

# ポータブル放射線測定装置の検討

○下山哲矢、橋本明宏、釣田幸雄

工学系技術支援室 環境安全技術系

## 概要

工学研究科の放射線安全管理室では、放射線管理を目的とした放射線量・放射能の測定装置を保有している。今回、新規に購入したポータブル放射線測定装置について他の放射線測定装置との比較等の検討を行った。

## 1 放射線測定装置

ポータブル放射線測定装置は、キャンベラ製 Inspector 1000 (結晶 : NaI(Tl)  $\phi 2'' \times 2''$ 、 $51\text{cm}^3$ )である。この測定装置は、検出器部分である NaI(Tl)により  $\gamma$  線の線量率及び  $\gamma$  線を放出する核種を同定することができるのに加え、同装置内の MCA (マルチチャンネルアナライザー) により、 $\gamma$  線のエネルギースペクトルを測定することができる。MCA で測定しているエネルギースペクトルは、リアルタイムで同装置の液晶画面で確認することができる他に測定結果は PC (パーソナルコンピュータ) に移すことができ、PC 上の解析用ソフトで  $\gamma$  線エネルギースペクトルを解析することにより、核種の同定及び放射能 (濃度) を分析することができる。ポータブル性からその場での各種測定ができる他にデータを持ち帰り、そのデータからより詳しい情報を得ることができるのは、他の測定装置と比べて優れた点であると思われる。

比較対象の検出器として、 $\gamma$  線を放出する核種の放射能測定で一般的に使用されている Ge 検出器と近年注目されている LaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器を用いた。Ge 検出器はそのエネルギー分解能の良さで、核種同定・放射能分析で用いられているが、検出器の冷却が必要であること等によりポータブルには不向きであり、また、大変高価な検出器である。LaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器は、NaI(Tl)に比べ、エネルギー分解能・検出効率等で優れた点が多いが、La 及びその他の自然放射能を LaBr<sub>3</sub>(Ce)結晶自体が持っているため、それらバックグラウンドがより正確な放射線量・放射能測定の一つの妨げとなっている。LaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器は NaI(Tl)同様にポータブルが可能であるが、NaI(Tl)に比べ高価である。

## 2 特性確認の測定結果

表 1. 標準体積線源

各放射線測定装置の特性を見るため、表 1. に示す体積線源 (MX03U8PP タイプ (U8 容器タイプ、充填物質 : アルミナ)) をアイソトープ総合センターから借用した。この線源は 9 種類の核種から 13 種類のエネルギーの  $\gamma$  線が放出されている。放射能が一番強い (高さ 50 mm) の線源を使用して、線源容器を測定装置に密着させて  $\gamma$  線エネルギースペクトルを 3 時間測定した。

### 2.1 NaI(Tl) : Inspector 1000

NaI(Tl)の MCA のチャンネル数は 1024ch であり、約

核種	エネルギー(MeV) <sup>[1]</sup>	放出率(%) <sup>[1]</sup>	放射能(Bq)
<sup>109</sup> Cd	0.088	3.6	$4.134 \times 10^3$
<sup>57</sup> Co	0.014	9.2	$2.777 \times 10^2$
	0.122	85.6	
	0.136	10.7	
<sup>139</sup> Ce	0.166	78.9	$2.942 \times 10^2$
<sup>51</sup> Cr	0.320	9.9	$6.90 \times 10^3$
<sup>85</sup> Sr	0.514	95.7	$3.495 \times 10^2$
<sup>137</sup> Cs	0.662	85.1	$3.487 \times 10^2$
<sup>54</sup> Mn	0.835	100	$3.886 \times 10^2$
<sup>88</sup> Y	0.898	93.7	$4.155 \times 10^2$
	1.836	99.2	
<sup>60</sup> Co	1.173	99.9	$4.568 \times 10^2$
	1.333	100	

※ 2011年7月15日 12:00 (基準日)

