

連載講座

超低レベル放射能測定の実況と展望（第9回）

Ge 検出器の実況に関するアンケート報告

社団法人 日本アイソトープ協会 理工学部会
超低レベル放射能測定専門委員会

Reprinted from
RADIOISOTOPES, Vol.55, No.11
November 2006



Japan Radioisotope Association

<http://www.jrias.or.jp/>

連載講座



超低レベル放射能測定の実況と展望 (第9回)

Ge 検出器の使用状況に関するアンケート報告[†]社団法人 日本アイソトープ協会 理工学部会 超低レベル放射能測定専門委員会^{††}

113-8941 東京都文京区本駒込 2-28-45

Key Words : germanium detector, ultralow level radioactivity measurement

1. はじめに

放射線計測におけるバックグラウンド計数の低減は、環境放射能、放射化学、核化学、核物理学、宇宙・地球化学、原子核工学、放射性物質をトレーサとして利用する諸分野における共通の課題である。

現在、環境放射能測定に広く用いられている Ge 検出器による γ 線スペクトル測定で検出される人工放射性核種は、事実上¹³⁷Csのみであるが、¹³⁷Csについても、大気や海水試料では、通常のサンプリングと低バックグラウンド γ 線測定では検出が困難であり、検出下限値以下 (LTD : less than detectable あるいは ND : not detected) との報告が大半を占めているのが実情である¹⁾。環境放射能の濃度減少は、その事象そのものは歓迎すべきであるが、多額の経費を使って採取した試料を手間かけて処理し、放射能を測定しても、LTD あるいは ND という結果しか得られないなら、研究目的に役立つデータが得られないことになり、測定する意欲も

薄れてしまう危険がある。また、モニタリングを目的とする測定でも、対象核種が目標レベル以下であることは確認できても、有意な測定データが得られないことから、費用対効果等の点で問題となることもある。

計測技術の進歩が、新しい世界を垣間見る鍵となることは歴史が示している。検出感度の 1~2 桁の向上によって、これまで見のがしていた変動を詳細にとらえることが可能になり、新しい研究領域を拓く強力な武器となった例も多い。検出感度の向上には、検出器の性能向上とともにバックグラウンド計数の低減が不可欠である。放射能計測においても、検出感度が向上すれば、サンプリングや試料処理の労力や経費が大幅に節減され、計測時間も短縮することは明らかである。例えば、200 L の海水を用いても十分なデータを得ることが困難な水深 2 km

^{††} 超低レベル放射能測定専門委員会

委員長 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

委員 青山 道夫 気象研究所地球化学研究所

秋山 正和 (財)日本分析センター

氏平 祐輔 東京大学名誉教授

太田 裕二*(財)日本分析センター

大塚 良仁 (財)環境科学技術研究所

大西 勝基 福井県

原子力環境監視センター

櫻井 敬久 山形大学理学部

篠原 伸夫 (独)日本原子力研究開発機構

(*2006年5月31日まで)

[†] Present Status and Prospects of Ultralow Level Radioactivity Measurements(9).

Summary of Questionnaire on the Use of Germanium Detectors in Japan.

Technical Committee of Ultralow Level Radioactivity Measurements, Physical Science and Industry Committee, Japan Radioisotope Association : 2-28-45, Honkomagome, Bunkyo-ku, Tokyo 113-8941, Japan.

以深の海水中の ^{137}Cs の測定²⁾が、超低バックグラウンド測定により 20 L 以下の試料で十分可能になり^{3),4)}その結果から得られる成果を想定していただくと、そのメリットがいかに大きいか理解できるであろう。

更に、バックグラウンドを 100 分の 1 以下にすると、10 分の 1 の低減では予想できなかった、新しい分野が拓けてくることも考えられる。国際的にもバックグラウンド計数の 1~2 桁の低減化が、数か所の地下に設置した測定室で行われている (第 2 回, 5 月号)。しかし、バックグラウンド低減化の努力を個人レベルで推進するには限界があり、これまでに得た個々のノウハウの共有は極めて大きな相乗効果を生むものと期待される。

