above the ground based on DS02.

from Tables 11, 12, 13, 14 Chapter 3, Radiation Transport Calculations for Hiroshima and Nagasaki by Santoro, RT, Egbert, SD, Barnes, JM, Kerr, GD, Pace III, JV, Roberts, JA, Slater. In Report of the Joint US-Japan Dosimetry Working Group, Reassessment of the Atomic-Bomb Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki – DS02. Robert W. Young and George D. Kerr editors, Radiation Effects Research Foundation, Hiroshima, Japan, 2005.

Table A-1. DS02 Hiroshima doses for 600 m height of burst above standard ground at 16 kT yield.

Ground Range meter	Slant Range meter	Neutron Dose			Secondary Gamma Dose			Primary Gamma Dose			Total Gamma Dose		
		Prompt	Delayed	Total	Prompt	Delayed	Total	Prompt	Delayed	Total	Prompt	Delayed	Total
		gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray
0	599	3.16E+1	2.96E+0	3.45E+1	4.45E+1	1.51E+0	4.61E+1	6.18E-1	7.38E+1	7.44E+1	4.52E+1	7.53E+1	1.20E+2
100	607	2.93E+1	2.73E+0	3.20E+1	4.18E+1	1.42E+0	4.32E+1	7.22E-1	7.10E+1	7.17E+1	4.25E+1	7.24E+1	1.15E+2
200	632	2.29E+1	2.16E+0	2.51E+1	3.42E+1	1.18E+0	3.53E+1	6.86E-1	5.96E+1	6.02E+1	3.48E+1	6.07E+1	9.56E+1
300	670	1.60E+1	1.48E+0	1.75E+1	2.54E+1	8.84E-1	2.63E+1	5.90E-1	4.61E+1	4.67E+1	2.60E+1	4.70E+1	7.30E+1
400	720	1.02E+1	9.19E-1	1.11E+1	1.76E+1	6.13E-1	1.82E+1	5.02E-1	3.39E+1	3.44E+1	1.81E+1	3.46E+1	5.27E+1
500	780	5.98E+0	5.09E-1	6.48E+0	1.17E+1	4.00E-1	1.21E+1	3.91E-1	2.32E+1	2.36E+1	1.21E+1	2.36E+1	3.57E+1
600	848	3.33E+0	2.76E-1	3.61E+0	7.55E+0	2.53E-1	7.81E+0	2.90E-1	1.55E+1	1.58E+1	7.84E+0	1.58E+1	2.36E+1
700	921	1.80E+0	1.49E-1	1.95E+0	4.92E+0	1.60E-1	5.08E+0	2.07E-1	1.02E+1	1.04E+1	5.12E+0	1.04E+1	1.55E+1
800	999	9.24E-1	7.20E-2	9.96E-1	3.18E+0	9.95E-2	3.28E+0	1.50E-1	6.58E+0	6.73E+0	3.33E+0	6.68E+0	1.00E+1
