

γ線測定装置2機種によるRa同位体の測定と相互利用

野村 律夫*・中村 光作**

Ritsuo NOMURA and Kosaku NAKAMURA

Mutual Use of the Two-type γ Spectrometers for the Measurement of Ra Radioactivity

ABSTRACT

Two types of gamma (γ) spectrometer, which detectors are well and broad energy-type, respectively, have been set up in the Earth Science Laboratory. The Well-type γ spectrometer, EGPC 150-P16, has been mainly used for the analysis of lead and cesium, to estimate the sedimentation rate. The Broad Energy (BE) - spectrometer, GX4019, has been mainly applied to the analyses of radium isotopes in water. Both machines effectively measure radioactive elements with a low background noise. The measurement of environmental radioactivity such as ²¹⁰Pb is usually needed a day and over, though it depends on the amount of activity. Our machines for the radioactivity of ²¹⁰Pb, Cs, ²¹⁴Pb, ²²⁸Ac are needed at least 1 day. Because of the two busy machines, the coordination using the same sample is requested to keep a better mutual use. We performed the measurement of ²²⁶Ra and ²²⁸Ra using the same sample and obtained the following result :

$$\text{For } ^{226}\text{Ra} : Y_{(\text{GX})} = 0.00 + 1.00X_{(\text{Eu})} \quad R^2 = 0.94,$$

$$\text{and for } ^{228}\text{Ra} : Y_{(\text{GX})} = -0.01 + 1.47X_{(\text{Eu})} \quad R^2 = 0.96,$$

where $Y_{(\text{GX})}$ means the content obtained by BE Ge detector, and $Y_{(\text{Eu})}$ is that of the Well-type Ge detector.

【キーワード：γ線測定装置，ウエル型（井戸型）Ge検出器，広領域Ge検出器，²²⁸Ra，²²⁶Ra】

はじめに

現在，島根大学教育学部には2台のγ線測定装置が設置されている。ウエル型（井戸型；Well-type）半導体検出器をもった装置は，2004年に堆積物の年代測定を目的として導入されたもので，鉛，セシウムの測定が行われている。もう一方の同軸型のGe半導体をもった装置は，広エネルギー帯域BE（Broad Energy）Ge検出器と称されるもので，堆積物や水中のラジウムを測定する目的で2009年に設置された。両機種とも，野外における現在の環境問題，たとえば水の循環過程，堆積物の挙動などの解析では利用価値の高い装置である。

ウエル型半導体検出器（モデルEGPC 150-P16）は，Canberra-Eurisys社が製作したもので検出効率が高く，数グラムの試料でも分析が可能である。研究室では現在まで1900件を超える分析を行ってきた。この中には，湖水の動態を定期的に測定し，時系列的な変化を求める目的で進められてきた試料もある。一般に，γ線測定では，試料の同位体元素の核崩壊によって放出されるγ線を捕らえるため，同位体元素のもつ時間あたりの崩壊数によって測定時間の大小が決まる。一般に²¹⁰Pbのような環境放射能の測定には，測定誤差を5～10%以下にするために24時間以上の測定時間を必要とする放射性元素が多い。そのため，1台のγ線装置を使って分析を行う場

合，分析件数は限られたものとなる。研究室では，これまでEGPC 150-P16で行っていたRaの測定をBE Ge検出器（モデルGX4019）で分析を行い，分析件数の増加を図ったため装置の間で測定値の調整が必要となった。

本報告は，2台の装置を使って同一試料を分析した結果，高い相関をもって測定値の移行が相互にできることになったので装置の現状を解説するとともに，その結果を報告することにした。

1.2 機種のγ線測定装置

γ線測定装置は，Ge検出器，MCA（マルチチャンネルアナライザ；DSA1000），冷却容器，および鉛煉瓦よりなる遮蔽体で構成されている。測定データはGenie-2000をベースにしたキャンベラ社のSpectrum Explorer（version 1.1/1.4）によって，データの保存・解析の他，データベースによって校正データや核データの一元管理を行っている。MCAとして使っているDSA1000は，アンプとADC（アナログ→デジタル変換器）を合体したDSP（デジタルシグナルプロセッサ）としてアナログパルスデジタル信号へ変換し，処理スピードを上げている。波高分析（PHA）・マルチチャンネルスケーリング（MCS）の2つの測定モードをもっており，パソコンによってデジタルオシロスコープが利用

* 島根大学教育学部自然環境教育講座

島根大学汽水域研究センター

** 島根大学大学院教育学研究科

表 1. 島根大学教育学部に設置されている2機種の γ 線検出器の比較.