このような成果を得るための第一歩は、現状を知ることだと考え、日本アイソトープ協会理工学部会に超低レベル放射能測定専門委員会が組織され、環境放射能のモニタリングや放射能・放射線に関連する研究で最も広く使われている Ge 検出器について現況を把握し、これからの測定技術や測定精度の向上に寄与するための全国規模のアンケート調査が行われた。本連載講座の第 9 回 (最終回) は、本邦の Ge 検出器の使用状況に関するアンケートの報告である。

2. アンケートの概要

アンケートでは、測定の目的、測定試料、所有検出器の型、遮蔽条件、測定条件、バックグラウンド計数のほか、遮蔽及びバックグラウンド低減の工夫とそれにより得られた成果、バックグラウンド計数を 1~2 桁低減できた場合にどのような研究や測定を行いたいかなど多岐にわたって調査した。アンケートで回答を依頼した事項は、全体像を把握するための数値化されたデータを得るための部分と、低レベル放射能測定のニーズを探る自由意見を記述する部分に分かれている。

全体像を把握するため、数値化されたデータを得る工夫をした。すなわちいくつかの設問を

設け集計しやすくした。

問 1 においては、所有している Ge 検出器の台数、メーカー名、検出器の型、サイズ、検出効率、分解能、遮蔽条件などを記入してもらうとともに、バックグラウンド計数をエネルギー領域別 (全領域と分割したもの、及び環境放射能測定の対象核種である ^{137}Cs の 662 keV と ^{60}Co の 1 332 keV) に記入をお願いした。

問 2 においては、測定方式を、通常の測定であるのか反同時計数あるいはアンチコンプトン計数方式でバックグラウンド計数を下げようとしている、もしくはマルチパラメータ方式でのスペクトル記録など、通常とは異なる特殊な方式かの回答をお願いした。

問 3 においては、低レベル放射能測定のためにどのような対策を行っているかを、遮蔽の方法、ラドンの寄与の低減、設置環境の改善 (エアコン、壁材の工夫等) について回答をお願いした。

問 4 においては、測定の実態を知る目的で具体的な測定対象となっている試料の種類と年間測定数の回答をお願いした。

問 5 においては、測定のメンテナンスで最も大きな負担となっている液体窒素の補給の問題について、各機関の実情の記入をお願いした。

問 6 においては、理想の検出器仕様についての記入をお願いした。

低レベル放射能測定のニーズを探る記述文で記入する部分では、測定装置関連では理想の検出器像、地下測定室建設の要望、遮蔽材の品質、確保、共同購入等の要望、共同利用、あるいは緊急時の測定協力体制などの要望や意見をお願いした。また、研究の観点からは、低レベル放射能測定を利用した研究課題や対象試料について、またモニタリングの観点からは、どのような要望があるかの回答をお願いした。

3. アンケート集計結果の概要

アンケートは 2005 年 7 月に 146 機関に送付した。66 施設からの回答があった。回答があった機関が所有する Ge 検出器のデータ総数は

表1 Ge 検出器のタイプで分類した集計

検出器のタイプと台数	
Type	台数
同軸型	142
平板型	17
井戸型	27
ブロードエネルギー型	14
計	200

分類の内容

200 台分であった。大学等では、複数の施設(キャンパス)で Ge 検出器を所有している機関が多いが、それぞれ独立の施設として統計をとった。集計においては、個々の施設に固有の施設番号(repID)を付与し、個々の施設名は集計では表に出ないように配慮した。回答があった各施設に「Ge 検出器の使用状況に関するアンケート集計結果」として中間報告を2006年6月に送った。個々の施設に対しては固有IDをお知らせし、各施設で使用している検出器の位置づけを評価できるようにした。

3.1 所有する検出器の台数と検出器の型について

10 台以上の検出器を所有している施設があった。台数が最も多いものは17台、ついで11台であった。主として環境放射能のモニタリングを行っている機関(施設)は、事業の目的上複数の検出器を所有している。ただし、複数の検出器を所有していてもアンケートには1台のみ回答した施設も見られたが、ここでは1台として扱った。