900	1081	4.80E-1	3.62E-2	5.17E-1	2.08E+0	6.29E-2	2.15E+0	9.98E-2	4.22E+0	4.32E+0	2.18E+0	4.28E+0	6.47E+0
1000	1166	2.42E-1	1.77E-2	2.60E-1	1.38E+0	4.08E-2	1.42E+0	7.09E-2	2.73E+0	2.80E+0	1.45E+0	2.77E+0	4.22E+0
1100	1253	1.20E-1	8.29E-3	1.29E-1	9.21E-1	2.66E-2	9.48E-1	4.98E-2	1.75E+0	1.80E+0	9.71E-1	1.78E+0	2.75E+0
1200	1341	6.25E-2	3.99E-3	6.65E-2	6.26E-1	1.77E-2	6.44E-1	3.59E-2	1.13E+0	1.16E+0	6.62E-1	1.15E+0	1.81E+0
1300	1431	3.18E-2	1.92E-3	3.37E-2	4.27E-1	1.20E-2	4.39E-1	2.57E-2	7.21E-1	7.47E-1	4.53E-1	7.33E-1	1.19E+0
1400	1523	1.62E-2	9.05E-4	1.71E-2	2.92E-1	8.15E-3	3.01E-1	1.73E-2	4.71E-1	4.88E-1	3.10E-1	4.79E-1	7.89E-1
1500	1615	8.60E-3	4.41E-4	9.04E-3	2.03E-1	5.65E-3	2.08E-1	1.25E-2	3.06E-1	3.18E-1	2.15E-1	3.12E-1	5.27E-1
1600	1708	4.51E-3	2.11E-4	4.72E-3	1.40E-1	3.92E-3	1.44E-1	8.72E-3	2.00E-1	2.09E-1	1.49E-1	2.04E-1	3.53E-1
1700	1802	2.39E-3	1.02E-4	2.49E-3	9.80E-2	2.73E-3	1.01E-1	6.08E-3	1.31E-1	1.37E-1	1.04E-1	1.33E-1	2.37E-1
1800	1897	1.28E-3	5.06E-5	1.33E-3	6.88E-2	1.92E-3	7.07E-2	4.24E-3	8.99E-2	9.41E-2	7.30E-2	9.18E-2	1.65E-1
1900	1992	6.86E-4	2.47E-5	7.11E-4	4.85E-2	1.36E-3	4.99E-2	3.02E-3	5.75E-2	6.05E-2	5.16E-2	5.88E-2	1.10E-1
2000	2088	3.73E-4	1.24E-5	3.86E-4	3.45E-2	9.68E-4	3.54E-2	2.32E-3	3.87E-2	4.10E-2	3.68E-2	3.96E-2	7.64E-2
2100	2184	2.05E-4	6.28E-6	2.11E-4	2.46E-2	6.93E-4	2.53E-2	1.68E-3	2.54E-2	2.71E-2	2.63E-2	2.61E-2	5.24E-2
2200	2280	1.13E-4	3.19E-6	1.16E-4	1.76E-2	4.98E-4	1.81E-2	1.20E-3	1.66E-2	1.78E-2	1.88E-2	1.71E-2	3.59E-2
2300	2377	6.25E-5	1.64E-6	6.41E-5	1.26E-2	3.58E-4	1.30E-2	8.53E-4	1.15E-2	1.24E-2	1.35E-2	1.19E-2	2.53E-2
2400	2474	3.48E-5	8.46E-7	3.56E-5	9.05E-3	2.59E-4	9.31E-3	6.09E-4	7.94E-3	8.55E-3	9.66E-3	8.20E-3	1.79E-2
2500	2571	1.94E-5	4.38E-7	1.99E-5	6.53E-3	1.88E-4	6.72E-3	4.37E-4	5.38E-3	5.82E-3	6.97E-3	5.57E-3	1.25E-2

