

# Neutronendosimetrie in Hiroshima

Die Beschleuniger-Massenspektrometrie hat es ermöglicht, eine Jahrzehnte alte Kontroverse zu klären

Werner Rühm

Unser Wissen über strahleninduzierte Spätschäden beim Menschen geht wesentlich auf Untersuchungen zurück, bei denen die im Kollektiv der Atombombenüberlebenden beobachteten zusätzlichen Krankheitsfälle in Beziehung gesetzt werden zu den Strahlendosen, die für die Betroffenen errechnet werden. Bis vor kurzem war es nicht möglich, die angegebenen Neutronendosen experimentell zu überprüfen. Diese Überprüfung gelang nun mit Hilfe der Beschleuniger-Massenspektrometrie, u. a. durch den Nachweis von  $^{63}\text{Ni}$  in Kupferproben aus Hiroshima. Dieses Radioisotop wurde durch schnelle Neutronen, die auch für die Neutronendosen verantwortlich waren, erzeugt. Frühere Arbeiten, die für Hiroshima eine Unterschätzung der Neutronendosen postuliert hatten, konnten damit widerlegt werden.

Zwei Tage nach dem Abwurf einer Bombe unbekannter Bauart über Hiroshima am 6. August 1945 kam Yoshio Nishina im Auftrag der japanischen Regierung in die zerstörte Stadt (Abb. 1), um eine erste Untersuchung der Geschehnisse durchzuführen. Nishina hatte bei Niels Bohr in Dänemark gearbeitet und war sich der Möglichkeit einer auf der Spaltung von Uran basierenden Bombe bewusst. Das beobachtete Ausmaß der Schäden sowie erste Radioaktivitätsmessungen ließen ihn zur Überzeugung gelangen, dass über Hiroshima eine Atombombe gezündet worden war. Zum Zeitpunkt der Explosion hielten sich in Hiroshima etwa 340000 Menschen auf, von denen bis Ende 1945 etwa 140000 an den akuten Folgen der Explosion starben. Die zweite Atombombe auf Nagasaki am 9. August 1945 forderte weitere 70000 Opfer.

## Die Life Span Study

Heutzutage liefern die an den Überlebenden von Hiroshima und Nagasaki durchgeführten Untersuchungen einen wesentlichen Beitrag zu unserem Verständnis der Spätfolgen, die beim Menschen nach einer Exposition mit ionisierenden Strahlen auftreten können. Seit Ende der 1940er-Jahre wird im Rahmen der „Life Span Study“ (LSS) der Gesundheitszustand und die Sterblichkeit von anfänglich 120000 Überlebenden dokumentiert. Die seit 1975 mit diesen Untersuchungen betraute „Radiation Effects Research Foundation“ (RERF) untersuchte kürzlich detailliert die bei 86572 Überlebenden im Zeit-



Abb. 1: Hiroshima nach dem Atombombenabwurf.

raum von 1950 bis 1997 beobachteten Todesfälle. Dabei zeigte sich, dass ca. 440 der durch Krebs und etwa 250 der durch andere Krankheiten (außer Leukämie) verursachten Todesfälle der während den Atombombenexplosionen freigesetzten Neutronen- und Gamma-Strahlung zuzuschreiben sind [1]. Für die Zeit von 1950 bis 1990 wurden außerdem etwa 90 strahleninduzierte Todesfälle durch Leukämie abgeleitet [2]. Einen deutlichen Hinweis darauf, dass etwa die bei den Überlebenden beobachtete Krebsmortalität tatsächlich eine strahleninduzierte Erhöhung aufweist, liefert Abb. 2: Für die Mitglieder der LSS besteht eine positive Korrelation zwischen dem zusätzlichen relativen Risiko<sup>1)</sup>, an soliden Tumoren zu sterben, und der mittleren Organdosis.

## Die Dosimetrie der Überlebenden von Hiroshima und Nagasaki

Für die Auftragung einer Dosis-Wirkungs-Kurve (Abb. 2) ist nicht nur die Kenntnis der gesundheitlichen Konstitution oder der Sterblichkeit der Überlebenden notwendig (y-Achse). Vielmehr müssen auch die Strahlendosen, denen die Überlebenden ausgesetzt waren, möglichst genau ermittelt werden (x-Achse).

Bereits in den 1950er- und 1960er-Jahren führte man entsprechende Dosisabschätzungen durch, die damals wesentlich auf Testexplosionen auf dem Testgelände in Nevada basierten. Für diese Studien waren z. B. typische japanische Häuser errichtet und deren abschirmende Wirkung bei Testexplosionen bestimmt worden. Die dabei erzeugten Neutronen- und Gamma-Fluenzen wurden dafür außerhalb und innerhalb dieser Häuser als Funktion des Abstands vom Hypozentrum<sup>2)</sup> gemessen. Als Anfang der 1960er-Jahre der Teststopp für oberirdische Kernwaffenversuche in Kraft getreten war, wurde auf dem Testgelände ein 465 m hoher Turm errichtet und auf dessen Spitze eine starke Neutronenquelle bzw.

1) engl. excess relative risk (ERR)

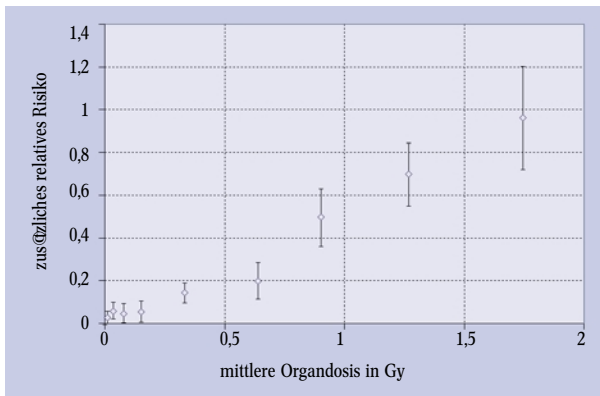
2) Hypozentrum: senkrechte Projektion des Explosionsortes, des sog. Epizentrums, auf den Boden

Priv.-Doz. Dr. Werner Rühm, Strahlenbiologisches Institut, Ludwig-Maximilians-Universität München, Schillerstr. 42, 80469 München

eine  $^{60}\text{Co}$ -Gammaquelle installiert, um die Untersuchungen fortsetzen zu können.