1.5MeV まで測定できるように増幅器のゲインを調節し、測定を行った。測定した $\gamma$ 線エネルギースペクトルを図 1. に示す。 $^{54}\text{Mn}$  の 0.835MeV と  $^{88}\text{Y}$  の 0.898MeV や  $^{57}\text{Co}$  の 0.122MeV、0.136MeV の全吸収エネルギーピークが、エネルギー分解能の影響から重なってしまっている。重なってしまったピーク以外のエネルギーと検出器の出力信号の波高値 (MCA のチャンネル数) の関係を図 2. に近似直線と共に示す。ピークのエネルギーと波高値はよい直線性を示した。また、各ピークのネットカウント数を線源から放出された $\gamma$ 線数で割った数 (絶対効率) を図 3. に示す。この絶対効率は検出効率を表す 1 つの定義であるが $\gamma$ 線のエネルギー及び線源 (測定試料) と検出器間の距離に依存する。以後、検出効率を絶対効率として述べる。低エネルギーで検出効率が図 3. で見られる直線傾向からずれているのは、検出器部の不感部分の遮蔽の影響によると思われる。

## 2.2 Ge 検出器

Ge 検出器 ( $\phi 5.6\text{cm} \times 4.9\text{cm}$ 、有感体積  $111\text{cm}^3$ ) は核燃料管理施設に設置されているものを借用し測定した。NaI(Tl)同様に Ge 検出器は MCA で $\gamma$ 線エネルギースペクトルを測定し、PC にてエネルギースペクトルを解析する。MCA のチャンネル数は 4096ch であり、約 3MeV を測定できるように増幅器のゲインを調整した。図 1. に測定された $\gamma$ 線エネルギースペクトルを示す。エネルギー分解能が優れているため、各核種からの $\gamma$ 線の全吸収エネルギーピークが分離されているのがわかる。図 2. にエネルギーピークと検出器の出力信号の波高値との関係を近似直線と共に示す。NaI(Tl)と同様により直線性を示した。図 3. にエネルギーに対する検出効率を示す。NaI(Tl)同様に低エネルギーで不感部分の遮蔽の影響が検出効率にあるように思われる。

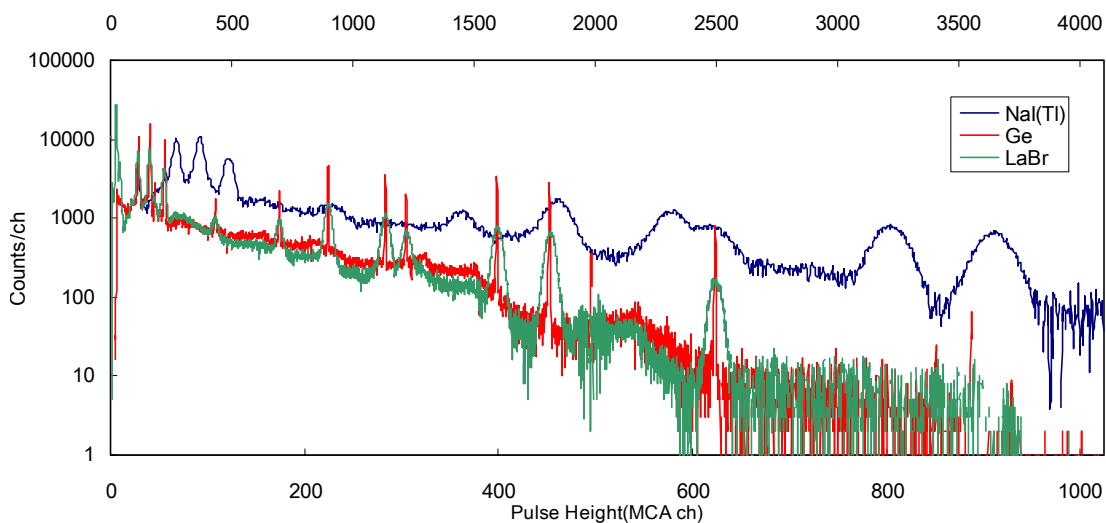


図 1. 体積線源のエネルギースペクトル (測定時間 10800sec 横軸下: NaI(Tl) 横軸上: Ge、LaBr)