Table A-2. DS02 Hiroshima activation data for 600 m height of burst above standard ground at 16 kT yield.

		Reaction	Ca40(n,g)	Cl35(n,g)	Co59(n,g)	Cu63(n,p)	Eu151->grd	Eu153(n,g)	Ni62(n,g)	S32(n,p)	K39(n,a)
		Abundance	0.96941	0.7577	1	0.6917	0.4782	0.5218	0.03634	0.9502	0.93258
		MW	40.08	35.453	58.9332	63.54	151.96	151.96	58.71	32.064	39.102
		Half-Life	80000	301000	5.2714	100.1	13.542	8.593	100.1	14.262	301000
		Time units	years	years	years	years	years	years	years	days	years
		Branching ratio					0.641				
Ground Range	Slant Range	Detector height @ 6.5m									
meter	meter	Units in atoms (unless otherwise indicated)	Ca41/grCa	Cl36/Cl	bq/mgr Co	Ni63/grCu	bq/mgr Eu	bq/mgr Eu	Ni63/grNi	dpm/gr S	Cl36/K
0	599		4.88E+10	2.54E-10	1.47E+1	1.14E+7	1.31E+2	2.01E+1	4.14E+10	2.38E+3	1.86E-15
100	607		4.45E+10	2.31E-10	1.34E+1	1.14E+7	1.19E+2	1.83E+1	3.78E+10	2.42E+3	1.92E-15
200	632		3.43E+10	1.78E-10	1.03E+1	9.49E+6	9.17E+1	1.40E+1	2.91E+10	2.04E+3	1.94E-15
300	670		2.28E+10	1.19E-10	6.84E+0	7.12E+6	6.10E+1	9.32E+0	1.93E+10	1.56E+3	1.97E-15
400	720		1.34E+10	6.98E-11	4.02E+0	5.27E+6	3.59E+1	5.47E+0	1.14E+10	1.19E+3	1.75E-15
500	780		7.19E+09	3.74E-11	2.16E+0	3.58E+6	1.92E+1	2.93E+0	6.10E+09	8.23E+2	1.29E-15
600	848		3.62E+09	1.88E-11	1.09E+0	2.28E+6	9.64E+0	1.47E+0	3.06E+09	5.44E+2	1.07E-15
700	921		1.74E+09	9.05E-12	5.25E-1	1.44E+6	4.64E+0	7.10E-1	1.48E+09	3.46E+2	7.79E-16
800	999		8.17E+08	4.24E-12	2.46E-1	8.43E+5	2.17E+0	3.33E-1	6.92E+08	2.07E+2	5.22E-16
900	1081		3.78E+08	1.96E-12	1.14E-1	5.05E+5	1.01E+0	1.55E-1	3.20E+08	1.28E+2	3.68E-16
1000	1166		1.74E+08	9.02E-13	5.26E-2	2.82E+5	4.62E-1	7.11E-2	1.47E+08	7.23E+1	2.34E-16
1100	1253		8.00E+07	4.15E-13	2.43E-2	1.57E+5	2.13E-1	3.28E-2	6.78E+07	4.13E+1	1.35E-16
1200	1341		3.73E+07	1.93E-13	1.13E-2	9.10E+4	9.91E-2	1.53E-2	3.15E+07	2.42E+1	7.96E-17
1300	1431		1.74E+07	9.03E-14	5.29E-3	5.09E+4	4.63E-2	7.16E-3	1.47E+07	1.36E+1	4.64E-17
1400	1523		8.21E+06	4.25E-14	2.49E-3	2.79E+4	2.18E-2	3.37E-3	6.95E+06	7.75E+0	2.73E-17
1500	1615		3.96E+06	2.05E-14	1.20E-3	1.61E+4	1.05E-2	1.62E-3	3.35E+06	4.50E+0	1.55E-17
1600	1708		1.93E+06	9.98E-15	5.86E-4	9.12E+3	5.11E-3	7.90E-4	1.63E+06	2.57E+0	8.91E-18
1700	1802		9.49E+05	4.91E-15	2.89E-4	5.12E+3	2.51E-3	3.88E-4	8.02E+05	1.46E+0	5.22E-18
1800	1897		4.73E+05	2.45E-15	1.44E-4	2.87E+3	1.25E-3	1.94E-4	4.00E+05	8.32E-1	2.99E-18
1900	1992		2.39E+05	1.24E-15	7.27E-5	1.63E+3	6.32E-4	9.78E-5	2.02E+05	4.78E-1	1.74E-18
2000	2088		1.22E+05	6.31E-16	3.71E-5	9.41E+2	3.23E-4	4.99E-5	1.03E+05	2.77E-1	9.88E-19
2100	2184		6.31E+04	3.27E-16	1.92E-5	5.36E+2	1.67E-4	2.58E-5	5.33E+04	1.60E-1	5.74E-19
2200	2280		3.30E+04	1.71E-16	1.01E-5	3.06E+2	8.74E-5	1.35E-5	2.79E+04	9.22E-2	3.33E-19
2300	2377		1.75E+04	9.06E-17	5.33E-6	1.75E+2	4.63E-5	7.16E-6	1.48E+04	5.30E-2	1.94E-19
2400	2474		9.38E+03	4.85E-17	2.85E-6	1.00E+2	2.48E-5	3.83E-6	7.92E+03	3.05E-2	1.12E-19
2500	2571		5.06E+03	2.61E-17	1.54E-6	5.77E+1	1.34E-5	2.06E-6	4.27E+03	1.77E-2	6.48E-20

Table A-3. DS02 Ngasaki doses for 503 m height of burst above standard ground at 21 kT yield.

