超低レベル放射能測定の現状と展望(第1回) 低レベル・超低レベル放射能測定の基礎

小村和久

連載講座

Reprinted from RADIOISOTOPES, Vol.55, No.4 April 2006



Japan Radioisotope Association http://www.jrias.or.jp/

連載講座

超低レベル放射能測定の現状と展望(序文)

連載講座をはじめるにあたって

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^{††} 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 923-1224 石川県能美市和気町オ24

2004年9月に発足した日本アイソトープ協 会理工学部会の超低レベル放射能測定専門委員 会は,低レベル放射能測定に広く使用されてい るGe半導体検出器について全国規模でバック グラウンド性能及び測定対象試料,測定時間等 の実情をとりまとめるとともに,今後の技術向 上に資することを目標に活動を開始した。現在, 国公私立大学,国立及び民間の研究機関,研究 グループを対象にアンケートを実施し,集めら れたデータを多角的に解析及び検討を行った。 その結果は,本シリーズの最終講座(第9回) で報告する予定である。

この連載講座は,専門委員会活動の一つとし て低レベル・超低レベル放射能測定の基礎技術 について解説し,また関連諸分野の最新の研究 を紹介するものである。本講座が現場で放射能 測定をしている方々に役立つことになれば幸い である。 本連載講座のタイトル(仮題)と執筆者は以 下の通りである。

- 第1回(4月号) 低レベル・超低レベル放射能 測定の基礎
 - 小村和久(金沢大学自然計測応用研究セ ンター)
- 第2回(5月号) 地下測定室紹介と超低レベル 放射能測定の最近の成果
 - 小村和久(金沢大学自然計測応用研究セ ンター)
- 第3回(6月号) 環境放射能モニタリングの現 状
 - 太田裕二(日本分析センター)
- 第4回(7月号) 大気と海洋深層における核実 験起源フォールアウトの超低 レベル放射能測定

青山道夫 (気象研究所)

† 1	「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	
	委		員	青山	道夫	気象研究所	
				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	谢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	

[†]Present Status and Prospects of Ultralow Level Radioactivity Measurements. Introduction to the Series.

Technical Committee of Ultralow Level Radioactivity Measurements, Physical Science and Industry Committee, Japan Radioisotope Association, Kazuhisa KOMURA: Low Level Radioactivity Laboratory, Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Wake, Nomi-shi, Ishikawa Pref. 923-1224, Japan.

232

第5回(8月号) 過去の宇宙線強度変動と超		第8回(11月号)	「超低レベル放射能測定の現	
	低レベル放射能測定		状と展望」のまとめ	
櫻井敬久	(山形大学理学部)	小村和久	(金沢大学自然計測応用計測	
第6回(9月号)	核不拡散のための極微量核		センター)	
	種分析	第9回(12月号)	Ge 半導体検出器の使用状況	
篠原伸夫	(日本原子力研究開発機構)		に関するアンケート報告 (仮	
第7回(10月号)	質量分析計を用いた環境試		題)	
	料中の放射性核種分析の現	超低レベル	超低レベル放射能測定専門委員会	
	状			

大塚良仁(環境科学技術研究所)

(52)

超低レベル放射能測定の現状と展望(第1回)

低レベル・超低レベル放射能測定の基礎

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 923-1224 石川県能美市和気町オ24

Key Words : low level radioactivity, Ge detector, radiation shield, gamma ray, background radiation, ultralow level radioactivity

1. はじめに

放射能測定に関わる者にとってバックグラウ ンド計数の低減は永遠の課題である。目的核種 の濃度が検出限界に近い試料では、バックグラ ウンド計数のわずかな違いが結果に大きな影響 を及ぼすため、測定精度の向上やバックグラウ ンド計数の低減を目指して様々な創意工夫がな されている。当該分野の発展には、長年にわた って培われた成功や失敗の経験やノウハウを公 表して共有財産にすることが有効と考えられる。

我が国のみならず世界的に見ても最も多く放 射能測定が行われているのは,原子力発電所や 核施設周辺の環境放射能モニタリングであろう。 環境放射能測定では「低バックグラウンド Ge 検出器」が広く用いられており,毎年,数万個 もの測定データが蓄積されていると推定される。 しかしながら,大気圏での最後の核爆発実験か ら三十余年,チェルノブイリ原子炉事故から 20 年を経た現在では、環境試料のγ線測定に おいて検出できる人工放射性核種は事実上¹³⁷Cs のみである。それも大気浮遊塵、海水、海産物 等の試料では、通常のサンプリングと測定では 検出下限値以下(LTD: less than detectable あるいは ND: not detected) という結果が大 半を占めるようになっている。