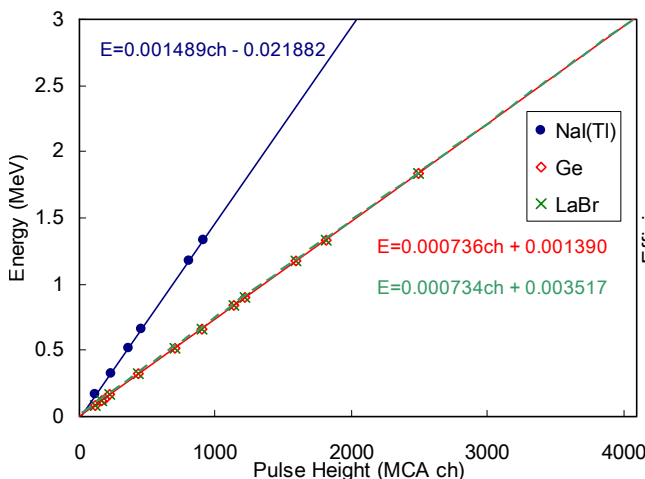


図 2. 測定装置のエネルギー校正直線

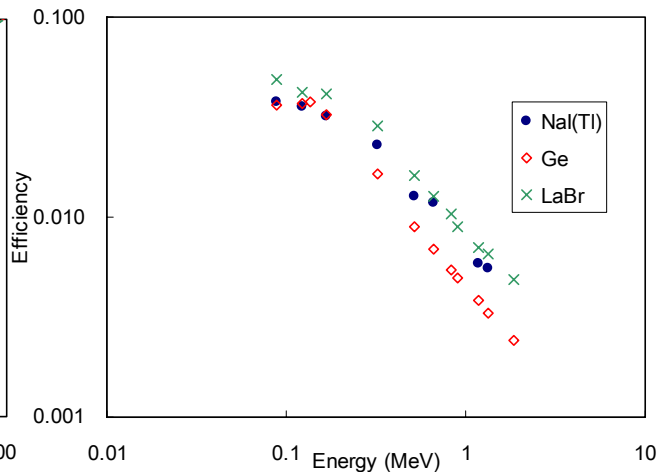


図 3. 測定装置のピーク検出効率

### 2.3 LaBr<sub>3</sub>(Ce)

LaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器（結晶：φ1.5”×2”、29cm<sup>3</sup>）は核燃料管理施設で使用されているものを借用し測定した。LaBr<sub>3</sub>(Ce)も同様に MCA でγ線エネルギースペクトルを測定し、PCにてエネルギースペクトルを解析する。MCAのチャンネル数は4096chであり、約3 MeVを測定できるように増幅器のゲインと光電子増倍管の印加電圧を調節した。図1.に測定されたγ線エネルギースペクトルを示す。Ge検出器には劣るがエネルギー分解能が優れており、多くのγ線の全吸収エネルギーピークが分離されているのがわかる。図2.にエネルギーと波高値の関係を近似直線と共に示す。他の測定装置と同様により直線性を示した。図3.エネルギーに対する検出効率を示す。LaBr<sub>3</sub>(Ce)とNaI(Tl)の結晶の体積比は約1/1.8であるにも関わらず、検出効率がNaI(Tl)より優れていることがわかる。また、他の検出器同様に不感部分による遮蔽の影響が低エネルギーの検出効率に現れていると思われる。

### 3 試料の測定結果

福島 of 土壌試料を入手したので、3種類の測定装置でγ線エネルギースペクトルの測定を行った。土壌試料はビニール袋に入れられており、ビニール袋を含めた重量は数100gである。それぞれの測定結果を特性確認で見積もった波高値（MCAチャンネル数）とエネルギーの近似直線の式から波高値をエネルギーに変換して図4.に重ねて示す。図4.では図2.の近似直線式を見てもわかるように、1チャンネル当たりのエネルギー（傾き）及び0点（切片）が各測定装置で違うため、それらを補正してある。各測定装置のγ線エネルギー

