

連載講座

超低レベル放射能測定の現状と展望（第2回）

地下測定室紹介と超低レベル放射能測定による最近の成果

小村和久

Reprinted from
RADIOISOTOPES, Vol.55, No.5
May 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2回)

地下測定室紹介と超低レベル放射能測定による最近の成果[†]

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 : underground laboratory, gamma ray, background radiation,
ultralow level radioactivity

はじめに

前号では、超低レベル放射能測定には宇宙線の寄与の低減が重要であり、地下測定がさげられないと述べた。今回は、超低バックグラウンドを実現する最も有効な地下測定について、筆者らの経験とヨーロッパ各地の地下測定室の現状を紹介し、次いで極低レベル放射能測定技術を活用した具体的な研究例について述べる。章だては第1回講座に続いた形になっている。「超低レベル」は今後の目標であり、現段階は「極低レベル」にあるというニュアンスで「超」と「極」を使いわけている。

4. 地下測定

地下測定に期待するのは、地上測定では除ききれない宇宙線起源のバックグラウンド計数の低減である。一次宇宙線と窒素、酸素などの大気成分との原子核反応によって生成する電子、

γ 線、陽子、中性子等の二次宇宙線成分は、約 1 kg cm^{-2} (水深換算 10 m) の空気層を通過して海面レベルに到達するまでにかかなり減衰してしまうので、バックグラウンドとしての寄与は小さい。これに対して、透過力の大きいミュオンは、鉛等の遮蔽体と (μ^- , xn) 反応を起こして中性子を発生させるので厄介である。中性子は、主として弾性散乱によってエネルギーを失い、最終的には捕獲反応によって消滅する。地磁気緯度や太陽活動にもよるが、海面レベルにおける宇宙線起源の中性子 (いわゆる環境中性子) の強度は $0.008 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 程度であり¹⁾、その平均自由行程 (mean free path) は、 $100 \sim 200 \text{ g cm}^{-2}$ である²⁾。したがって、10 m の地下 ($1.5 \sim 2 \text{ kg cm}^{-2}$) ではその寄与はほとんどなくなってしまう。

地下における宇宙線起源のミュオン、核子成分 (陽子と中性子) 及びミュオンとの反応又は核分裂や (α , n) 反応に由来する中性子フラックスの深度分布を図1に示した³⁾。数 mwe (meter water equivalent 水深換算の深さ) より浅いと、原子番号の高い鉛はミュオンとの反応で中性子を発生するので、中性子フラックスを逆に高めるおそれがある。一方、核分裂及び (α , n) 反応に由来する中性子強度は地下深度とは関係なく、岩盤のウラン、トリウム及び軽元素の濃度に依存するので、100 mwe 以上の地下では

[†]Present Status and Prospects of Ultralow Level Radioactivity Measurements(2). Underground Laboratory and Recent Topics Emerged from Ultralow Level Radioactivity Measurements.

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

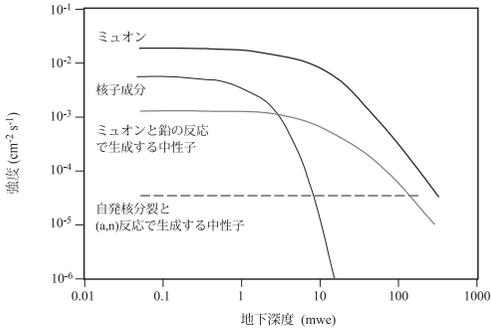


図1 地下深度とミュオン及び中性子強度
(核反応で生成する中性子は深さには依存しない) 文献3)より引用

核反応起源の中性子の寄与が相対的に大きくなる。このため、ミュオン強度が地表より5～6桁以上も低減できる大深度の地下でも、図1から推定できるように中性子強度はあまり下がらない。

極低バックグラウンド測定には100 mwe以上の地下測定室が望ましいが、極低レベル放射能測定のために新たなトンネルを掘れるような機会はほとんどないので、ある程度は妥協して既存のトンネルを利用せざるを得ない。この場合、地下深度が深いことは重要な要素ではあるが、アクセスやメンテナンスの容易さ、検出器購入や測定室建設に充てられる経費、目的とするバックグラウンドレベルなどを総合的に検討してきめることが必要である。

4.1 地下測定における反同時計数

モナコのIAEAの海洋環境研究所(Marine Environment Laboratory: MEL)の地下測定室(35 mwe)は、研究所から歩いて5分程度の近くに建設された。ミュオン強度は約1桁しか減衰しないので、5 cm厚のプラスチックシンチレータを用いた反同時計数法によってバックグラウンドの低減をはかっている。深度が浅いため反同時計数の効果は顕著であり、地下100～200 mweクラスのバックグラウンド計数を達成している⁴⁾。

尾小屋地下測定室では、0.5 mmの極薄のプラスチックシンチレータによる反同時計数を行い、バックグラウンド計数を低減させる計画がある⁵⁾。薄いプラスチックシンチレータはミュオンのような荷電粒子に対する検出効率が高いが、 γ 線に対する効率が低いという特徴がある。反同時計数用のプラスチックシンチレータを内部遮蔽と外部遮蔽の間にセットすることで、反同時計数の信号強度を低く抑え、 (μ^-, xn) 反応で生成する中性子が捕獲されるまで数百 μ sオーダーの長いブロック信号を出しても、Ge検出器の不感時間を増加させない利点がある。この方法によるバックグラウンド計数の低減目標は1/3である。

4.2 ラドン対策

地下測定では、比較的高濃度で存在するラドン(^{222}Rn , $T_{1/2}$: 3.83 d)に由来するバックグラウンド計数(γ 線の放出核は、ラドンの娘核種で $T_{1/2}$: 27分の ^{214}Pb と半減期 $T_{1/2}$: 19.9分の ^{214}Bi)の低減が必要である。一方、トリウム系列のラドン(^{220}Rn)は半減期が55秒と短いので、遮蔽内に深く入ることがなく影響は少ない。しかし、 ^{220}Rn の娘核種の ^{212}Pb ($T_{1/2}$: 10.64 h)は、静電気で引き寄せられやすいエアロゾルや大気浮遊塵に付着して空気中に存在するので、試料交換のために遮蔽を開けた際に、遮蔽体や検出器のエンドキャップの表面に付着してバックグラウンド計数を高めることがある。このため「超」低レベル放射能測定では、測定開始後の1～2日のデータを使わない方が安全である。 ^{214}Pb と ^{214}Bi も ^{212}Pb と同様に大気浮遊塵に付着しバックグラウンド源となるが、半減期が短いので最初の2～3時間だけ注意すればよい。

金沢大学自然計測応用センターの尾小屋地下測定室は、長さ546 mのトンネルのほぼ中央にある。自然換気率は年間を通じて約6回 h^{-1} ある。ラドン濃度が低いので、ラドン対策としては検出器のヘッド周りの空間を最小限にして