環境放射能のレベル低下そのものは歓迎すべ きことではあるが、多額の経費を使って採取し た試料を、手間をかけて処理・測定しても LTD ないしNDという結果になれば、その測定は 研究目的には使えないデータを重ねたに過ぎず, 測定の意欲も薄れてしまうのではないかと危惧 される。モニタリングでは、基準レベル以下か どうかを確認することに重点がおかれ, 国民の 放射能(線)に対する安全性を確保するという 目的に合致していれば分析値の多くが ND で あること自体は問題ではない。しかし、検出器 のバックグラウンドを下げ、検出効率を高め、 適切な測定時間を確保することによって有意な 測定値が得られるようになれば、その分析値は 自然科学や環境化学などの研究分野での利用も 可能となり、費用対効果等の観点からも歓迎さ れるであろう。

バックグラウンド計数の低減と検出感度の向 上は,サンプリング時間の低減,試料の前処理 や線源作成等に要する労力,経費及び時間の節

[†]Present Status and Prospects of Ultralow Level Radioactivity Measurements(1). Fundamentals of Low Level and Ultralow Level Radioactivity Measurements.

Kazuhisa KOMURA : Low Level Radioactivity Laboratory, Nature and Environmental Technology, Kanazawa University, Wake, Nomi-shi, Ishikawa Pref. 923-1224, Japan.

減に寄与するばかりでなく,新しい研究領域を 拓く強力な武器にもなり得ることから,その意 義は極めて大きい。

本稿では、通常の環境放射能モニタリングで 測定できる放射能を「低レベル」、これより1 桁低い放射能を「極低レベル」、更に低い場合 を「超低レベル」と呼ぶことにする。「超低レ ベル」放射能測定は究極の目標であり現状は 「極低レベル」の段階にあると理解していただ きたい。このような理由で本講座のタイトルに は「超」を、本文では「極」を使うことが多い。 第1回目の講座では極低レベル測定の基本的な 考え方と具体的かつ実用的なバックグラウンド の低減法について紹介する。

本題に入る前に,我が国で初めて超低レベル 放射能測定を目的に設置された地下測定室(鋸 山微弱放射能測孔,千葉県富津市)について紹 介したい。

2. 超低レベル放射能測定の先駆け、「鋸山 微弱放射能測定孔」

超低レベル放射能測定の重要性を認識し実行 に移したのは、東京大学原子核研究所の田中重 男らのグループであろう¹⁾。当グループが、宇 宙線誘導核種をトレーサとする宇宙・地球化学 的研究に取り組んだのは 1960 年代初頭である。 当時の γ 線測定は、 α 線及び β 線測定よりも 後れており、NaI(TI)検出器が普及し始めた頃 である。当時は、 γ 線スペクトル測定に不可欠 なマルチチャネル波高分析器は極めて高価であ り、東京大学原子核研究所の加速器実験でさえ 真空管を使った手作りの 20 チャネル波高分析 器が使われていた。

米国留学で加速器による核反応の励起関数を 測定していた田中重男は,帰国後に宇宙・地球 化学の研究をしようと考えた。原子核研究所化 学室の同僚である坂本浩(現金沢こども科学財 団),高木仁三郎(元原子力資料情報室代表, 故人),槌本道子らと議論して選んだテーマは, 宇宙線のミュオンが硅岩中で²⁸Si(μ⁻, 2n)²⁶Al

反応によって生成する宇宙線誘導核種²⁶Al(半 減期72万年)の測定であり、これによって宇 宙線の変動や硅岩の侵食速度を求める実験を計 画した²⁾。期待される²⁶Alの放射能は極めて低 いので、測定には超低バックグラウンド NaI (Tl)検出器による反同時計数が不可欠と考え た。K含有量の極めて低い Nal を用いた Nal (Tl)検出器の製作,各社の光電子増倍管のバ ックグラウンド性能の比較,鉄材,無酸素銅及 び水銀による遮蔽など「低バックグラウンド遮 蔽」の基本的な課題を一つひとつ開発していっ た3)。はじめに原子核研究所宇宙線部(現西東 京市)の地下15mの測定室で基礎研究を重ね。 千葉県富津市浜金谷の鋸山近くの旧陸軍の地下 壕跡に3年がかりで地下測定室(水深換算約) 30 mwe: meters water equivalent, 水深に換 算した深さ)を建設した⁴⁾。地下測定室として は比較的浅いが、我が国初の「微弱放射能測定 孔」として記念すべき施設である。岐阜県久多 見産の100kgを超える硅岩を処理して得た $Al_2O_3 線 源 を、2個 の7.6 cm \phi × 7.6 cm NaI$ (Tl)検出器により、511~511 keV ないし511 ~1808 keV の γ 線の同時測定により²⁶Al の検 出を試みた。残念ながら鋸山での測定では²⁶Al を検出できなかった。筆者は高木仁三郎の後任 として,1969年10月にこのグループに加わっ た。最初の仕事は、加速器を用いて Mg, Al, Siの陽子及び α 粒子の照射で生成する²⁶Alの 励起関数の測定であった。名古屋大学理学部の 古川路明が化学分離を担当し, 筆者は鋸山での γ線測定を担当した5)。硅岩中のミュオン起源 の²⁶Alは、高木仁三郎が留学したドイツの大 型 NaI(Tl)検出器によりようやく成功した⁶⁾。