Ground Range	Slant Range	Neutron Dose			Secondary Gamma Dose			Primary Gamma Dose			Total Gamma Dose		
		Prompt	Delayed	Total	Prompt	Delayed	Total	Prompt	Delayed	Total	Prompt	Delayed	Total
		gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray	gray
0	502	1.08E+1	7.97E+0	1.88E+1	7.17E+1	3.35E+0	7.50E+1	6.12E+1	1.92E+2	2.53E+2	1.33E+2	1.96E+2	3.28E+2
100	512	1.00E+1	7.18E+0	1.72E+1	6.88E+1	3.10E+0	7.19E+1	5.93E+1	1.81E+2	2.40E+2	1.28E+2	1.84E+2	3.12E+2
200	540	7.49E+0	5.38E+0	1.29E+1	5.34E+1	2.47E+0	5.58E+1	4.44E+1	1.48E+2	1.92E+2	9.78E+1	1.50E+2	2.48E+2
300	585	5.21E+0	3.45E+0	8.67E+0	3.97E+1	1.75E+0	4.14E+1	3.33E+1	1.10E+2	1.43E+2	7.30E+1	1.12E+2	1.85E+2
400	642	3.29E+0	1.97E+0	5.26E+0	2.80E+1	1.12E+0	2.91E+1	2.27E+1	7.55E+1	9.82E+1	5.06E+1	7.66E+1	1.27E+2
500	709	1.94E+0	1.03E+0	2.97E+0	1.85E+1	6.78E-1	1.92E+1	1.47E+1	4.92E+1	6.39E+1	3.31E+1	4.99E+1	8.30E+1
600	782	1.13E+0	5.22E-1	1.65E+0	1.21E+1	3.99E-1	1.25E+1	9.45E+0	3.12E+1	4.07E+1	2.16E+1	3.16E+1	5.32E+1
700	861	6.06E-1	2.49E-1	8.56E-1	8.21E+0	2.31E-1	8.44E+0	5.80E+0	1.93E+1	2.51E+1	1.40E+1	1.95E+1	3.35E+1
800	944	3.38E-1	1.20E-1	4.58E-1	5.58E+0	1.37E-1	5.72E+0	3.77E+0	1.20E+1	1.58E+1	9.36E+0	1.21E+1	2.15E+1
900	1031	1.81E-1	5.67E-2	2.37E-1	3.67E+0	8.23E-2	3.75E+0	2.30E+0	7.44E+0	9.74E+0	5.97E+0	7.52E+0	1.35E+1
1000	1119	9.82E-2	2.64E-2	1.25E-1	2.48E+0	5.06E-2	2.53E+0	1.52E+0	4.56E+0	6.08E+0	4.00E+0	4.61E+0	8.62E+0
1100	1209	5.20E-2	1.24E-2	6.45E-2	1.62E+0	3.23E-2	1.65E+0	9.35E-1	2.84E+0	3.78E+0	2.56E+0	2.87E+0	5.43E+0
1200	1301	2.83E-2	5.88E-3	3.41E-2	1.10E+0	2.10E-2	1.13E+0	6.07E-1	1.76E+0	2.37E+0	1.71E+0	1.78E+0	3.49E+0
1300	1394	1.53E-2	2.77E-3	1.81E-2	7.61E-1	1.39E-2	7.75E-1	4.03E-1	1.11E+0	1.51E+0	1.16E+0	1.12E+0	2.28E+0
1400	1487	8.26E-3	1.32E-3	9.58E-3	5.19E-1	9.37E-3	5.28E-1	2.61E-1	7.05E-1	9.66E-1	7.80E-1	7.15E-1	1.49E+0
1500	1582	4.47E-3	6.39E-4	5.11E-3	3.60E-1	6.41E-3	3.66E-1	1.71E-1	4.46E-1	6.17E-1	5.30E-1	4.53E-1	9.83E-1
1600	1677	2.44E-3	3.11E-4	2.75E-3	2.54E-1	4.43E-3	2.58E-1	1.14E-1	2.89E-1	4.04E-1	3.68E-1	2.94E-1	6.62E-1
1700	1773	1.34E-3	1.51E-4	1.49E-3	1.80E-1	3.07E-3	1.83E-1	7.75E-2	1.83E-1	2.60E-1	2.57E-1	1.86E-1	4.43E-1
1800	1869	7.38E-4	7.47E-5	8.13E-4	1.27E-1	2.15E-3	1.29E-1	5.21E-2	1.18E-1	1.70E-1	1.79E-1	1.20E-1	2.99E-1
1900	1965	4.05E-4	3.72E-5	4.43E-4	8.86E-2	1.52E-3	9.02E-2	3.50E-2	7.92E-2	1.14E-1	1.24E-1	8.07E-2	2.04E-1
2000	2062	2.25E-4	1.89E-5	2.44E-4	6.21E-2	1.08E-3	6.32E-2	2.37E-2	5.15E-2	7.52E-2	8.58E-2	5.26E-2	1.38E-1
2100	2159	1.25E-4	9.69E-6	1.35E-4	4.39E-2	7.68E-4	4.46E-2	1.62E-2	3.39E-2	5.01E-2	6.01E-2	3.47E-2	9.47E-2
2200	2257	7.05E-5	4.97E-6	7.55E-5	3.15E-2	5.51E-4	3.20E-2	1.13E-2	2.19E-2	3.32E-2	4.28E-2	2.25E-2	6.52E-2
2300	2354	3.98E-5	2.60E-6	4.24E-5	2.29E-2	3.96E-4	2.32E-2	7.96E-3	1.53E-2	2.33E-2	3.08E-2	1.57E-2	4.65E-2
2400	2452	2.24E-5	1.36E-6	2.38E-5	1.66E-2	2.87E-4	1.69E-2	5.60E-3	1.02E-2	1.58E-2	2.22E-2	1.04E-2	3.27E-2
2500	2550	1.28E-5	7.13E-7	1.35E-5	1.21E-2	2.08E-4	1.23E-2	3.93E-3	6.58E-3	1.05E-2	1.60E-2	6.79E-3	2.28E-2