いる。また、液体窒素の蒸発ガスを導入して窒素雰囲気にし、プラスチック容器又はポリエチレン袋に封入した水銀を試料の上に置いて、上部の空間容積を最小限にしている。

自然換気が期待できない長いトンネルでは、大型送風機で強制的に外気を導入する必要がある。仏伊国境のトンネル内にある地下測定室 (Laboratoire des Science du Climat et de l'Environnement : LSCE, 4 800 mwe) ではアルプスの氷河地域の空気を取り入れることによって、また、神岡のスーパーカミオカンデでは活性炭によるラドン吸着など3段階の工夫によって、ラドン対策をはかっている⁶⁾。また、千葉県柏の宇宙線研究所の地下測定室では、ラドン透過性のないアクリル樹脂系のペイントを壁面に塗布してラドンの散逸を防ぎ、ラドン濃度を数 Bq m³ に保っている⁷⁾。

4.3 地下測定に用いる遮蔽材

地下測定における遮蔽材に鉛と銅のどちらを選択したら良いかと問われれば、²¹⁰Pb濃度が 1 Bq kg⁻¹ 以下の鉛を手でできれば鉛の方を勧めたい。

遮蔽で最も注意を払う必要があるのは、検出器に直接面する内部遮蔽である。筆者の経験では、2 cm 以上の「超」低バックグラウンド材で内部遮蔽する方法がよい。IRMM-EU (Institute of Reference Material and Measurements, ベルギー, 500 mwe) では、銅を内部遮蔽に用いて極低バックグラウンド計数を達成している。地上測定では鉛が銅よりも良い理由は第1回目 3.4.1 で述べたが、どの深さまで鉛が優位かについて興味ある事実がつい先日見つかった。図2は、古い鉛で内部遮蔽した尾小屋 (270 mwe) の 93.5% 同軸型 Ge 検出器と、銅で内部遮蔽をした神岡 (2700 mwe) の 100% の同軸型 Ge 検出器のバックグラウンドスペクトルのエネルギー依存性を比較したものである。太い実線は神岡/尾小屋のバックグラウンド比、細い実線は地上での銅/鉛のバックグラウンド

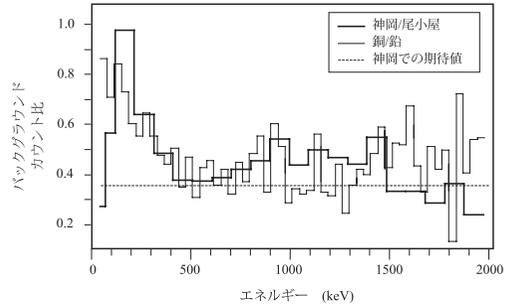


図2 内部遮蔽に鉛を用いた尾小屋と銅を用いた神岡のバックグラウンドスペクトルの比較 (地上における銅/鉛の比が大深度でも成立していることから、鉛を使えば神岡のバックグラウンドはもっと下げられよう)

比を示している。500 keV 以下の領域の銅/鉛比が 2700 mwe の大深度地下でも成立していることから、大深度でも鉛遮蔽が優位なことがわかる。内部遮蔽に古い鉛を使えば、神岡の検出器のバックグラウンド計数は現在の 1/2 以下になろう。

銅は放射性不純物のおそれが少ないので、安心して使える遮蔽材である。しかし、地上で長期間保管すると、ミュオンや環境中性子との核反応による誘導放射性核種が生成・蓄積する。IRMM-EU では、将来の使用に備えてトンレベルの銅の地下保管を提案しており、我が国でも実施したいと考えている。鉛は放射化の心配は少ないが、公害問題との絡みもあるので、廃材として出される遮蔽鉛を尾小屋トンネル内に (数十年以上) 保管して ²¹⁰Pb の壊変を待つ予定である。保管中にラドンの娘核種 ²¹⁰Pb が銅や鉛の表面に付着・蓄積するのを避けるために袋に封入しておくことと、使用前に表面を十分に磨くことが必要である。

4.4 地下測定室における Ge 検出器のバックグラウンド

相対効率 93.5% の同軸型 Ge 検出器を、地上で遮蔽なし、地上で遮蔽あり、尾小屋地下室で遮蔽ありの 3 条件で測定したバックグラウンドスペクトルを図3に示した。地上における

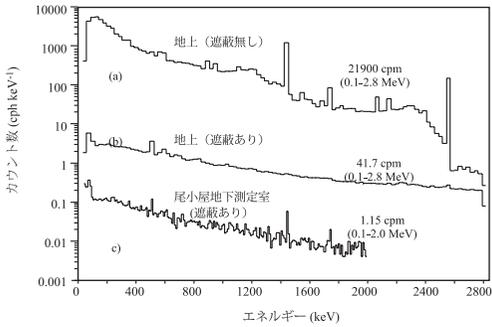


図3 相対効率93.5%の同軸型Ge検出器のバックグラウンドスペクトルの比較

(a) は地上で遮蔽をしていない状態, (b) は地上で通常鉛による基本遮蔽と古い鉛による内部遮蔽をした場合, (c) は尾小屋で遮蔽した場合

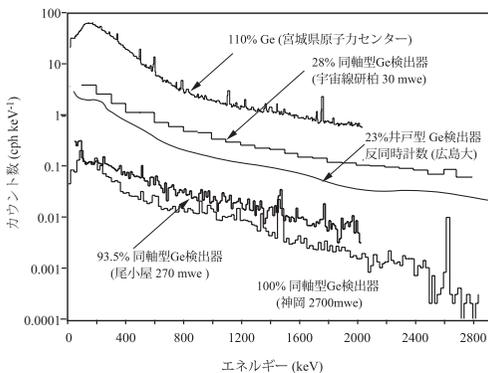


図4 尾小屋と他機関のGe検出器のバックグラウンドスペクトルの比較

100 ~ 2800 keV 領域のバックグラウンド計数は、遮蔽なしで21900 cpm、遮蔽ありで41.7 cpmで、地上でも遮蔽により約500分の1までバックグラウンドを下げる事ができた（通常の鉛では100 ~ 200分の1までは容易に下げられるが、500分の1にするのは困難である）。270 mweの地下では更に30分の1になり、地下測定がバックグラウンド低減に極めて有効なことがわかる。

図4は、尾小屋に設置した相対効率93.5%の同軸型Ge検出器、他機関の相対効率110%同軸型Ge検出器、地上で反同時計数を行った

相対効率23%の井戸型Ge検出器、30 mweの地下に設置した相対効率28%の井戸型検出器及び神岡に設置した相対効率100%の同軸型Ge検出器のバックグラウンドスペクトルを比較したものである。相対検出効率による規格化は行わず、縦軸を単純に cph keV^{-1} としている。相対効率の違いを無視した荒っぽい議論になるが、地上設置のGe検出器のバックグラウンド計数を基準にすると、30 mweで約10分の1、地上で反同時計数を行うと約20分の1、270 mweで約100分の1、2700 mweで約200分の1であり、反同時計数及び地下測定がバックグラウンド低減に極めて有効なことがわかる。神岡のGe検出器は、我が国でバックグラウンド計数が最も低い検出器であるが、銅を内部遮蔽に使っているため400 keV以下の領域は尾小屋との違いはあまりない。ミュオン強度が尾小屋の500分の1しかない神岡のバックグラウンド計数が期待したほど下がっていない理由は、内部遮蔽に銅を使っていることに加え、トンネルを構成している岩盤（尾小屋：凝灰岩、神岡：花崗岩）のウランとトリウム濃度が高く、ウラン (^{238}U) の自発核分裂又は軽元素と α 粒子との (α, n) 反応で発生する中性子強度が高いことによると考えられる。