²⁶Alに関する一連の研究の後,藤田雄三が開 発した極低バックグラウンドβ線カウンタ (Needle Counter)⁷⁷による深海堆積物中の宇宙 線誘導核種¹⁰Be(半減期160万年)の測定⁸⁰(井 上照夫)や東京大学宇宙線部(後の宇宙線研究 所)の山越和雄が開発した液体シンチレーショ ンカウンタによる反同時計数とGM-NaI(Tl)- 井戸型 Ge 検出器を組み合わせた β-γ-γ 同時 計数装置⁹⁾による深海堆積物中の宇宙塵起源 の⁵⁹Ni(半減期 7.5 万年)や²⁶Alの測定,南極 隕石中の²⁶Alの測定などが行われた。

これらの長寿命宇宙線誘導核種の測定は,現 在加速器質量スペクトロメトリ(AMS)に代 わっているが,当時は鋸山微弱放射能測定孔で のγ線測定が最先端であった。鋸山地下測定 室は1999年に閉鎖され歴史的使命を終えた。 鋸山の流れは,千葉県柏に移転した東京大学宇 宙線研究所の地下測定室(30 mwe)に受け継 がれている。

我が国で現在稼動している地下測定室として は、東京大学宇宙線研究所の神岡素粒子研究施 設のスーパーカミオカンデ(2700 mwe 岐阜県 飛騨市神岡町)、金沢大学尾小屋(おごや)地 下測定室¹⁰⁰(270 mwe 石川県小松市)、大阪大 学の大塔地下測定室(1500 mwe 奈良県五條市 大塔町)がある。神岡と尾小屋の測定室につい ては、次号に世界各地で稼動している地下測定 室と共に紹介する。

3. 低レベル放射能測定

低レベル放射能測定に関しては,実験化学講 座 14「核・放射線」¹¹⁾,Heusser によるレビュ ー¹²⁾,Nuclear Instrument and Methods (NIM) 誌の特集号¹³⁾,低レベル放射能測定に関する国 際会議のProceeding^{14),15)}を参照していただき たい。本稿は筆者が日本分析化学会の「ぶんせ き」¹⁶⁾と,応用物理学会の「放射線」誌¹⁷⁾に発 表したものに最近の知見や成果を加えたもので ある。

低レベル放射能測定では、 β 線や γ 線測定 で1 cpm, α 線測定では 0.1 cpm 以下が一応 の目安となる。土壌や堆積物で数十 ~ 100 g, 植物や海産物で 1 ~ 数 kg,海水試料で数十~ 100 L,大気浮遊塵試料で数千 ~ 10 000 m³ の 空気が,ほぼ上記のレベルと考えてよい。目的 核種によっては、更に 10 ~ 100 倍の試料が必 要な場合があり、極及び超低レベル放射能測定 の対象となる。

3・1 尾小屋地下測定室の建設

筆者は,極低レベル放射能の測定を目指して 1991年から4年がかりで石川県小松市南東の 旧尾小屋銅鉱山のトンネル内に地下測定室を建 設し,1995年に稼働にこぎつけた。尾小屋地 下測定室設置の大型 Ge 検出器では,従来より も1~2桁低い放射能が測定可能になり,新し い多くの知見を得ることができた。2005年12 月現在,尾小屋地下測定室は12台の極低バッ クグラウンド Ge 検出器を有する世界トップク ラスの微弱放射能測定室となった。本稿では, 尾小屋地下測定室の建設で得た極低レベル放射 能測定に関する経験やノウハウを合わせて紹介 する。

3・2 低レベル放射能測定の指標 (FOM)

低レベル放射能測定の指標として一般に FOM (Figure of Merit) が使われる。S をシ グナル強度, B をバックグラウンド強度とす れば FOM は S^2/B 又は S/\sqrt{B} で表すことが多 い。液体シンチレーション計数では測定バイア ルの容積 (V) も S の要素であり, γ 線測定で は検出器のエネルギー分解能を考慮した FOM も使われる。

大きな FOM を得るには、S を大きくB を 小さくすればよい。すなわち、検出器の感度を 向上させ、バックグラウンドを低減することに なる。FOM の定義からB を小さくするよりS を大きくする方が有利であり、これらの向上を 目標に超低レベル放射能測定にチャレンジする ことになる。FOM を大きくするための基本的 な事項を表1に示した。以下、低レベル放射能 測定について具体例を挙げて解説する。