Table 1 Two types of γ spectrometer set up in the Faculty of Education.

	Canberra-Eurisys	Canberra
モデル	EGPC 150-P16	GX4019
エネルギー範囲	30 keV-10 MeV	3 keV-10 MeV
Ge検出器 (分解能)	ウエル型 (井戸型) Ge	広エネルギー帯域 (BEGe)
FWHM (at 1332 keV)	1.95 keV	1.73 keV
P/C比	58.0:1	70.74:1
相対効率	30%	43%
エンドキャップ材	高純度アルミニウム	ベリリウム
クライオスタット	J型	J型

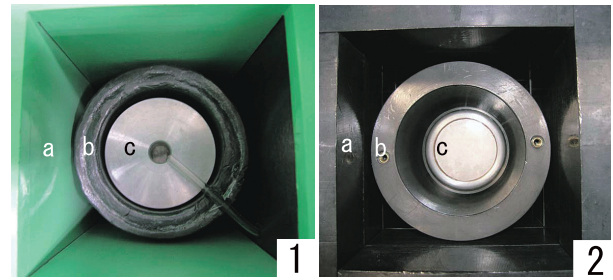


図 1. ウエル型 (井戸型) Ge検出器 (1) とBE Ge検出器 (2). a. 外部遮蔽鉛 b.内部遮蔽鉛 c. Ge検出器 (ウエル型Ge検出器はアルミニウムのエンドキャップ, BE Ge検出器は赤線の枠内がベリリウム, 周囲はアルミニウムのエンドキャップ).

Figure 1. Two types of Ge detector. 1 Well-type detector and 2 Broad Energy-type detector. a. outer lead shield, b. inner lead shield, c. Ge detector.

できる。16Kのチャンネルメモリを有しており、広域のエネルギー分析の処理が可能なシステムである。パソコンとはUSBをインターフェースとして接続している (Canberra, 2003)。

ウエル型Ge検出器は、有効体積が150 ccの高純度ゲルマニウム (Ge) よりなり、測定エネルギー領域が30 keV ~ 10 MeVである。凹部は、直径16 mm、深さ 50 mmとなっている (図 1-1)。試料から放出される放射線は、ほぼ4 π 方向で計数されることになり、高い計数効率が達成されている。

BE Ge検出器は、同軸型PタイプGe結晶を特殊加工して、放射線の入射窓をベリリウム薄膜で被覆した構造となっている (図 1-2)。通常と同軸型のGe検出器より検出範囲が広く、3 keV ~ 10 MeV領域の γ 線の測定が可能である。ベリリウム膜は²³⁸Uを含むことから、²³⁸Uおよびその娘核種から放出される γ 線のバックグランド値が高くなるので注意が必要とされる (小村, 2006)。

2形式の検出器は、Ge半導体の形態や分析試料の形態も異なるため、それぞれの特有の検出効率を有す。表 1にはそれぞれの検出器の特徴を示しておく。

遮蔽帯は、低レベルのエネルギーをもった放射線を検出するうえで極めて重要である (小村, 2000, 2006)。一般に、通常の鉛遮蔽体に加えて、さらに内部に特殊金属でGe検出器を全面的に覆うような工夫がされている場合が多い。当研究室のウエル型Ge検出器は、放射線が極めて少なくなった古い鉛を使っている。そのため、50 keV以下のエネルギーレベルでもノイズが少なく、低バックグランド値となっている (図 2)。BE Ge検出器にも古い鉛を使いノイズの除去を行っているが、²¹⁰Pb (46 keV), ²¹²Pb (238 keV), ²²⁸Ac (338 keV)などは完全には除去されていない (図 2)。そのため、これらの同位体の測定には、時間当りのベースを引くことによって定量分析を行っている。