4.5 ヨーロッパ諸国の地下測定室

ヨーロッパには、極低レベル放射能測定を目的とする地下測定室（35 ~ 4800 mwe）が多い。JCOウラン加工工場臨界被ばく事故の際に、日本の環境放射研究者が一丸となって事故調査にあたり成果を挙げたことを教訓に、ヨーロッパでも緊急時に対応できる測定体制が必要と考え、CELLAR (Collaboration of European Low-level underground Laboratories) というグループが組織された⁸⁾。CELLARの集会はヨーロッパで開催される国際会議の際に行われており、筆者は、第3回（モナコ2002）、第4回（ウィーン2003）、第5回（モナコ2004）に参加し、ヨーロッパ諸国の地下測定室の実情や研究につ

表1 欧州及び日本の地下放射測定室

研究所	設置地点	国	深さ		Ge検出器			
			(m)	(mwe)	同軸型	平板型	井戸型	合計
欧州-IRMM	ギール	ベルギー	225	500	3	1		4
Max Planck	ハイデルベルク	ドイツ	~7	15	3		1	4
VTKA	ドレスデン	ドイツ	47	110	2		1	3
LSCE	フレジュストンネル	フランス	1750	4800	2		1	3
INFN-LNGS	グランサツ	イタリア	1400	3800	2			2
IAEA-MEL	モンテカルロ	モナコ	14	35	2		2	4
PTB	ブラウシュバイク	ドイツ	925	2100	2 (Broad Energy)			2
アイスランド大	レイキャビク	アイスランド	165	360	NaI(Tl)			1
金沢大	尾小屋	日本	135	270	1	6	8	15
東京大	神岡	日本	1000	2700	1			1

IRMM: Institute of Reference Material and Measurements
 VTKA: Verein für Kernverfahrenstechnik und Analytic Rossendorf
 LSCE: Laboratoire des Science du Climate de l'Environment
 INFN-LNGS: Istituto Nazionale di Fisica Nucleare-Laboratori Nazionali del Gran Sasso
 IAEA-MEL: International Atomic Energy Agency's Marine Environment Laboratory
 PTB: Physikalisch-Technische Bundesanstalt.

いての知見を得ると共に、尾小屋の設備や最近の研究成果を紹介してきた。

CELLAR グループの地下測定室紹介パンフレット (2003 年版) のデータに、尾小屋及び神岡のデータを加え表 1 にまとめた。各測定室の詳細は、第 5 回環境放射能・放射線研究会報告書⁹⁾で紹介したので参照していただきたい。この他に、ベルン大学 (スイス) には 70 mwe の地下測定室があり、2 台の Ge 検出器 (1996 年訪問時) と自作のガスカウンタを使い、大気中の放射性ガス (³H, ¹⁴C, ³⁹Ar) を測定している。

図 5 に、地下深度と Ge 検出器のバックグラウンド計数及びミュオンの減衰を示した。縦軸は、検出器 1 kg あたりのバックグラウンド計数で規格化した相対値である。原図^{4), 10)}は深さがリニアスケールになっているが、図 1 との比較及び比較的浅い地下の効果を確認するために対数スケールとした。モナコの地下室は 35 mwe と浅いが、反同時計数を採用することによって 100 ~ 200 mwe 相当のバックグラウンド計数を達成しており、270 mwe の尾小屋と 500 mwe の IRMM はミュオンの減衰曲線近く

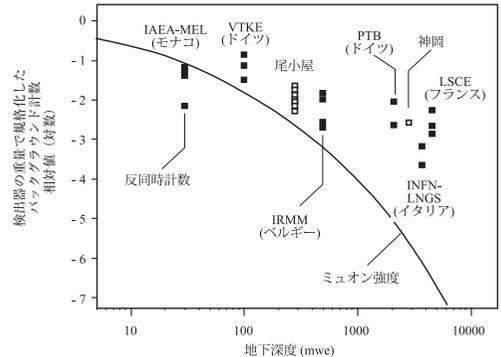


図 5 Ge 検出器のバックグラウンド計数と地下深度

まで、バックグラウンド計数の低減に成功している。しかし、1000 mwe より深い地下測定室では、ミュオン強度の減衰から期待される程バックグラウンド計数が低くなっていない。これは、検出器構成材や遮蔽材中の放射性不純物濃度の違いのほか、岩石中のウラン、トリウム及び軽元素濃度の違いによるものと考えられる。イタリアのグランサツ (3800 mwe) の検出器は世界一バックグラウンド計数が低く、尾小屋の約 30 分 1 という極限の低バックグラウンドを達成している。

表2 重量及び表面積で規格化したバックグラウンド計数

検出器	相対効率 (%)	検出器の仕様	体積	バックグラウンド 計数(100-2000 keV)			井戸のサイズ
			(cm ³)	(cpm)	(cpd kg ⁻¹)	(cpd cm ⁻²)	
平板型 Ge	18.2	28cm ² x 2 cm	56	0.48	2285	7.4	
	18.2	28cm ² x 2 cm	56	0.57	2714	8.8	
	28	38cm ² x 3 cm	113	0.57	1333	5.8	
	28	38cm ² x 3 cm	113	0.54	1216	5.3	
井戸型 Ge	73.5	7.4cmφ x 8.0 cm	311	1.33	1359	7	2.1 cmφ x 6 cm
	70.5	7.4cmφ x 8.0 cm	311	1.3	1501	6.9	2.1 cmφ x 6 cm
	64.7	7.5cmφ x 8.0 cm	344	1.2	930	6.2	2.1 cmφ x 6 cm
	52	6.8cmφ x 7.0 cm	231	1.94	2273	11.5	1.6 cmφ x 6 cm
	37	6.1cmφ x 5.6 cm	151	0.82	1450	7.1	1.0 cmφ x 6 cm
同軸型 Ge	93.5	7.9cmφ x 87.1 cm	379	1.12	788	5.4	

図5は、同軸型、平板型あるいは井戸型検出器を区別せずに重量で規格化してあるが、この方法では、平板型>井戸型>同軸型という系統的な違いが出てしまうので、重量よりも表面積で規格化するほうが公平である。表2は、尾小屋地下測定室の11台のGe検出器(同軸型1, 井戸型6, 平板型4)のバックグラウンド計数を重量と表面積で規格化したもので、表面積で規格化すると近い値になり、各検出器の遮蔽状況をよく反映している。