表1に検出器の型で分類した集計を示した。検出器の型では、同軸(Coaxial)型が80%超、平板(Planar)型及び井戸(Well)型がそれぞれ5%及び10%強であった。平板型及び井戸型を所有している施設は、複数台の検出器を所有している例が多いので、これらの検出器の普及率は非常に低いことがわかる。ただし、同軸型には低エネルギー領域も測定可能な、いわゆるN型ないしブロードエネルギー型といわれ

表2 測定対象と年間測定数(全機関総計)

測定対象	年間測定数
大気浮遊塵	2217
土壌	1292
降下物	846
海水	659
魚類	389
牛乳	195
野菜	190
水道水	152
海草	152
穀物	54
肉類	12

るものがあり、低エネルギー領域に関心を持つ施設もいくつかみられる。

3.2 測定時間、測定対象と年間測定数及び測定目的

環境放射能のモニタリングでは、1試料あたり80000秒(1日)の測定が多い。研究目的では通常数日から1週間程度の測定が行われ、2週間を超える長時間測定もある。

測定対象と年間測定数の一覧を表2に示した。測定のお大半はモニタリング目的での測定と思われる。そのために、ルーチン的な大気浮遊塵、土壌、降下物の環境試料の測定が圧倒的に多く、全機関の総計でそれぞれの試料について、年間850~2200試料の測定が行われている。これらの陸上での大気と降水の環境試料に次いで、海水が約650試料、食品では魚類が389試料、牛乳と野菜がそれぞれ約190試料となっていた。これらは日本におけるモニタリング目的の測定の状況を示している。

3.3 遮蔽材の材質及び構造

遮蔽材体の構造については174の回答があった。

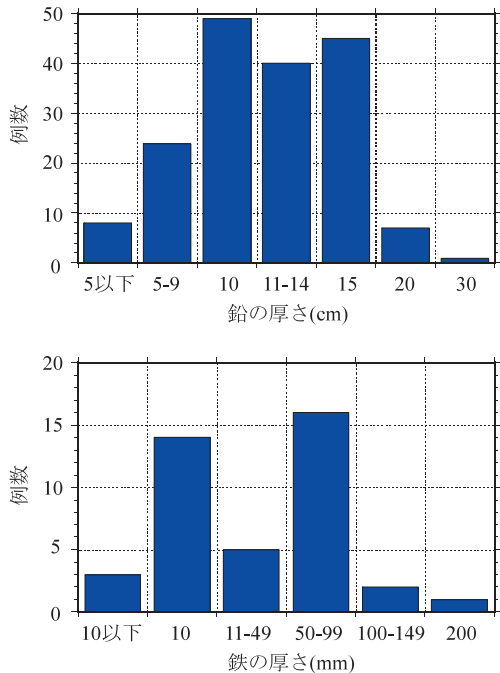


図1 遮蔽体に使われている鉛及び鉄の厚み

ほとんどすべての検出器の遮蔽に鉛を使っている。図1に示すように、最大30 cm、大半は10～15 cmの範囲にあり、鉛遮蔽は10 cm以上という考え方が定着しているように見える。10～25 mmの古鉛で内部を遮蔽しているものが20件あり、超低バックグラウンド化を図っていることが窺える。

回答のあった検出器の約1/4に相当する41件が遮蔽材に鉄を用いていた。鉄のみで遮蔽したものは1件（鉄200 mm）で、残りはすべて鉛と鉄を併用していた。厚さ50 mm以上の鉄を用いている場合のほとんどは、同程度かそれより厚い鉛でも遮蔽しており、鉄10 mmで内部遮蔽しているケースは14件あった。これらの検出器では、鉄を内側に配置して ^{210}Pb の寄与の低減を試みているものと考えられる。

回答総数の約1/2が、銅で内部の遮蔽を行っている。100 mmの厚さの銅を使った遮蔽が1件あったが、大半（70%）は厚さ5 mmであり、 ^{210}Pb 寄与の低減するために銅で内張りしているものと思われる。また測定試料による汚

