

連載講座

超低レベル放射能測定の実状と展望（第8回）

「超低レベル放射能測定の実状と展望」まとめ

小村和久

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8回）

「超低レベル放射能測定の実況と展望」まとめ[†]

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 : ultralow level counting, gamma ray, gamma ray measurement, liquid scintillation counter, germanium detector, cosmic ray induced nuclide, artificial radionuclide

1. はじめに

7回にわたり「低レベル・超低レベル放射能測定の測定」というテーマで、低レベル・超低レベル放射能測定の基礎（第1回，4月号），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（第2回，5月号），環境放射能モニタリングの実況（第3回，6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（第4回，7月号），極低レベル¹⁴C，⁷Be放射能測定による過去の宇宙線強度変動の検出（第5回，8月号），核不拡散のための極微量核種分析（第6回，9月号），質量分析装置を用いた環境試料中の放射性核種分析の実況（第7回，10月号）など様々角度から紹介してきた。取り上げたい分野はまだあるが，ひとまずまとめをしたい。

「展望」という観点から，これまでの講座は以下のように要約される。環境放射能のモニタ

リングでは，超低レベル放射能測定技術の有用性が必ずしも広く認識されているとはいいがたいが，測定精度の向上や測定に供する試料の量の低減，それに伴う必要経費の大幅削減という点でメリットが期待できる。また，超低レベル放射能測定技術の導入によって質の高い環境放射能測定データ数が増加し，結果についての統計処理の向上が図れる。一方，核不拡散のモニタリングにおいては，通常より1桁多量の大気浮遊塵採取が可能な超ハイボリュームエアサンプリングを使うことにより，大気中に必然的に存在するラドンやトロンの娘核種の寄与が極めて高い中で極微量の人工放射性核種の検出が求められている。したがって，採取後半日置いて短寿命天然放射性核種を壊変させてから行っている。超低バックグラウンド計数は，このような目的には直接的貢献としては小さいが，より少量のサンプリング（時間，体積）で同等の成果が得られるため経費や騒音の低減などの点でメリットがある。

一方，放射性核種をトレーサとして利用する地球化学，海洋化学，宇宙科学などの分野では，「超低レベル放射能測定」のメリットは極めて大きい。欲をいえばきりが無いが，より高い検出効率とより低いバックグラウンド計数を得る努力は今後も必要である。一つの解決法として第7回（10月号）講座で紹介した加速器質量

[†]Present Status and Prospects of Ultralow Level Radioactivity Measurements(8).

Summary of Ultralow Level Radioactivity Measurements Series.

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

スペクトロメトリや超高感度 ICP 質量スペクトロメトリ、表面電離型質量スペクトロメトリ等の技術の取り入れがある。しかし半減期が数百年以下の放射性核種の測定では、放射能（線）計測の優位性は当面続くものと考えられる。

2. 超低レベル放射能測定の展望

2.1 超低バックグラウンド検出器

最良の遮蔽材を用い、地下測定、ラドン対策、反同時計数の適用など外部からのバックグラウンド放射線の対策に最大限の努力をしても、最終的に効いてくるのは検出器（装置）に由来するバックグラウンド計数である。ウラン、トリウム、カリウム含有量の低い検出器の構成材料は、発注者自身が測定・評価し供給することも必要となろう。検出器メーカーに使用中の検出器のバックグラウンド性能とその問題点をフィードバックし、超低バックグラウンド化のためのアイデアと具体的な到達目標を示すことが重要である。また、各自が蓄積している低バックグラウンド化のノウハウを広く共有することが超低レベル放射能測定を更に進める力となるに違いない。あまり普及していない井戸型検出器や平板型検出器の使用は、より低レベル放射能測定に有効である。