	対 象	S/Bを大きくする手法	備考
	試 料 採 取	大型採取装置,長時間採取	1桁多く採取
		乾燥	植物で1/10に
試 料	演 宏 士 注	灰化	さらに1/5に
	阀 谷 刀 伝	加圧成形	灰化試料で1/3以下
		化学分離,同位体濃縮	究極の減容
		大型検出器	全エネルギーに対して有効
	高い検出効率	井戸型検出器	小試料と低エネルギーγ線に有効
		平板型検出器	低エネルギーγ線に有効
		低バックグラウンド仕様	少し高価だが最終的に有利
	バックグラウンド低減	反同時計数	高価, NaI(T1)は汚い,装置が大型化
		波高弁別	γ線計測にはあまり有効でない
検 出 器		きれいな鉛	数100年の古い鉛が最適
	内 部 遮 蔽	無酸素銅	KX線低減, 1~2mm厚が適当
		アクリル板	除染し易い, 1~2mm厚が適当
	ラドン対策	無駄な空間の排除	エアパック,発泡スチロールで埋める
		窒素ガス導入	検出器ヘッドに吹き付ける
	空宙線客ちの低減	地下測定	少なくとも数10 mwe以上の深さが必要
	丁田林可子切民國	反同時計数	NaI(Tl)検出器は使わない

表1 極低レベル放射能測定を達成するための基本

- 3·3 大きなシグナル強度(S)を得るための ファクター
- 3・3・1 多量の試料採取と前処理や化学処理
 による体(容)積,重量の低減

S を大きくする基本は多量の試料の採取であ る。しかし、固体で100kg、液体で1t、気体 で10⁶m³が現実的には限度であろう。次いで 検出効率を高くする段階になる。野菜等では乾 燥によって約 1/10,更に灰化によって約 1/10 にできるので元の重量の1~数%にできる。 海藻では灰化による減量効果は小さいが. 上記 の前処理は不可欠である。灰化試料を油圧機で 圧縮すれば体(容)積を小さくすることができ, 生野菜試料1kgから直径50mm,厚さ数mm の測定線源が製作できる。井戸型 Ge 検出器に 入るように円柱状の線源を作成すれば、格段に 高い検出効率を得ることもできる。灰化試料の 加圧成型によって、プラスチック容器に入れた だけの線源より検出効率は数倍から1桁高くな る。

更に減容するには,化学処理による分離・濃 縮が有効である。化学分離では妨害放射性核種 が除去できるので, B の低減にもなる。究極 の濃縮は同位体分離である。現在,環境試料中 のトリチウムは,同位体濃縮しないと測定でき ないレベルにまで低下しており,同位体濃縮に よる測定が増えつつある。トリチウムの場合は, 20 mL のバイアルより 100 mL のバイアルを用 いることで S を高めるのもよい。液体シンチ レーションカウンタは反同時・同時計数によっ て低バックグラウンド化がはかられている。更 にバックグラウンドを下げるには,測定器メー カーに検出器の性能向上を期待する一方,地下 測定などによるバックグラウンドの低減などユ ーザー側の努力も必要である。

3·3·2 長時間測定

低レベル放射能測定では,カウントの統計誤 差を小さくするために長時間測定が必要である が,長くても1か月測定が限度であろう。それ 以上長く測定するよりも他の方法でFOM をあ げることを考えたい。

アンケートによれば,Ge検出器による環境 試料の核種分析では,80000秒(1日)測定が 多い。これを2日測定にすると,NDの数をか



図1 測定時間を2倍にした効果

なり少なくできる。測定時間を2倍にした例を 図1に示した。図1は深海水試料から分離した 極微量の¹³⁷Csを1日と2日測定したγ線スペ クトルで、1日測定では確実に検出されたとは いい難い¹³⁷Csが2日測定では明瞭なピークと して確認できる。

3・3・3 高い検出効率を得る

灰化や加圧による減容はSを大きくする非 常に有効な方法であるが,検出効率の高い検出 器を得る努力も極めて重要である。検出器を購 入する機会はあまりないが,更新や増設する機 会があれば,予算の範囲内で可能な限り検出効 率の高い低バックグラウンド仕様の検出器を選 ぶことを勧める。

前述のアンケートの回答から,環境放射能測 定には相対効率 30 ~ 40% の同軸型 Ge 検出器 が多く使われていることがわかった。同軸型 Ge 検出器は一般にエネルギー分解能が高く,同程 度の相対効率を有する井戸型検出器より安価で あるが,低エネルギーγ線に対する検出効率 が低い。図2は,10gの試料を相対効率が93 %の同軸型 Ge 検出器,73.5%の井戸型 Ge 検 出器及び 28% の平板型 Ge 検出器で測定した 場合の検出効率曲線を比較したものである。

この図から明らかなように、相対効率73.5



図2 10gの試料を測定した場合の93% 同軸型 Ge 検出器,73.5% 井戸型 Ge 検出器及び28% 平 板型 Ge 検出器の検出効率 (日本分析化学会「ぶんせき」¹⁶)

%の井戸型 Ge 検出器が群を抜いて高い検出効 率を有し,100 keV 領域のγ線に対して検出効 率は 60%,40 keV 領域でも 30% 以上もある。 一方,250 keV 以下の低エネルギーγ線に対し ては,相対効率がわずか28%の平板型 Ge 検 出器が同軸型 Ge 検出器よりも高い検出効率を 有していることに注目して欲しい。