In den 1970er-Jahren schrieb man den Neutronendosen in Hiroshima und Nagasaki keine besondere Bedeutung zu. Im Jahre 1978 wurde jedoch in einem Aufsehen erregenden Artikel darauf hingewiesen, dass sich die Dosis-Wirkungs-Kurven für das Auftreten von Leukämie in Hiroshima und Nagasaki signifikant unterscheiden und dass sich dieser Unterschied durch die in Hiroshima im Vergleich zu Nagasaki zehnmal höheren Neutronendosen erklären ließ, falls für die relative biologische Wirksamkeit von Neutronen bei einer Neutronendosis von zum Beispiel 10 mGy ein Wert von 60 angenommen wird [3].<sup>3,4)</sup> Dies führte zu einer umfassenden internationalen Neubewertung der Dosimetrie der Atombombenüberlebenden, die mit der Veröffentlichung des Dosimetriesystems DS86 im Jahre 1987 ihren vorläufigen Abschluss fand [4].

Basierten die früheren Dosimetriesysteme noch



**Abb. 2:** Zusätzliches relatives Risiko (ERR) für solide Tumore als Funktion der mittleren Organdosis<sup>3)</sup>; LSS-Daten von 1950 bis 1990 für Überlebende mit einem Alter von 60 Jahren; das ERR ist für jede Dosisgruppe definiert als Differenz der Anzahl der beobachteten und der ohne zusätzliche Strahlenexposition erwarteten Fälle, normiert auf die Zahl der erwarteten Fälle; die DS86-Energiedosen durch Gammastrahlung und Neutronen wurden ungewichtet addiert und über alle Organe gemittelt. (Quelle: L. Walsh, Strahlenbiolog. Institut der LMU, München)

3) Die in Materie durch ionisierende Strahlung deponierte Energie wird in den SI-Einheiten J/kg angegeben; für die Einheit der Energiedosis wurde dafür der Name Gy (Gray) festgelegt.

4) Die relative biologische Wirkung einer untersuchten Strahlenart ist definiert als das Verhältnis der Dosis einer Referenzstrahlung (meist die beim Zerfall von  $^{60}\text{Co}$  entstehende Gammastrahlung) und der Dosis der untersuchten Strahlung, die beide denselben biologischen Effekt hervorrufen.

wesentlich auf Testexplosionen, fand für DS86 ein völlig neues Konzept Anwendung: Die damals verfügbar gewordene Rechenleistung ermöglichte es, alle für die Dosisberechnung relevanten Prozesse mit dem Computer nachzuvollziehen. So wurden beispielsweise die Explosionen über Hiroshima und Nagasaki simuliert, die Ausbreitung der entstandenen Gamma- und Neutronenstrahlung durch die Atmosphäre berechnet und Neutronen- und Photonenfluenzen einen Meter über dem Boden als Funktion des Abstands von den Hypozentren angegeben. Typische Konfigurationen japanischer Häuser wurden modelliert und deren abschirmende Wirkung berechnet. Schließlich erlaubte es die Simulation des menschlichen Körpers, individuelle Organdosen in Abhängigkeit von der Körpergröße des jeweiligen Überlebenden und seiner Körperhaltung zum Zeitpunkt der Explosion zu berechnen (Abb. 3).

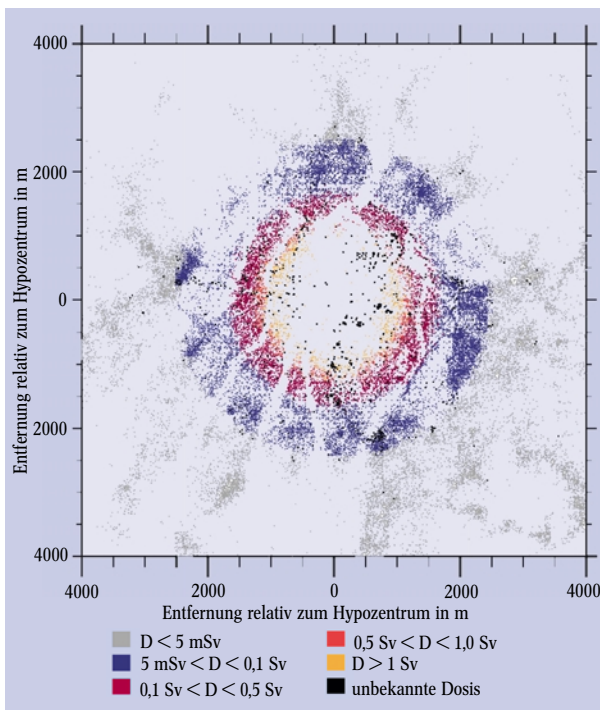
Ein wesentliches Ergebnis von DS86 war, dass die Neutronendosen für Hiroshima verglichen mit früheren Abschätzungen deutlich geringer ausfielen. Man schloss daraus, dass die an den Überlebenden beobachteten gesundheitlichen Folgeerscheinungen hauptsächlich durch die Gammastrahlung verursacht worden waren. Diese Schlussfolgerung wurde in den letzten Jahren wieder zunehmend angezweifelt, da sich anzudeuten schien, dass die DS86-Neutronendosen signifikant unterschätzt worden sein könnten (siehe unten).

### Retrospektive experimentelle Überprüfung von DS86-Neutronenfluenzen

Die in Hiroshima und Nagasaki durch die Explosionen erzeugten Neutronenfluenzen lassen sich im Nachhinein über den Nachweis von Radioisotopen bestimmen, die durch Kernreaktionen mit Neutronen entstanden sind. Besonders geeignet erschien anfangs  $^{32}\text{P}$  ( $T_{1/2} = 14,26$  Tage), da es über die Reaktion  $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$  durch schnelle Neutronen in schwefelhaltigen Materialien erzeugt worden war, über seinen Betazerfall nachgewiesen werden konnte und der zugehörige Reaktionsquerschnitt bereits bekannt war. Daher begannen japanische Wissenschaftler bereits wenige Tage nach der Zerstörung Hiroshimas, unter heute kaum vorstellbaren äußeren Umständen nach geeigneten Proben zu suchen. Der Nachweis von  $^{32}\text{P}$  gelang bereits wenige Wochen später. Die erzielten Ergebnisse waren bis vor kurzem die einzige direkte Signatur für die bei der Explosion freigesetzten *schnellen* Neutronen und eine wesentliche Stütze für den in DS86 angenommenen Wert der Bombenstärke von  $15 \pm 3$  kt TNT [4].

