

環境ガンマ放射線測定用井戸型ゲルマニウム検出器の特性と 原発事故によるバックグラウンド汚染 —地質調査総合センターに設置されたシステムを例に—

金井 豊^{1,*}・齋藤文紀¹

Yutaka Kanai and Yoshiki Saito (2011) Characterization of environmental gamma-ray measurement system with a well-type Ge detector and the contamination in background spectra by nuclear power plant accident – a case study in the Geological Survey of Japan –. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 62 (9/10), p. 357-369, 14 figs, 1 table.

Abstract: A renewed low-level gamma-ray measurement system was developed and its characterization was studied. The cryostat of J-type that means the Ge detector is sideways arranged in parallel with the liquid nitrogen Dewar bottle, was effective for the decrease of the background counts. Moreover, the oxygen-free copper with few impurities contributes to the decrease in continuous and peak background counts. It is also effective for removing interference of the indoor radon and thoron to reduce the space of the Pb shield room.

The influence of the geometry of the detector and the sample is estimated to be about 1% change of peak strength with 1mm change of height in the sample container. Therefore, it is necessary to correct the peak intensity by the height in the unit of mm or to prepare the samples with the same height accurately.

Although the experiment using a point source and the model calculation considering the geometry of the well-type detector showed a similar tendency in relation to the detection efficiency, they didn't show the actual change in counting rate. It turned out that the influence factor of the self-absorption caused by the sample thickness on the detection efficiency is much larger.

In this system, the detection limit of Pb -210 is low because it is not detected on the background, and an excellent measurement is possible in Pb-210 measurements of the sediments. However, a little contamination of Cs-137 remains after the nuclear power plant accident, and it is important to check it in the calculation of the sedimentation age by Cs-137.

Keywords: environmental gamma-ray measurement system, well-type Ge detector, detection efficiency, contamination of detector, nuclear power plant accident, Geological Survey of Japan

要 旨

地質調査総合センターにおいて低レベル測定を目指した新たなガンマ線測定システムを立ち上げ、更新機器と従来の機器の特性の違いを種々検討し、以下のことを明らかにした。

デュワー瓶と検出器との配置はJ型のクライオスタットとし、不純物の少ない無酸素銅などを検出器素材に使用し、さらに測定室空間を小さくすることなどは、バックグラウンドの低減に有効であった。

検出器と試料とのジオメトリーの関係は、試料容器において1 mmの高さ変化に伴い、最大でも約1%程度のピーク強度の変動が見られ、試料高さ補正をmm単位で行うか、高さをそろえる必要がある。点線源を用いた実

験や井戸内の点線源位置だけを考慮したモデル計算では、実際の計数率の変化を表すことはできず、試料自体が厚みを持つことによって生じる自己吸収による検出効率の影響因子の方がはるかに大きいことが判明した。

本システムにおいては、バックグラウンドにPb-210が検出されないため定量下限が低く、低濃度の堆積物中のPb-210測定において良好な測定が可能である。しかし、原発事故によって生じた検出器汚染は、繰り返し洗浄によって低減したものの、Cs-137の汚染に関しては堆積年代算出の利用において注意が必要である。

1. はじめに

岩石や堆積物中のウランやトリウム等、環境中の極微

¹ 地質情報研究部門 (AIST, Geological Survey of Japan, Institute of Geology and Geoinformation)

* Corresponding author: Y.KANAI, Central 7, 1-1-1 Higashi, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan. E-mail: y.kanai@aist.go.jp

量の放射性核種から放出される極低レベルの放射線を計測するためには、宇宙線や大地・建造物・測定機材などからのバックグラウンド放射線が相対的に大きいために、そのままではこれらのバックグラウンドに隠れてしまい、本来の情報が得られない。このため、低レベルの放射線計測においては、バックグラウンド低減化のための特別な工夫と対処がなされている。一般に低レベル放射線測定の際として FOM (Figure of Merit) というものがあり、それは信号 (S) とバックグラウンド (B) との関係式

$$FOM = S^2 / B$$

で与えられる (小村, 2006a)。すなわち、信号が大きくバックグラウンドが低いことが重要で、このため試料量を大きくしたり成分を濃縮したものを高検出効率の検出器で計測して信号強度を高め、また遮蔽体を利用してバックグラウンド低減化を図るなど、様々な工夫がなされている。測定条件の最適化においては、これらが常に検討項目の一つとなっている。しかし、FOM を大きくするために測定器周辺の構造物材を選択し、測定環境を整えることは必要であるが、それらの設定条件を十分に満たすということは極めて困難で、通常は標準的な装置に対して設置場所や予算等の関係で限定された中で検討せざるを得ない。

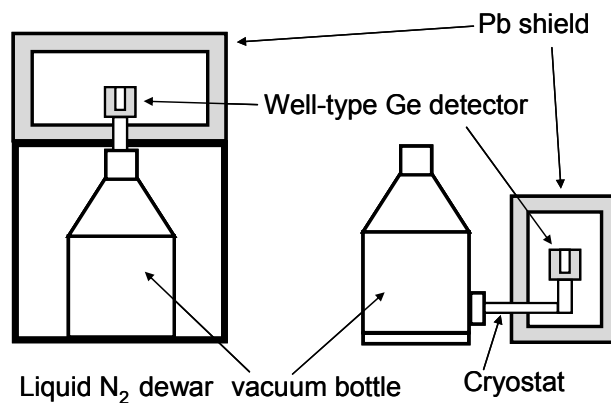
放射線には、アルファ線 (α 線)、ベータ線 (β 線)、ガンマ線 (γ 線)、中性子線等があるが、本研究においては環境中のガンマ線に焦点を当てる。その理由は、地質調査総合センターにおいては、湖沼・海洋などの堆積環境解明の一環としてこれまで底質の堆積速度を鉛-210法によって算出してきており、それには井戸型ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ放射線測定システムを用いてきたからである (例えば、金井・池原, 1995; 金井ほか, 1995; 1997; 1998a, b; 2000; 2002; 金井・井内, 2004)。今回、ガンマ線計測のための放射線検出器を更新して、低レベル測定を目指した新たな測定システムを立ち上げた。測定においては検出器の特性が重要であるが、本研究で使用されている井戸型検出器の特性に関する研究は僅かしか無く (静間ほか, 1989; 1991; 金井, 1993)、詳細な報告がほとんどなされていない。そこで、本報では地質調査総合センターにおける更新機器を一例にして、その特性ならびに従来の機器との違いを検討した結果について報告する。

また、折しも 2011 年 3 月 11 日の東日本大震災及び直後の津波による東京電力 (株) 福島第一原子力発電所の原子炉事故によって、大量の人工放射性物質が環境中に放出された (例えば、TEPCO, 2011; 原子力災害対策本部, 2011; IAEA, 2011)。その総放出量は莫大で、ヨウ素-131 (I-131) が約 1.6×10^{17} Bq、セシウム-137 (Cs-137) が約 1.5×10^{16} Bq と推定されている (内閣官房内閣広報室, 2011)。その結果、本システムにおいて

もそれによる検出器の汚染が観測されたので、その結果についても報告する。

2. 実験装置

従来のガンマ線検出システムは、(1) 米国 ORTEC 社製井戸型半導体検出器 (GLW-140230-S) と鉛直型のクライオスタットで、遮蔽体 (鉛 100 mm・カドミウム 1.5 mm・無酸素銅 6 mm・アクリル 5 mm・鉛 50 mm・無酸素銅 5 mm) を縦型に配置をしたシステム、(2) 米国 ORTEC 社製井戸型半導体検出器 (GWL-120230-S) と J 型のクライオスタットで、遮蔽体 (鉛 115 mm・鉄 48 mm・カドミウム 2 mm・無酸素銅 20 mm・アクリル 5 mm) をデュアー瓶の横に並列に配置したシステムであった (金井ほか, 1995; 1997)。検出器と遮蔽体の配置の概要を第 1 図に示した。システム (1) は、建屋の 3 階にある 24 時間空調のある電磁シールドされた部屋に設置され、システム (2) は建屋の 1 階にある通常の昼間のみ空調される部屋 (現在は連続空調中) に設置されていた。本研究では (2) のシステムを更新しており、それは (3) 米国 ORTEC 社製井戸型半導体検出器 (GWL-120-16-LB-AWT-HJ-S) と J 型のクライオスタットの組み合わせで、遮蔽体とその配置はシステム (2) と同じである。両者の違いの一つは、信号を処理するプリアンプをクライオスタットの検出器部分から離して外付けとした (-HJ のオプション) ことにある。当然のことながら、検出器のあるエンドキャップとクライオスタット部分に使用されるアルミニウム、ステンレス、無酸素銅などは、可能な範囲でウラン・トリウム・RI などの混入の少ない極低バックグラウンド仕様の材質を使用するようにしている (-LB-AWT のオプション)。また、検出器の井戸の大きさは、これまでの試料容器 (ナルゲン社製 10 ml 遠沈管 3119-0010, PPCO) を考慮して内径 16 mm、深さ 40 mm としている。



第 1 図 井戸型検出器と遮蔽体との関係を示す概念図。
Fig.1 Outline of cryostat of well-type Ge detector and lead shield.