4 台の Ge 検出器をクローバ形に組み合わせ、大きな井戸を持つ検出器が開発されている¹⁾。深さ 40～50 mm で直径 60 mm の井戸には 75～120 mL の試料が入るので、超低レベル放射能測定に威力を発揮する。薄い平板型 Ge 結晶と厚い同軸型 Ge 結晶からなる検出器を構成し、前者で低エネルギー γ 線を、後者で高エネルギー γ 線を測定することにより両者間の同時あるいは反同時計数も可能である¹⁾。これらの検出器は極めて高価なものになるが、単一結晶からなる検出器では得られない情報を得られるとともに低バックグラウンド化も達成できる。

2.2 リストモードによるデータ取得

16 台の検出器からの信号をスペクトル記録

する一方、各検出器の信号発生時刻とエネルギー情報をリストモードで記憶する比較的安価な波高分析装置が市販されている²⁾。これを使えば、同時計数回路、ディレー回路、ストレッチャ回路などのハードウェアを使わずに、データ処理によって反同時又は同時計数スペクトルを構築して低バックグラウンド化が可能となる。計測中にノイズが発生しても、そのノイズ発生時刻を知ることができるので、原因の究明やその時間帯の信号を除去することで被害を最小限に抑えられる。

しかし、遮蔽のない状態（検出器あたり計数率 10^4 cpm, 時間分解能 10^{-6} s）では 1 日測定のデータ数が約 50 M バイトにもなり、処理能力の大きな計算機でないとデータ処理に時間がかかってしまう。超低バックグラウンド放射能測定では、主検出器の信号が少ないので問題はないが、バックグラウンド低減のために使う反同時計数用検出器を遮蔽の外に置くと、ほとんどがこの検出器からの信号になってしまう。これを避けるには、反同時計数用検出器からの信号が、少なくとも 1～2 桁低減できるように遮蔽の内に置くのがよい。3 mm 厚のプラスチックシンチレータを、外部遮蔽と主検出器に近接する内部遮蔽との間に置いて反同時計数を行う試みがなされている³⁾。早期の実用化が望まれる。

2.3 サムピーク問題

市販の標準線源セットには、 ^{60}Co 、 ^{88}Y あるいは ^{133}Ba など複数の γ 線をカスケードに放出するものがあり、サム効果によりスムーズな検出効率曲線が得られない。検出効率を計算で求める市販のプログラムは良くできているが、筆者の知る限りサム効果を正しく評価できるものや井戸型検出器へ適用できるものはない。サムピーク効果の影響が多い場合でも、同一核種の標準線源が入手できれば、ピーク比から放射能強度を直接求めることができる。しかし、そのような標準線源が入手できない場合がほとんど

であり、類似核種の測定で得たサム効果の度合を推定するほかない。

井戸型検出器ではサム効果の補正は深刻な問題である。筆者はサム効果が無視できる距離（検出器の直径の1.5倍以上あればよい）に線源を置いて測定し、ついで実際の条件（エンドキャップの上や井戸の中に入れて）で測定し、両測定のピーク比からサム効果を補正している。また、多くの試料を測定すると検出器のサイズによる補正について経験則が得られるので、これを用いて補正するのも有効である。

サム効果が起きないピークを用いると滑らかな検出効率曲線を描くことができる。放射平衡にあるウランはこのような目的に適している。46.5 keV (^{210}Pb)、63.2 及び 93.2 keV (^{234}Th)、186 keV ($^{226}\text{Ra} + ^{235}\text{U}$)、242, 295, 352 keV (^{214}Pb)、1 001 keV ($^{234\text{m}}\text{Pa}$) 及び 1 764 keV (^{214}Bi) γ 線を使う。また、放射平衡にあるトリウムを使えば、238 keV (^{212}Pb)、338, 911, 965+969 keV (^{228}Ac) γ 線などを使って検出効率曲線を描くことができる。 ^{214}Bi からの 609 keV 及び 1 120 keV γ 線や ^{208}Tl からの 583 keV 及び 2 614 keV γ 線のサム効果は、描いた曲線からのズレから評価できる。

NBL (New Brunswick Laboratory, US DOE) 発行のウランとトリウム標準試料⁴⁾は比較的濃度が高いので、検出効率曲線を得るのに適切な物質であり、数百～1 000 ppm 程度に希釈して使うと使いやすい。