Abbildung 4 zeigt die  $^{32}\text{P}$ -Daten als Funktion des Abstandes vom Hypozentrum relativ zu den jeweils im Rahmen von DS86 berechneten Werten (würden die Messergebnisse mit den jeweiligen DS86-Rechnungen übereinstimmen, ergäben sich in der gewählten Auftragung unabhängig vom Abstand zum Hypozentrum Werte um 1). Dabei zeigt sich, wie gut die Messergebnisse mit den entsprechenden DS86-Rechnungen nahe des Hypozentrums übereinstimmen, und dass für Abstände größer als 700 m vom Hypozentrum verlässliche Messergebnisse fehlen. Da schnelle Neutronen mit Energien größer als 100 keV auch den größten Teil zur Neutronendosis beigetragen hatten, konnten die  $^{32}\text{P}$ -Daten folglich nicht zur Validierung der Neutronendosen der LSS-Mitglieder, die ja erst ab einem Abstand vom Hypozentrum von etwa 1000 m die akuten Folgen der Explosion überlebt hatten (vgl. Abb. 3), herangezogen werden.

**Abb. 3:** Punktdiagramm von Aufenthaltsorten der zur LSS gehörenden Personen zum Zeitpunkt der Explosion in Hiroshima. Die Farbkodierung gibt die individuellen Dickdarmdosen aus DS86 an. Die südlich zum Hafen führenden Flussarme sind deutlich erkennbar. (Diagramm: M. Chomentowski, Strahlenbiolog. Institut der LMU, München, während eines Aufenthalts bei RERF in Hiroshima erstellt)



In den folgenden Jahren konzentrierte man sich auf Radionuklide mit längeren Halbwertszeiten im Bereich von Jahren bis Jahrzehnten. Tabelle 1 fasst die durch Neutronen der Atombombe produzierten und bis heute in Proben aus Hiroshima nachgewiesenen Radioisotope zusammen: Es gelang zunächst,  $^{60}\text{Co}$  in Armierungsstählen von Stahlbetonbauten [6] sowie  $^{152}\text{Eu}$  und  $^{154}\text{Eu}$  in Gesteinsproben aus Hiroshima nachzuweisen [7]. Als der Nachweis auch dieser Radionuklide im Laufe der Zeit immer schwieriger wurde, wandte man sich Radionukliden mit sehr langen Halbwertszeiten über 100000 Jahren zu, von denen seit den Explosionen bis jetzt nur ein geringer Teil zerfallen ist. Am Münchner Beschleunigerlabor gelang es erstmals, in einer Probe aus Hiroshima  $^{36}\text{Cl}$  [8] und  $^{41}\text{Ca}$  [9, 10] nachzuweisen, wobei die Methode der Beschleuniger-Massenspektrometrie verwendet wurde (siehe Infokasten). Schließlich wurde in Stahl  $^{65}\text{Ni}$  nachgewiesen [11], das dort über die Reaktion  $^{62}\text{Ni}(n, \gamma)^{63}\text{Ni}$  durch thermische Neutronen entstanden war. In Kupfer wurde  $^{63}\text{Ni}$  dagegen durch *schnelle* Neutronen erzeugt, wie weiter unten ausführlich beschrieben wird. Ansonsten wurden mit Ausnahme von  $^{32}\text{P}$  alle aufgeführten Radioisotope hauptsächlich durch *thermische* Neutronen mit Energien kleiner als 0,4 eV erzeugt.

Bis 1997 hatten mehrere Gruppen aus den USA und Japan in einer großen Anzahl an Proben aus unterschiedlichsten Abständen vom Hypozentrum insbesondere die Radioisotope  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{60}\text{Co}$  und  $^{152}\text{Eu}$  nachgewiesen, wobei verschiedene Messtechniken zum Einsatz kamen: Abbildung 5 macht (in analoger Auftragung zu Abb. 4) deutlich, dass die Messergebnisse für *thermische* Neutronen nahe des Hypozentrums etwas niedriger, für Bereiche, aus denen die Mehrzahl der Mitglieder der LSS kommt, dagegen deutlich höher als die Ergebnisse der entsprechenden DS86-Rechnungen sind. Dieser Sachverhalt fand unter dem Begriff „Hiroshima neutron discrepancy“ Eingang in die wissenschaftliche Literatur.

Interessanterweise konnte in Nagasaki kein mit Abb. 5 vergleichbarer Trend festgestellt werden [12], was in den letzten Jahren zu Vermutungen führte, die Explosion der in Hiroshima verwendeten Bombe „Little Boy“ sei möglicherweise nicht planmäßig verlaufen („Crack-Theorie“) [13]. Gestützt wurden derartige Spekulationen dadurch, dass eine Bombe gleicher Bauart weder vorher getestet noch hinterher auf dem Testgelände in Nevada gezündet worden war. Der über Nagasaki gezündete Bombentyp dagegen war bereits vorher am 16. Juli 1945 in der Wüste von Alamogordo getestet worden.

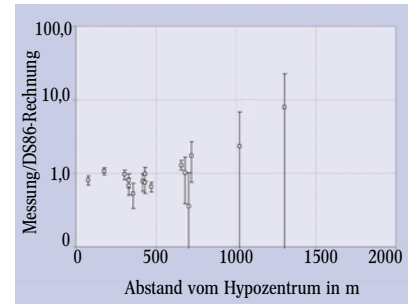
Die zur Dosisrekonstruktion durchgeführten Arbeiten werden unter besonderer Berücksichtigung der retrospektiven Bestimmung der Neutronenfluenzen von Hiroshima z. B. in [14] ausführlich beschrieben.