検出器の検出効率は主に Ge 結晶の大きさに依存するが、今回のシステムの検出器は前回と同様で、結晶の大きさは 120 ml, 相対効率が 20 % 以上の特性を有している。

3. 測定試料

実試料の定量測定においては、濃度既知の標準物質との比較で定量を行っており、標準物質が重要である。ウラン系列核種の定量用には NBL (New Brunswick Laboratory) の counter calibration sample を珪砂で希釈し、あわせて地質試料における自己吸収を想定して酸化第二鉄試薬 (和光純薬特級) を 5 %Fe₂O₃ になるように混合し、0.005 %U (50 ppmU), 0.05 %U (500 ppmU) などの濃度に調製した。トリウム系列核種の定量用には、NBL analyzed sample No.82 Th ore (Th 0.02 %, U 0.0008 %) を使用した。堆積速度算出用にはセシウム-137 (Cs-137) も使用するので、NBS (National Bureau of Standards) 製の湖底堆積物 4354 (使用時の Cs-137 濃度: 3.35x10⁻² Bq/g) 及び河川堆積物 4350B (使用時の Cs-137 濃度: 1.48x10⁻² Bq/g) を使用した。同時測定するカリウムには、塩化カリウム試薬 (和光純薬特級) を用いた。これらは、試料測定に使用する 10 ml 容量のナルゲン社製遠沈管 (3119-0010, PPCO) に一定量 (例えば、1 g, 3 g, 5 g, 7 g, 9 g, 12 g, 15 g など) 採取し、キャップで封入して、ウラン系列核種では約 1 ヶ月かけて放射平衡に達してから放射線測定を行った。

点線源を用いた実験では、Na-22 (Amersham International Ltd. 社 プラスチック密閉線源: 使用時は約 318 Bq) を試験管状の遠沈管につるし、点線源の高さを変えながら放射線の測定を行った。

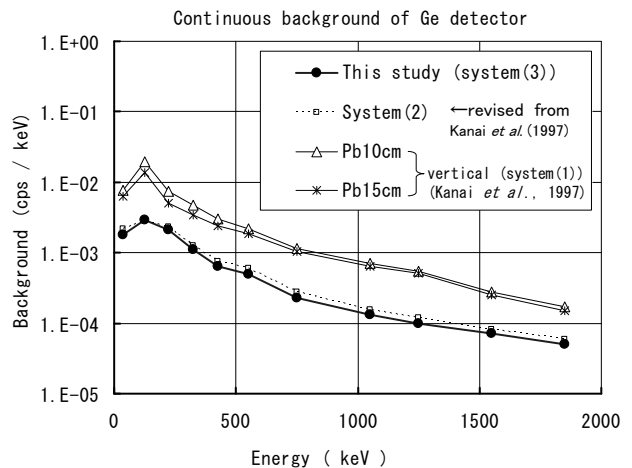
4. 結果と考察

4.1 バックグラウンドの変化

今回のシステムでは、遮蔽体そのものは更新前の (2) のシステムと同じなので、バックグラウンドの変化は、更新した検出器固有のバックグラウンド特性そのものである。第 2 図に、これまでのシステム (1) 及び (2) と本研究のシステム (3) での、ガンマ線スペクトルの連続部分における 25-50 keV, 100-150 keV, 200-250 keV, 300-350 keV, 400-450 keV, 500-600 keV, 700-800 keV, 1000-1100 keV, 1200-1300 keV, 1500-1600 keV, 1800-1900 keV の平均バックグラウンド計数率の変化を示した。連続部分は、入射ガンマ線による結晶内のコンプトン散乱によって生じており、バックグラウンドのガンマ線量の他にも検出器の結晶の有感部容積にも依存している。金井ほか (1997) でも報告しているが、(1) の鉛直型で遮蔽鉛の厚を 10 cm, 15 cm としたものと比べ、J 型に配置したもの (システム (2) 及び (3)) では、連続バックグラウンドの大幅な低下が認められている。

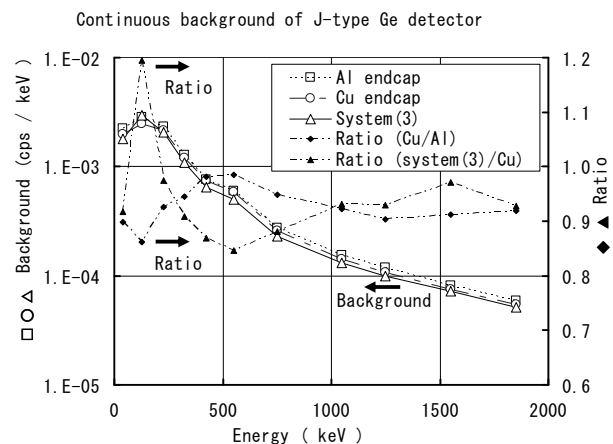
金井ほか (1997) の第 4 図で示したシステム (2) のバックグラウンド値は、計算ミスにより 1/2 の大きさとなっていたのをここに訂正し、再度第 2 図に掲載する。更新システム (3) では、遮蔽体がシステム (2) と同じなので、バックグラウンドもシステム (2) とほぼ同じであるが、詳細に見ると幾分低い傾向にある。この僅かな変化は、更新した検出器固有の特性と推定される。

また、システム (2) においては、検出器のエンドキャップの材質をアルミニウムから無酸素銅に交換した時期があったが、その詳細結果はこれまで報告がなかった。そこで、エンドキャップの材質によるバックグラウンドの比較を第 3 図に示したが、無酸素銅への交換で連続バックグラウンド値はアルミニウムの時の比で 0.86-0.99



第 2 図 各種放射線測定システムにおける連続バックグラウンド計数率の変化。

Fig.2 Continuous background count rate of various radiation measuring systems.



第 3 図 Ge 検出器エンドキャップの材質 (Al, Cu) の違いによるバックグラウンド計数率。

Fig.3 Background count rate of Ge detectors using Al and Cu endcaps.

に低下した。また、バックグラウンドピークもかなり減少して検出限界以下となったものも多く、第1表に示されるようにアルミニウムの時に有意のピークを示したウラン系列のPb-210, Pb-214, Bi-214, トリウム系列のPb-212, 及びK-40は、無酸素銅の使用によりPb-214とK-40のみに減少し、強度も低下した。この結果から、

不純物の少ない無酸素銅を材質とすることで、バックグラウンドが低減できることが判明した。

システム(3)の更新したGe検出器のエンドキャップでは、井戸の部分は高純度アルミニウムで、外壁も高純度アルミニウムを使用している。このため、ウラン系列のPb-214, Bi-214のピークは検出されたが、K-40のピークは検出されなかった。また、システム(2)と比べ幾分バックグラウンドが低下傾向にあるが、詳細に見ると、無酸素銅の連続バックグラウンドと比べ、100 keVあたりでは良くなかった。しかし、他のエネルギー領域では0.85-0.97と良好な低下を示した。これは検出器素材の違いや電気ノイズの相違などによるものと考えられる。