Table A-4. DS02 Nagasaki activation data for 503 m height of burst above standard ground at 21 kT yield.

Ground Range	Slant Range	Reaction	Ca40(n,g)	Cl35(n,g)	Co59(n,g)	Cu63(n,p)	Eu151->grd	Eu153(n,g)	Ni62(n,g)	S32(n,p)	K39(n,a)
		Abundance	0.96941	0.7577	1.00E+0	6.92E-1	4.78E-1	5.22E-1	0.03634	9.50E-1	0.93258
		MW	40.08	35.453	5.89E+1	6.35E+1	1.52E+2	1.52E+2	58.71	3.21E+1	39.102
		Half-Life	80000	301000	5.27E+0	1.00E+2	1.35E+1	8.59E+0	100.1	1.43E+1	301000
		Time units	years	years	years	years	years	years	years	days	years
		Branching ratio					6.41E-1				
		Detector height								@ 6.5m	
Ground Range	Slant Range	Units in atoms (unless otherwise indicated)	Ca41/grCa	Cl36/Cl	bq/mgr Co	Ni63/grCu	bq/mgr Eu	bq/mgr Eu	Ni63/grNi	dpm/gr S	Cl36/K
0	502		2.08E+10	1.09E-10	5.67E+0	2.51E+7	5.51E+1	6.75E+0	1.77E+10	6.93E+3	6.30E-15
100	512		1.75E+10	9.13E-11	4.80E+0	2.39E+7	4.63E+1	5.74E+0	1.49E+10	6.61E+3	6.10E-15
200	540		1.12E+10	5.85E-11	3.13E+0	1.73E+7	2.97E+1	3.82E+0	9.55E+09	4.73E+3	4.35E-15
300	585		6.04E+09	3.14E-11	1.73E+0	1.23E+7	1.60E+1	2.17E+0	5.13E+09	3.39E+3	3.15E-15
400	642		2.99E+09	1.55E-11	8.77E-1	7.83E+6	7.97E+0	1.14E+0	2.53E+09	2.14E+3	2.04E-15
500	709		1.47E+09	7.63E-12	4.40E-1	4.64E+6	3.94E+0	5.83E-1	1.25E+09	1.29E+3	1.21E-15
600	782		7.40E+08	3.84E-12	2.23E-1	2.74E+6	1.98E+0	3.00E-1	6.26E+08	7.69E+2	7.34E-16
700	861		3.67E+08	1.90E-12	1.11E-1	1.47E+6	9.84E-1	1.50E-1	3.10E+08	4.19E+2	3.99E-16
800	944		1.85E+08	9.61E-13	5.62E-2	8.48E+5	4.97E-1	7.60E-2	1.57E+08	2.40E+2	2.36E-16
900	1031		9.21E+07	4.77E-13	2.79E-2	4.49E+5	2.47E-1	3.77E-2	7.79E+07	1.31E+2	1.26E-16