更に、世界的に定評のあるプログラム GEANT4 を使えば、井戸型検出器の検出効率を計算できる。残念ながらサム効果を扱った例はないと聞いている。モンテカルロ法を使っているので、誰か井戸型 Ge 検出器を含めてサム効果の計算にチャレンジして欲しい。

2・4 地下測定による液体シンチレーションカウンタのバックグラウンド低減

第4回講座（7月号）で低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタを紹介した。ほ

とんどの液体シンチレーションカウンタは、バックグラウンド計数を下げるために反同時計数及び波形弁別の手法を採用しており、地上でもかなり低バックグラウンドが達成されている。500 mwe の地下に液体シンチレーションカウンタを設置して、バックグラウンド計数をどの程度低減できるか評価した例がある⁵⁾。これによれば、検出器メーカーによる違いはあるが、低バックグラウンド仕様の検出器では、地上測定の約3分の1に低減できたという。 γ 線測定と比べて地下測定の効果が小さいのは、液体シンチレーションカウンタの反同時計数がミュオンの寄与低減に非常に有効なことによる。

液体シンチレーションカウンタによる β 線測定の対象核種には、環境放射能モニタリング核種である ^3H や ^{14}C 、大気圏核実験フォールアウト ^{241}Pu ($T_{1/2}$: 14.35 y)、雨水中に存在する宇宙線誘導核種 ^{32}P ($T_{1/2}$: 14.26 d)、 ^{32}Si ($T_{1/2}$: 172 y)、 ^{33}P ($T_{1/2}$: 25.11 d)、 ^{35}S ($T_{1/2}$: 87.51 d) 等がある。核実験由来の成分がほとんど減衰した現在、環境水の ^3H の測定は同位体濃縮なしには困難なレベルになっている。液体シンチレーションカウンタを地下に設置することによって、大気中に0.93%存在する ^{40}Ar と宇宙線との反応で生成する ^{32}P 、 ^{32}Si 、 ^{33}P 、 ^{35}S 等の濃度が極めて低い純 β -線放出核種を精度よく測定できる。第2回講座（5月号）で紹介した γ 線測定による宇宙線誘導核種 (^7Be , ^{18}F , ^{22}Na , ^{24}Na , ^{28}Mg , ^{38}Cl , ^{39}Cl) の測定、加速器質量スペクトロメータによる ^{10}Be 、 ^{26}Al 、 ^{36}Cl の測定なども行えば、一つの雨水試料で10を超える宇宙線誘導核種を定量できるので、大気上空で起っている事象について極めて多くの情報が得られると期待される。

3. 廃棄された遮蔽材の利用

最近、放射能測定からの撤退や測定器の更新などに伴い、鉛や鉄などの遮蔽材が廃棄されることが多くなった。鉛には半減期22.3年の ^{210}Pb が必然的に含まれているので、古い鉛は

ど遮蔽材としての価値は高くなる。筆者は遮蔽に使われていた鉛や鉄が廃棄されるとの情報を得ると、これらを確保する努力をしており、これまでに 100 t を超える鉛及び鉄廃材を確保することができた。最終的には 200 t 以上の遮蔽材を尾小屋トンネル内に保管し、希望に応じて供給する体制を整えたいと考えている。鉛と鉄のほか、300 kg を超える無酸素銅も遮蔽材としてトンネル内に保管している。150 m² クラスの地下測定室が実現すれば、ここに小さな鉛溶解炉と工作機械を備えた室を設けて遮蔽体を作成する計画である。収集した鉛は、²¹⁰Pb 含有量でランク付けし、遮蔽材として有効なものを選別する。ここで作成する遮蔽体を使うことによって、地上設置の「低バックグラウンド」Ge 検出器のバックグラウンド計数を 1/3 に低減することは困難ではない。