5. 極低バックグラウンドγ線測定の実例

5.1 原爆誘導核種¹⁵²Euの測定

多量の試料を用いた極低バックグラウンド測定の実例として、原爆中性子誘導核種¹⁵²Euの測定がある。原爆中性子誘導核種¹⁵²Euは、1976年8月に原爆ドーム内の可搬型Ge検出器によりin situで発見され¹¹⁾、原爆放射線被ばく線量の暫定評価法(TD65: Tentative Dose 1965)再評価に多数の測定が行われた。しかし、遠方資料の測定データが少ないことから、新線量評価法(DS86¹²⁾)では、参考データとして記載されるに留まった。その後、遠方試料の¹⁵²Euデータが蓄積すると、1km以遠で実測値と計算値の不一致(実測>計算)が1桁を超えることがわかり、⁶⁰Coでも同様な傾向が示唆された。これがDS86の再評価の契機となった。過去に¹⁵²Euが検出されたとされる試料を尾小屋で測定したが、検出できない試料が多いことから、

kgレベルの被ばく試料を用いて¹⁵²Euを再測定することになった。2002年8月までにブランク試料を含む17試料が尾小屋で測定された。

図6は、被ばくした1kgの花崗岩から分離したユウロピウム試料の1週間測定で得たγ線スペクトルである。化学処理で除去しきれなかった²²⁷Acの娘核²¹¹Pbの342.7keVγ線の妨害はあるが、¹⁵²Euの344.3keVγ線の検出に成功しており、1408keVγ線も確認され¹⁵²Euが確実に検出できたことがわかる。多量の試料と極低バックグラウンド検出器再測定によって、爆心から1.2km地点まで理論計算と良く一致することが明らかになった。1.4km地点まで¹⁵²Euの検出に成功した正味の計数率は 0.0028 ± 0.0007 cpmという極めて低いものであった。測定の詳細については、原爆線量評価法DS02を参照していただきたい¹³⁾。

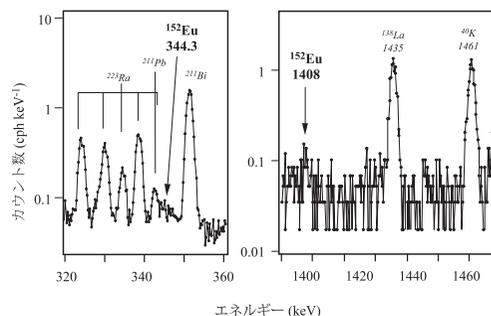


図6 爆心から1163m地点の花崗岩試料のγ線スペクトル
(70.5%井戸型Ge検出器で703843秒測定)

表3 環境中性子誘導核種

ターゲット核	同位体存在度 (%)	断面積 (10 ⁻²⁴ cm ²)	生成核	半減期
²³ Na	100	0.53	²⁴ Na	15.0 h
²⁷ Al	100	0.11	²⁴ Na	15.0 h
⁴⁵ Sc	100	27	⁴⁶ Sc	83.8 d
⁵⁵ Mn	100	13.3	⁵⁶ Mn	2.58 h
⁶³ Cu	69.1	4.5	⁶⁴ Cu	12.7 h
⁵⁹ Co	100	20	⁶⁰ Co	5.27 y
⁷⁵ As	100	4.5	⁷⁶ As	26.4 h
⁸¹ Br	49.48	3	⁸² Br	35.3 h
¹¹⁵ In	95.7	73	^{116m} In	54 m
¹²¹ Sb	57.25	6	¹²² Sb	2.7 d
¹³³ Cs	100	28	¹³⁴ Cs	2.06 y
¹³⁹ La	99.911	8.9	¹⁴⁰ La	1.68 d
¹⁵⁴ Sm	22.53	5	¹⁵⁵ Sm/ ¹⁵⁵ Eu	0.4/4.76 h/y
¹⁵¹ Eu	47.77	5300	¹⁵² Eu	13.5 y
¹⁵¹ Eu	47.77	2800	^{152m} Eu	9.30 h
¹⁵³ Eu	52.23	320	¹⁵⁴ Eu	8.59 y
¹⁷⁴ Yb	31.84	46	¹⁷⁵ Yb	4.20 d
¹⁸⁶ W	28.4	40	¹⁸⁷ W	23.7 h
¹⁸⁵ Re	37.07	110	¹⁸⁶ Re	3.72 d
¹⁸⁷ Re	62.93	70	¹⁸⁸ Re	16.7 h
¹⁸¹ Ta	99.9877	21	¹⁸² Ta	114.4 d
¹⁹¹ Ir	38.5	750	¹⁹² Ir	73.8 d
¹⁹³ Ir	61.5	110	¹⁹⁴ Ir	17.4 h
¹⁹⁷ Au	100	98.8	¹⁹⁸ Au	2.70 d

5・2 環境中性子による天然の誘導放射性核種発見と極低フラックス中性子のモニタリング

極低バックグラウンド Ge 検出器による化学試薬の測定で、「天然」誘導放射性核種、⁴⁶Sc (T_{1/2}: 83.79 d), ⁶⁰Co (T_{1/2}: 5.2714 y), ¹³⁴Cs (T_{1/2}: 2.062 y), ¹⁵²Eu (T_{1/2}: 13.542 y), ¹⁵⁴Eu (T_{1/2}: 8.593 y), ¹⁵⁵Eu (T_{1/2}: 4.761 y), ¹⁸¹Ta (T_{1/2}: 114.43 d), ¹⁹²Ir (T_{1/2}: 73.831 d) 及び ¹⁹⁸Au (T_{1/2}: 2.695 d) が相次いで発見された¹⁴⁾。図7に検出例を示した。これらは、環境中性子(地表レベルで0.008/cm²/s)捕獲反応で生成したものであり、航空機搭乗あるいは

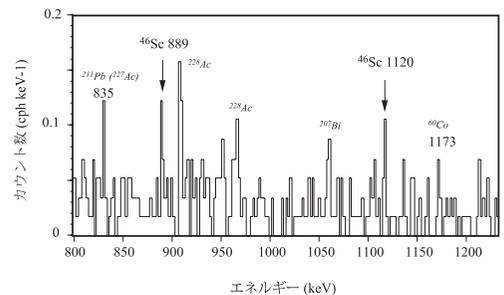


図7 環境中性子によって生成した⁴⁶Scの検出
7gの酸化スカンジウムを93.5%同軸型Ge検出器で351840秒測定(極微量の⁴⁶Scの他に試料に含まれている放射性不純物のピークが見える)

登山実験によって、地上では検出することが困難な多くの中性子誘導核種、^{116m}In(T_{1/2}:54.5 m)

と ^{56}Mn ($T_{1/2}$: 2.58 h) ほか, ^{24}Na ($T_{1/2}$: 14.96 h), ^{64}Cu ($T_{1/2}$: 12.7 h), ^{82}Br ($T_{1/2}$: 35.30 h), $^{152\text{m}}\text{Eu}$ ($T_{1/2}$: 9.274 h), ^{140}La ($T_{1/2}$: 1.678 d), ^{175}Yb ($T_{1/2}$: 4.185 d), ^{187}W ($T_{1/2}$: 23.72 h), ^{186}Re ($T_{1/2}$: 90.64 h), ^{188}Re ($T_{1/2}$: 16.98 h) 及び ^{194}Ir ($T_{1/2}$: 19.15 h) の検出に成功したものである (表3)。地上レベルでは, 中性子捕獲断面積が数十 b (10^{-24}cm^2) 以上, 航空機搭乗実験では 1 b 以上であれば, 検出可能である。