染が除去し易いようにほとんどすべての検出器で5 mm厚の亚克力板を内側に配置してあった。

3.4 50～2000keV領域のバックグラウンド計数

同軸型検出器では、有効体積40 mLが相対効率約10%に相当する。地下測定によるバックグラウンド計数の低減から判断して、地上設置の相対効率100%の同軸型検出器では、ミュオン(+中性子)起源の100～2000 keV領域のバックグラウンド計数は約40 cpmと推定される*)。理想的な遮蔽材を使っても、受身(Passive)の遮蔽ではこれよりバックグラウンド計数を低くすることは困難である。

一方、バックグラウンド計数は検出器の結晶表面積（相対効率の3分の2乗）に比例することが知られている⁵⁾。

$$[\text{Eff}] 10\% \propto [\text{Vol}] 40 \text{ mL} \quad (1)$$

$$[\text{BKG}] \propto [\text{Eff}]^{2/3} \propto [\text{Vol}]^{2/3} \quad (2)$$

ここで

BKG：バックグラウンド計数

Eff：相対効率

Vol：有感体積

これらの経験式を用いて理想のバックグラウンド計数をプロットしたのが図2である。相対効率40%及び60%の同軸型検出器の100～2000 keV領域のバックグラウンド計数は23 cpm及び30 cpmが目標となる。

アンケート結果では、国内で運用されているGe検出器の、バックグラウンド計数はほぼ100 cpm前後の値（図3、図4）になっている。遮蔽の改善により、バックグラウンド計数を現在の1/2～1/4に低減できる可能性がある。バックグラウンドが高い原因は、第1回（4月号）

* 93.5%同軸型Ge検出器の100～2000 keV領域のバックグラウンド計数は、地上測定で41 cpm、尾小屋での地下測定では1.2 cpmであった。この差40 cpmが地上におけるミュオンと中性子の寄与に相当。

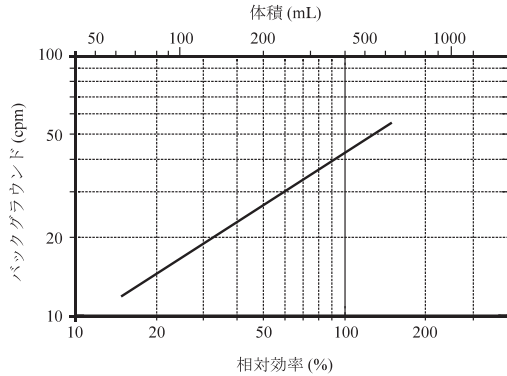


図2 検出効率とバックグラウンドの経験的な関係式

で述べたように、鉛遮蔽材中の²¹⁰Pb濃度が高いこと、比較的厚い銅や鉄を内部遮蔽に用いたために、結果的にピーク計数ではなく連続部分のバックグラウンド計数を高めてしまったと考えられる。ラドンの娘核種、²¹⁴Pb(295, 352 keV γ 線)及び²¹⁴Bi(609, 1764 keV γ 線)のバックグラウンド計数について調査しなかったので推定の域を出ないが、通常型のGe検出器でも検出器の構成材(主としてエンドキャップ)に由来するバックグラウンド計数は、352 keV γ 線に対して0.05 cpmを超えることは一般にない。もし、ピーク計数がこれを大幅に上回って高い場合は、遮蔽体の内容積が大きいために、遮蔽容器内の空気中のラドンの影響があると考えられる。ミュオンの寄与の低減に有効な反同時計数法はラドン対策には効果がない。液体窒素容器からの蒸発窒素ガスをヘッド部分に吹き付けて遮蔽容器内の空気を置換するとよい。すでに回答のあった66施設中12施設は、蒸発窒素ガスを検出器のヘッドに導入する措置を行っている。結果論になるが、どの程度の効果があったかについて設問を設けておけば良かったと思われる。