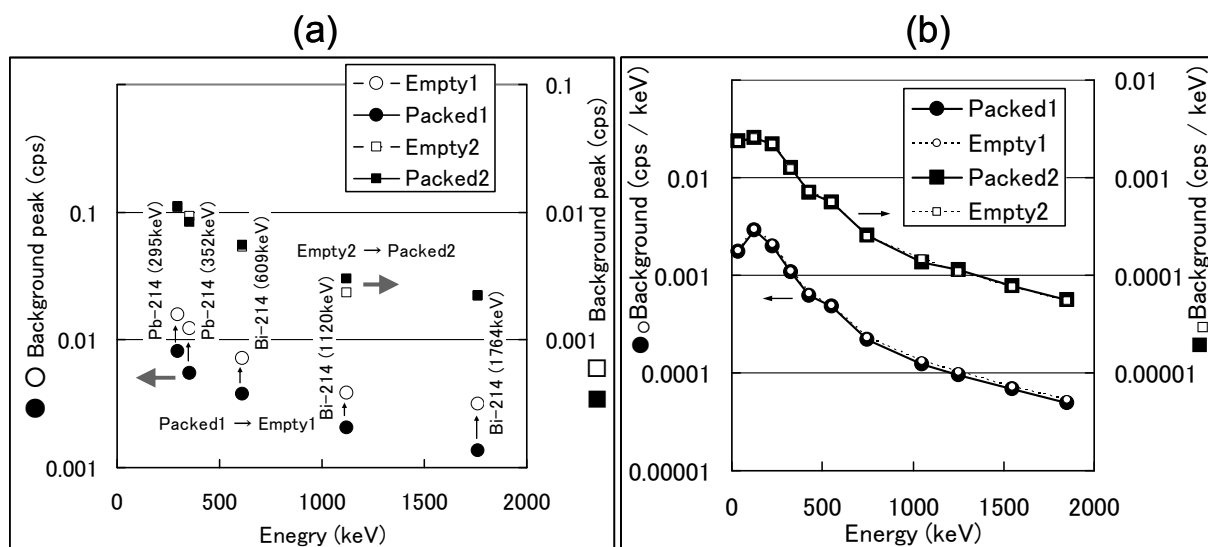
また、空気中のラドン・トリウム起源のバックグラウンドもあるので、これを低減するために、遮蔽体内の空間を小さくする工夫や測定室内を窒素ガス置換する工夫(左合・五十棲, 1987; 高橋ほか, 1989; 静間ほか, 1989)がある。今回のシステム(3)では、遮蔽体内に発泡スチロールを充填材として詰めて検討を行い、その結果を第4図に示した。図の(a)はバックグラウンドピークの変化であり、(b)は連続部分の変化である。

何も入れずに密閉した状態での測定時(empty2)と、その後に充填材を入れて測定した状態(packed2)とでは、大きな相違は認められなかったが、充填材を入れて測定した(packed1)後に充填材を取り出して測定した場合(empty1)には、明らかな増加が認められた。これは、ラドンの半減期が3.8日であることから、数日密閉しておくで遮蔽体内で減衰してしまうため、長らく密閉した後の影響は小さいが、ドアを開閉することによって外気

第1表 各種エンドキャップにおけるバックグラウンドピーク (GWL-120230-S).

Table 1 Background peaks in various endcaps (GWL-120230-S).

nuclides		endcap :		Al	Cu	Al (this study)
		measurement time(s) :		767666	500738	597033
				BG940527	BG990127	BG091225
		energy (keV)				
Pb-210	U	46.5		1.8E-02	< 1.4E-02	< 1.4E-02
Th-234	U	63.29		< 1.6E-02	< 1.4E-02	< 1.3E-02
Ra-226	U	186.18		< 1.9E-02	< 2.2E-02	< 2.0E-02
Pb-212	Th	238.63		2.8E-03	< 1.5E-03	< 1.2E-03
Pb-214	U	295.22		5.2E-03	4.7E-03	1.1E-02
Ac-228	Th	338.7		< 3.5E-03	< 4.2E-03	< 3.6E-03
Pb-214	U	351.99		6.4E-03	2.8E-03	9.3E-03
Tl-208	Th	583.14		< 1.1E-03	< 9.5E-04	< 8.0E-04
Bi-214	U	609.31		4.0E-03	< 9.9E-04	5.3E-03
Cs-137	Cs	661.64		< 2.6E-04	< 3.4E-04	< 2.4E-04
Bi-212	Th	727.27		< 3.2E-03	< 3.9E-03	< 3.3E-03
Tl-208	Th	860.37		< 4.2E-03	< 4.8E-03	< 4.2E-03
Ac-228	Th	911.2		< 6.4E-04	< 7.5E-04	< 6.7E-04
Ac-228	Th	968.8		< 1.0E-03	< 1.3E-03	< 1.0E-03
Bi-214	U	1120.29		2.1E-03	< 1.8E-03	2.4E-03
K-40	K	1460.75		3.7E-03	1.7E-03	< 1.3E-03
Bi-214	U	1764.5		2.1E-03	< 1.4E-03	2.2E-03



第4図 充填材の有無によるバックグラウンド計数率の変化。

(a) ピーク部分 (b) 連続部分

Fig.4 Change of background count rate by packing materials in a shield.

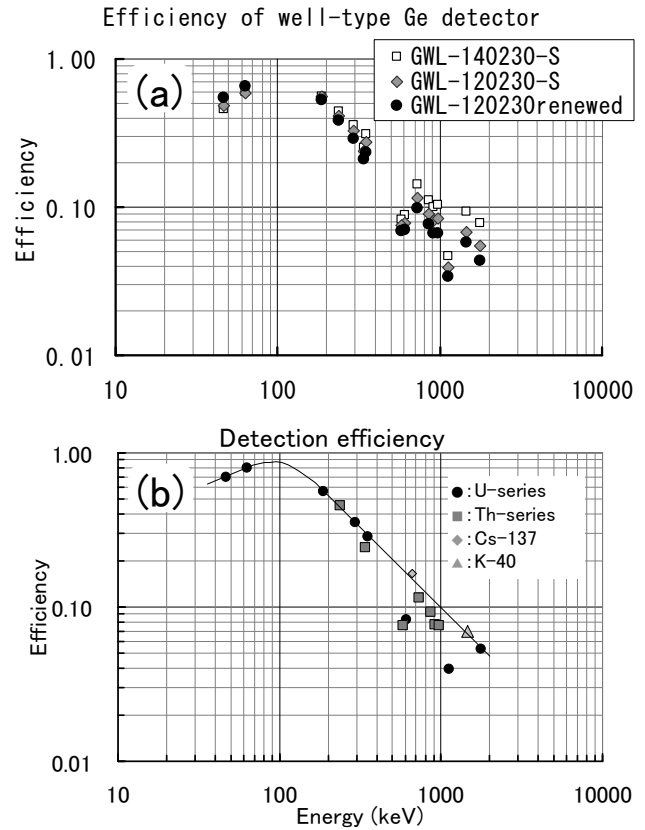
(a) peak counts (b) continuous counts

が遮蔽体内に入り、ラドンの影響が出たものと考えられる。図の(b)で示したピークを含んで計算される連続バックグラウンド部分でも packed1 と empty1 とで差が認められた。これらのことから、空気中でのラドン及びその娘核種などが遮蔽体内に入り込み、バックグラウンドを高めている可能性が示された。後で記述するように、遮蔽体の壁面や発泡スチロールにラドンなどからの娘核種が吸着している可能性もあるので最善とは一概には言えないが、試料の出し入れに伴う遮蔽体内の空気の入れ換え量を減らしてバックグラウンドを低減化、かつ、測定開始までの待ち時間を減らして測定の迅速化をするためには、遮蔽体内を非放射性物質等を用いて不要な空間を減容することは、有効策の一つと考えられる。

4.2 検出効率

放射線の絶対測定においては、検出器のピーク効率が不可欠であり、同軸型検出器などではピーク効率を求める種々の方法が検討され、求められている(武田ほか, 1979; 中村ほか, 1983; 水本ほか, 1987; 高野, 1987; 文科省, 1992; セイコー・イーゲーアンドジー, 2009)。金井ほか(1995; 1997)では、井戸型 Ge 半導体検出器の効率の比較にウランの標準試料 5g を測定したスペクトルを使用し、本来の 500 ppmU=6.22 Bq/g との比較で検出効率を算出していた。すなわち、この場合には、試料厚みの効果を含んだ検出効率であり、5 g の試料高さ 24 mm における検出効率として報告した。今回は、新システムの検出効率のエネルギー依存性を第 5 図 (a) にまとめて比較すると同時に、試料量を 0 g に外挿して井戸の底に面線源を置いたと仮定した絶対検出効率を第 5 図 (b) に示した。Bi-214 の 609 keV や 1,120 keV の検出効率が効率曲線から外れて低い値となっているが、これはガンマ線のサム効果によるものである(小村, 2006b)。サムピークというのは、検出器に同時に入射するために合算したエネルギーの放射線が検出されるピークを言い、井戸型のように検出効率が高いとサムピークが生じやすい(文科省, 1992)。

高エネルギー領域(例えば, 1.33 MeV)では、検出器の結晶が大きく相対効率の高い GWL-140230 (結晶容量: 140 cc) が最も検出効率が高く、今回更新した結晶の大きさ 120 cc の GWL-120230 が一番低かった。しかし、低エネルギー側領域では逆に一番高くなっていた。Ge 検出器の相対効率は、Co-60 の 1.33 MeV における 3 インチφ×3 インチ NaI 検出器と比較した相対的な効率を言い、検出器の有感部容積が大きいほど多重相互作用による光電ピーク検出に有利となるため、高効率で、かつ高エネルギー領域における効率のエネルギー依存性の傾きが小さいことが示されている。更新検出器が低エネルギー領域で幾分効率が高くなっている理由としては、エンドキャップの材質が銅に比べて透過性の良



第 5 図 各種井戸型 Ge 検出器の検出効率。

- (a) システム(1)-(3)における検出効率 (24 mm の試料高を想定)
- (b) 更新したシステム(3)で、面線源を仮定した絶対検出効率

Fig.5 Detection efficiencies of well-type Ge Detectors.