環境放射能のモニタリングにおいては、低エ ネルギー γ 線放出核種は注目されていないが、 200 keV 以下のエネルギー領域には²²⁶Ra(186 keV)、²³⁵U(186,144 keV)、²³⁴Th(93,63 keV)、 ²¹⁰Pb (46.5 keV)等の天然放射性核種や、²⁴¹Am (59.5 keV)、²³⁹Np(106.1 keV)等の超ウラン 元素諸核種のほか、^{99m}Tc(141 keV)のような 人工放射性核種からの γ 線がある。井戸型検 出器や平板型検出器は低エネルギー γ 線の検 出に適していることから、今後これらの検出器 の普及が望ましいと考えている。

3·4 Bを小さくする

高い FOM を得るためのもう一つの手段は, *B* を小さくすることである。*B* は広義にはバ



図 3 ²¹⁰Pb を含む現代鉛と 200 年以上経過したと推 定される古い鉛の γ 線スペクトルの違い (日本分析化学会「ぶんせき」¹⁶)

ックグラウンドに関連する事項であり,エネル ギー分解能が高い(ピーク領域を狭くできる) ことも B の低減に有効である。以下に B を下 げる具体的な方法を紹介する。

3・4・1 遮蔽材の選択

B を下げる基本は遮蔽であり,これには良 い遮蔽材を用いることが不可欠である。遮蔽材 としては原子番号が高くて比重の大きな鉛が最 も適している。しかし,通常の鉛には鉛の化学 的な純度とは無関係に半減期 22 年の²¹⁰Pb がか なり含まれているので注意しなければならない。

最近,工業的に²¹⁰Pb 濃度の低い鉛の需要が あるらしく,業者自ら²¹⁰Pb の娘核種である²¹⁰Po を測定し²¹⁰Pb の間接測定を行うようになって きた。²¹⁰Pb から放出される 46.5 keV γ 線の放 出率は 4% しかないが,半減期5日の娘核種 ²¹⁰Bi から放出される最大エネルギー 1.16 MeV の β 線に起因する制動放射線のバックグラウ ンド計数への寄与が問題となる。図3は通常の 鉛と筆者が使っている古い鉛試料を測定して得 た γ 線スペクトルを比較したもので,通常の 鉛がいかに ²¹⁰Pb 濃度が高いかがわかるであろ う。

²¹⁰Pb 含有量の低い鉛の購入は容易ではない

が, 鉛取り扱い業者から見本をとり寄せて²¹⁰Pb 濃度の低いものを選ぶこともよい。できれば, ²¹⁰Pb 含有量が数 Bq kg⁻¹ 以下の保証付きの鉛 を入手することを勧めるが,このレベルの鉛は 極めて高価なので直接検出器に面する内部遮蔽 として厚さ2cm程度を確保できる量(10~20kg) を購入すればよい。

最近,放射能からの事業の撤退や施設の移転 等にともなって使用歴が確かで製造後数十年を 経た古い鉛や鉄遮蔽材が廃棄されることが多い。 鉄材に関しては 1950 ~ 1960 年代に低バックグ ラウンド β 線カウンタ用に ⁶⁰Co を含まない鉄 で多くの遮蔽体 (4 ~ 6 t) が製造された。筆 者は,これらの廃材を全国から受け入れており, これまでに 20 t 以上の古い鉄材を確保してい る。鉛の場合は,液体シンチレーションカウン タの更新や廃棄時の鉛を集め,約 100 t を保持 している。これらの鉛遮蔽材の²¹⁰Pb 濃度は概 して低く,数 Bq kg⁻¹のものもある。

尾小屋地下測定室で使用している鉛は,旧金 沢城内の建物の解体時に廃棄された鉛瓦を溶解 しブロックに加工したものである。尾小屋地下 測定室での2週間測定で²¹⁰Pbが検出できない ことから,製造後約 200 年以上経た鉛であろう と推定している。欧州では沈没船から引き上げ た鉛が遮蔽に使われている。低バックグラウン ド測定用の遮蔽には,²¹⁰Pb 含有量が5 Bq kg 以下であれば,安心して遮蔽材として使うこと ができ,1 Bq kg⁻¹以下であれば,超低バック グラウンドを達成できる。

無酸素銅は放射性不純物をほとんど含まない 遮蔽材として広く用いられている。しかし,鉛 と比べて高価なので,鉛あるいは鉄材による基 本遮蔽(100~200g cm⁻²)の内側に内部遮蔽 として使われていることが多い。市販の鉛で基 本遮蔽をしている場合は²¹⁰Pbの寄与があると 考えて良く,これを低減するには約2 cm厚の 無酸素銅板による内部遮蔽が適当である。これ より厚いと²¹⁰Pbの寄与は低減できても後に述 べるようにバックグラウンド計数を押し上げる