地下測定(repID #11)及び反同時計数(repID #63)法を適用した検出器では、1~2桁バックグラウンド計数が低い。

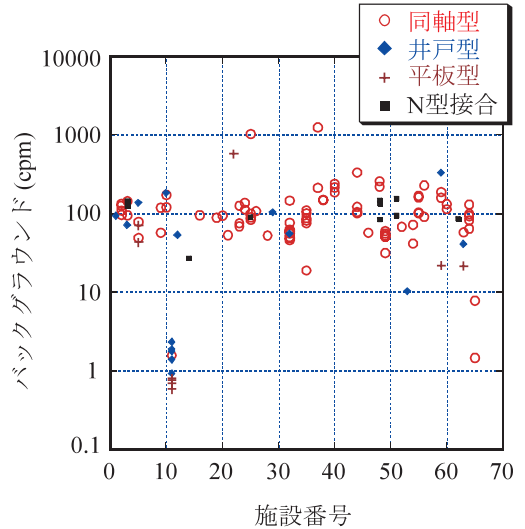


図3 50~2000 keV 領域のバックグラウンド(cpm)

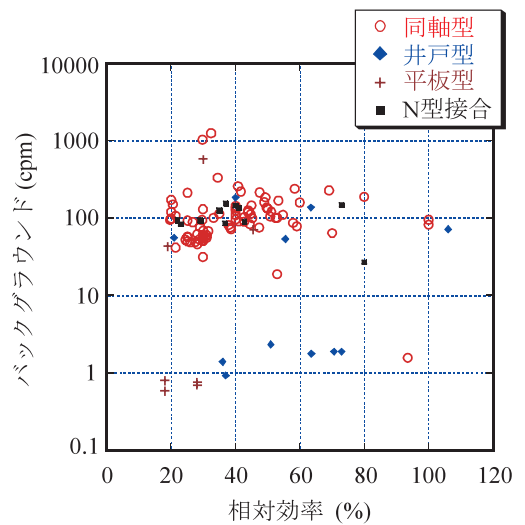


図4 Ge検出器の効率と50~2000keV領域のバックグラウンド(cpm)

3・5 ¹³⁷Csの662 keV γ 線領域のバックグラウンド計数

662 keV 領域のバックグラウンド計数は¹³⁷Csの検出限界を知る目的で質問したものである。機関ごとの662 keV 領域のバックグラウンド計数を図5に示した。多くの機関では、このような形でバックグラウンド計数を評価した経験がなく、質問の意味を理解できなかったかもしれない。cpm/keVという見慣れない表現をし

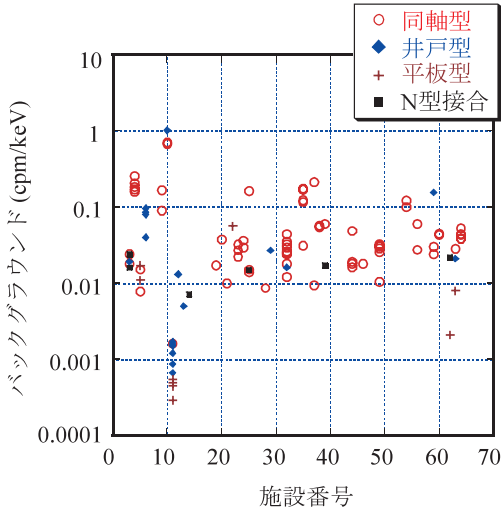


図5 662 keV 領域でのバックグラウンド (cpm/keV)

たのは、バックグラウンドスペクトルに¹³⁷Csのピークが見られる検出器がある可能性があり、662 keV γ 線のピーク計数率で設問するより汎用性が高いと考えたからである。大多数が0.01～0.05 cpm/keVの範囲にあるが0.1 cpm/keVを超える検出器も少なくない。50～2000 keV領域のグロスカウントの変動よりも大きいのは、ラドン対策が不十分なため²¹⁴Biの665 keV γ 線(放出率1.5%)の寄与があるものと推定される。反同時計数法で0.002 cpm/keV、地下測定では0.001 cpm/keV以下(平板型)にもなる。

地上設置の検出器で1週間程度測定しても、バックグラウンドスペクトルに662 keV γ 線のピークが見えないケースが多いと考えられるが、地下設置の超低バックグラウンド仕様の検出器では、1週間以上測定すると662 keV γ 線のピークが0.001～0.004 cpm(1日あたり1～5カウント)程度検出される。遮蔽条件を工夫しても低減し得ないことから、検出器構成材中の¹³⁷Csに由来するものと考えられている。検出器構成材に由来する⁶⁰Co($T_{1/2}$: 5.26 y)の1173 keVと1332 keV γ 線についても同様である。地下設置の93%同軸型Ge検出器は購入直後