- (a) system (1)-(3) (assuming sample height as 24 mm)
- (b) system (3) (absolute efficiency assuming a plane source)

いアルミニウムを使用しているためと考えられるが、プリアンプが外付けで検出器から離れているために低エネルギーノイズや電子回路のノイズを拾う割合が減ることも関係するかも知れない。堆積物からの放射線測定により堆積速度を算出する場合には、主として Pb-210 (46.5 keV), Pb-214 (352 keV), Cs-137 (661.6 keV) からのガンマ線を利用するが、本放射線測定システムで低エネルギーの Pb-210 (46.5 keV) の検出効率が高いことは、測定に有利である。

4.3 試料高さの効果

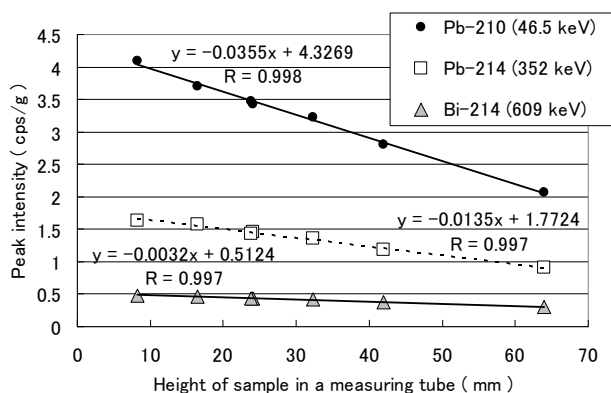
実試料では試料量変動することもあり、測定容器内の試料高さが異なると幾何学的な配置や試料厚みの効果などが働いて検出効率に変化するため、定量するためにはその補正を必要とする。これらの補正法は多種多様であり、確かさ、容易さ、汎用性などに関して課題も多く、

井戸型でなく同軸型の検出器に関してさまざまな検討がなされている(例えば, 文科省, 1992; Noguchi and Sato, 1999; 野口ほか, 2000; 2001). そこで, 本研究で使用する井戸型検出器において, 比較的簡便かつ実用的な方法として, 実際の容器における試料高ささと計数率の変化を検討し, その関係式から補正することを試みた.

同一ウラン濃度であれば放射線強度は一定 (500 ppmU=6.22 Bq/g) であるが, 同一ウラン濃度でも測定容器に封入する試料量を変化させると単位重量あたりの計数率 (cps/g) は変化するので, 試料量を 1 g から 15 g まで変化させて計測し, 試料 1 g あたりの計数率を求めた. 試料容器の底からの試料上面までの高ささと各ピークの計数率 (cps/g) の関係を, ウラン系列の Pb-210 (46.5 keV), Pb-214 (352 keV), Bi-214 (609 keV) を例にして第 6 図に示した. 相関係数はいずれも 0.997 以上であり, 一次関数近似が可能である. また, この傾きはピークに依存し, かつ, 濃度にも依存して変化するが, ある高さを基準とした相対的な傾きは, 濃度に依存しない値となる. そこで, 約 5 g の試料を想定してその試料高さ 24 mm を基準として, それが 1 mm 増えたときの試料 1 g あたりの相対的な強度変化の割合を求め, 第 7 図に核種毎に示した. 核種によって変化の程度は異なるが 1 mm の高さ変化に伴い, 最大でも約 1 % 程度のピーク強度の変動が見られることが分かる. このため, 実試料の測定においては, 試料高さの補正を mm 単位で行うか, 高さを正確に揃える必要がある (金井, 1993).

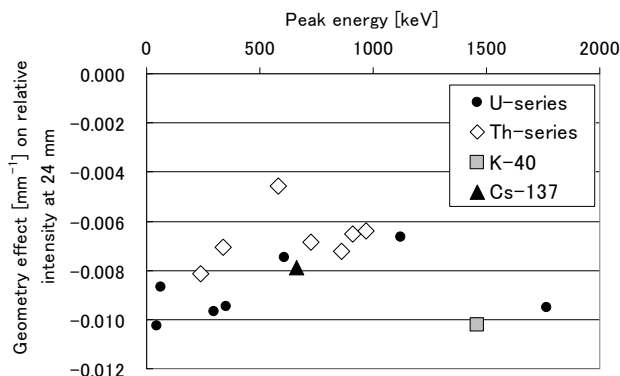
4.4 点線源における試料位置と効率の関係

ガンマ線検出器の中でも, 同軸型の Ge 検出器については検出効率を求める手法がいくつか報告があり定式化もされているが (例えば, 文科省マニュアル (文科省, 1992) やメーカーによる解析ソフト (セイコー・イージー



第 6 図 試料高さによる単位重量あたりの計数率の変化 (500 ppm U).

Fig.6 Changes of counting rate per unit weight with sample height using standard samples (500 ppm U).



第 7 図 試料高さによる計数率の相対変化率. 24 mm を基準として, それから 1mm 高さが変化したとき, 単位重量あたりの計数率の相対的な変化率を示す.

Fig.7 Relative change of counting rate per unit weight with sample height (normalized at 24 mm height).

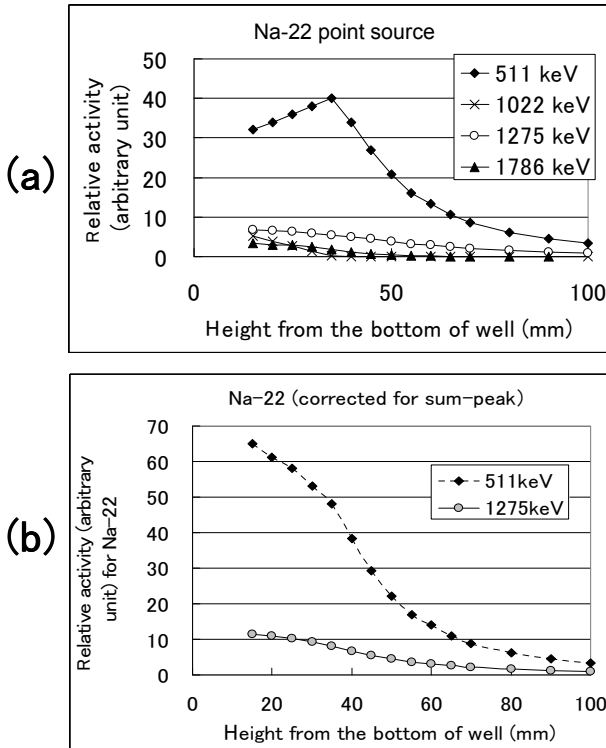
アンドジー, 2009)), 井戸型 Ge 検出器の検出効率に関する詳細な検討はほとんどなく (静岡ほか, 1991), 試料の形状に関する検討はなされていない. そこで, 点線源 (Na-22) を用いて井戸内の高さ位置と検出効率との関係を検討し, その結果を第 8 図 (a) に示した.

Na-22 は陽電子壊変 (β^+ 壊変) する核種で, 放出する γ 線は 1,275 keV と β^+ 壊変に伴う 511 keV の消滅 γ 線である. しかし, 実際に観測される γ 線には, これら他に 1,022 keV と 1,786 keV のエネルギーの γ 線がある. これらはそれぞれ 511+511, 1,275+511 のサムピークである. サムピークを補正して効率を求める方法には複雑な計算がありプログラム化もされているが (文科省, 1992; セイコー・イージーアンドジー, 2009), 井戸型検出器に適用できるものはない (小村, 2006b). ここでは簡単のため, サムピークを元の γ 線に分割して考え, 511 keV, 1,022 keV, 1,275 keV, 1,786 keV でのそれぞれの検出効率を第 5 図の関係から補正して, 元の γ 線強度 total の変化を計算した. すなわち, γ 線の強度を [] で, 検出効率補正を行ったものを []* で表すと, 以下のようになる.

$$\text{Total [511]} = [\text{511}] + [\text{1022}]^* \times 2 + [\text{1,786}]^*$$

$$\text{Total [1,275]} = [\text{1,275}] + [\text{1,786}]^*$$

このようにして, 井戸の中に点線源を置いたときの本来の γ 線強度推定値の変化を第 8 図 (b) に示した. この結果から, 井戸の深さの半ば過ぎの 30 mm あたりから急激な低下が観察されることがわかった. 井戸型 Ge 検出器においても線源と検出器との立体配置関係が重要であり, 井戸型では線源をすっぽりと囲むために検出効率が高いとはいえ, 井戸の上部が開いているためにその影響が出ているものと考えられる. また, 点線源が井戸を出てより高い位置になると, 下に凸となる変化を示す.