4. 超低レベル放射能測定を応用する今後の研究

極低レベル放射能測定や、超低レベル放射能測定の最大のメリットは試料量の大幅低減である。思いがけない新しい研究分野が拓ける可能性もある。試料量が同じであれば、測定時間の節約になり、同じ測定時間であれば測定精度が高められる。しかし、超低レベル放射能測定では、測定試料中の放射性不純物濃度を可能な限り除く努力をしないと、検出器の性能をフルに活かすことができない。

最近、様々な分野で高純度物質が求められるようになってきた。一般に、化学的純度については関心が深いのが、放射性不純物についてはほとんど配慮されていない場合が多い。典型的な例は希土類である。¹³⁸La ($T_{1/2}$: 1.05×10^{11} y), ¹⁴⁷Sm ($T_{1/2}$: 1.06×10^{11} y), ¹⁷⁶Lu ($T_{1/2}$: 3.8×10^{11} y) は半減期が長いので放射能が低いと考えられているが、 γ 線測定や α 線測定で容易に検出できるレベルである。

材料科学の分野では、高純度物質の選別やスクリーニングに、超低レベル放射能測定技術で

活かすことができる。筆者らは環境中性子による放射化で生成する多くの誘導放射性核種を明らかにしている⁶⁾が、超高純度物質の研究ではこれら中性子誘導核種に対し配慮が必要になる。スペースシャトルによる宇宙飛行や将来予定されている火星ミッションでは、長期間宇宙線に晒されるので、宇宙線による被ばくを評価する必要がある。電離放射線よりも中性子被ばく評価が困難であり、その手法の開発が待たれている。⁵⁸Ni(n, p)⁵⁸Co 反応や⁶⁰Ni(n, p)⁶⁰Co 反応が提案されている。生成する放射能は極めて低いので、ターゲットには濃縮同位体を用い、超低バックグラウンド Ge 検出器で生成核種を測定する。尾小屋地下測定室を利用して予備実験がすでに始まっている。

2001 年から 2004 年にかけて 3 年間宇宙線に暴露し、宇宙線生成核種を評価するほか、宇宙線の構成成分を解析する目的で行われた NASA の Genesis Mission⁷⁾では、照射した石英ガラス (SiO₂) 中に生成した ⁷Be と ²²Na を測定した。測定結果は、加速器質量スペクトロメトリによる¹⁰Be, ²⁶Al の生成量と整合性のよい結果が得られている⁸⁾。

毎分 10 m³ の空気をろ過できる超ハイボリュームサンブラと、超低バックグラウンド放射能測定技術を組み合わせれば、大気上空で存在する²⁴Na や²⁸Mg などの短寿命宇宙線誘導核種を測定できるものと推定される。核種生成量の高度依存性を測定し、雨水中の濃度と比較することによって、雲の高度や雨滴の滞留時間などの解析が可能と考えられる。幸い、両核種とも半減期が比較的長いので、運搬に半日かけても十分に検出できると予想される。

更には、大気中濃度が μ Bq m⁻³ 以下に低下した大気圏核実験由来の¹³⁷Cs や宇宙線誘導核種 ²²Na の日変動の観測も可能となろう。ほかにも超低レベル放射能測定技術でチャレンジする課題は多いに違いない。



図1 尾小屋トンネルの入り口

左の小屋には検出器冷却用の液体窒素製造装置2台が設置されている。積雪が1 mを超える冬季は、車であがれず、階段を通過して15 m登らなければならないので大変である

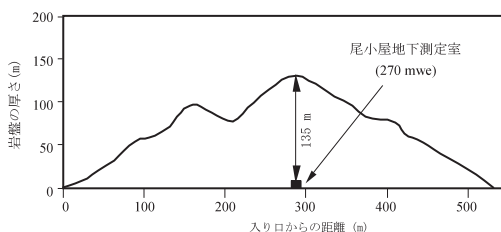


図2 トンネル内の地下測定室設置地点

地下測定室は入口から300 m地点にある。凝灰岩の岩盤の厚さは135 mで水深に換算した深さは270 mである。分厚い岩盤で透過力の強い宇宙線のミュオン強度は地上の1/200、中性子強度は1/300である