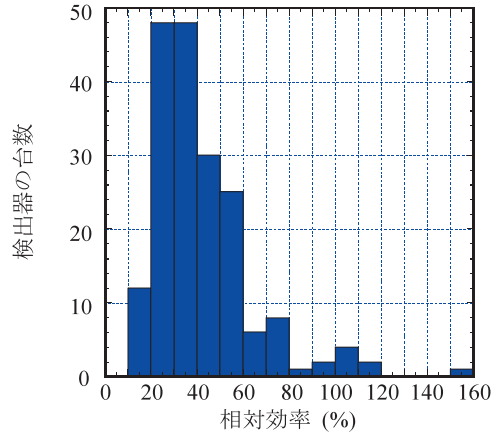
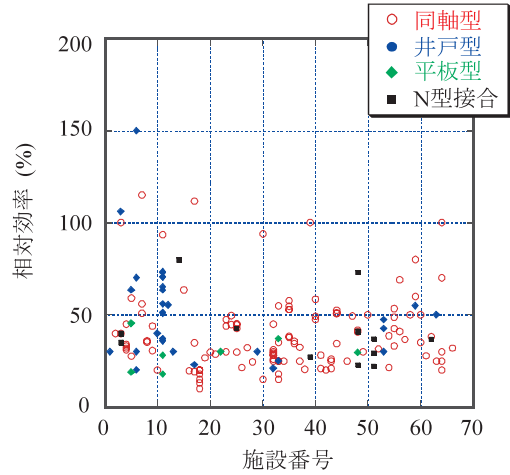


図6 Ge 検出器の効率とヒストグラム

の1995年には両ピークとも0.005 cpm前後であったが、現在は壊変によって1/4に減衰している。

3・6 相対検出効率のプロットとヒストグラム

相対検出効率を図6に示した。図6の上段は回答機関ごとの相対検出効率のグラフであり、図6下段はそれをヒストグラムで表したものである。図6下段のヒストグラムからわかるように、相対効率20～50%の検出器が全体の2/3を占めている。相対効率が100%を超える検出器3台はすべて同軸型である。井戸型検出器を所有しているのは7施設しかない。その半数は相対効率40%以下で、残りは相対効率50%以上の大型のものである。いくつかの機関が所有

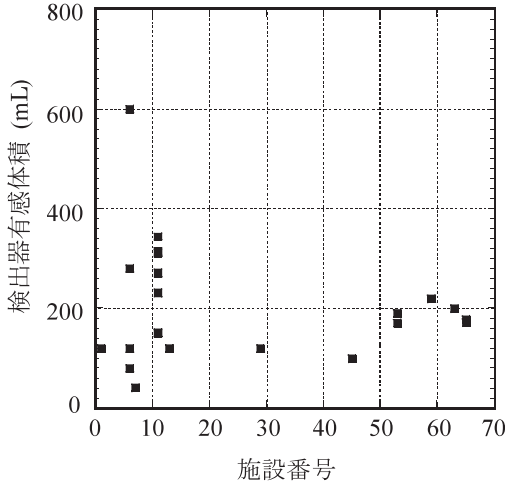


図7 Ge 検出器の体積

している井戸型検出器については、その体積での回答があった。機関ごとの井戸型検出器の体積を図7に示す。小さいものでは30 mL（相対効率約8%）程度であり、大きいものは600 mL（相対効率約150%）であった。

3・7 低レベル放射能測定のニーズ

アンケートに回答があった中で、約1/3が（超）低レベル放射能測定を希望する、残りの2/3は特に希望しないという結果であった。その内70%は例示した「大気浮遊塵、海水等の¹³⁷Csを2日」というものであり、利用できるとすれば、ひとまず¹³⁷Csを測ってみたいというもので、是非測りたいという積極的なものではなかったように見える。しかし、数は少ないが農作物、葉菜、穀類等の¹³⁷Csを測定したいという希望や、広島、長崎の原爆被ばく試料や、セミパラチンスクで採取した環境試料の測定で1～2か月という長期間測定、土壌や生物の灰化試料の²²⁶Ra、²³⁴Thの測定といった具体的な要望もある。表3は研究を目的とする超低レベル放射能測定の要望をまとめたものである。