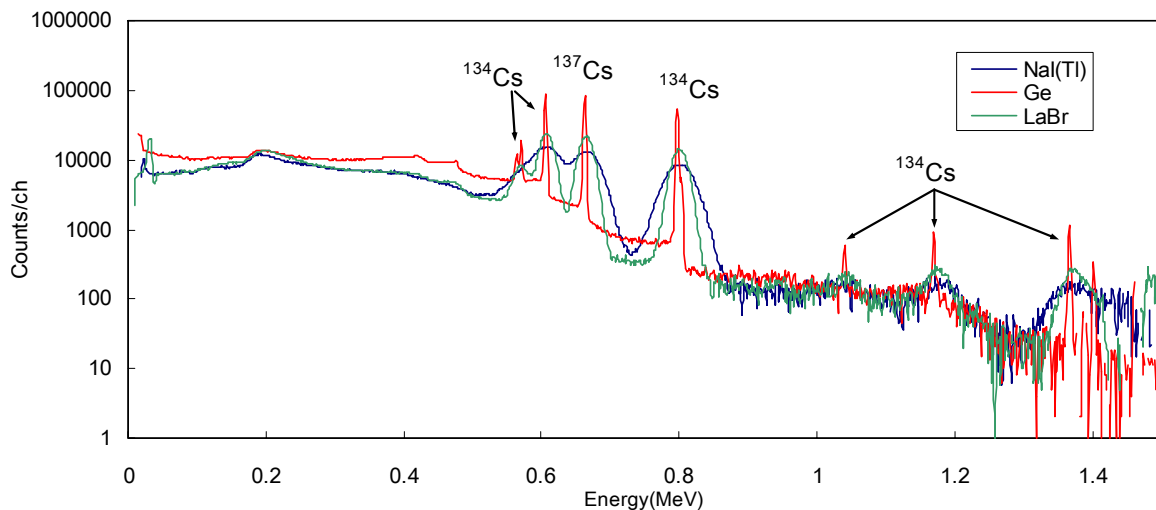


図4. 福島 of 土壌試料（測定時間 10800sec）

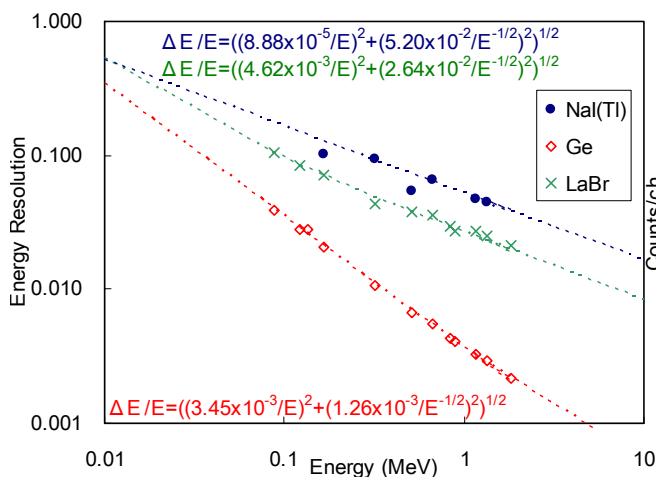


図5. エネルギー分解能

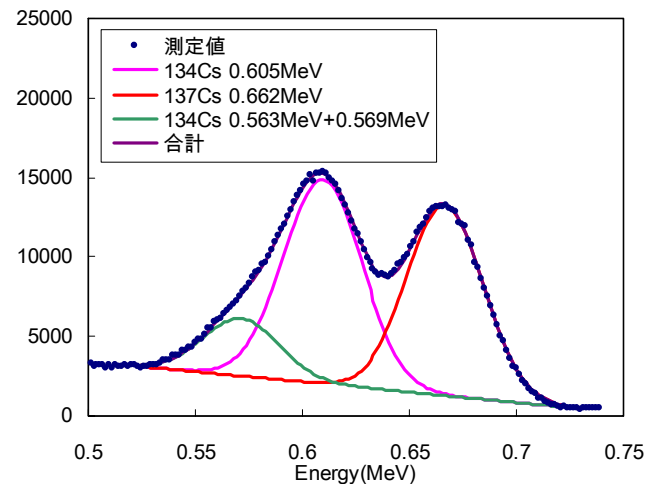


図6. ガウス関数近似結果(図4. of 137Cs付近拡大)

ースペクトルでは、核分裂生成物であると思われる  $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$  のエネルギーピークが見られた。しかし、NaI(Tl)の 0.5–0.75MeV 付近の  $^{134}\text{Cs}$  と  $^{137}\text{Cs}$  ピークがエネルギー分解能の影響で重なってしまった。そこで、各測定装置のエネルギー分解能を確認するために、上述の体積線源測定で得られたエネルギーに対するエネルギー分解能の関係を図 5. に示す。ここで、近似曲線は  $\Delta E/E = ((a/E)^2 + (b/E^{1/2})^2)^{1/2}$  で定義した。a を含む項は電氣的ノイズを示し、b を含む項はエネルギーに対して比例するゆらぎの項である。Ge 検出器では相対的に電子的ノイズに関する不確かさの影響が大きく、NaI(Tl)と LaBr<sub>3</sub>(Ce)ではエネルギーに対して比例するゆらぎの項が大きくなっている。エネルギーに対して比例するゆらぎの項は理論的に下限値が決まっているため、より高分解能で測定するには電氣的ノイズ除去が必要となるであろうことが予測できる。

