

土壌放射線測定のためのゲルマニウム半導体検出器の性能評価

Performance study of Ge detector for the radiation survey of soil

住浜水季^{a,b}・九野絢圭^a・夏目麻衣^a・水田亮^a

Mizuki Sumihama, Ayaka Kuno, Mai Natsume, Ryo Mizuta

^a〒501-1193 岐阜市柳戸 1-1 岐阜大学教育学部 理科教育 物理科

^b〒567-0047 大阪府茨木市美穂ヶ丘 10-1 大阪大学 核物理研究センター

e-mail:sumihama@gifu-u.ac.jp

論文要旨

福島県飯舘村にて環境放射線研修が毎年行われている。研修で採取された土壌中の放射能を測定するために、ゲルマニウム半導体検出器が使われている。本研究では、ゲルマニウム半導体検出器の性能評価を行った。¹³⁷Cs からの 662 keV のガンマ線に対するエネルギー分解能は半値幅で 1.4 keV であり、検出効率約 1.5% であることがわかった。得られた検出効率を用いて、土壌中の放射能を正確に測定できるようになった。

1. はじめに

2011 年 3 月 11 日に起きた東日本大震災により、福島第一原子力発電所の原子炉を制御できなくなり水素爆発が起きた。水素爆発により建屋が破壊され、大量の放射性物質が放出された。放射性物質は等方的に広がらず、事故後の気象状況によって北西方向に広がった。そのため、北西方向の地域に高い放射線量が観測されている [1]。福島第一原子力発電所から北西方向 30-40 km に位置する福島県飯舘村は、2011 年 4 月に避難指示区域に設定された。事故後、除染作業が行われたこと、一部の放射性物質の放射線量の減衰により、6 年後の 2017 年 3 月に避難指示が解除された [2]。避難指示は解除されたが、依然放射線量が通常よりも高いところもあり、今後も放射線量の調査を継続的に行うことが求められている。

2018 年 8 月 31 日から 9 月 5 日までの 6 日間、飯舘村環境放射線研修が大阪大学主催で行われた（研修は毎年行われている） [3]。岐阜大学教育学部物理科の有志の 4 年生も参加し、実地研修として土壌サンプルの採取を行った。土壌サンプルの放射能¹の測定には大阪大学核物理研究センター所有のゲルマニウム半導体検出器が用いられた。本研究では、ゲルマニウム半導体検出器と、比較のためのヨウ化ナトリウム検出器の性能評価を行った。

2. 土壌中の放射性物質

福島第一原子力発電所の事故で放出された放射性物質は雨や雪に交じって飛散し、土壌にしみ込んだ。その放射性物質にはガンマ線を放出する ¹³¹I, ¹³⁴Cs や ¹³⁷Cs が含まれている。¹³¹I の半減期は 8 日と短く、現在は検出されていない。¹³⁴Cs は半減期が 2.07 年で、8 年後には 16 分

¹ 単位時間に放射性壊変する原子の個数。単位はベクレル(Bq)。

の1にまで減衰するため、現在では多くの地域で検出されなくなっている。一方で、 ^{137}Cs は半減期が30.07年と長く、今後も人々の生活に影響を及ぼす恐れがあると言える。 ^{134}Cs からは主に605 keVのガンマ線が、 ^{137}Cs からは662 keVのガンマ線が出ており、ガンマ線を検出することで、それぞれの放射能を測定することができる。一般に、ガンマ線の測定には、検出効率の高いヨウ化ナトリウム検出器かエネルギー分解能が優れているゲルマニウム半導体検出器を用いる。環境放射線研修で採取した土壌中の放射能測定には、ゲルマニウム半導体検出器が用いられている。

3. 土壌サンプルの採取方法

土壌サンプルの採取場所は経年変化を調査するため、基本的には前年度も採取した場所で行っている。採取場所では、GPSで位置を確認し、文部科学省から借用した「はかるくん」で、地表から約5 cmと約100 cmの高さで空間線量を測定する。サンプルは2種類あり、表層深さ5 cm、直径5 cmの円筒状に土壌を採取したものと、表層から深さ30 cm、直径5 cmの円筒状に土壌を掘削したものがある。前者の深さ5 cmのサンプルはU-8（径5.6 cm、高さ6.8 cm）容器に、後者の深さ30 cmのサンプルは採取後、2.5 cm間隔で土壌を分け、それぞれをU-9（径5.6 cm、高さ3.9 cm）容器に充填する。