モニタリングをミッションとしている機関では、超低レベル放射能測定への要望はあまり高くないのが現状である。8半減期以上前に採取して1/250以下に減衰してしまったような試料

表3 研究を目的とする超低レベル放射能測定の要望（全機関重複を除いて作成）

研究分野	測定対象・目的
大気化学	大気中宇宙線生成核種の時間変動（主に ⁷ Be） エアロゾル、雪氷中の ⁷ Be、 ²¹⁰ Pb、 ¹³⁷ Csの測定
宇宙地球化学	宇宙線誘導核種の定量による核地球化学的研究 隕石・宇宙塵中の宇宙線生成核種分析、大気中宇宙線生成核種の時間変動 土壌浸食量や堆積年代の推定
海洋化学	海洋での物質循環調査のトレーサとしての ¹³⁷ Csおよび天然放射性核種の測定 海水中における ²²⁶ Raおよび ²²⁸ Raの分布 沿岸堆積物の堆積速度の測定(²¹⁰ Pb、 ¹³⁷ Cs) 深海堆積物表層における ²¹⁰ Pbの分布
放射化分析・核化学	核反応の研究と放射化分析 放射化分析 機器中性子放射化分析試料の測定、およびウランガラスなどの自然放射線の測定 原子核の光共鳴励起、放射化分析 水素イオンビーム（1～2MeV）照射による核反応で発生するγ線計測による元素分析 中性子あるいは重イオンビームによる核反応から発生するγ線の測定
稀現象、物理学	ダークマター探索を目的とした検出器開発における検出器を構成材の放射能測定 二重ベータ崩壊の検出 原子核の光共鳴励起
被曝評価	広島・長崎の原爆残留放射能 チェルノブイリ由来の環境試料の測定 緊急被ばく計測（バイオアッセイ）
生物動態解析	マウス・ラットに対する放射性医薬品の体内動態の把握
環境放射能	環境試料中の天然及び人工放射性核種の定量

で、一般的には到底検出できないレベルの放射能測定のような場合に、超低バックグラウンド放射能測定が最も威力を発揮する。図8は環境中性子によって20gの金中に生成する¹⁹⁸Au (T_{1/2}:2.698 d) を、井戸型Ge検出器で測定した場合の例である。412 keV 領域にはわずか12カウントしかないが、バックグラウンドが無視できるので、確実に検出されたことがわかる。このように、超低バックグラウンド測定を体験すると通常の測定では飽き足りなくなる。測定を試みたい方は、いつでも相談していただきたい。

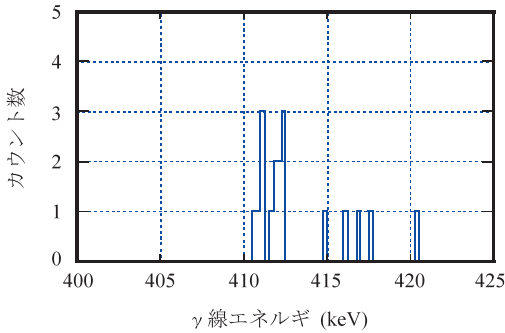


図8 超低バックグラウンド検出器による ^{198}Au の測定例 (12 256 秒)