1000	1119		4.57E+07	2.37E-13	1.39E-2	2.56E+5	1.22E-1	1.87E-2	3.87E+07	7.36E+1	7.38E-17
1100	1209		2.29E+07	1.19E-13	6.95E-3	1.35E+5	6.12E-2	9.36E-3	1.94E+07	3.96E+1	3.95E-17
1200	1301		1.15E+07	5.95E-14	3.49E-3	7.58E+4	3.07E-2	4.69E-3	9.72E+06	2.24E+1	2.25E-17
1300	1394		5.80E+06	3.00E-14	1.76E-3	4.24E+4	1.54E-2	2.36E-3	4.90E+06	1.26E+1	1.28E-17
1400	1487		2.95E+06	1.53E-14	8.97E-4	2.33E+4	7.85E-3	1.20E-3	2.49E+06	6.93E+0	7.16E-18
1500	1582		1.51E+06	7.84E-15	4.60E-4	1.29E+4	4.03E-3	6.18E-4	1.28E+06	3.87E+0	4.01E-18
1600	1677		7.84E+05	4.05E-15	2.38E-4	7.23E+3	2.08E-3	3.19E-4	6.62E+05	2.20E+0	2.29E-18
1700	1773		4.09E+05	2.11E-15	1.24E-4	4.07E+3	1.08E-3	1.66E-4	3.45E+05	1.24E+0	1.31E-18
1800	1869		2.15E+05	1.11E-15	6.54E-5	2.29E+3	5.70E-4	8.76E-5	1.82E+05	7.03E-1	7.44E-19
1900	1965		1.14E+05	5.91E-16	3.47E-5	1.28E+3	3.03E-4	4.65E-5	9.66E+04	3.96E-1	4.19E-19
2000	2062		6.11E+04	3.16E-16	1.86E-5	7.21E+2	1.62E-4	2.49E-5	5.17E+04	2.25E-1	2.38E-19
2100	2159		3.29E+04	1.70E-16	1.00E-5	4.09E+2	8.72E-5	1.34E-5	2.78E+04	1.29E-1	1.36E-19
2200	2257		1.79E+04	9.27E-17	5.45E-6	2.34E+2	4.74E-5	7.28E-6	1.51E+04	7.42E-2	7.87E-20
2300	2354		9.80E+03	5.07E-17	2.98E-6	1.35E+2	2.59E-5	3.98E-6	8.28E+03	4.29E-2	4.56E-20
2400	2452		5.39E+03	2.79E-17	1.64E-6	7.69E+1	1.42E-5	2.19E-6	4.55E+03	2.48E-2	2.63E-20
2500	2550		2.98E+03	1.54E-17	9.06E-7	4.45E+1	7.87E-6	1.21E-6	2.52E+03	1.43E-2	1.53E-20

広島・長崎原爆放射線量新評価システム DS02 に関する専門研究会

場所：京都大学原子炉実験所事務棟会議室

◇ 7月29日(木) 13:30 ~ 17:30

(座長：柴田誠一)

➤ 13:30 - 14:00 DS02 の経過と Summary

葉佐井博巳(広島国際学院大)

< 中性子放射化測定報告 >

➤ 14:00 - 14:20 広島大での ^{152}Eu 、 ^{60}Co 測定

静間 清(広島大)