### Die Klärung der Kontroverse um die Neutronendosen

Mitte der 1990er-Jahre wurde die Neutronendiskrepanz von Hiroshima aufgrund der scheinbar eindeutigen experimentellen Situation von vielen Wissenschaftlern akzeptiert, obwohl physikalische Erklärungen wie etwa die Crack-Theorie sich nicht durchsetzen konnten. In der Folge galten die DS86-Fluenzen thermischer Neutronen daher als unsicher. Da die thermischen Neutronen durch das Abbremsen (Moderation) von höher energetischen Neutronen entstanden waren, wurden

auch die Fluenzen schneller Neutronen und konsequenterweise auch die Neutronendosen, die im Rahmen von DS86 für die Überlebenden errechnet worden waren, in Zweifel gezogen. Die Tatsache, dass ein wesentlicher Anteil der Gammastrahlung, der die Überlebenden ausgesetzt gewesen waren, auf inelastische Neutronenstreuung an Bestandteilen der Atmosphäre und des Bodens zurückzuführen ist, zeigt, dass damit auch die DS86-Gammastrahlungsdosen und somit die Dosimetrie der Überlebenden in ihrer Gesamtheit betroffen war.

Angesichts dieser Unsicherheiten wurden in den letzten Jahren die Bemühungen verstärkt, die Fluenz *schneller* Neutronen in Hiroshima experimentell zu bestimmen sowie Ursachen für die für *thermische* Neutronen beobachtete Diskrepanz zu finden. Zur Klärung beider Fragen nimmt die Methode der Beschleuniger-Massenspektrometrie (AMS) eine Schlüsselstellung ein (siehe Infokasten). Bereits Mitte der 1980er-Jahre war am Beschleunigerlabor in Garching bei München – dem heutigen Maier-Leibnitz-Labor (MLL) – unter Verwendung eines Tandem-Beschleunigers (Abb. 6) erstmals demonstriert worden, dass sich mit AMS in Proben aus Hiroshima langlebige Radioisotope nachweisen lassen, die durch Neutronen der Atombombe erzeugt worden waren. So gelang es damals in einem Grabstein aus Granit nahe des Hypozentrums das Radioisotop  $^{36}\text{Cl}$  nachzuweisen, wo es über die Reaktion  $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$  durch thermische Neutronen entstanden war [8]. Weitere Arbeiten ermöglichten es kurze Zeit später, in demselben Granit auch  $^{41}\text{Ca}$  nachzuweisen, das über die Re-



**Abb. 4:** Für die Produktion des über den Einfang *schneller* Neutronen erzeugten Radioisotops  $^{32}\text{P}$  stimmen Messungen und Vorhersage im Rahmen von DS86 bis zu einem Abstand von 700 m vom Hypozentrum gut überein; gezeigt sind die in den 1980er-Jahren neu ausgewerteten frühen Daten von Yamasaki und Sugimoto [5].

**Tabelle 1:** Radioisotope zur retrospektiven Bestimmung der Neutronenfluenzen in Hiroshima

Radioisotop	Halbwertszeit	Reaktion	Neutronenenergie	Probenmaterial	Nachweismethode	Erst-Ref.
$^{32}\text{P}$	14,26 d	$^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$	MeV	Schwefelhaltiger Kleber	$\beta$ -Messung	[5]
$^{60}\text{Co}$	5,272 y	$^{59}\text{Co}(n,\gamma)^{60}\text{Co}$	thermisch	Armierungsstahl, Dachziegel, Granit	$\gamma$ -Messung	[6]
$^{152}\text{Eu}$	13,33 y	$^{151}\text{Eu}(n,\gamma)^{152}\text{Eu}$	thermisch	Dachziegel, Gestein, Beton	$\gamma$ -Messung	[7]
$^{154}\text{Eu}$	8,8 y	$^{153}\text{Eu}(n,\gamma)^{154}\text{Eu}$	thermisch	Dachziegel, Granit	$\gamma$ -Messung	[7]
$^{36}\text{Cl}$	$3,0 \times 10^5$ y	$^{35}\text{Cl}(n,\gamma)^{36}\text{Cl}$	thermisch	Granit, Beton	AMS	[8]
$^{41}\text{Ca}$	$1,0 \times 10^5$ y	$^{40}\text{Ca}(n,\gamma)^{41}\text{Ca}$	thermisch	Granit	AMS	[9, 10]
$^{65}\text{Ni}$	100 y	$^{62}\text{Ni}(n,\gamma)^{63}\text{Ni}$	thermisch	Stahl	$\beta$ -Messung	[11]

aktion  $^{40}\text{Ca}(n, \gamma)^{41}\text{Ca}$  ebenfalls durch thermische Neutronen entstanden war [9, 10] (vgl. Tab. 1).

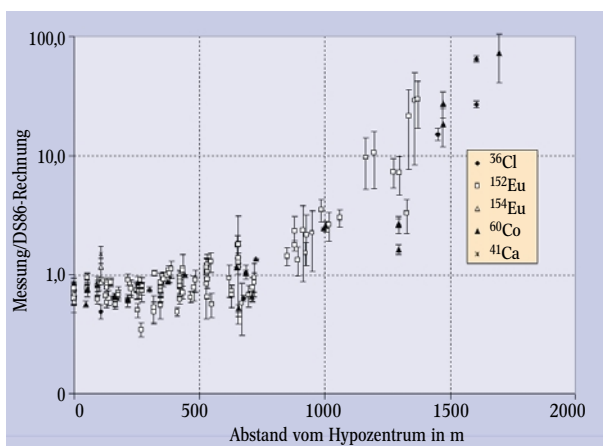
Am MLL gelang es vor kurzem auch,  $^{63}\text{Ni}$  in Kupferproben aus Hiroshima zur retrospektiven Bestimmung der Fluenz *schneller* Neutronen erstmals nachzuweisen sowie die Neutronendiskrepanz von Hiroshima für *thermische* Neutronen über den Nachweis von  $^{36}\text{Cl}$  in Granitproben zu erklären. Dies soll im Folgenden genauer beschrieben werden.