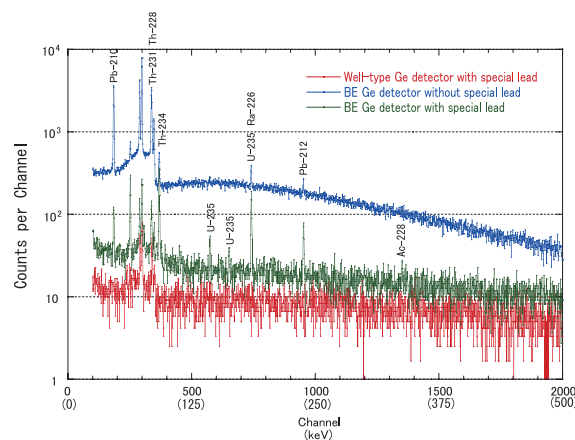


図 2. バックグランド値の比較。試料なしで20時間測定した結果。検出器を適切に遮蔽すると低レベルバックグランド値での測定が可能となる (赤の線)。

Figure 2. Comparative view of background spectrographs. Data from 20-hour measurements. Blue, without inner shield. Green, with moderately old-lead shield. Red, with especially old-lead shield.

2. 方法

中海湖水の ^{226}Ra 、 ^{228}Ra の濃度は、2007-2009年にウエル型Ge検出器を使って測定してきたため、同一試料を使ってこれらの放射性元素のBE Ge検出器による測定結果との比較を行った。試料は、アクリル繊維に酸化マンガンを吸着させたもの（一般にMnファイバーと呼ばれる）で、湖水中に4日～1週間放置したのち回収したものである。Mnファイバーによる水中のRaの吸着とその分析は、Moore (1976) の海水中の ^{228}Ra の分析以来、国内でも一般的に利用されている (Ohta et al., 2004; Nakano (Ohta) and Sato, 2005; 中野 (太田)・佐藤, 2006)。回収したMnファイバーは、乾燥させ、さらに電気炉 (500℃) で灰化させた。BE Ge検出器では、4～5グラムの粉末試料をU9容器に入れ、ポリエチレンフィルムで密閉し、保存した。測定は、RaとRnおよびその娘、孫娘核種が放射平衡になる約1ヶ月後に、試料当り85000秒の測定を行った。

ウエル型Ge検出器では、BE Ge検出器を使って分析の終了した試料を開封し、その2グラムの粉末試料をスチロール管に入れ、プラスチック栓で蓋をし、さらにポリエチレンフィルムで密閉・保存した。測定にかかるまでの時間は、BE Ge検出器の場合と同じである。

^{226}Ra の濃度は、 ^{235}U と同じエネルギーレベルに γ 線の放出 (186 keV; 54%) があるため、直接測定値を読み取ることが出来ない。そのため、一般的にはRaとPbの放射平衡を利用している。すなわち、 ^{214}Pb の295 keV (放出比: 18.5%) および352 keV (放出比: 36.7%) の測定値から ^{226}Ra の濃度を求め、 ^{228}Ra は338 keV (放出比: 12.0%) および911 keV (放出比: 27.0%) の測定値から濃度を求めている。各エネルギーレベルの放射能濃度は次式で表される (キャンベラジャパン, 2003)。

$$A = N / [I_{\gamma} \times \epsilon \times T \times V \times (S/100)],$$

ここに、A: 放射能濃度 (Bq/g), N: ピークカウント, I_{γ} : γ 線放出比 (γ /decay), ϵ : ピーク効率, T: 測定ライブタイム, V: 試料量, S: 放射線採取効率 (%)。