^{24}Na は $^{23}\text{Na}(n, \gamma)^{24}\text{Na}$ 反応のほか, 速中性子による $^{27}\text{Al}(n, \alpha)^{24}\text{Na}$ 反応によっても生成するので, 中性子フラックスの高い上空における速中性子の評価に利用できる。また, 生成断面積が 98.8 b の ^{198}Au ($T_{1/2}$: 2.7 d) は, 測定したい地点に 1 週間もおけば十分検出できるので, 中性子モニタリングに適している。0.1 ~ 0.2 mm 厚の 20 g の金板で $10^{-3}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ のレベルの中性子を困難なく測定できる。JCO 臨界事故では, 住民から借用した指輪やネックレス等を測定し漏えい中性子の評価を行った¹⁵⁾。

金は化学的に安定であり, 地中, 水中, 金属中, あるいは高温環境など, カウンタ実験では不可能な過酷な条件でも中性子を測定できる。数か月の長時間の曝露が許されれば, ^{192}Ir ($T_{1/2}$: 73.83 d) を用いて $10^{-4} \sim 10^{-5}\text{cm}^{-2}\text{s}^{-1}$ レベルの中性子フラックスの評価も可能である。

5.3 環境中の宇宙線生成核種 (^{22}Na)

大気上層で宇宙線によるアルゴンの破砕反応で生成する ^{22}Na ($T_{1/2}$: 2.6019 y, 1 274 keV) は, 数年から 10 年スケールの地球化学的現象を解明するためのトレーサとして有望である。通常の検出器で大気中の ^{22}Na を検出するには, 数万 m^3 の空気のろ過が必要である。しかし, 極低バックグラウンド検出器では, 3 000 ~ 5 000 m^3 の空気をろ過して大気浮遊塵を集めれば, 検出可能である。図 8 は, 3 000 m^3 の空気のろ過により ^{22}Na を検出した例である。 ^{22}Na のほかに極微量の ^{137}Cs と極めて多量の ^7Be が検出されている。

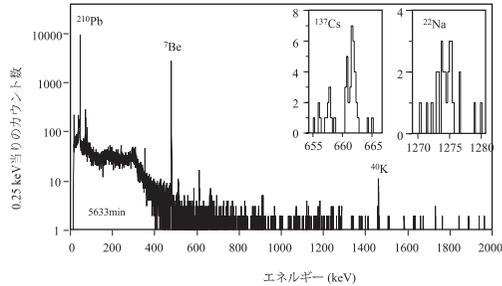


図 8 大気中の ^{22}Na 及び ^{137}Cs の検出
 船倉島で石英ろ紙で採取した 3 009 m^3 相当の空気中の大気浮遊塵試料を 37% 井戸型 Ge 検出器で 428 282 秒測定 (^{210}Pb や ^7Be のピークと比較すると濃度の低さがわかる)

ドライフォールアウトあるいは降水に伴うウエットフォールアウトとして地表や水面に降下した水を追跡するために ^{22}Na をトレーサに用い, 琵琶湖の湖水の滞留時間を推定した研究も行われている¹⁶⁾。この研究では, ^{22}Na の測定に, 琵琶湖の湖水のほか, 雨水及び流入河川水をそれぞれ 500 L 用いている。

表 4 宇宙線と大気成分との核反応で生成する宇宙線誘導核種

核種	半減期	壊変様式	検出器
^{18}F	109.7 m	β^+	Ge
$^{34\text{m}}\text{Cl}$	32.0 m	β^-	Ge
^{37}Ar	35.0 m	EC	X*
^{38}Cl	37.24 m	β^-	Ge
^{39}Cl	55.6 m	β^-	Ge
^{31}Si	2.62 h	β^-	LSC**
^{38}S	2.84 h	β^-	Ge
^{24}Na	14.96 h	β^-	Ge
^{28}Mg	20.9 h	β^-	Ge
^{32}P	14.26 d	β^-	LSC**
^{33}P	25.3 d	β^-	LSC**
^7Be	53.3 d	EC	Ge
^{35}S	87.5 d	β^-	LSC**
^{22}Na	2.609 y	β^+	Ge
^3H	12.33 y	β^-	LSC**/MS
^{39}Ar	269 y	β^-	ガスカウンター
^{14}C	5730 y	β^-	LSC**/AMS***
^{36}Cl	$3.01\text{E}+05$ y	β^-	AMS***
^{26}Al	$7.40\text{E}+05$ y	β^-	Ge/AMS***
^{10}Be	$1.51\text{E}+06$ y	β^-	AMS***

* X線用ガスカウンター ** 液体シンチレーションカウンター
 *** 加速器質量分析計

5・4 雨水中の短寿命宇宙線生成核種

大気上空では、²²Naのほかにアルゴンの破碎反応によって表4に示す宇宙線生成核種が生成している。これらは数百Lの雨水を分析することによって1950～60年代に相次いで発見されたが、生成量の多い⁷Be,³H,¹⁴Cなどを除いてほとんど測定されていない。半減期が短いことに加え、濃度が極めて低くて測定が困難なために、トレーサとしては利用できなかった。短寿命宇宙線生成核種の測定には、

- (1) 多量の雨水の短時間採取,
- (2) 迅速な化学分離・濃縮,
- (3) 極低バックグラウンド放射能測定

の3条件の克服が必要である。筆者らは、屋上を利用した集水、陰・陽イオン交換法による短時間濃縮、尾小屋地下測定室の利用で、短半減期の³⁸Cl (T_{1/2}: 37.24 m), ³⁹Cl (T_{1/2}: 55.6 m), ¹⁸F (T_{1/2}: 109.77 m), ³⁸S (T_{1/2}: 170.3 m), ²⁴Na (T_{1/2}: 14.96 h), ²⁸Mg (T_{1/2}: 20.9 h) の

5核種の同時検出に成功した。この他に⁷Beと²²Naが検出できる。雨試料のγ線スペクトル測定例を図9に示した。

この研究は、解析モデルの開発など多くの課題が残っているが、大気上空で起きている現象、すなわち雨滴の生成高度における宇宙線と大気成分との核反応、雨滴の寿命や滞留時間、降雨による物質の輸送など、気象学や大気化学、地球化学、地球物理学分野に貢献するものと期待される。研究の概要については、Isotope News 2005年10月号の「展望」欄¹⁷⁾で紹介したので参照されたい。

5・5 ^{108m}Agによる銀の汚染

イカをはじめとする海産物でしばしば検出される^{108m}Ag (T_{1/2}: 4.18 y) 及び^{110m}Ag (T_{1/2}: 249.9 d) は、核爆発実験に由来すると考えられている。1970年代のNature誌¹⁸⁾に、^{110m}Agで汚染された銀が市場に流通しており、銀鉱石