**Nachweis von  $^{63}\text{Ni}$  in Kupferproben**

Vor einigen Jahren rückte das Radioisotop  $^{63}\text{Ni}$  ( $T_{1/2} = 100$  Jahre) in den Mittelpunkt des Interesses [15, 16], da der Wirkungsquerschnitt der Produktionsreaktion  $^{63}\text{Cu}(n,p)^{63}\text{Ni}$  ( $Q$ -Wert: 0,7 MeV; Coulomb-Barriere: - 4,9 MeV) ab etwa einem MeV stark ansteigt und man erkannte, dass 95 % der in Hiroshima erzeugten  $^{63}\text{Ni}$ -Kerne durch Neutronen mit einer Energie oberhalb 1,5 MeV entstanden waren. Bereits 1996 wurde am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) in den USA gezeigt, dass  $^{63}\text{Ni}$  nach einer eigens dafür entwickelten chemischen Aufbereitung von Kupferproben [17] mit AMS nachgewiesen werden kann [18]. Zugleich wies man darauf hin, dass es am MLL wegen der mit dem 15-MV-Tandem-Beschleuniger erreichbaren Energien und der vorhandenen apparativen Ausstattung [19] möglich sein sollte,  $^{63}\text{Ni}$  in Proben aus Hiroshima mit ausreichender Empfindlichkeit zu messen [16].

Zum Nachweis von  $^{63}\text{Ni}$  werden aus der am LLNL aus Kupfer hergestellten Nickelprobe in einer speziellen Ionenquelle [20] unter anderem einfach negativ

**Abb. 5:** Vergleich von gemessenen und im Rahmen von DS86 vorhergesagten Konzentrationen der hauptsächlich über den Einfang thermischer Neutronen erzeugten Radionuklide  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{60}\text{Co}$ ,  $^{152}\text{Eu}$  und  $^{154}\text{Eu}$  als Funktion des Abstands vom Hypozentrum in Hiroshima; Daten bis 1997 aus der offenen Literatur zusammengestellt; ausführliche Referenzen siehe [14].



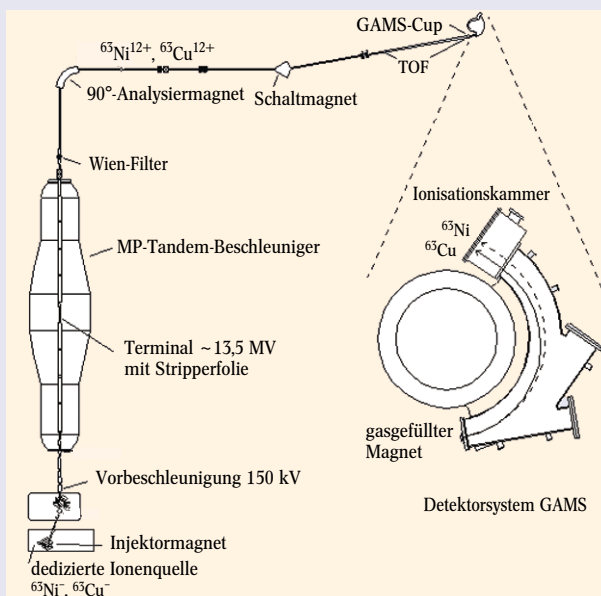
geladene  $^{63}\text{Ni}^-$ -Ionen und auch  $^{63}\text{Cu}^-$ -Ionen des sich als Verunreinigung in der Probe befindlichen stabilen Isobars  $^{63}\text{Cu}$  erzeugt und in den Tandem-Beschleuniger eingeschossen (Abb. im Infokasten). Beim Durchgang durch eine sich im Terminal befindliche Kohlenstoff-Folie werden die ursprünglich negativen Ionen umgeladen und können anschließend als positive Ionen durch dieselbe Terminalspeisung weiter beschleunigt werden („Tandem“-Prinzip). Moleküle brechen beim Durchgang durch die Terminalfolie aufgrund des Verlusts von Bindungselektronen auf, sodass molekularer Untergrund komplett unterdrückt werden kann. Isotopischer Untergrund wird durch das gesamte Strahlführungssystem und einen zusätzlich nach dem Beschleuniger installierten Wien-Filter unterdrückt. Im nachfolgenden  $90^\circ$ -Analysemagnet wird der Ladungszustand  $12^+$  ausgewählt, der in der Terminalfolie mit einer Häufigkeit von 15 % bevölkert wurde. Am Ende der Strahlführung passieren die  $^{63}\text{Ni}^{12+}$ - und  $^{63}\text{Cu}^{12+}$ -Ionen mit einer Energie von etwa 180 MeV einen gasgefüllten Magneten (Ablenkwinkel:  $135^\circ$ , Gasdruck: 7 mbar Stickstoff), in dem sich für die durchlaufenden Ionen ein für jedes Element charakteristischer mittlerer Ladungszustand einstellt. Da dies im Magnetfeld passiert, können störende stabile Isobare derselben Masse (in diesem Fall  $^{63}\text{Cu}$ ) ausgeblendet werden. Die  $^{63}\text{Ni}$ -Ionen werden in einer ortsempfindlichen Ionisationskammer nachgewiesen, in der auch der differenzielle Energieverlust der einfallenden Ionen mehrfach gemessen wird (Detektorsystem „GAMS“). Wegen der für AMS-Laboratorien sehr hohen Energie lassen sich  $^{63}\text{Ni}$  und  $^{63}\text{Cu}$  mit einer sehr hohen Effizienz (Faktor  $10^9$ ) trennen. Das  $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnis in einer Probe wird relativ zu Standards mit bekannten  $^{63}\text{Ni}/\text{Ni}$ -Verhältnissen bestimmt. Der apparative Untergrund wird regelmäßig mittels Nullproben, d. h. Proben ohne  $^{63}\text{Ni}$ , überwacht.