第 8 図 Na-22 点線源のピーク強度と Ge 検出器の井戸内の位置の関係。

- (a) 測定されたピーク強度
- (b) サムピークの補正を行ったピーク強度

Fig.8 Relationship between the peak intensity of Na-22 point source and its position in a well.

- (a) observed peak intensity
- (b) peak intensity corrected for sum-peaks

4.5 井戸型検出器のモデル計算

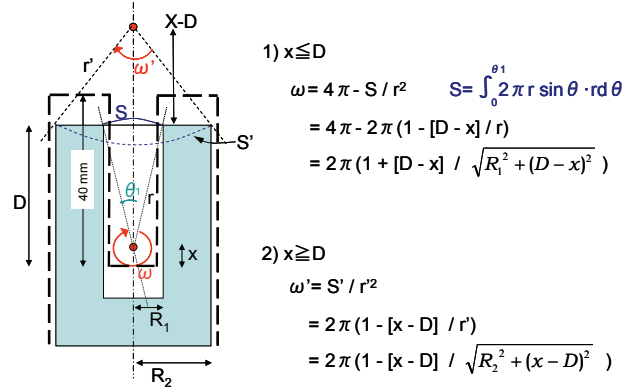
そこで、井戸の上部の立体角の影響を精査するために、第 9 図に示した井戸型検出器のモデルを考え、井戸の中心軸上に置かれた点線源を検出器の結晶が覆う立体角の変化を計算した。井戸の上部の穴を覆う部分球面積 S をその球の半径 r の二乗で除したものがその穴の立体角になるので、結晶の半径を R_2 、穴の半径を R_1 、井戸の底からの高さを x 、結晶上面までの高さを D とすると、井戸の中に点線源がある場合の Ge 結晶側の立体角 ω は、

$$\begin{aligned} \omega &= 4\pi - S / r^2 \\ &= 4\pi - 2\pi(1 - [D - x] / r) \\ &= 2\pi(1 + [D - x] / \sqrt{R_1^2 + (D - x)^2}) \end{aligned}$$

同様に、井戸の外では Ge 結晶の上面を覆う部分球面積 S' をその球の半径 r' の二乗で除したものが立体角 ω' となるので、

$$\begin{aligned} \omega' &= S' / r'^2 \\ &= 2\pi(1 - [x - D] / r') \\ &= 2\pi(1 - [x - D] / \sqrt{R_2^2 + (x - D)^2}) \end{aligned}$$

となる。検出効率が立体角に比例すると考えると、検出



$$\begin{aligned} 1) x \leq D \\ \omega &= 4\pi - S / r^2 \quad S = \int_0^{\theta_1} 2\pi r \sin \theta \cdot r d\theta \\ &= 4\pi - 2\pi(1 - [D - x] / r) \\ &= 2\pi(1 + [D - x] / \sqrt{R_1^2 + (D - x)^2}) \\ 2) x \geq D \\ \omega' &= S' / r'^2 \\ &= 2\pi(1 - [x - D] / r') \\ &= 2\pi(1 - [x - D] / \sqrt{R_2^2 + (x - D)^2}) \end{aligned}$$

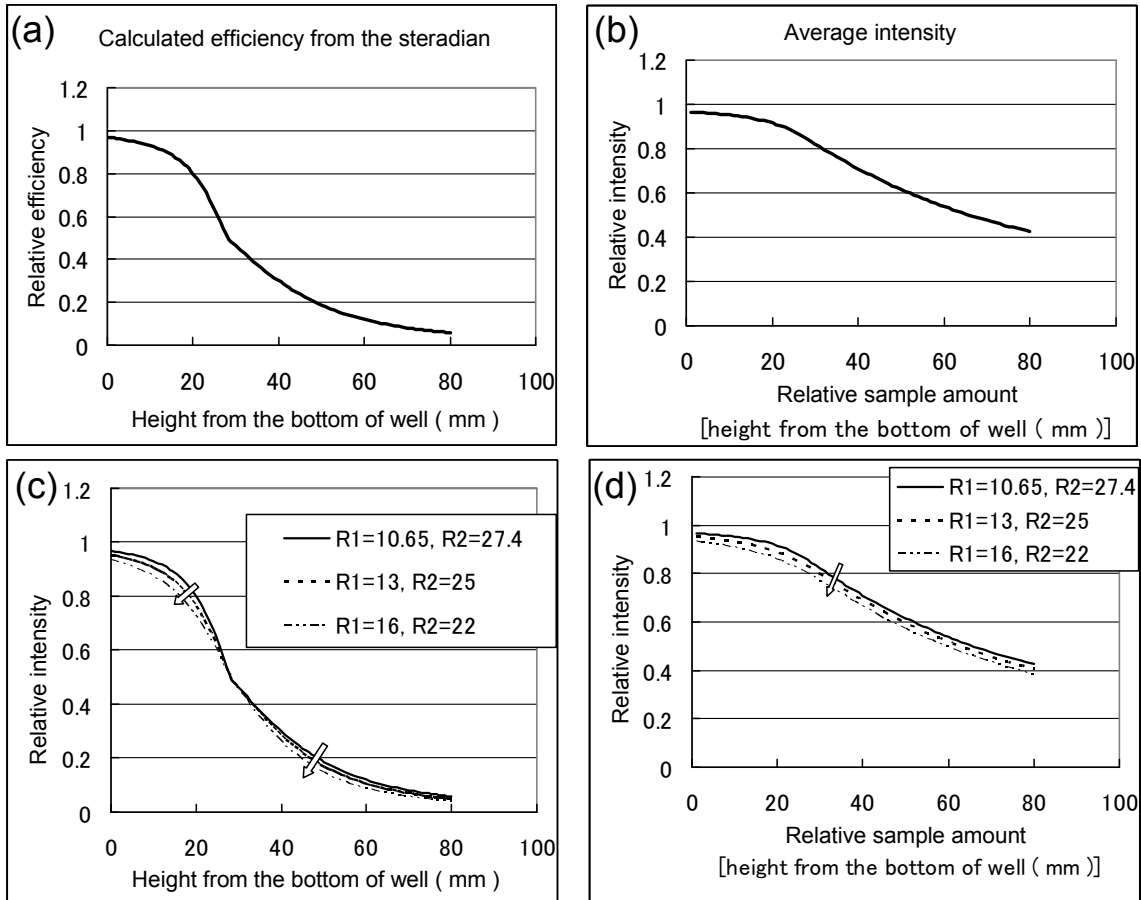
第 9 図 井戸型検出器における点線源からの放射線検出のモデル。

Fig.9 A model for the detection of radiation from a point source by a well-type Ge detector.

効率は $(\omega / 4\pi)$ となるので、それを実際の検出器の結晶サイズ ($R_1=10.65$ mm, $R_2=27.4$ mm, $D=28$ mm) を用いて計算し、井戸の深さ x に対する変化を示したものが第 10 図 (a) である。外見上の井戸の深さが 40 mm だが、結晶の井戸の深さがその 7 割であることに注意しなければならない。点線源位置が井戸の底から 15 mm 前後から急激な低下となっている。第 10 図 (b) は、実試料の場合を想定して、深さ x まで点線源の積み重ねと考えて積算し、その数で割って全体の効率を平均化したもので、効率の補正係数のようなものである。これは、点線源の場合よりも幾分遅れて、20 mm 前後からより大きな減少傾向を示している。

このようにして得られたモデル計算の第 10 図 (a) と実際の点線源を用いた実験の第 8 図 (b) とを比べると、その変化の方向は概ね類似している。実際は、有限な大きさの検出器では端の部分放射線が通過してしまうために有感容量が減少し検出割合が低下するので、第 10 図 (a) の変化はより緩やかな方向になると考えられる (第 10 図 (c) 参照)。データが異なるので両者の直接比較は困難であるが、結晶の井戸の深さ 28 mm 位置での値で規格化して比較すると、第 11 図に示したように井戸の外では両者は近似的に良い一致を見せているが、井戸の中では点線源の検出効率はモデルよりもかなり低下している。これについては、ここで検討したサムピーク以外にも他のサムピークが有るのか、それともここで用いたサムピーク補正法の不具合からか再検討する必要がある、それについては今後の課題である。

実試料に類似させたモデル計算の第 10 図 (b) 及び有感容量を考慮した第 10 図 (d) は、標準試料で求められた第 6 図と比べると、試料の高さに対して直線的な減少とはなっていない。その変化率は 14 mm あたりまではその高さ位置で 1 mm あたり 0.3 % 以下となっており、



第10図 モデル計算結果.