各放射性元素の荷重平均濃度は、各エネルギーレベルの濃度計算式の名分と分子をそれぞれ加算して求めた。たとえば、 ^{214}Pb の場合、次のようである。小文字の295

および352はエネルギーレベルを示している。

$$A(^{214}\text{Pb}) = N_{295} + N_{352} / [I_{\gamma} \times \epsilon \times T \times V \times (S/100)]_{295} + [I_{\gamma} \times \epsilon \times T \times V \times (S/100)]_{352}$$

3. 測定結果

表2は、 ^{214}Ra 、 ^{228}Ac のそれぞれのエネルギーレベルにおける放射能濃度 (Bq/g) を示した。また、それぞれの濃度の分布を図3に示した。両元素とも、高い相関が得られ、相互の測定値の変換が可能である。BE Ge検出器における濃度を $Y_{(\text{GX})}$ とし、ウエル型検出器における濃度を $X_{(\text{Eu})}$ とすると、 ^{226}Ra については、

$$Y_{(\text{GX})} = 0.00 + 1.00X_{(\text{Eu})} \quad R^2 = 0.94,$$

で1:1の関係が得られた。 ^{228}Ra については、

$$Y_{(\text{GX})} = -0.01 + 1.47X_{(\text{Eu})} \quad R^2 = 0.96,$$

となり、BE Ge検出器の方が約1.47倍高くなる結果となった。

図4は、GX4019 (BE Ge検出器) で実測した湖水中の ^{228}Ac と ^{214}Pb を上記の補正式にしたがってEGPC150-P16 (ウエル型Ge検出器) の値へ変換し、またその放射能比 (activity ratio) を $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比として時系列分布を示したものである。このグラフの意味するところは、過去四半世紀にわたって閉鎖状態にあった地中海の北西部 (本庄地域) の湖水が、堤防の開削によって高い放射能比から低い放射能比へと変化したことが明確に示されている。海水のラジウム放射能比は低いことから、新たな海水の交換システムが形成されたことを示している。詳細については、他地点の測定値も考慮しながら別途報告の予定である。

4. 考察

今回行った同一試料の分析によって、GX検出器から得た結果を2007-2009年まで蓄積してきた井戸型Ge検出器による測定値と比較し、補正することができた。Pb、Csなども同様に、両機種間で調整が可能であり、分析数を能率的に処理できるようになった。しかし、厳密にみると、決定係数が0.94または0.96といった値を示しており、分析値がやや分散的になっていることがあげられる。この問題については、U9容器に入れた粉末試料の形状を

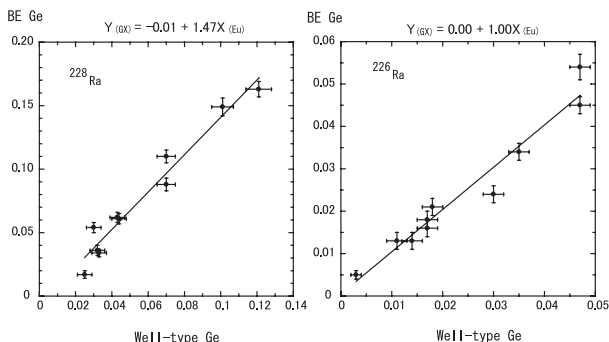


図3. ^{226}Ra と ^{228}Ra の各エネルギーレベルによる相関。

Figure 3. Correlations between the two types of Ge detector for ^{226}Ra and ^{228}Ra .

表2. ^{226}Ra と ^{228}Ra の各エネルギーレベルにおける放射能濃度 (Bq/g)。

Table 2 Radioactivity of ^{226}Ra and ^{228}Ra at different energy level.