**Beschleuniger-Massenspektrometrie („Accelerator Mass Spectrometry“, AMS)**

Radionuklide mit langen Halbwertszeiten lassen sich wegen der geringen spezifischen Aktivitäten nur schwer über eine Zerfallsmessung nachweisen. Einen Ausweg bieten Methoden der Massenspektrometrie, bei denen die gesuchten Radionuklide schon vor ihrem Zerfall über ihre Masse identifiziert und direkt gezählt werden. Die konventionelle Massenspektrometrie, bei der Beschleunigungsspannungen im kV-Bereich benutzt werden, beruht auf dem Prinzip, dass Ionen gleicher Energie und Ladung, aber unterschiedlicher Masse z. B. in einem Magnetfeld unterschiedlich stark abgelenkt werden. Moleküle gleicher Masse und Isobare – also Kerne gleicher Masse wie z. B. das stabile  $^{63}\text{Cu}$  und das radioaktive  $^{63}\text{Ni}$  – lassen sich damit jedoch nur schwer trennen. Der zusätzliche Einsatz von Beschleunigern (typischerweise Tandem-Beschleuniger mit Terminalspeisungen im MeV-Bereich) bietet einen

Ausweg („Beschleuniger-Massenspektrometrie“): Isobare mit Energien im MeV-Bereich werden in Materie unterschiedlich abgebremst, sodass die Messung des Energieverlusts beispielsweise mit einer Ionisationskammer

deren Unterscheidung erlaubt; verlieren Isobare beim Durchgang durch Materie alle Elektronen, lassen sie sich auch aufgrund der unterschiedlichen Kernladungszahl in einem Magneten unterscheiden („Nacktstrippen“); auch der mittlere Ladungszustand, der sich beim Durchgang von Isobaren durch Materie einstellt, ist abhängig von der Kernladungszahl und lässt sich in einem Magnetfeld nutzen, um beide Isobare räumlich zu trennen („gasgefüllter Magnet“). Die Abbildung zeigt den am MLL in Garching vorhandenen AMS-Aufbau, der Messungen mit dieser Methode erlaubt. Radionuklide, die mit AMS nachgewiesen werden können, sind z. B.  $^{10}\text{Be}$ ,  $^{14}\text{C}$ ,  $^{26}\text{Al}$ ,  $^{36}\text{Cl}$ ,  $^{41}\text{Ca}$ ,  $^{55}\text{Mn}$ ,  $^{59}\text{Ni}$ ,  $^{60}\text{Fe}$ ,  $^{63}\text{Ni}$ ,  $^{129}\text{I}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  und  $^{244}\text{Pu}$ . Eine kurzweilige Beschreibung der Methode und ihrer Entwicklung seit der Einführung im Jahre 1979 gibt [25].



Diese weltweit einzigartige Kombination eines Tandem-Beschleunigers mit hoher Terminalspeisung und eines gasgefüllten Analysiersystems erlaubt Messungen bis zu einer Nachweisgrenze (untergrundfrei) von  $^{65}\text{Ni}/\text{Ni} < 2 \times 10^{-14}$ . Damit ist es in Kombination mit der verwendeten chemischen Proben-Aufbereitung erstmals möglich, geringste Spuren von  $^{65}\text{Ni}$  (typisch nur etwa ein Ni-Atom unter  $10^{17}$  Atomen einer bestrahlten Kupferprobe und weniger) auch in Kupferproben aus Entfernungen vom Hypozentrum von Hiroshima nachzuweisen, aus denen eine große Zahl von Mitgliedern der LSS stammen [21] (Abb. 3).

Bei den uns von Kollegen aus Japan zur Verfügung gestellten Kupferproben aus Hiroshima handelte es sich um Teile von Dachrinnen, Blitzableitern und Kupferdächern (Abb. 7). Insgesamt wurden bereits sieben Kupferproben aus Abständen von 380 m bis 5062 m vom Hypozentrum untersucht, wobei die Proben aus einem Abstand von 1880 m und 5062 m zur Bestimmung des bei der Messung vorhandenen  $^{65}\text{Ni}$ -Untergrunds dienten. Alle Proben waren zum Zeitpunkt der Explosion, wenn überhaupt, nur geringfügig abgeschirmt – einer der Blitzableiter befand sich beispielsweise in einem Eisenrohr mit einer Wandstärke von 4 mm – und somit direkt den Neutronen der Atombombe ausgesetzt.

Abbildung 8, links, zeigt die Messergebnisse, wieder normiert auf die entsprechenden DS86-Rechnungen, als Funktion des Abstands vom Hypozentrum. Sieht man vom Datenpunkt bei 367 m ab, sind alle gezeigten Verhältnisse im Rahmen der Messunsicherheiten mit dem Wert 1 kompatibel. Ein Hinweis auf eine Diskrepanz, wie sie für thermische Neutronen in Hiroshima berichtet worden war, konnte nicht gefunden werden.<sup>5)</sup> Die in Abbildung 8, links, gezeigten Messergebnisse bedeuten den ersten Nachweis schneller Neutronen in Hiroshima bei Abständen, bei denen die Betroffenen der Explosion überleben konnten. Damit gelang es auch erstmals, die Neutronendosen zu überprüfen, denen die Überlebenden ausgesetzt gewesen waren und für die hauptsächlich schnelle Neutronen oberhalb einer Energie von 100 keV verantwortlich waren [22].



**Abb. 7:** Untersucher japanischer Schrein mit Kupferdach (5062 m vom Hypozentrum).

#### Nachweis von $^{36}\text{Cl}$ in Granitproben

Das Radioisotop  $^{36}\text{Cl}$  wurde in chloridhaltigen Materialien aus Hiroshima durch thermische Neutronen über die Reaktion  $^{35}\text{Cl}(n, \gamma)^{36}\text{Cl}$  erzeugt. Das entstandene  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis ist ein direktes Maß für die Fluenz thermischer Neutronen, der die jeweilige Probe ausgesetzt gewesen war. Aus den uns aus Hiroshima zur Verfügung stehenden Granitproben wurde daher Chlor mit verdünnter Salpetersäure ohne Zugabe von Träger gasförmig extrahiert und in Silberchlorid überführt.