4. ゲルマニウム半導体検出器を用いた放射能測定

図1は使用したゲルマニウム検出器とセットアップを横から見た概略図である。ゲルマニウム検出器はキャンペラ製GC2520で、結晶サイズと窓までの距離を表1にまとめた。本研究では尚絢学院大学の齊藤敬氏が使用している同じ型番のゲルマニウム検出器で得られた検出効率との比較もしており、同様に表1にまとめた。



表1 ゲルマニウム検出器の仕様

所有	S/N	結晶サイズ (cm×cm)	窓までの距離 (cm)
阪大	9885	φ6.02×3.92	0.498
尚絢大	9887	φ5.82×4.38	0.461

検出器の上端に試料の受け皿として、U-8容器の蓋が固定されていて、その上にU-8またはU-9容器をのせることで、位置が固定される。

外部からのガンマ線を遮蔽するために厚さ5 cmの鉛ブロックでゲルマニウム結晶を囲み、さらに内側に、鉛で発生するX線を遮蔽するために0.5 cmの真鍮板を置いた。検出器上の定位置に、土壌を充填したU-8またはU-9容器を置き、測定を行った。得られたエネルギー分布より、 ^{137}Cs からの662 keVのガンマ線を特定し、計数率を求めた。土壌サンプルの放射能濃度 x [Bq/kg]は、以下の式から求めた。

$$x = \frac{N}{\text{Br}(= 0.851) * \epsilon * m}$$

N: 計数率, Br: 662 keVのガンマ線の分岐比, ϵ : 検出効率, m: 土壌サンプルの質量

図1 ゲルマニウム検出器のセットアップの概略図

^{134}Cs からの 605 keV のガンマ線についても同様に測定した。ただし、分岐比は 0.9765 である。本研究では検出効率 ϵ を求めた。

5. 検出器の性能評価

662 keV のガンマ線を特定するには、その近傍のガンマ線と分離する必要があり、エネルギー分解能は重要な性能である。また、正確に放射能を得るために、検出器の検出効率を求める必要がある。

5-1 エネルギー分解能

ゲルマニウム半導体検出器

図2はゲルマニウム検出器を用いて測定した、ある土壌サンプルのガンマ線エネルギースペクトルである。このサンプルは未除染の土壌であり、通常よりも強い放射能が検出されている。 ^{134}Cs からの 563, 569, 605, 796, 802 keV と、 ^{137}Cs からの 662 keV のガンマ線が観測された。662 keV のガンマ線に対するエネルギー分解能は半値幅で 1.4 keV であり、ほかのガンマ線と分離可能であることがわかった。また、 ^{134}Cs の含有量を決定するために用いている 605 keV のガンマ線に対するエネルギー分解能も半値幅で 1.4 keV であった。このように、ゲルマニウム検出器は高いエネルギー分解能を持ち、放射性物質を特定するために有効な検出器であることがわかる。