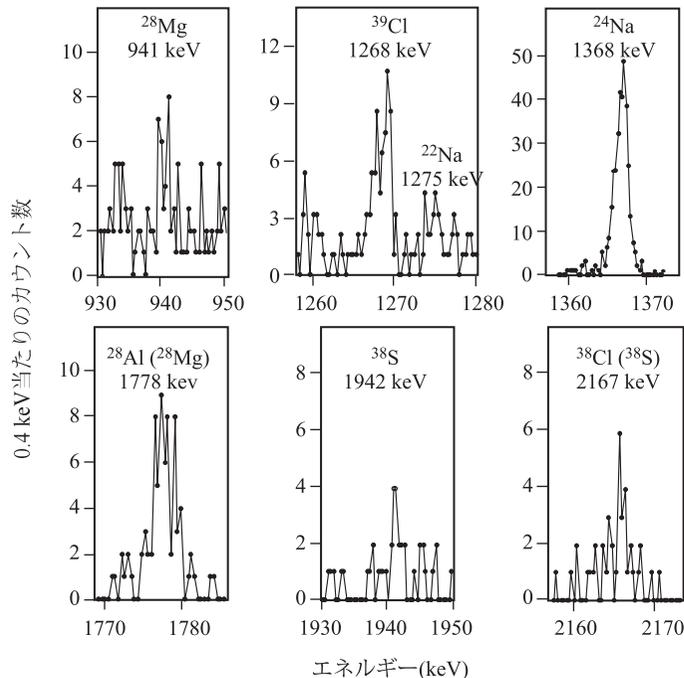


図9 雨の迅速測定で検出された短寿命宇宙線誘導核種
93.5% Ge 検出器で61400秒測定 (このほかに¹⁸F(511 keV)及び⁷Be(478 keV)が検出されている)

の採掘に核爆発を使った可能性が指摘されていた。筆者が ^{108m}Ag で汚染された銀に出合ったのは、尾小屋のGe検出器のバックグラウンド低減に銀板を使った時であった。当初は環境中性子による誘導核種である可能性を考えたが、実験室にある銀試薬や新たに購入した試薬全てで ^{108m}Ag が検出されることから、人工起源であることがわかった。汚染がいつごろから始まったかを知るために、製造年のわかっている記念銀貨を測定した。図10に示すように、江戸末期の加賀藩の一分銀（全量170g）では検出されないが、東京オリンピック記念銀貨（1964）と札幌オリンピック（1972）記念銀貨では検出されたことから、1964年には人工起源の ^{108m}Ag による汚染がすでに始まっているものと推察される。

5.6 ^{108m}Ag を用いる新しい原爆中性子の評価
原爆中性子によって生成した ^{152}Eu と ^{36}Cl の測定結果が、理論計算と一致することが明らかになり、DS02の発表（2006.2）で一応の完結をみたと考えられる。DS02に続く研究課題を

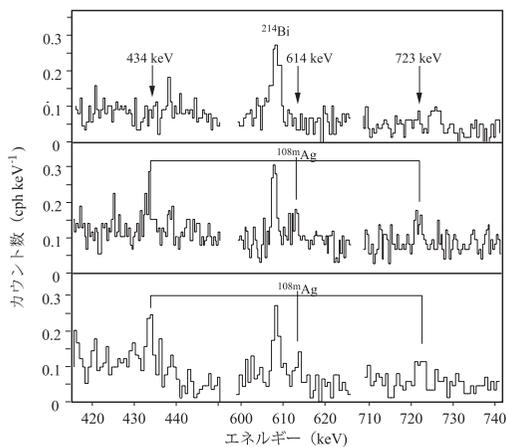


図10 加賀藩の一分銀（上）、東京オリンピック記念銀貨（中）及び札幌オリンピック記念銀貨（下）の γ 線スペクトル

^{108m}Ag による銀の汚染レベルは極めて低いが、写真フィルムや印画紙に銀塩が使われていることから、超高感度フィルム等では「かぶり」を引き起こす懸念がある。

考える中で、 ^{108m}Ag を用いる中性子評価法を思い付いた。核データからの計算では、純度100%の銀を使えば、ppmレベルしか含まれていないユウロピウムから生成する ^{152}Eu と比較して、 ^{108m}Ag の測定が3桁以上有利なことがわかった。感度が高いので、 ^{152}Eu では測定できなかった1.4 km以遠の中性子線量の評価と、DS02に基づく計算の実証に使うことができる。また、指輪やロザリオなど、身につけていた銀製品を測定すれば、被ばく者が浴びた中性子線量を直接評価できるので、 ^{152}Eu 測定では得られなかった貴重な情報を得ることも可能である。更には、半減期が長いので、今後1000～2000年にわたり中性子評価に使えるという大きなメリットがある。

広島平和記念資料館から拝借した銀製の勲章からは、予期した通り高濃度の ^{108m}Ag が検出された。そのほか、真鍮製の指輪や刀の鍔など不純物としてしか銀を含まない被ばく試料の非破壊 γ 線測定で、極めて微量の ^{108m}Ag を検出することにも成功した。図11に ^{108m}Ag の検出例を示した。

5.7 大気中 ^7Be と ^{210}Pb 変動の高解像度解析
 ^{222}Rn とその娘核種を除いて、大気中に存在する放射性核種の濃度変化を1～数時間間隔

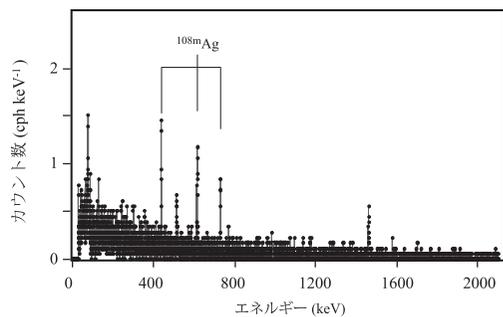


図11 似島に埋葬された原爆犠牲者の真鍮製の指輪の γ 線スペクトル

93.5%同軸型Ge検出器で359935秒測定（不純物として含まれていた銀の放射化で生成した ^{108m}Ag が検出されたことから、銀による中性子評価法の感度の高さがわかる）

で測定することは困難であった。大気の輸送や混合などのトレーサとして有効な ^{210}Pb や ^7Be は古くから測定されているが、 γ 線放出率が低く、 γ 線測定には少なくとも数百～1000 m³の空気のろ過が必要であった。このため、 ^{210}Pb や ^7Be により時間解像度で大気などの変動を解析するのは困難であり実施例がなかった。

極低バックグラウンド井戸型 Ge 検出器を使えば、10 m³の大気（ハイボリュームサンプラで10分相当）中の ^{210}Pb と ^7Be の同時測定が可能である。これによって ^{222}Rn なみの時間分解能で濃度変化を測定できるようになった。これまでに、台風や前線の通過時、降雪時など大きな気象変化に伴う ^{210}Pb や ^7Be の変動を解析し多くの新しい知見が得られるようになった¹⁹⁾。