エネルギースペクトルで計測された核種は 2 種類であったので、 $^{134}\text{Cs}$  については放出率が高い 0.796MeV と 0.802MeV の合成ピーク、 $^{137}\text{Cs}$  については 0.662MeV のピークを用いて、それぞれの核種の放射能を測定結果から見積もった。 $^{134}\text{Cs}$  の 0.796MeV と 0.802MeV の合成ピークの検出効率は体積線源で  $^{134}\text{Cs}$  が存在しないため、図 3. の各測定値に曲線を近似して内挿した。重なってしまった NaI(Tl)の 0.662MeV のピークに関しては、ピーク 4 つに対してガウス関数でそれぞれ近似する方法 (図 6. 参照) と約 0.5–0.75MeV のピーク (4 種のピークの合計) のネットカウント数と各核種の放出率から見積もる方法の二通りを行った。また、Ge 検出器と LaBr<sub>3</sub>(Ce)については各ピークが分離されているため、それぞれのピークに関して分析し、同様に検出効率は内挿して放射能を見積もった。表 2. に分析した結果を示す。Ge 検出器が核種分析に一般的に使われていることから、Ge 検出器の結果を基準とした場合、NaI(Tl)と LaBr<sub>3</sub>(Ce)ともに約 12%の精度で放射能を測定できた。

表 2. 土壌試料測定結果

核種	放射能(kBq)		
	NaI(Tl)	Ge	LaBr <sub>3</sub> (Ce)
$^{134}\text{Cs}$	3.1	2.8	2.6
$^{137}\text{Cs}$	3.2※	3.5	3.1

※ 放出率から求めた放射能 (3.2kBq)とガウス関数の近似から求めた放射能(3.2kBq)の平均値

#### 4 核燃料物質の測定

測定装置のポータブル性は、核燃料物質を含む不明な放射性物質の発見現場での測定において、大変有益な部分である。今回は、比較的比放射能が低い核燃料物質の内、素性が確かなものを選んで測定を行った。測定に用いたものは、未使用の酢酸ウラニル(25g : ウラン重量約 14g)の試薬で一般的な試薬のガラスのビンに入れられており、核燃料物質の種類としては劣化ウランである。過去に見つかっている未登録核燃料物質 (管理下でない核燃料物質) は他の化合物の試薬ビンと共に保管されており、今回用いた試薬ビンのようなものは多く見つかっている。現場での測定を前提に測定はポータブル性がある NaI(Tl)と LaBr<sub>3</sub>(Ce)の 2 つの測定装置を用いて、測定装置に試薬ビンを密着させ 2 時間測定した。測定結果を図 7. に重ねて示す。ウランにはおおまかにウラン系列の  $^{238}\text{U}$  (天然存在比 : 99.27%<sup>[1])</sup> と  $^{234}\text{U}$  (天然存在比 : 0.0054%<sup>[1])</sup>、アクチニウム系列の  $^{235}\text{U}$  (天然存在比 : 0.720%<sup>[1])</sup> が存在し、岩石等から精製してある程度経過した試薬では一般的にウラン系列の  $^{238}\text{U}$ 、 $^{234}\text{Th}$ 、 $^{234\text{m}}\text{Pa}$  ( $^{234}\text{Pa}$ ) の間で放射平衡が起こっており、これら  $^{234}\text{Th}$ 、 $^{234\text{m}}\text{Pa}$  ( $^{234}\text{Pa}$ ) のウランの娘核種からの  $\gamma$  線も観測される。図 7. では、 $^{234\text{m}}\text{Pa}$  の 1.001MeV と 0.766MeV、 $^{235}\text{U}$  の 0.186MeV、 $^{234}\text{Th}$  の 0.063MeV と 0.092–0.093MeV のピークが確認できる。ウラン系列の  $^{214}\text{Bi}$  や  $^{214}\text{Pb}$  等のピークがない、即ち、ウラン系列での全体的な放射平衡にないことから、測定した試料は精製されたウラン化合物であることがわかる。 $^{235}\text{U}$  量と  $^{238}\text{U}$  量 (ここでは、放射平衡に達しているため  $^{234\text{m}}\text{Pa}$  又は  $^{234}\text{Th}$  の量) の比較により、天然又は劣化というウランの種類がわかるが、ウラン化合物及び容器の遮蔽の影響により正確な各核種の正味の放射能を見積もることは困難である。そこで、報告<sup>[2]</sup>にある方法を用いて、ウランの種類が判別可能であるか確かめた。この方法は上述したようにウラン化合物自体及び容器の遮蔽を受けてウランとその娘核種から放出される  $\gamma$  線を正確に見積もることは困難であるが、ピークのネットカウント数、検出効率及び  $\gamma$  線