➤ 14:20 - 14:40 金沢大での ^{152}Eu 測定(1)

中西 孝(金沢大)

➤ 14:40 - 15:00 金沢大での ^{152}Eu 測定(2)

小村和久(金沢大)

< 休憩 15:00 - 15:20 >

(座長：柴田徳思)

➤ 15:20 - 15:40 AMS による ^{36}Cl 測定

長島泰夫(筑波大)

➤ 15:40 - 16:00 液シンによる ^{63}Ni 測定

柴田誠一(京都大)

➤ 16:00 - 16:20 広島サンプル Intercomparison 報告

星 正治(広島大)

< 休憩 16:20 - 16:40 >

< TL 測定報告：座長 星正治 >

➤ 16:40 - 17:00 TL 測定のまとめ

丸山隆司(放医研)

➤ 17:00 - 17:20 TL データと DS02 との比較

Cullings H(放影研)

< 懇親会 18:30 日根野ステーションホテル >

◇ 2日目午前 30日(金) 9:00 ~ 12:00

< DS02 関連測定：座長 静間清 >

➤ 9:00 - 9:20 爆心地点の再検討

Cullings H(放影研)

➤ 9:20 - 9:40 広島中性子バック測定

遠藤 暁(広島大)

➤ 9:40 - 10:00 $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$ 励起関数測定

高宮幸一(京都大)

➤ 10:00 - 10:20 花崗岩中水分測定

岩谷和夫(広島県立保健福祉大)

➤ 10:20 - 10:40 花崗岩中水素測定

小松原哲郎(筑波大)

< 休憩 10:40 - 11:00 >

< DS02 計算関連：座長 岩谷和夫 >

➤ 11:00 - 11:20 DS02 計算の概要と日本側計算

今中哲二(京都大)

➤ 11:20 - 11:40 DS02 計算結果と測定データの総合比較

遠藤 暁(広島大)

➤ 11:40 - 12:00 DS02 の LSS への適用

藤田正一郎(放影研)

◇ 2日目午後 30日(金) 13:30 ~ 17:00

< 残留放射線：座長 藤田正一郎 >

➤ 13:30 - 13:50 DS02 に基づく誘導放射線量

今中哲二(京都大)

➤ 13:50 - 14:10 黒い雨にともなう積算空間線量

静間 清(広島大)

➤ 14:10 - 14:30 広島原爆黒い雨の中の $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比

藤川陽子(京都大)

➤ 14:30 - 14:50 長崎原爆による Pu フォールアウト

馬原保典(京都大)

➤ 14:50 - 15:10 広島・長崎黒い雨のシミュレーション計算

丸山隆司(放医研)

< 休憩 15:10 - 15:30 >

< 総合討論：座長 葉佐井博巳 >

➤ 15:30 - 15:50 未解決問題と今後の課題

星 正治(広島大)

➤ その他いろいろ

◇ 7月30日(金) 17時終了予定

DS02 Workshop at KUR

Date : 29th July(Thursday) – 30th July (Friday)

Place: Conference room at Research Reactor Institute, Kyoto University

✧ 29th July

- 13:30 - 14:00 Executive summary of DS02 development Hasai H.

<Neutron Activation Measurements >

- 14:00-14:20 ¹⁵²Eu, ⁶⁰Co measurement at Hiroshima University Shizuma K.
- 14:20-14:40 ¹⁵²Eu measurement at Kanazawa University (I) Nakanishi T.
- 14:40-15:00 ¹⁵²Eu measurement at Kanazawa University (II) Komura K.

<Break 15:00-15:20 >

- 15:20-15:40 ³⁶Cl measurement by AMS at Tsukuba University Nagashima Y.
- 15:40-16:00 ⁶³Ni measurement by liquid scintillation Shibata S.
- 16:00-16:20 ¹⁵²Eu- ³⁶Cl intercomparison of Hiroshima samples Hoshi H.

<Break 16:20-16:40 >

<TL Measurement >

- 16:40-17:00 TL measurements Maruyama T.
- 17:00-17:20 Comparison of TL measurement with DS02 Cullings H.