ので逆効果となる場合がある。

図4は、鉄と無酸素銅で遮蔽した相対効率 100%のGe検出器と、低バックグラウンド鉛 で遮蔽した相対効率約 93%の Ge 検出器の, 地上レベルでのバックグラウンドスペクトルを 比較したものである。クライオスタット及び遮 蔽体の構造が違うので比較しにくいが、この図 から低エネルギー領域では鉛が遮蔽材として優 れていることがわかる。鉛遮蔽のバックグラウ ンドスペクトルに見られる 141 keV と 198 keV のγ線は、宇宙線と Ge の反応で生成する^{72m}Ge に由来するものであり、570 keV と1064 keV のピークは宇宙線によって励起された鉛 (^{207m}Pb) からのγ線である。また600 keV, 700 keV 及び 840 keV 領域に幅広い鋸歯状のピ ークが見られるが, これらは宇宙線起源の中性 子(環境中性子)とGeの反応に由来する短寿 命の励起状態に対応するものと考えられる。遮 蔽が悪いとこれらのピークが見えないので、そ の存否は遮蔽を評価する指標となる。銅と鉛の バックグラウンドスペクトルの違いは 500 keV 以下の領域で顕著に見られるが、これはミュオ ンが遮蔽体を通過した際に発生する制動放射線



 図5 内部遮蔽に厚みの異なる真鍮を使った時のバックグラウンドカウント計数の変化 (日本分析化学会「ぶんせき」¹⁶)

が,銅では十分吸収しきれないためと説明され ている。

鉛遮蔽の欠点はミュオンや外部及び試料の γ 線で励起された Pb-KαX 線が発生することで ある。鉛の KαX 線は 70 ~ 90 keV 領域の測定 を妨害するので、その寄与を低減する必要があ る。これには銅、スズ、銀あるいはカドミウム 板による内部遮蔽が効果的である。図5は、鉛 だけで遮蔽した場合と ΚαΧ 線を除去するため に真鍮(銅と亜鉛の合金)を内部遮蔽(内張り) に使った場合、0~500 keV 領域のバックグラ ウンドスペクトルが内部遮蔽の厚さでどのよう に変化するかを示したものである。この図から わかるように、厚さ約3mmの真鍮(銅や他の 金属でも同様)を使えば鉛の KαX 線を抑制す るには十分であり、厚いと却ってバックグラウ ンド計数が高くなることがわかる。これはミュ オン起源の制動放射線が銅では除ききれないか らである。

鉛で遮蔽した場合と,鉛の内側に鉄及び銅で 内部遮蔽した場合のバックグラウンドスペクト ルの違いを図6に示した。内部遮蔽を行うと全 エネルギー領域にわたってバックグラウンド計 数が高くなること,その増加は500 keV 以下 の低エネルギー領域で大きいことに注目して欲 しい。これは²¹⁰Pb 含有量の極めて低い鉛を用



図6 内部遮蔽に鉄及び銅を用いた場合のバックグ ラウンドスペクトルと鉛のみによる遮蔽に対 するカウント数の比

いた例であるが,鉛が汚い場合には,鉄や銅に よる内部遮蔽は有効である。

3・4・2 検出器構成材のバックグラウンドの 低減

検出器の構成材に含まれる放射性物質の寄与 と透過力の強い宇宙線の寄与によるバックグラ ウンドの低減に移ろう。Ge 検出器自身のバッ クグラウンド源は、クライオスタット及びエン ドキャップと言われている。低バックグラウン ド仕様の検出器(極低バックグラウンドクライ オスタット)は、通常仕様の検出器より高価で あるが、検出限界や定量精度が大幅に向上する ことを考えると決して高いとはいえない。

図7は、プリアンプがGe 結晶のすぐ近くに ある通常仕様の井戸型検出器(相対効率 50%) と極低バックグラウンド仕様の井戸型検出器 (相対効率 65%)のバックグラウンドスペクト ルを比較したものである。図7からわかるよう に、通常仕様の検出器はバックグラウンド計数 が極めて高い。46.5 keV(²¹⁰Pb)、63 keV 及び 93 keV(²³⁴Th)、186 keV(²³⁵U) γ線が約100 倍、 その他のウラン及びトリウム系列核種の γ線 ピークでは数十倍、⁴⁰K の1461 keV γ線は10 倍の違いがある。

環境放射能のモニタリングを業務として行っ



図7 プリアンプがGe 結晶の近くにある通常仕様の 50% 井戸型Ge 検出器と極低バックグラウン ド仕様の65% 井戸型Ge 検出器のバックグラ ウンドスペクトル (日本分析化学会「ぶんせき」¹⁶)

ている機関でさえ新規に検出器を購入できる機 会は、5~7年に1回である。一度購入した検 出器は、劣化するか壊れるまで長期にわたり使 用することになるので、検出器の更新や増設の 際には、使用目的に合致した検出器を選択する ことが重要である。バックグラウンド計数が高 くてもよいから検出効率が高い検出器を選ぶか、 検出効率が多少低くてもバックグラウンド計数 が低い検出器を選ぶかの選択が迫られた場合に は、躊躇なく後者を選んで欲しい。結果として 予算の有効利用になる。