5・8 隕石中の宇宙線生成核種

隕石中の宇宙線生成核種は極低レベル放射能測定の典型的な例である。核種濃度が極めて低い上に半減期の短い核種が多いので、大型の極低バックグラウンド Ge 検出器による迅速測定が必要である。図12は、落下21時間後に測定を開始することができた1999年9月26日落下の神戸隕石（62 g）の測定例である（つくば隕石では、落下7時間後に国立科学博物館が測定開始した）。極低バックグラウンド Ge 検出器による迅速測定のおかげで、 ^{24}Na ($T_{1/2}$: 15 h) のほか ^{24}Mg ($T_{1/2}$: 20.9 h), ^{43}K ($T_{1/2}$: 22.3 h) 及び ^{57}Ni ($T_{1/2}$: 36 h) をはじめ約20の極微量の宇宙線誘導核種の検出に成功した。 ^{24}Mg , ^{43}K 及び ^{57}Ni の検出は世界初である²⁰⁾。

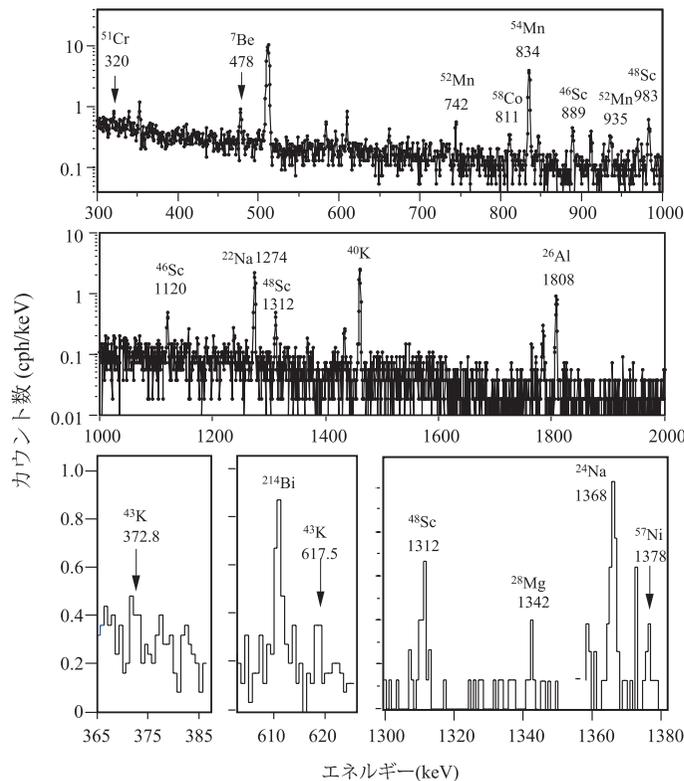


図12 落下21時間後から測定した神戸隕石（62 g）の γ 線スペクトル
93.5%の同軸型 Ge 検出器で305 438秒測定

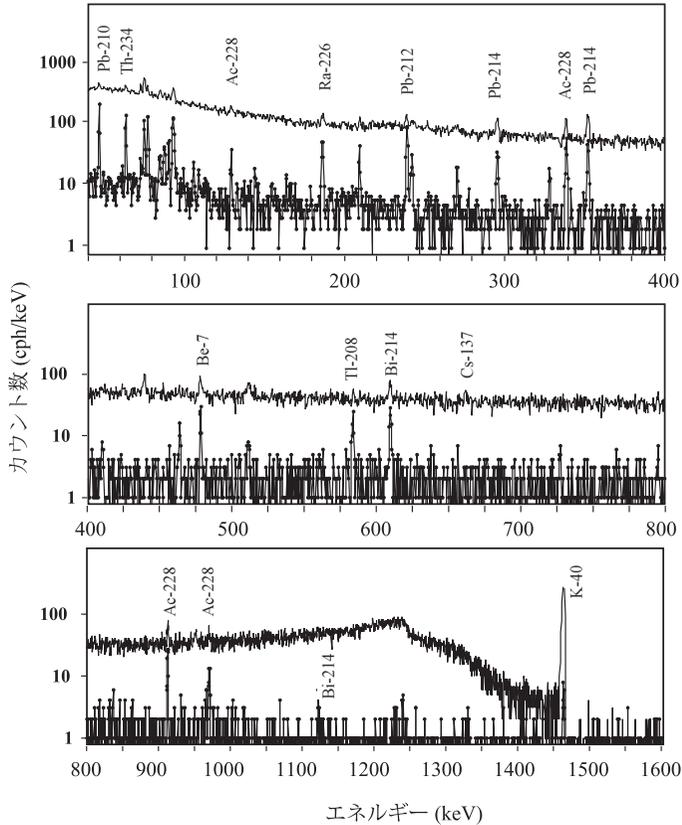


図13 カリウム除去の効果

6. 低レベル放射能測定の感度向上法と試薬の放射能汚染

6.1 カリウム除去によるコンプトン散乱線の寄与の低減

試料中に混在する放射性核種の高エネルギー γ 線のコンプトン散乱線が、極低レベル放射性核種の検出を著しく妨害することがある。検出器に関連したバックグラウンドでなく、試料由来のバックグラウンドである。環境試料では ^{40}K がこの種のバックグラウンド源となる。海産物や農産物ではカリウム含有量が高いので、乾燥、灰化、加圧成型等による減容によって検出効率を高めても、極低バックグラウンドGe検出器を使うメリットはあまりない。しかし、カリウムを除去すると試料由来のバックグラウンドを飛躍的に低減することができるので、極

低バックグラウンド放射能測定の効果が発揮される。図13は、海藻試料を灰化しただけの場合と、カリボール（カリウム沈殿試薬）を用いてカリウム含有量を500分の1に低減した場合の γ 線スペクトルである。カリウムの除去で ^7Be 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 等の検出感度が飛躍的に高まった。残念ながら、この処理法ではカリウム処理の際に ^{137}Cs が除かれてしまう。筆者らは高価なカリボール試薬を使わずに、カリウムを50～100分の1に低減可能な簡便な処理法を開発し、環境放射能のモニタリングに活用している²¹⁾。

6.2 共沈法組み合わせによる測定試料の有効利用

海水試料の ^{137}Cs を測定するために、古くからリンモリブデン酸アンモニウム（AMP）に

表5 試薬等の放射能汚染

汚染核種	物質
¹³⁷ Cs, ⁶⁰ Co	すべての物質
²²⁶ Ra	金属酸化物
	カルシウム試薬
	バリウム試薬
²²⁷ Ac (T _{1/2} 21.7 y)とその娘核種	ランタン
	スカンジウム
³ H	リチウム
¹³⁷ Cs, ¹³⁴ Cs	セシウム
表4参照	中性子捕獲断面積の大きな物質

よる選択的沈殿濃縮法が用いられている。海水には、¹³⁷Csの他にも多くのウラン及びトリウム系列核種が存在しており、表層海水の場合には⁷Beも検出される。更には、放射性廃棄物の海洋投棄に由来する⁶⁰Coや^{108m}Ag, ¹¹⁰Agなどの人工放射性核種が含まれている可能性があることから、せつかく採取した貴重な海水試料から可能な限り多くの情報を得る努力が必要と考えられる。