- (a) 点線源の試料位置とピーク強度の関係
- (b) 点線源を積算して試料高さで平均化したピーク強度の関係
- (c) Ge 結晶の実効部分の大きさを変えた時の、点線源の試料位置とピーク強度の関係
- (d) Ge 結晶の実効部分の大きさを変えた時の、試料高さで平均化したピーク強度の関係

Fig.10 Results of model calculations.

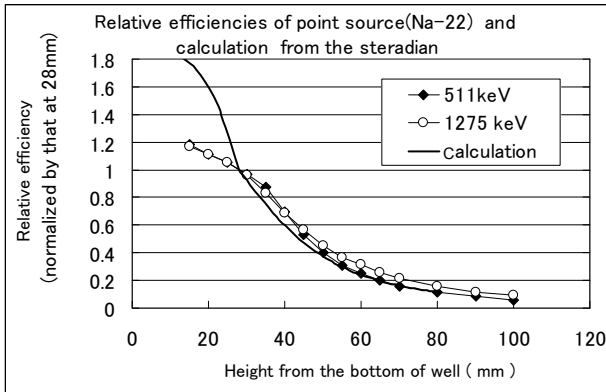
- (a) relationship between the position of point source and peak intensity
- (b) relationship between the height of accumulated point sources and the average of accumulated peak intensities
- (c) relationship between the effective size of Ge crystal and the peak intensity
- (d) relationship between the effective size of Ge crystal and the average of accumulated peak intensities

実試料の1 mmあたりどの高さでも約1%と比べるとかなり小さい。25 mmから40 mmにかけてその高さ位置で1 mmあたり約1%の変化率になるが、その後は1%弱~0.6%に低下している。

更に、40 mm高さの試料での検出効率は、井戸の底の点線源(高さ=0)での値と比べモデルでは30%程度の低下、実試料の効率変化(第6図参照)では約33%の低下と比較的近似しているが、よく利用される24 mm位置での検出効率は実試料では20%の低下であるがモデルでは8%前後の低下に過ぎない。このため、井戸の立体角のみに注目したモデルでは検出効率の高さ依存性の十分な説明が困難である。

以上のことから、井戸の内部に置かれた実試料では、

全体の検出効率が自己吸収と立体角の影響の積となっていくことから、立体角の影響因子よりは試料の厚みによる自己吸収に起因する検出効率の影響因子の方が大きく作用していると考えられる。ガンマ線の自己吸収は、試料の組成やエネルギーの大きさなどで決まる減衰係数に依存するが、その定性的傾向は試料の密度が厚くなるほど、低エネルギーであるほど自己吸収が大きくなり見かけの効率は低下する。試料高さによる検出効率の変化とその変化率は、第7図で示したように見かけ上エネルギー依存性がみられ、低エネルギーのガンマ線で大きいことと矛盾しない。しかし、K-40やBi-214(1,765 keV)でも大きな変化率となっており、この原因については今後の課題である。



第 11 図 点線源 (Na-22) の結果とモデル計算との比較 (28mm 位置での値で規格化)。

Fig.11 Comparison of the experimental data using point source (Na-22) and the model calculation (normalized at 28 mm height).

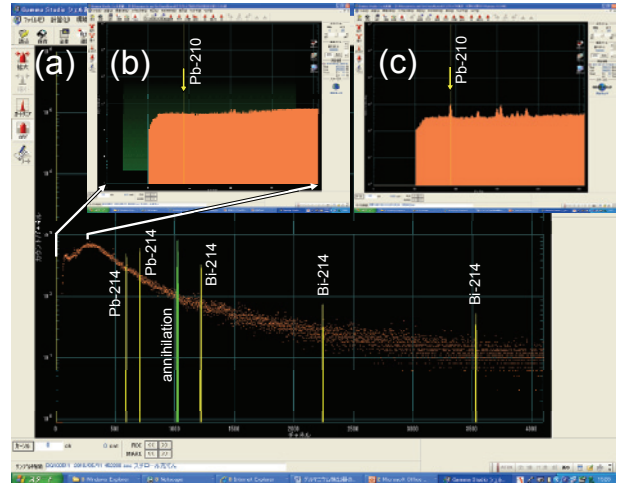
4.6 実試料への適用

以上のような検討結果から、本研究でのシステム (3) におけるバックグラウンドや検出器の特性がほぼ把握された。試料の測定においては、試料量をできるだけそろえるか、試料量の変化を補正するために試料高さを 1 mm 単位で正確に計測することと、試料の組成にできるだけ近い標準試料を用いて自己吸収の影響を近似することが重要である。これらの要件を踏まえて放射線測定を行えば、環境中のウラン・トリウム等の放射性核種の測定や堆積物の堆積速度の算出が可能となる。

本システムのバックグラウンドスペクトルを第 12 図 (a) に示したが、Pb-210 のピークが確認されていない (第 12 図 (b))。バックグラウンドスペクトルに Pb-210 のピークが計測されたために検出限界が 0.12–0.18 Bq/g と算出された測定装置では、ピーク値がそれ以下の実試料に対して定量困難である。本システムで Pb-210 放射能濃度が 0.07 Bq/g 程度の実試料を計測したところ、ピークの検出と共に定量も行うことができた (第 12 図 (c))。この際の検出限界は 0.01 Bq/g と 1 桁以上検出限界が低く、本システムのようにバックグラウンドピークを抑えることによって低濃度の堆積物中の Pb-210 測定が可能であることが判明した。

4.7 原発事故による検出器の汚染

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災に続く東京電力 (株) 福島第一原子力発電所の原子炉事故において、その後 3 月 16 日にかけて起こったペントや建屋の水素爆発などに伴って大量の放射性物質が環境中に放出された。これらは通常的环境中には存在しない I-131 や Cs-137 などの人工放射性核種で、その総放出量は I-131 が約 1.6×10^{17} Bq, Cs-137 が約 1.5×10^{16} Bq と推定されている (内閣官房内閣広報室, 2011)。つくばにも風に乗って拡散



第 12 図 新システムにおける γ 線スペクトル。

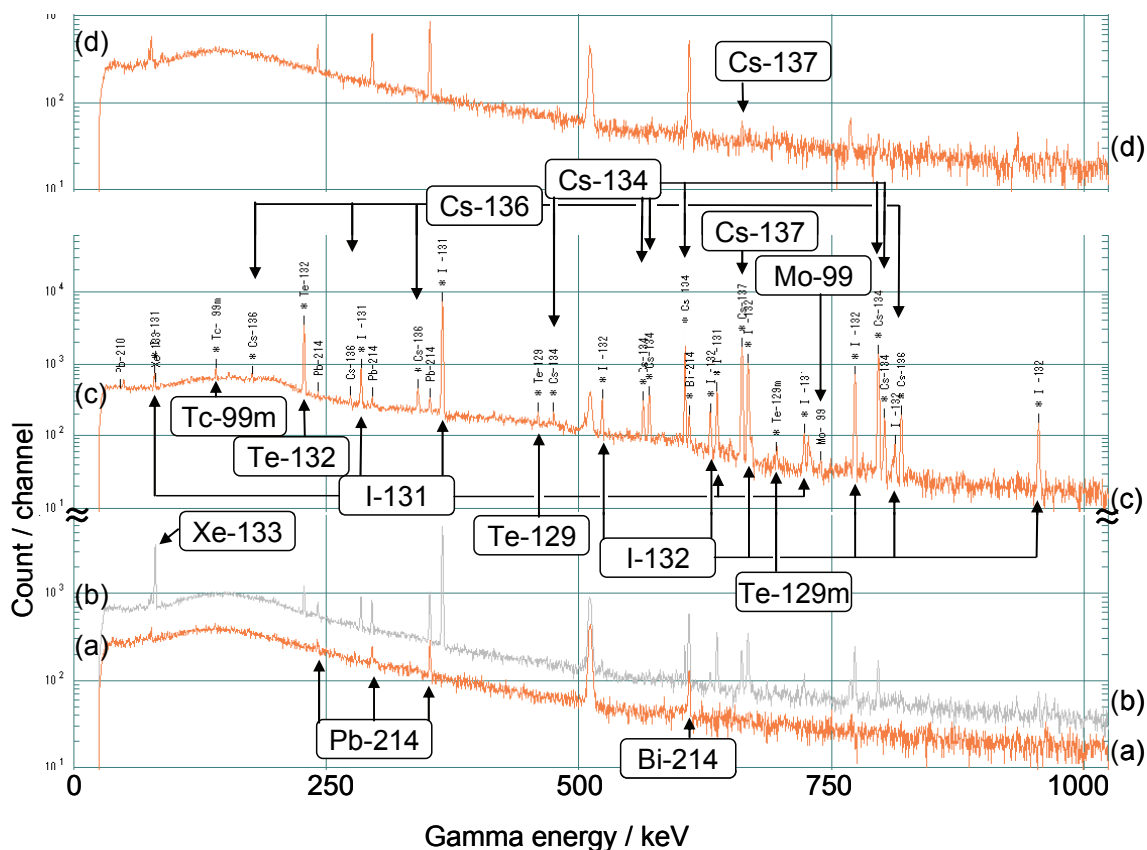
- (a) 本システムのバックグラウンドスペクトル (測定時間 (T) : 約 45 万秒)
- (b) 低エネルギー領域の拡大図
- (c) 実試料における測定スペクトルの一例 (T : 25.5 万秒)