Zum Nachweis von  $^{36}\text{Cl}$  wird am MLL die Methode der AMS mit nacktgestrippten Ionen angewendet [8]. Dazu werden einfach negativ geladene  $^{36}\text{Cl}^-$ -Ionen zusammen mit einfach negativ geladenen  $^{36}\text{S}^-$ -Ionen des sich als Verunreinigung in der Probe befindlichen stabilen Isobars  $^{36}\text{S}$  im Injektor vorbeschleunigt und in den Tandem-Beschleuniger eingeschossen. Nach dem

auf den Ladungszustand  $8^+$  eingestellten  $90^\circ$ -Analysemagneten werden die ausgewählten  $^{36}\text{Cl}^{8+}$ -Ionen und  $^{36}\text{S}^{8+}$ -Ionen in einer zweiten Kohlenstoff-Folie mit einer Wahrscheinlichkeit von etwa 33 % auf den Ladungszustand  $14^+$  umgeladen und im folgenden Hochfrequenz-Nachbeschleuniger auf eine Energie von 4,3 MeV/Nukleon weiter beschleunigt. Sie besitzen dann genügend Energie, um beim Passieren der dritten Kohlenstoff-Folie zwischen den beiden letzten Analysiermagneten mit einer Wahrscheinlichkeit von 7 % vollständig ionisiert zu werden. Im letzten Analysiermagneten, der auf den Ladungszustand  $17^+$  eingestellt ist, werden die vollständig ionisierten  $^{36}\text{Cl}^{17+}$ -Ionen von allen für Schwefel möglichen Ladungszuständen – Schwefel kann auf Grund seiner Kernladungszahl maximal den Ladungszustand  $16^+$  einnehmen – getrennt und anschließend in einer Bragg-Ionisationskammer nachgewiesen.



**Abb. 6:** Am Maier-Leibnitz Labor in München verwendeter 15-MV-Tandem-Beschleuniger (orange) sowie der sich anschließende Analysiermagnet (blau). (Foto: F. Schmidt, LMU München)

Das  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis in einer Probe wird relativ zu Standards mit bekannten  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnissen bestimmt, zur Qualitätssicherung dienen Nullproben ohne  $^{36}\text{Cl}$ . Für die instrumentelle Nachweisgrenze des Messaufbaus ergibt sich ein Wert von etwa  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 2 \times 10^{-15}$ .

Die am MLL untersuchten Proben aus Hiroshima bestanden zum größten Teil aus Granit und stammten aus Abständen zwischen 109 m und 1600 m vom Hypozentrum. In den meisten Fällen handelte es sich um Grabsteine, aber auch um Fassadenteile von Gebäuden, die die Explosion überstanden hatten. Darüber hinaus umfasste die Studie auch Granitproben, die nicht den

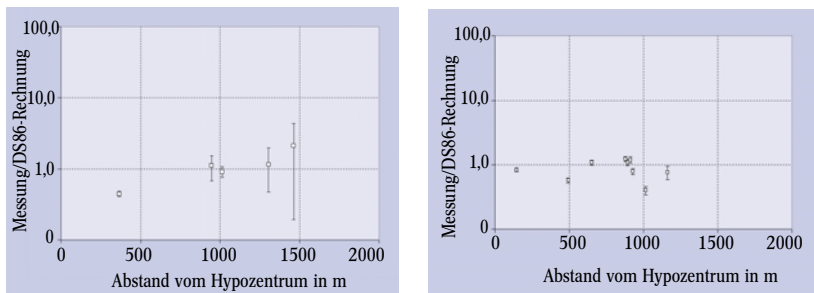
Neutronen der Atombombenexplosion ausgesetzt gewesen waren. Damit wurde das natürlicherweise in Granit vorhandene  $^{36}\text{Cl}$  bestimmt, das durch die Wechselwirkung der kosmischen Strahlung mit der Lithosphäre oder durch den Zerfall von Uran und Thorium über geologische Zeiträume hinweg entsteht.<sup>6)</sup> Unsere Messungen ergaben in diesen Proben  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse zwischen  $4 \times 10^{-14}$  und  $2 \times 10^{-15}$ . Da ähnliche  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnisse in Hiroshima durch Neutronen der Atombombe ab einem Abstand vom Hypozentrum von etwa 1300 m erzeugt worden waren, muss insbesondere bei Proben aus großen Entfernungen das natürliche  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis berücksichtigt werden.

Als die ersten am MLL durchgeführten Messungen bei großen Abständen vom Hypozentrum keinen Hinweis auf eine Diskrepanz zu den DS86-Rechnungen zeigten, wurde von Mitarbeitern der Universität Hiro-

5) Das etwas zu niedrige Messergebnis bei 367 m könnte zum Beispiel auf eine unterschätzte Explosionshöhe hindeuten.

6) Man spricht hierbei von „natürlicher in-situ Produktion“.

shima eine Vergleichsstudie angeregt, und Granitproben aus Abständen von 146 m bis 1163 m vom Hypozentrum an das MLL und an Labors in Japan und den USA geschickt, um unabhängig  $^{36}\text{Cl}$ - und  $^{152}\text{Eu}$ -Messungen durchführen zu lassen.



**Abb. 8:** Vergleich von am MLL gemessenen, im Rahmen von DS86 berechneten  $^{63}\text{Ni}$ - (links) bzw.  $^{36}\text{Cl}$ -Konzentrationen (rechts) als Funktion des Abstands vom Hypozentrum in Hiroshima. In der Probe aus

einem Abstand von 1014 m wurde  $^{63}\text{Ni}$  auch am LLNL mit AMS gemessen. Das Ergebnis stimmte mit dem am MLL überein.

Die am MLL an diesen Granitproben erzielten Ergebnisse wurden wieder als Verhältnis von Messergebnis zu probenspezifischer DS86-Rechnung aufgetragen. Dabei wurde von den Messergebnissen ein konstanter Wert von  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl} = 7 \times 10^{-14}$  abgezogen, um das in diesen Proben natürlicherweise vorhandene  $^{36}\text{Cl}/\text{Cl}$ -Verhältnis zu berücksichtigen. In Abbildung 8 rechts lässt sich kein Hinweis auf die in der Literatur beschriebene Neutronendiskrepanz für thermische Neutronen finden (vgl. Abb. 5) [23, 24]. Dieses Ergebnis, mittlerweile bestätigt durch weitere eigene  $^{36}\text{Cl}$ -Messungen an Granitproben bis zu einem Abstand vom Hypozentrum von 1600 m, legt den Schluss nahe, dass frühere Arbeiten den natürlichen  $^{36}\text{Cl}$ -Untergrund nicht adäquat berücksichtigt.