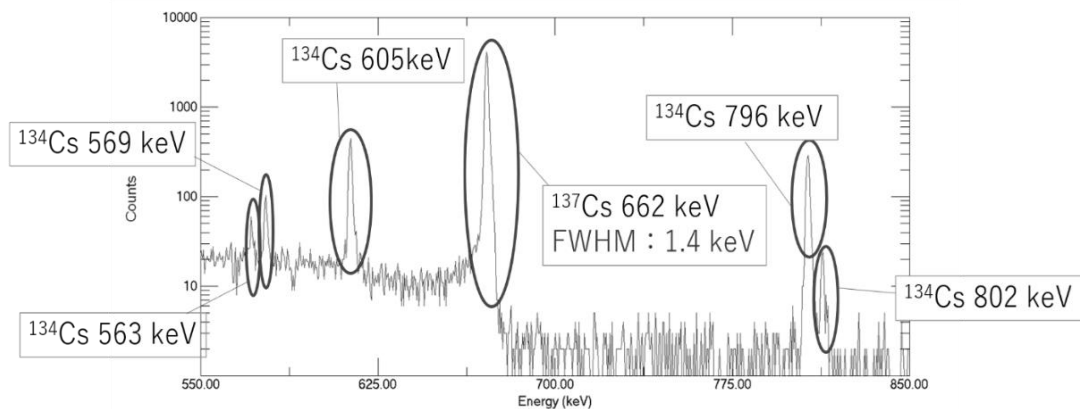


図2 ゲルマニウム検出器による土壌サンプルから得たガンマ線エネルギースペクトル

ヨウ化ナトリウム検出器

図3は同じ土壌サンプルの SCIONIX 社製 51B51/2 型(結晶サイズ 51 mm x 51 mm)ヨウ化ナトリウム検出器によるガンマ線エネルギースペクトルである。中央に黒丸で囲われた2つのピークが観測された。低エネルギー側のピークには、 ^{134}Cs からの 563, 569, 605 keV と ^{137}Cs 662 keV のガンマ線が含まれており、それぞれを分離できないことがわかる。すぐ隣に見える高エネルギー側のピークには ^{134}Cs からの 796 keV と 802 keV が含まれていて、こちらも分離できない。さらに、 ^{40}K からの 1461 keV のガンマ線も観測されている。この測定とは別に、 ^{137}Cs の線源を用いてエネルギースペクトルを測定し、662 keV のガンマ線に対するエネルギー分解能を求めたところ、半値幅が 50 keV であった。

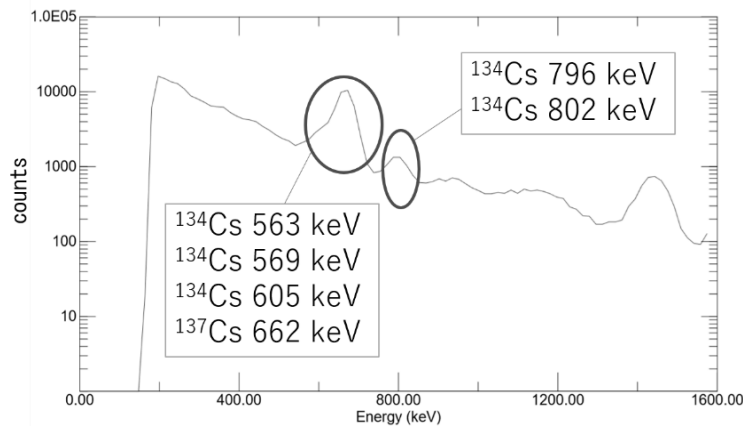


図 3 ヨウ化ナトリウム検出器による土壌サンプルから得たガンマ線エネルギースペクトル

5-2 検出効率

検出効率 ϵ には、検出器と試料の幾何学的な要因（立体角）によるもの、試料中の自己吸収、検出器の感度が含まれる。土壌サンプルの容器には同じ形状のものを用いたが、土壌の充填量によって高さが異なる。高さが変わると、ゲルマニウム結晶と試料までの平均的な距離が変化して実効的な立体角や自己吸収が変化する。そこで、検出効率の高さ依存性を評価した。測定には、IAEA（国際原子力機構）が提供している放射能既知の土壌試料“IAEA-444 soil certified reference material”を用いた。試料をU-8容器に充填し、試料中の662 keVのガンマ線を測定した。充填した試料の高さを1.0, 2.0, 3.4, 4.5 cmと変え、4点で測定を行った。IAEA-444の放射能は、2007年10月15日時点で、 $^{134}\text{Cs} : 59.4 \pm 1.7 \text{ Bq/kg}$ $^{137}\text{Cs} : 68.5 \pm 1.4 \text{ Bq/kg}$ であったので、測定を行った2018年11月12日時点での試料中の放射能はこれらの数値と半減期より以下のように算出した[4]。

$$^{134}\text{Cs} : \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{11.08}{2.065}} \times (59.4 \pm 1.7) = 1.44 \pm 0.04 \text{ Bq/kg}$$

$$^{137}\text{Cs} : \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{11.08}{30.167}} \times (68.5 \pm 1.4) = 53.1 \pm 1.1 \text{ Bq/kg}$$