3・4・3 エンドキャップの選択・改造

エンドキャップによる低エネルギー γ 線の 吸収を防ぐために γ 線の入射窓に薄い金属ベ リリウム板が使われている検出器がある。低エ ネルギー γ 線の測定を目的とする平板型 Ge 検 出器や低エネルギーから高エネルギーに至る広 領域の γ 線測定を目的とする Ge 検出器にはベ リリウム窓を使ったものが多い。ベリリウムは 比較的多量のウラン (²³⁸U)を含むことが知ら

(60)



図8 エンドキャップをアルミニウムから無酸素銅 に、γ線入射窓をベリリウムから強化プラス チックに代えた平板型 Ge 検出器のバックグラ ウンドの低減効果 (日本分析化学会「ぶんせき」¹⁶)

れており,このような検出器では²³⁵Uとその娘 核種が放出するγ線のバックグラウンド計数 が高いので注意しなければならない。

ベリリウム箔に代わる低放射能の γ 線入射 窓材として,強化プラスチック(カーボン材) を用いた検出器が市販されている。30 keV 以 下の低エネルギー γ 線に対する検出効率は犠 牲になるが,半導体産業などで使われている超 高純度のアルミニウム材を窓に使えば十分低い バックグラウンド計数を達成できる。エンドキ ャップにニッケルあるいはマグネシウムを使っ て低バックグラウンド化を試みた時代があった。 マグネシウム製のエンドキャップはガスを吸蔵 し高真空を維持できないとの理由で使われなく なったといわれている。

ベリリウムを強化プラスチックに換え,エン ドキャップを無酸素銅に改造してバックグラウ ンド計数を下げた例を図8に示した(地表レベ ルでの測定)。図からわかるように,ウランの 63 keV(²³⁴Th),93 keV(²³⁴Th)及び186 keV(²³⁵U) のピーク計数は1/10以下に,改造の効果が大 きいことがわかる。既存の検出器のエンドキャ ップの改造もバックグラウンド低減の選択肢の 一つと考えてよい。バックグラウンド計数の低 減に放射線の入射窓を 0.5 mm 厚の半導体クラ スのアルミニウム合金に交換してバックグラウ ンド低減に成功した例もある。

3・4・4 ラドンの寄与の低減

室内空気のラドン濃度は戸外の空気(約5Bg m⁻³)に比べて一般に数倍高く,空調機が稼働 しない夜間に10倍を超えることもあり、バッ クグラウンド計数が高い上にその変動も低レベ ル放射能測定を妨害する。ラドン対策の第一は, 遮蔽体と検出器との空間の体積を最小にするこ とである。市販の遮蔽体の中には、低レベル放 射能の液体試料を効率良く測定する目的でマリ ネリビーカーが入るように大きな空間を持つも のがある。このような状況では、遮蔽体内の空 気中に存在する²²²Rnの娘核種²¹⁴Pb及び²¹⁴Bi からの γ線の寄与が大きい上, ラドン濃度の 変動によるバックグラウンド計数の変動により, 微量のウランやトリウム系列核種の測定はほと んどできない。バックグラウンドの低減には, この「無駄」な空間を排除することが不可欠で あり,発泡スチロールあるいは「エアキャップ」 などのパッキング材を使って空間を埋めるのが 効果的である。更に、ジュワー瓶から蒸発した 窒素ガスを検出器のヘッド部分に吹き付け、遮 蔽体内を窒素ガスで置き換えると良い。尾小屋 設置の井戸型 Ge 検出器では,容積 20 mL の井 戸に入った室内空気のラドン(約0.1 mBg) でバックグラウンド計数の増加を検知すること ができる。また、試料交換の際に室内空気に触 れた遮蔽体の表面に付着する²¹⁴Pbと²¹⁴Biのた め,特に低い放射能を測定するには,遮蔽を閉 じてから2~3時間後に測定を開始しなければ ならない。

バックグラウンド計数を低減するために,主 検出器である Ge 検出器を囲むように NaI(Tl) 検出器を配置し反同時計数ないし同時計数を行 うのも有効である。しかし,NaI(Tl)検出器に は不純物として極微量のカリウム(⁴⁰K)が存 在するので,バックグラウンドを高めることが



図 9 地上測定で到達可能な 100 ~ 2 000 keV 領域の バックグラウンド計数の目安

問題となる。更に,遮蔽体が大きくなることや 反同時検出器のためのモジュールの購入経費が かさむので,費用対効果の点であまり得策とは 言えない。しかし,反同時測定法の適用は,コ ンプトン散乱線の寄与を大幅に低減できるの で,⁷Be,⁵¹Cr,⁵⁴Mn,¹³⁷Csあるいは⁴⁰Kのよう に主要なγ線を1本しか放出しない放射性核 種の検出感度(*S*/*B*)を飛躍的に高くできる。 その一方で,複数のγ線をカスケードに放出 する⁶⁰Co,¹³⁴Cs等の測定では検出効率が大幅に 下がることを覚悟しなければならない。