< Reception 18:30 >

✧ 30th July (Friday)

<DS02 related works >

- 9:00-9:20 Hypocenter determination Cullings H.
- 9:20-9:40 Measurement of natural neutrons in Hiroshima Endo S.
- 9:40-10:00 Measurement of ⁶³Cu(n,p) ⁶³Ni response function Takamiya K.
- 10:00-10:20 Measurement of water content in granite Iwatani K.
- 10:20-10:40 Measurement of hydrogen content in granite Komatsubara T.

<Break 10:40 -11:00 >

<DS02 calculation>

- 11:00-11:20 Outline of the calculation system for DS02 Imanaka T.
- 11:20-11:40 Comparison of DS02 calculation with measured data Endo S.
- 11:40-12:00 Application of DS02 to the LSS cohort Fujita S.

<Lunch 12:00 -13:30 >

<Residual radiation>

- 13:30-13:50 Induced radiation based on DS02 Imanaka T.
- 13:50-14:10 Radiation dose from black rain deposition Shizuma K.
- 14:10-14:30 ²³⁵U/²³⁸U ratio in black rain sample in Hiroshima Fujikawa Y.
- 14:30-14:50 Pu fallout by the Nagasaki bomb Mahara Y.
- 14:50-15:10 Simulation of black rain in Hiroshima and Nagasaki Maruyama T.

<Break 15:10-15:30 >

<Discussions>

- 15:30-15:50 Unresolved issues and future tasks Hoshi M.
- discussions

✧ 17:00 End

「広島・長崎原爆放射線量新評価システムDSO2に関する専門研究会」参加者

	氏名	所属
1	長島 泰夫	筑波大学基礎医学系核科学
2	小松原 哲郎	筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門
3	関 李紀	筑波大学研究基盤総合センター応用加速器部門
4	丸山 隆司	放射線医学総合研究所
5	中西 孝	金沢大学大学院自然科学研究科
6	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
7	岩谷 和夫	広島県立保健福祉大学
8	静岡 清	広島大学大学院工学研究科
9	星 正治	広島大学原爆放射線医科学研究所
10	遠藤 暁	広島大学原爆放射線医科学研究所
11	田中 憲一	広島大学原爆放射線医科学研究所
12	葉佐井 博巳	広島国際学院大学
13	Harry CULLINGS	放射線影響研究所
14	藤田 正一郎	放射線影響研究所
15	柴田 徳思	高エネルギー加速器研究機構
16	佐藤 斉	茨城県立医療大学
17	飯本 武志	東京大学原子力研究総合センター
18	沢田 昭二	名古屋大学名誉教授
19	佐々木 正夫	京都大学名誉教授
20	斎藤 直	大阪大学ラジオアイソトープ総合センター
21	桜井 醇児	元富山大学
22	和田 長久	原水禁大阪
23	三島 剛明	中国電力
24	馬場 浩太	広島修道大学
25	渡辺 美紀子	原子力資料情報室
26	有馬 純也	秋田法律事務所
27	海老沢徹	元京都大学原子炉実験所
28	藤川 陽子	京都大学原子炉実験所
29	馬原 保典	京都大学原子炉実験所
30	小出 裕章	京都大学原子炉実験所
31	小山 昭夫	京都大学原子炉実験所
32	義本 孝明	京都大学原子炉実験所
33	窪田 卓見	京都大学原子炉実験所
34	沖 雄一	京都大学原子炉実験所
35	福谷 哲	京都大学原子炉実験所
36	治村 圭子	京都大学原子炉実験所
37	関本 俊	京都大学原子炉実験所
38	真辺 健太郎	京都大学原子炉実験所
39	高宮 幸一	京都大学原子炉実験所
40	柴田 誠一	京都大学原子炉実験所
41	今中 哲二	京都大学原子炉実験所

KUR REPORT OF
KYOTO UNIVERSITY RESEARCH
REACTOR INSTITUTE

発行所 京都大学原子炉実験所
発行日 平成 28 年 10 月
住所 大阪府泉南郡熊取町朝代西 2 丁目
TEL (072) 451- 2300