測定で得られた662 keVの放射能を上記の数値で割ることで検出効率を求めた。 ^{134}Cs は減衰が進んで、放射能が減っているため、検出率は測定できなかった。図4は得られたゲルマニウム検出器の検出効率である。図には統計誤差が示してある。測定は、1点につき10時間程度行った。検出率は1.5%程度で、試料の高さが増えるほど小さくなっていることがわかる。図5は同様に測定したヨウ化ナトリウム検出器の検出効率である。測定時間が短かったため、統計誤差が大きくなっている。高さ1 cmで13.2%あり、同じ高さでのゲルマニウム検出器の検出効率1.9%と比較して約1桁高く、短時間で放射能を大まかに測定するときは、ヨウ化ナトリウム検出器が適していることがわかる。一方で、ゲルマニウム検出器を用いた測定では、エネルギー分解能が優れているため放射性物質を特定できるが、測定には時間がかかる。

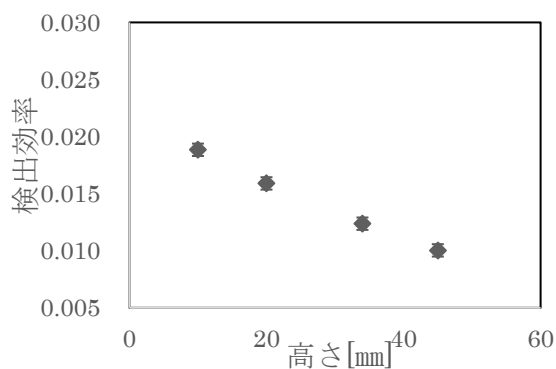


図 4 ゲルマニウム検出器の検出効率

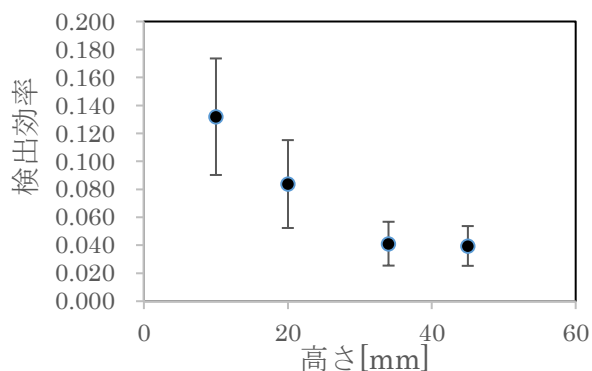


図 5 ヨウ化ナトリウム検出器の検出効率

本研究では、ゲルマニウム検出器の検出効率を、試料の高さ 4 点のみで測定した。尚絅学院大学では、本研究で使用したのと同じ型番のゲルマニウム検出器を使用しており（表 1），同じ IAEA-444 の試料を用いて高さ 0.5 cm 間隔で検出効率を測定している。図 6 は尚絅学院大学の検出器と本研究で用いられた大阪大学の検出器の検出効率の比較を示している。大阪大学所有の検出器の検出効率の方が低いことがわかる。

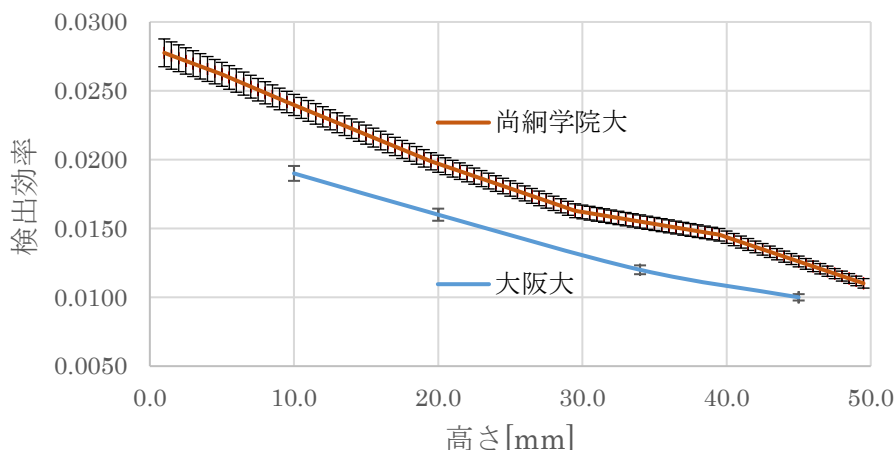


図 6 尚絅学院大学と大阪大学所有のゲルマニウム検出器の検出効率の比較

尚絅学院大学で得られた検出効率と本研究で得られた結果を比較し、補正係数を求めた。図 7 は両検出効率の比を 4 点で求めた結果である。データ点を直線フィットした結果、以下の式が得られた。