主検出器と反同時計数用検出器の間に遮蔽を 置いて、カスケード γ 線放出核種の計数率の 低減を避ける方法もある。 β 線と γ 線を放出 する核種の測定では、バックグラウンド計数の 低減に β - γ 同時計数法を用いるとよい。反同 時計数法を採用する場合の問題点は、反同時計 数用のガードカウンタ及びこれらを動かすのに 必要な高圧や増幅器の購入や大きな遮蔽体を作 るための経費がかさむことである。同じ予算を かけるのであれば、極低バックグラウンド仕様 の大型検出器の購入や地下測定室の構築に充て た方が有効である。 3・4・5 宇宙線の寄与の低減

このように検出器構成材を吟味し、十分に厚 い遮蔽を行っても、地上における測定では透過 力の強いミュオンに起因するバックグラウンド 計数を除くことができない。

Ge 検出器の有効体積が 40 mL 増えるごとに 相対効率が約 10% 高くなり,バックグラウン ド計数は表面積(したがって体積又は Ge 結晶 の重量の 3 分の 2 乗)に比例するという経験則 がある。地上測定では相対効率 100% クラスの Ge 検出器のミュオン由来のバックグラウンド 計数は約 40 cpm(0.1~2.8 MeV 領域)であ る。理想的な遮蔽が行われた地上設置の Ge 検 出器で到達可能なバックグラウンド計数と相対 効率の関係を図 9 に示した。図 9 から読み取っ た値と使用している Ge 検出器のバックグラウ ンド計数を比較すれば遮蔽の良否が判定できる。 相対効率 40% の同軸型 Ge 検出器のバックグ ラウンド計数が 20~25 cpm になっていれば 遮蔽は十分と考えてよい。

宇宙線由来のバックグラウンド計数の低減に は反同時計数などの Active な遮蔽(これに対 して鉛等による遮蔽を passive な遮蔽と呼ぶ) が有効であり,地上測定の場合にはバックグラ ウンド計数を約1桁下げることができる。液体 シンチレーションカウンタでは,プラスチック シンチレータあるいは BGO (Bismuth germanate)シンチレータを用いる反同時計数法が採 用されている。液体シンチレーションカウンタ では,パルスの立ち上り時間の違いを利用した 波形弁別法 (pulse height discrimination) によ り α 線と β 線を識別してバックグラウンド計 数を低減できる。しかし,この方法を Ge 検出 器の場に適用しバックグラウンド低減に成功し た例はなさそうである。

文 献

 田中重男,坂本浩,槌本道子,東京大学原子 核研究所報告,INS-TCA-19(1964),田中重男, 坂本浩,高木仁三郎,東京大学原子核研究所 報告, INS-TCH-1(1967)

- Tanaka, S., Sakamoto, K., Takagi, J. and Tsuchimoto, M., J. Geophys. Res., 73, 3303-3309 (1968)
- 田中重男,他,東京大学原子核研究所報,INS-TCH-3(1968)
- Tanaka, S., Sakamoto, K., Takagi, J. and Tsuchimoto, M., Nucl. Instrum. Methods, 56, 319-324 (1967)
- Furukawa, M., Shizuri, K., Komura, K., Sakamoto, K. and Tanaka, S., J. Inorg. Nucl. Chem., A174, 539-544(1971)
- Hampel, W., Takagi, J., Sakamoto, K. and Tanaka, S., J. Geophys. Res., 80, 3757-3760 (1975)
- 7) Fujita, Y., Taguchi, Y., Imamura, M., Inoue, T. and Tanaka, S., *Nucl. Instrum. Methods*, **128**, 523-524 (1975)
- 8) Inoue, T. and Tanaka, S., Earth Planet. Sci. Lett., 29,

155-160 (1976)

- Yamakoshi, K., Nucl. Instrum. Methods, 126, 407-412 (1975)
- Komura, K., Proc. 1997 Int. Symp. on Environmental Radiation., Oct. 20, 1997, Wakasa, Japan, pp.65 (1997)
- 坂本 浩,小村和久,中西 孝,橋本哲夫,第 4版実験化学講座14,「核・放射線」,丸善(1992)
- 12) Heusser, G., Annu. Rev. Nucl. Sci., 45, 543 (1995)
- 13) Nucl. Instrum. Methods, B17 (1986)
- Proc. 14th International Conference on Radionuclide Metrology and its Applications, ICRM 2003, *Appl. Radiat. Isot.*, **60** (2-4), (2004)
- 15) Low Level Radionuclide Measurement Techniques—ICRM, Appl. Radiat. Isot., 61 (23), (2004)
- 16) 小村和久, ぶんせき, 2000(12), 730-735(2000)
- 17) 小村和久, 放射線, 26(3), 41-58(2000)