Fig.12 Gamma-ray spectra by a new measurement system. (a) background spectrum (measurement time (T) : about 4.5×10^5 sec) (b) expanded spectrum of lower energy region. (c) an example of sample spectrum (T : about 2.55×10^5 sec)

してきており (AIST, 2011)、本システムのバックグラウンド計測においても幾つかの人工放射性核種が検出された。大気中での放射性核種についての分析結果は別途報告することにして、ここでは検出器の汚染状況とその後現状について報告する。

3 月 11 日の 14 時 46 分の大地震の際には、本システムではバックグラウンド計測を行っていたが、電源遮断により計測は中止された。その後の電源復旧と機器の損壊状況確認で再度バックグラウンドを計測したところ、人工放射性核種のピークが認められた。この間、機器・装置の破損状況把握のために遮蔽体のドアを開閉している。更に続けて計測をしたところ、検出器の汚染状況が明らかとなった。これらのスペクトルの変化を第 13 図 (a)~(c) に示す。

事故前においては、ウラン系列から生じる Pb-214 及び Bi-214 の放射線がバックグラウンドの主体であったが (第 13 図 (a))、事故後においては早期に Xe-133 (半減期 : 5.25 日), I-131 (8.04 日), I-132 (2.28 時間), Te-132 (78 時間), Cs-137 (30.17 年) などが検出された (第 13 図 (b))。その後 Xe-133 は検出限界以下となったが、代わりに Tc-99m (6.02 時間), Cs-134 (2.062 年), Cs-136 (13.16 日), Te-129m (33.5 日), Te-129 (69 分) などが現れ、Cs-137, Te-132, I-131, I-132 など



第13図 検出器のバックグラウンド汚染の例。
 (a) 2011/03/08-11 (T: 246422 sec), (b) 2011/03/17-23 (T: 516500 sec),
 (c) 2011/03/23-25 (T: 174399sec), (d) 2011/06/10-13 (T: 238300 sec)

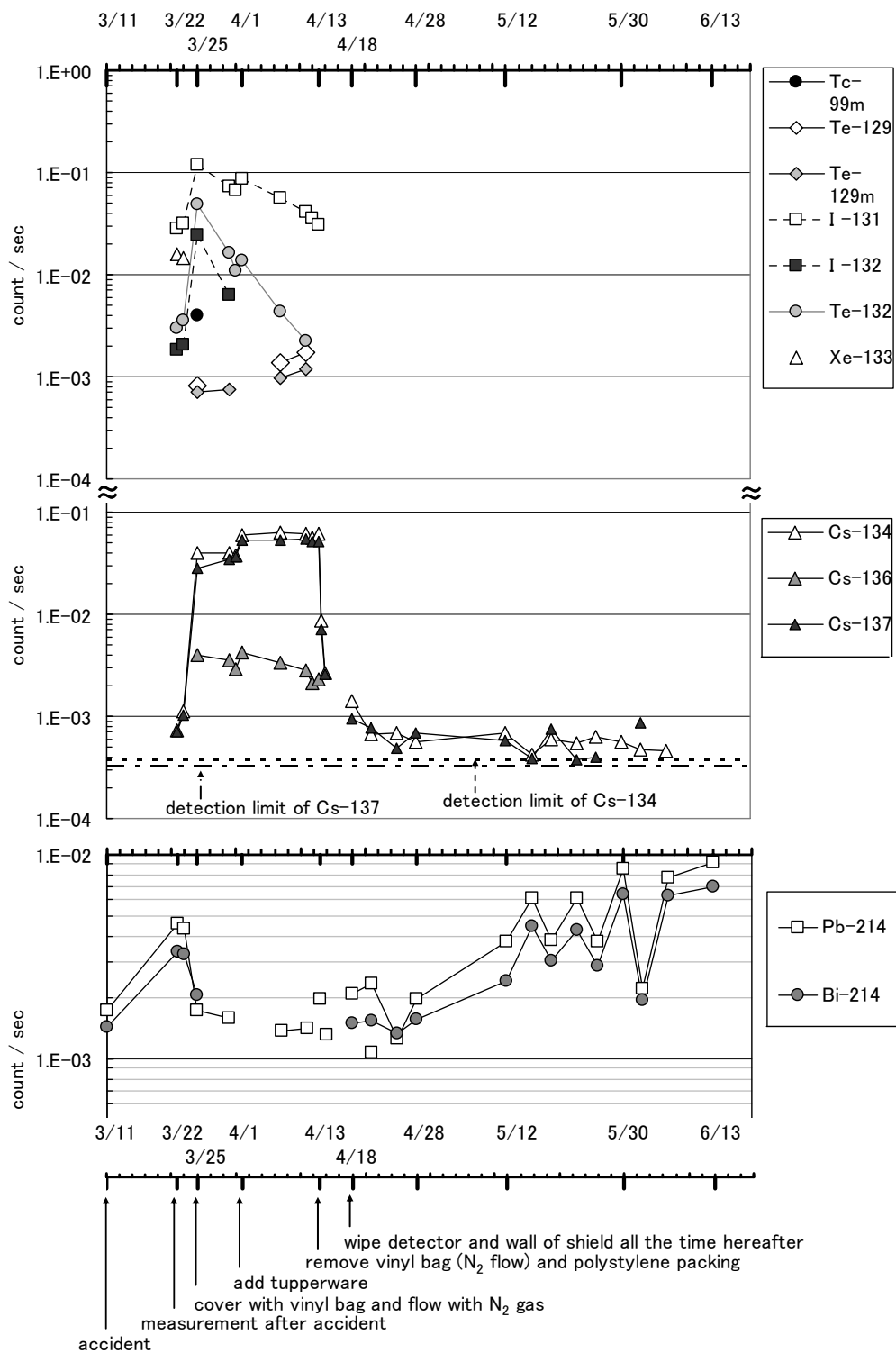
Fig.13 Examples of background contamination.
 (a) 2011/03/08-11 (T: 246422 sec), (b) 2011/03/17-23 (T: 516500 sec),
 (c) 2011/03/23-25 (T: 174399sec), (d) 2011/06/10-13 (T: 238300 sec)

が高計数率で現れるようになった(第13図(c))。この間、実験室にあったビニール袋でGe検出器のエンドキャップを覆ったり、気化した窒素ガスをビニールチューブで遮蔽体内に流すことなどを試みたが、逆にバックグラウンドを高める結果となってしまった。そこで、ビニール類の除去、ならびにラドンの影響を低減化するために遮蔽体内に入れていた発泡スチロール等を除去して、さらに、検出器はエンドキャップがアルミニウム製のため濡れペーパータオルにて、遮蔽体内壁面はアクリル製のためコンタミノンL(和光純薬工業、アルカリ性洗剤)を含む濡れペーパータオルを用いて拭き掃除を繰り返し行った。核種の半減期や大気中放出物の変化もあるかも知れないが、これらの操作によりバックグラウンドピークは大きく低減化され、Te-129m, Te-129, Te-132, I-131, I-132, Cs-136はピークとして検出されないレベルになった。その後は、Cs-134とCs-137とが残ったが、最終的にピークとして検出されないレベルにまでなった。その間の計数率の変化を、第14図に示した。

なお、本研究で汚染として計測された原子炉由来の主な人工放射性核種(下線で表示)に関するデータを以下に列記しておく。核燃料のウラン-235の核分裂生成物としては、100種類もの核種が知られているが、質量数90~100と135~145の核種の収率が高い。

- U (n, f) Xe-133 (5.25 d)
- U (n, f) Mo-99 (66.02 h)
 → Te-99m (6.02 h) ; U (n, f) Tc-99m (6.02 h)
- U (n, f) Te-129m (33.5 d) → Te-129 (69 m)
- U (n, f) Te-131 (25 m) → I-131 (8.04 d)
- U (n, f) Te-132 (78 h) → I-132 (2.28 h)
- U (n, f) Cs-137 (30.17 y)

実験室に置かれたビニール袋や発泡スチロールは静電気を生じて空気中の浮遊塵を吸着しやすく、そのために一つの汚染源になっていたものと考えられ、内容物を除去することでかなりの低減化がなされた。汚染物質の除去が一番良いが、内壁のように交換が困難な場合は洗浄操作によって人工放射性核種の低減化が可能であった。



第14図 除染操作によるバックグラウンドピークの変化。

Fig.14 Change of background peaks by de-contamination treatment.