比較試料	ウエル型Ge検出器		広エネルギー帯域Ge検出器	
	^{226}Ra	error(±)	^{226}Ra	error(±)
1:HP-上(9)	0.121	0.007	0.047	0.002
2:HP-上(10)	0.025	0.004	0.003	0.001
3:HP-下(11)	0.070	0.005	0.030	0.002
4:HP-上(12)	0.044	0.004	0.018	0.002
5:M09-下(9)	0.070	0.005	0.035	0.002
6:M09-下(10)	0.032	0.004	0.014	0.002
7:M09-下(11)	0.101	0.006	0.047	0.002
8:M09-下(12)	0.030	0.004	0.017	0.002
9:本庄-5m(A)1	0.033	0.004	0.011	0.002
10:本庄-5m(A)9	0.043	0.004	0.017	0.002

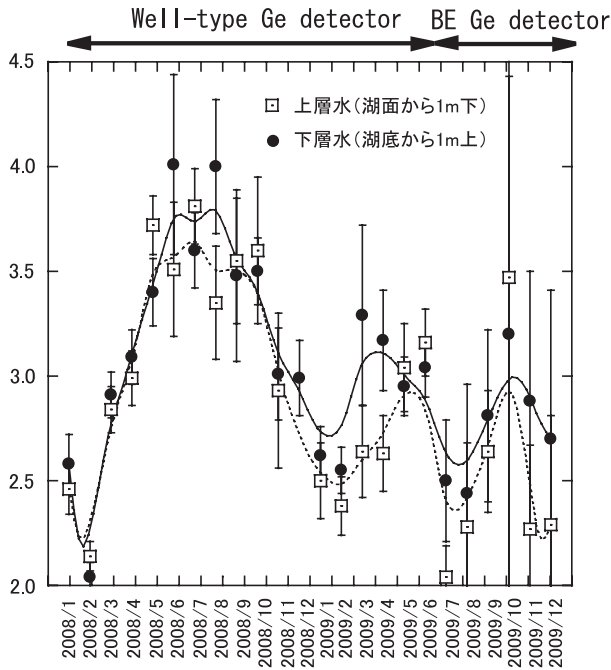


図4. 中海の本庄工区内の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ の放射能比の月別変化。2009年8月以降のBE Ge検出器による比をEGPC150-P16(ウエル型Ge検出器)の結果へ反映させた。

Figure 4. Monthly variations of $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ activity ratios in Honjyo Area, Lake Nakaumi. Activity ratios measured by BE Ge detector were transformed to those of the Well-type detector.

一定にしていなかったことによるものと考えられる。形状効果は、分析値の再現性を保つうえで重要であるので、今後の分析では改善を加えたい。

ここで示す誤差は 2σ によるものであり、個々の装置において差異はなかった。しかし、両装置の間で完全な

相関が得られていないことや、沿岸水では ^{228}Ra の存在量が ^{226}Ra より多いため、放射能比をとった場合、誤差が大きくなることが指摘される。

謝辞

ウエル型Ge検出器におけるノイズの超低減を可能にした特殊鉛の利用等また測定環境の改善では、元金沢大学・小村和久教授にお世話になった。また、BE Ge検出器のノイズ低減のほか、ラジウムの分析化学について日ごろより金沢大学・井上睦夫博士に協力を頂いている。

引用文献

- 小村和久, 2000. 極低レベル放射能測定. ふんせき, 2000(3), 730-735.
- 小村和久, 2006. 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. Radioisotopes, 55, 233-243.
- キャンベラジャパン, 2003. γ 線解析プログラム分析手法説明書. 36pp.
- Canberra, 2003. DSA-1000 Digital Spectrum Analyzer Hardware manual. 101pp.
- Moore, W. S., 1976. Sampling ^{228}Ra in the deep sea. Deep Sea Research, 23, 647-651.
- 中野(太田) 朋子・佐藤 純, 2006. マンガン化合物を含浸させたアクリル繊維を用いた温泉中の ^{226}Ra と ^{228}Ra の定量. 温泉科学, 56(2), 37-46.
- Ohta, T., Saito, T. and Sato, J., 2004. Collection of Radium isotopes in natural waters by Manganese-impregnated acrylic fiber. Radioisotopes, 53(1), 1-11.
- Nakano (Ohta) T. and Sato, J., 2005. $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ activity ratio in river water in Okutama area, western district of Tokyo. Radioisotopes, 54(11), 531-540.