$$y = 0.0002x + 0.792, \quad y: \text{検出効率}, \quad x: \text{高さ [mm]}$$

傾きがほぼゼロであることから補正係数は高さに依存せず一定値であるとみなしてよいことがわかった。得られた補正係数 a は

$$a = 0.79 \pm 0.03$$

となった。

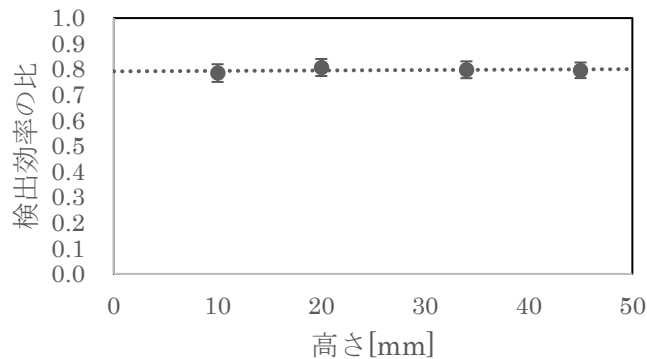


図 7 尚綱大と阪大所有のゲルマニウム検出器の検出効率の比

大阪大学のゲルマニウム検出器の検出効率は、尚綱学院大学で所有しているゲルマニウム検出器よりも 20%程度低い。これは結晶の個性による要因のみで考えるには大きい差である。その他の理由として、結晶サイズと窓までの距離の差異（表 1）と容器の設置位置が起因すると考えられる。前述したように、大阪大学のゲルマニウム検出器本体の上には、U-8 容器の蓋が固定されていて、測定試料と検出器の間には距離があり、検出効率が低くなっている。このことも要因と考えられる。

2017 年に核物理研究センターの中村翔健氏によって行われた測定結果では、 ^{134}Cs の 605 keV と ^{137}Cs の 662 keV に対する補正係数が、それぞれ 0.725 ± 0.020 と 0.719 ± 0.020 と求められている。本研究で得られた ^{137}Cs の 662 keV に対する補正係数の方が 0.07 程度高かったが、測定試料や実験のセットアップの違い、特に結晶から試料までの距離の差異を考慮し、ほぼ一致したと言える。

^{134}Cs に関しては、試料中の含有量が少なく、測定不能であった。エネルギーが 605 keV で、662 keV と約 60 keV の差しかないこと、昨年の補正係数の測定より、 ^{134}Cs と ^{137}Cs の補正係数に差がほとんどないことから、662 keV と同じ補正係数を使用してもよいと考える。

6. まとめ

2018 年 9 月に福島県飯館村にて環境放射線研修を行い、土壌サンプルを採取した。福島第一原子力発電の事故後 8 年が経過しているが、放射能の継続的な調査が必要とされている。採取したサンプル中の ^{134}Cs の 605 keV と ^{137}Cs の 662 keV のガンマ線はゲルマニウム半導体検出器によって測定され、その放射能を算出する。

本研究では、土壌中の放射能の測定に必要なゲルマニウム検出器の性能評価を行った。662 keV に対するエネルギー分解能は半値幅で 1.4 keV で、近傍の ^{134}Cs からの 605 keV と分離可能である。また、IAEA の放射能既知の試料を用いて検出効率を測定し、約 1.5%であることがわかった。さらに、尚綱学院大学で得られた検出効率のデータを使用するための補正係数を求めた。本研究で得られた検出効率と補正計数をもとに、採取した土壌サンプルの放射能測定が可能となった。

7. 謝辞

本研究を進めるにあたり、飯館村環境放射線研修に関わった方々皆様にお礼を申し上げます。

参考文献

- [1] 福島土壌調査 <https://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/dojo/>.
- [2] 飯舘村は負けないー土と人の未来のために 千葉悦子, 松野光伸 (2012) など。
- [3] 2018年度 飯舘村環境放射線研修ホームページ
<http://www.rcnp.osaka-u.ac.jp/ja/ev/iitate-seminar/2018/seminar.html>
- [4] IAEA-444のホームページ内
<https://nucleus.iaea.org/rpst/referenceproducts/referencematerials/radionuclides/IAEA-444.htm>