一方、発泡スチロールの除去後はラドンの娘核種の Pb-214 や Bi-214 のピークが以前よりも幾分増大しており (第14図参照), 4.1章で検討したように, 空気中のラド

ン娘核種の影響が出ているものと考えられる。

最新の状態を第13図 (d) に示したが, 半減期の長い Cs-134 (2.062 y) や Cs-137 (30.17 y) はピークとして

検出されないレベルにまでなったものの、完全に除去されずに幾分残っていることが確認される。また、今後の環境中への放出状況によっては再汚染が発生する可能性もあるので、モニタリングを継続して必要に応じて再度拭き取り清掃をすべきである。特に Cs-137 については、堆積物中の濃度プロファイルから時間の目盛を入れており、このバックグラウンドカウントから誤差を生じる可能性があるため、堆積速度を算出する際には注意しなければならない。

5. まとめ

ガンマ線計測のための放射線検出器を更新して、低レベル測定を目指した新たな測定システムを立ち上げた。本システムの更新機器の特性と従来の機器の特性の違いを種々検討して最適な測定条件を検討した結果、以下のことが明らかとなった。

デュワー瓶と検出器との配列に関しては、横に並列に配置した J 型のクライオスタットが、バックグラウンドの低減に有効であった。また、検出器の素材に不純物の少ない無酸素銅は連続バックグラウンドならびにバックグラウンドピークの低下に貢献している。測定室内の空間を小さくすることも、室内のラドン・トロンからのバックグラウンドを低減することに有効であった。

検出器と試料とのジオメトリーの影響では、核種によって変化の程度は異なるが試料容器において 1 mm の高さ変化に伴い、最大でも約 1 % 程度のピーク強度の変動が見られることが分かった。このため、充填した試料の高さ補正を mm 単位で行うか、全ての試料の高さを正確に揃える必要がある。

点線源を用いた井戸内のジオメトリーと検出効率との関係では、点線源位置だけを考慮したモデル計算では、同様な傾向はつかめたが、実際の計数率の変化を表すことはできなかった。試料自体が厚みを持つことによって生じる自己吸収による検出効率の影響因子の方がはるかに大きいことが判明した。

本システムにおいては、バックグラウンドに鉛-210 が検出されないため、鉛-210 の定量下限が低く、低濃度の堆積物中の鉛-210 測定において良好な測定が可能である。しかし、原発事故によって生じた検出器汚染は、繰り返し洗浄によって低減したものの、Cs-137 の汚染に関しては堆積年代算出の利用において注意が必要である。

謝辞：本研究を行うにあたり、地質情報研究部門天野敦子氏から測定装置に関する貴重な情報を頂いた。また、セイコー・イーザーアンドジー（株）藤岡倫久氏から検出器の詳細情報を取り寄せて頂いた。更に、地質標本館上岡晃氏からは貴重なご意見・コメントを頂いた。ここに記して深く感謝申し上げる。

文献

- AIST (2011) つくばセンター放射線測定結果. 産総研, <http://www.aist.go.jp/taisaku/ja/measurement/index.html> (2011/10/26 確認)
- 原子力災害対策本部 (2011) 原子力安全に関する IAEA 閣僚会議に対する日本国政府の報告書—東京電力福島原子力発電所の事故について—. 平成 23 年 6 月 原子力災害対策本部, http://www.kantei.go.jp/jp/topics/2011/iaea_houkokusho.html (2011/10/26 確認)
- IAEA (2011) Fukushima Nuclear Accident. International Atomic Energy Agency, <http://www.iaea.org/newscenter/focus/fukushima/> (2011/10/26 確認)
- 金井 豊 (1993) 微量環境試料用井戸型 Ge 検出器の効率特性. *Radioisotopes*, **42**, 169-172.
- 金井 豊・池原 研 (1995) 新潟沖大陸棚の Pb-210 及び Cs-137 法による堆積速度. *地調月報*, **46**, 269-282.
- 金井 豊・井内美郎 (2004) 愛媛県西部佐多岬半島の阿弥陀池及び亀ヶ池の堆積速度と堆積環境の変遷. *堆積学研究*, **58**, 93-103.
- 金井 豊・井内美郎・片山 肇・斎藤文紀 (1995) ^{210}Pb , ^{137}Cs 法による長野県諏訪湖底質の堆積速度の見積り. *地調月報*, **46**, 225-238.
- 金井 豊・井内美郎・片山 肇・斎藤文紀 (1997) 低バックグラウンド放射能測定システムによる長野県諏訪湖底質の放射能測定と堆積速度の見積り. *地調月報*, **48**, 277-295.
- 金井 豊・井内美郎・徳岡隆夫 (1998a) 放射性核種を用いた中国 Daihai 湖及び Blackspring 湖の堆積速度測定と堆積環境. *堆積学研究会報*, **47**, 55-70.
- 金井 豊・井内美郎・山室真澄・徳岡隆夫 (1998b) 島根県宍道湖の底質における堆積速度と堆積環境. *地球化学*, **32**, 71-85.
- 金井 豊・井内美郎・徳岡隆夫 (2000) ネパールにおける山岳湖の堆積速度と堆積環境. *地調月報*, **51**, 175-187.
- 金井 豊・山室 真澄・井内美郎・徳岡隆夫 (2002) 島根・鳥取県中海における堆積速度と堆積環境. *地球化学*, **36**, 161-178.
- 小村和久 (2006a) 低レベル・超低レベル放射能測定の基礎. *Radioisotopes*, **55**, 233-243.
- 小村和久 (2006b) 「超低レベル放射能測定の現状と展望」まとめ. *Radioisotopes*, **55**, 691-697.
- 水本良彦・日下部俊男・岩田志郎 (1987) ゲルマニウム検出器のピーク対トータル効率比. *Radioisotopes*, **36**, 20-23.

- 文科省 (1992) 放射能測定法シリーズ 7 ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー, 文部科学省科学技術・学術政策局 原子力安全課防災環境対策室, 平成 4 年改訂 (1992).
- 内閣官房内閣広報室 (2011) VI. 放射性物質の環境への放出. 内閣官房内閣広報室, <http://www.kantei.go.jp/jp/topics/2011/pdf/06-kankyo.pdf> (2011/10/26 確認)
- 中村尚司・大久保徹・林 剛 (1983) 容積試料に対する高純度ゲルマニウム検出器のピーク検出効率の評価. *Radioisotopes*, **32**, 595-601.
- NOGUCHI, M. and SATO, K. (1999) Calculated Peak Efficiency of Ge Detector for Volume Source. *Radioisotopes*, **48**, 617-625.
- 野口正安・小峰隆志・秋山正和 (2000) 容積試料における γ 線自己吸収の補正法. *Radioisotopes*, **49**, 189-198.
- 野口正安・小峰隆志・上沖 寛・松本幹雄 (2001) 面線源効率積分法による容積線源ピーク効率の校正. *Radioisotopes*, **50**, 301-307.
- 左合 勉・五十棲泰人 (1987) ゲルマニウム半導体スペクトロメータの γ 線バックグラウンドスペクトルに対する空气中ラドンの影響とその低減方法. *Radioisotopes*, **36**, 70-73.
- セイコー・イージーアンドジー (2009) Gamma Studio. DS-P240/W32.
- 静間 清・深見健司・手島和範・岩谷和夫・葉佐井博巳 (1989) 低バックグラウンド井戸型 Ge 検出器の遮蔽とバックグラウンド特性. *Radioisotopes*, **38**, 516-519.
- 静間 清・深見健司・岩谷和夫・葉佐井博巳 (1991) 井戸型ゲルマニウム検出器のガンマ線検出効率の測定と環境試料中の放射能測定への応用. 広島大学工学部研究報告, **40**, 1-8.
- 高橋春男・小泉好延・佐藤和郎・佐藤 純 (1989) 低レベル γ 線スペクトロメータのバックグラウンドにおよぼす空气中の ^{220}Rn 及び ^{222}Rn の影響. *Radioisotopes*, **38**, 144-147.
- 高野直人 (1987) ゲルマニウム半導体検出器の半実験的な効率計算. *Radioisotopes*, **36**, 379-383.
- 武田健治・本多哲太郎・野口正安 (1979) 自己吸収の補正を含む γ 線ピーク効率の決定. *Radioisotopes*, **28**, 24-26.
- TEPCO (2011) プレスリリース 2011 年, 東京電力, <http://www.tepco.co.jp/cc/press/index-j.html> (2011/10/26 確認)

(受付: 2011 年 6 月 22 日; 受理: 2011 年 10 月 26 日)