5. おわりに

ヨーロッパには、地下測定室を利用している研究組織 (CELLAR: Collaboration of European Low-level underground Laboratories)⁹⁾があり (第2回講座, 5月号), 定期的に超低レベル放

射能測定に関する情報交換と勉強会を行っている。この組織とは、核施設の事故が起こった場合等の緊急時には試料を分担して測定する協力を考えている。我が国には、筆者らの尾小屋地下測定室、岐阜県の神岡、千葉県柏市 (東大宇宙線研)、奈良県五條市大塔町 (大阪大) の四つの地下測定室が稼動しているが、これらの内、尾小屋と柏の二つだけが放射能測定を目的としている地下測定室である。もっと多くの地下測定室が必要かどうかと問われれば、イエスと答えたい。いくつかの機関が地下測定室を置く計画をもって努力したと聞いている。本講座が後押しする力になれば幸いである。

原子力発電所設置県が実施している環境放射能の測定結果をまとめている日本分析センターには、地下測定室とまでは行かなくても、地上レベルで十分低バックグラウンド計数できる施設と、高い検出効率を有するGe検出器、でき



図3 尾小屋地下測定室内部。検出器のヘッドは分厚い鉛と鉄で遮蔽しており、検出器を冷却するための液体窒素の入ったデュワーしか見えない。奥に3台、手前に2台の検出器がセットされている

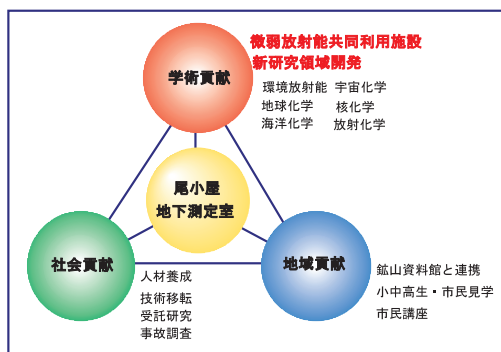


図4 全国共同利用微弱放射能測定拠点としての尾小屋地測定室の位置づけ

れば井戸型 Ge 検出器の設置が望ましい。いかがであろうか。

2006 年 6 月現在、尾小屋地下測定室には、文科省の特別教育研究経費の助成と金沢大学学長戦略経費を得て新規に購入した検出器を含め、同軸型 1 台、井戸型 9 台、平板型 5 台が稼働している。全国共同利用微弱放射能測定拠点の形

成を目標とする 5 か年計画の 2 年目に入る。当初予定していた 150 m² クラスの地下測定室建設の目処は立っていないが、その実現を図るため今後とも最大限努力したい。尾小屋地下測定室の様子と共同利用計画の概要を図 1～4 に示した。

文 献

- 1) キャンベラジャパンの Catalogue より
- 2) <http://www.iti.iwatsu.co.jp/products/physics/pdf/A3100L.pdf> (岩通計測株式会社)
- 3) 濱島靖典 (金沢大低レベル放射能実験施設) 私信
- 4) <http://www.nbl.doe.gov/hlm/products.htm>
- 5) Verrezen, F. and Hurtgen, C., Low level liquid scintillation counting in a deep underground laboratory : background reduction aspects, Environmental Radiochemical Analysis II (Warwick, P., ed.), Royal Society of Chemistry, UK, Special Publ. No.291, 160-166 (2003)
- 6) Komura, K., Ultra low background gamma spec-

- trometry for the monitoring of environmental neutrons, Environmental Radiochemical Analysis II (Warwick, P., ed.), Royal Society of Chemistry, UK, Special Publ. No.291, 53-59 (2003)
- 7) http://www.nasa.gov/mission_pages/genesis/media/genesis-081904.html
- 8) Nishiizumi, K. et al., Status of GENESIS Mo-Pt foils. Abst. for the 36th Lunar and Planetary Science Conf., Mar.14-18, 2005, Houston, #2266 (2005)
- 9) Collaboration of European Low-Level Laboratories (Hult,M.ed.) (2003) 16 ページのパンフ, 希望があればコピーを差しあげます (非売品)。
-