### Ausblick

Die am MLL erzielten Ergebnisse zur retrospektiven Bestimmung schneller und thermischer Neutronen gehen ein in eine umfangreiche Neubewertung der Dosimetrie in Hiroshima und Nagasaki, die vor kurzem ihren Abschluss fand. Dabei wurden in Zusammenarbeit mit japanischen und amerikanischen Kollegen alle Aspekte der früheren DS86-Dosisberechnungen überprüft und z. B. der Explosionsort in Hiroshima neu bestimmt, die Energie- und Winkelverteilung der bei der Explosion entstandenen Neutronen und Photonen neu berechnet, sowie der Transport der Neutronen und Photonen durch die Atmosphäre und deren Abschirmung durch Gebäude auf der Basis aktuellster Rechenprogramme und Wirkungsquerschnitte wiederholt.

Ausgehend von den am MLL erzielten Ergebnissen hat sich mittlerweile die Ansicht durchgesetzt, dass die Neutronendiskrepanz von Hiroshima ein Artefakt war und, soweit sie sich auf  $^{36}\text{Cl}$  bezog, sich durch das natürliche  $^{36}\text{Cl}$  in den untersuchten Proben erklären lässt. Die DS86-Fluenzen schneller und thermischer Neutronen wurden durch unsere Messungen bei Abständen größer als 1000 m vom Hypozentrum in Hiroshima bestätigt. Die Neubewertung der Dosimetrie der Atombombenüberlebenden lässt daher keine Ergebnisse erwarten, die deutlich von den früheren DS86-Schätzungen abweichen. Die Radiation Effects Research Foundation wird in Kürze eine detaillierte Beschreibung der Arbeiten zum neuen Dosimetriesystem DS02, das DS86 ersetzen soll, veröffentlichen [26].

### Danksagung

Am Nachweis von  $^{63}\text{Ni}$  waren außerdem im Rahmen seiner Doktorarbeit G. Rugel und A. Wallner (Strahlenbiologisches Institut der LMU), G. Korschinek, T. Faestermann, K. Knie und C. Wallner (TU München) sowie Kollegen aus den USA (T. Straume, A. Marchetti, J. McAninch) beteiligt. Die Kupferproben stammten von S. Fujita, H. Hasai und K. Shizuma. Am Nachweis von  $^{36}\text{Cl}$  wirkten außerdem im Rahmen seiner Doktorarbeit T. Huber sowie E. Nolte (TU München) mit. Die Granitproben stammten von K. Kato und M. Hoshi. Die DS86-Rechnungen zur Produktion von  $^{63}\text{Ni}$  in Kupfer sowie von  $^{36}\text{Cl}$  in Granit hat S. Egbert in den USA durchgeführt.

### Literatur

- [1] D. L. Preston et al., Radiat. Res. **160**, 381 (2003)
- [2] D. A. Pierce et al., Radiat. Res. **146**, 1 (1996)
- [3] H. H. Rossi und C. W. Mays, Health Phys. **34**, 353 (1978)
- [4] W. C. Roesch (Hrsg.), US-Japan joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki – final report, RERF, Vol. 1, 2 (1987)
- [5] T. Hamada, US-Japan joint reassessment of atomic bomb radiation dosimetry in Hiroshima and Nagasaki – final report, RERF, Vol. 2, 272 (1987)
- [6] T. Hashizume et al., Health Phys. **13**, 149 (1967)
- [7] T. Nakanishi et al., Nature **302**, 132 (1983)
- [8] G. Habersack et al., Radiocarbon **28**, 204 (1986)
- [9] G. Korschinek et al., Nucl. Instrum. Methods B **29**, 67 (1987)
- [10] W. Rühm et al., Z. Phys. A – Hadrons and Nuclei, **341**, 235 (1992)
- [11] K. Shizuma et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A **384**, 375 (1997)
- [12] T. Straume et al., Radiat. Res. **138**, 193 (1994)
- [13] M. Hoshi et al., Radiat. Prot. Dosim. **77**, 15 (1998)
- [14] W. Rühm et al., Rad. Environ. Biophys. **37**, 293 (1998)
- [15] T. Shibata et al., J. Phys. Soc. Jpn. **63**, 3546 (1994)
- [16] T. Straume et al., Radiat. Prot. Dosim. **67**, 5 (1996)
- [17] A. A. Marchetti et al., Nucl. Instr. Methods Phys. Res. B **123**, 230 (1997)
- [18] J. E. McAninch et al., Nucl. Instr. Methods Phys. Res. B **123**, 137 (1997)
- [19] K. Knie et al., Nucl. Instrum. Methods B **172**, 717 (2000)
- [20] G. Rugel et al., Nucl. Instrum. Methods B **172**, 934 (2000)
- [21] W. Rühm et al., Health Phys. **79**, 358 (2000)
- [22] T. Straume et al., Nature **424**, 539 (2003)
- [23] W. Rühm et al., Radiobiological Institute, Munich, Tech. Rep. SBI 212/11.2000 (2000)
- [24] T. Huber et al., Radiat. Environ. Biophys. **42**, 27 (2003)
- [25] H. Gove, From Hiroshima to the Iceman, Institute of Physics Publishing (1999)
- [26] H. M. Cullings und S. Fujita, RERF Update 14 (1), 17 (2003)

### Der Autor

**Werner Rühm** studierte an der TU München Physik, wo er 1993 auch promovierte. Von 1994 bis 1997 war er wissenschaftlicher Angestellter am Bundesamt für Strahlenschutz, seit 1997 arbeitet er am Institut für Strahlenbiologie der LMU München. Als Gastwissenschaftler forschte Rühm auch in Japan, wo er 1997 den Japanese Government Research Award erhielt. 2002 hat sich Rühm an der LMU habilitiert. In seiner Freizeit spielt er unter anderem klassische Gitarre.