筆者らは、AMPによる¹³⁷Csの捕集後、硫酸バリウムによるラジウム同位体の沈殿捕集と水酸化鉄沈殿によるウラン及びトリウム同位体と²¹⁰Pbの捕集を行っている。これらの沈殿を乾燥・混合し、油圧器で円柱状の測定試料を作成したのちに大型井戸型Ge検出器でγ線測定すれば、採取試料が有効利用され多くの情報が得られる。

6.3 試薬の放射能汚染

希土類元素には、ランタン (¹³⁸La), サマリウム (¹⁴⁷Sm), ルテチウム (¹⁷⁶Lu) など天然の放射性同位体を有するものがある。また、元素によっては不純物としてかなり多量の放射性物質が含まれている。近年、希土類元素の工業的利用が多くなったが、放射性同位体や放射性不純物の存在についてあまり配慮されていない。物性研究においては放射能や放射線が重要な影響をもたらす可能性があり、場合によっては誤った結論を導く恐れがある。

試薬等に含まれている放射性不純物は、通常の化学的分析法では検知できないほど濃度が低いですが、バリウム試薬のラジウムのように放射能が高いものもある。高純度試薬とうたいながら、放射化学的純度の悪いものがあることを知っておくことも必要である。高純度試薬中の放射能汚染の例を表5に示した。

6.4 ラジウム含有量の低いバリウムの利用

海水中に存在する極低濃度のラジウム同位体の測定には、硫酸バリウムによる共沈濃縮法が広く使われている。精度のよい測定には、ラジウム濃度の極めて低いバリウム担体を使用する必要がある。極低バックグラウンドGe検出器を使い、10 L程度の少量の海水試料を測定する場合には、添加するバリウム担体中の²²⁶Raが無視できることが望ましい。市販のバリウム試薬には、化学的純度とは関係なく高濃度の²²⁶Raを含むものが多い。バリウム試薬やX線検診の造影剤として使われている硫酸バリウム

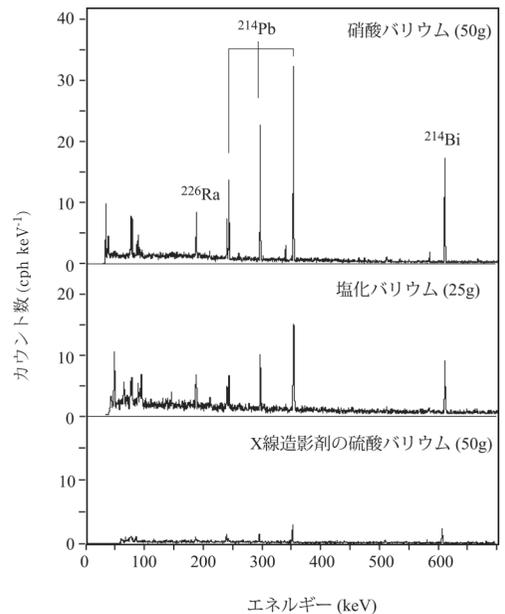


図14 特級の硫酸バリウム、特級の塩化バリウム、最も²²⁶Ra汚染の少なかった造影材のγ線スペクトル

など、多くの試料を測定し、ラジウム汚染が極めて低い (^{226}Ra 1.5 mBq g⁻¹, ^{228}Ra < 0.1 mBq g⁻¹) 造影材を見つけたので、海水のラジウム同位体の測定に使用している。図 14 に、特級の硫酸バリウム、特級の塩化バリウム、最も ^{226}Ra 汚染の少なかった造影材の γ 線スペクトルを示した。

おわりに

内容がかなり片寄ってしまったことをお許し頂きたい。尾小屋地下測定室の建設とその利用により、上に紹介した多くの研究が可能になった。環境中性子誘導核種の発見、 ^{108m}Ag を用いる原爆中性子の新しい評価法など、思いもよらなかった興味あるテーマが見つかった。「極低レベル放射能測定」、「超低レベル放射能測定」、に向けて測定装置の充実と改善の努力を重ね、新しい研究分野の開拓を目指したい。幸い、平成 17 年度から 5 か年にわたり「極低レベル放射能測定による新しい研究領域の開発と全国共同利用微弱放射能測定拠点の形成」というテーマに対し特別教育研究経費が交付され 3 台の極低バックグラウンド仕様の大型 Ge 検出器が購入された。

尾小屋地下測定室の見学、共同研究、トンネルを利用した研究テーマの提案、測定装置の設置等の申し出を歓迎する。

文 献

- 1) Hewitt, J. E. et al., Natural Radiation Environment III, Vol.2, USDOE, p.853-881 (1980)
- 2) Kodama, M. et al., Natural Radiation Environment III, Vol.2, USDOE, p.895 (1980)
- 3) Heusser, G., *Ann. Rev. Nucl. Part. Sci.*, **45**, 543-590 (1995)
- 4) Povinec, P. P. et al., *Appl. Radiat. Isot.*, **61**, 85-93 (2004)
- 5) Hamajima, Y. and Komura, K., *Appl. Radiat. Isot.*, **61**, 179-183 (2004)
- 6) Fukuda, S. et al., *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect.*, **A501**, 418-462 (2003)
- 7) 大橋英雄 (東京海洋大学) 私信
- 8) Collaboration of European Low-Level Laboratories (ed. Hult, M.) (2003)
- 9) 小村和久, KEK Proceedings 2004-8, 336-341 (2004)
- 10) Laubenstein et al., *Appl. Radiat. Isot.*, **61**, 167-172 (2004)
- 11) 阪上正信, 小村和久, 京都大学原子炉実験所報告 KUR-RI-TR-155 (1976)
- 12) US-Japan Joint Reassessment of Atomic Bomb Radiation Dosimetry in Hiroshima and Nagasaki, Final Report, Radiation Effects Research Foundation (1987)
- 13) Komura, K. et al., Reassessment of the Atomic Bomb Radiation Dosimetry for Hiroshima and Nagasaki-Dosimetry System 2002, Radiation Effects Research Foundation, Chap. 8I (2006)
- 14) Komura, K. et al., Proc. Int. Workshop on Distribution and Speciation of Radionuclides in the Environment, Rokkasho, Aomori, Japan, Oct.11-13, p.210-217 (2000)
- 15) Komura, K. et al., *J. Environ. Radioact.*, **50**, 77-82 (2000)
- 16) Sakaguchi, A. et al., *Earth Planet. Sci. Lett.*, **231**, 307-316 (2005)
- 17) 小村和久, 桑原雄宇, *Isotope News*, **618**, 2-6 (2005)
- 18) Lindner, L. et al., *Nature*, **240**, 463-464 (1972)
- 19) Komura, K. et al., *Int. Congr. Ser.*, **1276**, 227-230 (2005)
- 20) Komura, K. et al., *Geochem. J.*, **36**(4), 333-340 (2002)
- 21) Inoue, M. et al., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **255**(1), 211-215 (2003)