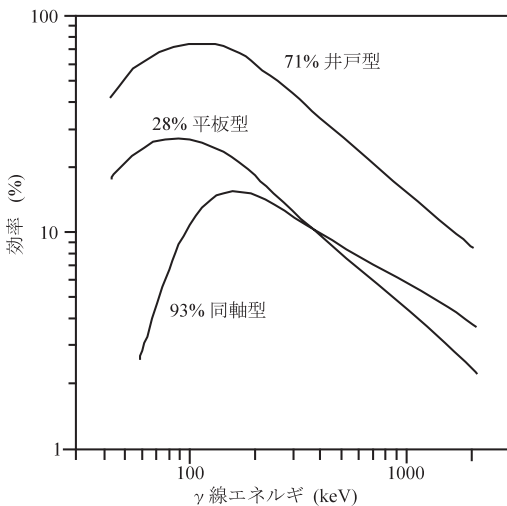


図9 同軸型、井戸型及び平板型の検出器で5gの試料を測定した場合の検出効率

3.8 検出器の型と検出効率

超低レベル放射能の測定には、検出効率の高い検出器の使用が有効である。スペック上で同じ検出効率の検出器でも、実試料では検出器の型によって大きな違いがある。同軸型、井戸型及び平板型の検出器で5gの試料を測定した場合の検出効率を図9に示した。なお、同軸型と平板型では直径35mmのディスク状の線源を、井戸型検出器では直径15mmの円柱状の線源を測定した。

ここに示すように、実試料の測定では井戸型及び平板型検出器が、スペック上ずっと高い検出効率を有する同軸型検出器よりも検出効率が

高いことはあまり知られていない。低レベル・超低レベル放射能測定では井戸型検出器が極めて有効であり、今後の普及が望まれる。

3.9 液体窒素の補給

Ge検出器のメンテナンスでは、液体窒素の補給が最も負担が大きい。全200検出器のうち電気冷却方式を採用している検出器はわずか12台であった。液体窒素用のデュワーを必要としない純然たる電気冷却方式の検出器は、購入時にしか選択の余地はないが、液体窒素蒸発防止方式のものには既存の検出器のデュワーの上に冷却装置をのせるものがあり、1年以上液体窒素補充は必要がないといわれている。価格は400万円以下である。使用中の検出器を液体窒素を全く必要としない電気冷却方式に改造することも可能であるが、400万円以上かかるという。今後は、電気冷却方式に次第にシフトして行くと考えられるが、価格の問題がありその歩みはかなり遅いと思われる。

4. まとめ

このような規模でアンケートを実施したのは、我が国はもちろん世界でも初めてではなかろうか。Ge検出器を用いてどのような測定が行われているのか、検出器の相対検出効率と同軸型、井戸型あるいは平板型といった検出器の比率など、個々のメーカー（あるいは代理店）でも知り得ない全体像が見えてきた。アンケートの結果を見て、業者から「低バックグラウンド」検出器と遮蔽体のセットとして勧められたものが、果たして本当に「低バックグラウンド測定システム」として機能しているのだろうかを自ら判断していただきたい。本アンケートのまとめが、今後の低レベル放射能測定の指標となれば幸いである。

アンケート協力へのお礼と今後のお願い

本アンケートに回答いただき、貴重な情報をお寄せいただいた機関や施設の担当者に深くお

礼申し上げる。超低レベル放射能測定専門委員会は、今回実施した Ge 検出器による低レベル放射能測定に続き、液体シンチレーションカウンタによる低レベル放射能測定の現状と展望についてアンケート調査したいと考えている。更なるご協力をお願いして結びとしたい。

文 献

- 1) Annual Reports of Radioactivity Survey for 1980 [in Japanese], Hydrographic Department, Maritime Safety Agency, Ministry of Transport (1981)
- 2) Bowen, V.T., Noshkin, V.E., Livingston, H.D. and Volchok, H.L., Fallout radionuclides in the Pacific Ocean: Vertical and horizontal distributions, largely from GEOSECS stations, *Earth Planet. Sci. Lett.*, **49**, 411-434 (1980)
- 3) Aoyama, M., Hirose, K., Miyao, T. and Igarashi, Y., Low level ^{137}Cs measurements in deep seawater samples, *Appl. Radiat. Isot.*, **53**, 159-162 (2000)
- 4) Hirose, K., Aoyama, M., Igarashi, Y. and Komura, K., Extremely low background measurements of ^{137}Cs in seawater samples using an underground facility (Ogoya), *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **263**, 349-353 (2005)
- 5) Hamajima, Y. and Komura, K., Background components of Ge detectors in Ogoya underground laboratory, *Appl. Radiat. Isot.*, **61**, 179-183 (2004)