の放出率から求めた値とエネルギーの関係はある種の曲線（遮蔽の影響を表したようなもの）であるとの仮定を基にしたものである。従って、ウラン系列核種の曲線と存在比（ $^{238}\text{U}$ と $^{235}\text{U}$ の放射能比）を考慮した $^{235}\text{U}$ の値を同時に示せば天然ウラン、劣化ウランの判別が可能となる。NaI(Tl)とLaBr<sub>3</sub>(Ce)での測定から求めた結果を図8. に近似曲線と共に示す。図8. に示すように天然ウランとした場合の $^{235}\text{U}$ の値はウラン系列の曲線より低い値を示した。一方、劣化ウランの0.2–0.3%の存在比で計算した結果は、ウラン系列の曲線と一致することから、測定した試料が劣化ウランであることが分かり、判定が正しくできることがわかった。

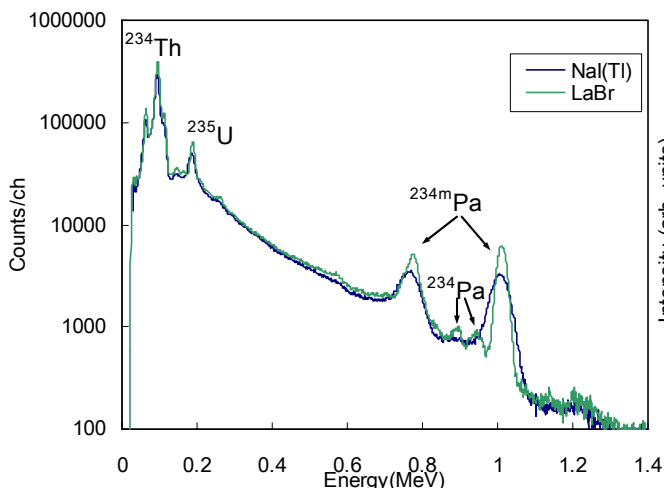


図7. ウラン試料の測定結果（測定時間 7200sec）

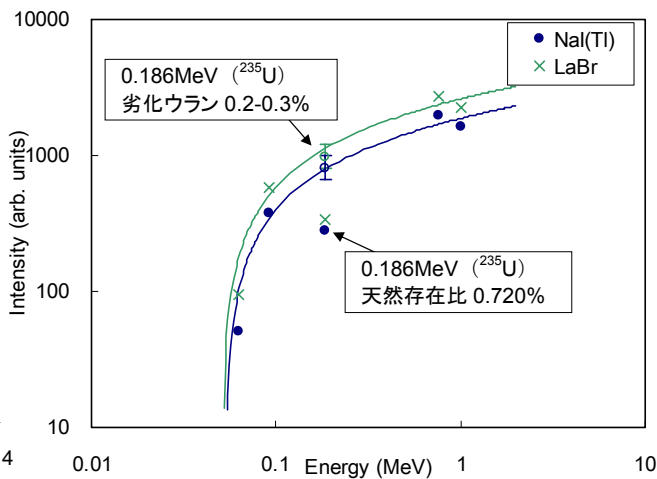


図8. 測定結果の判定曲線

## 5 まとめ

ポータブル放射線測定装置（Inspector 1000 : NaI(Tl)）について、体積線源により各種特性を測定した。特性評価の対照測定装置として、Ge 検出器と LaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器を用いた。NaI(Tl)は、エネルギー分解能の影響により、今回用いた体積線源ではエネルギーピークが重なってしまったが、ある程度放出される $\gamma$ 線のエネルギーが離れた核種が存在する不明放射性物質の分析・測定を行うには十分な性能ではないかと思われる。

土壌試料を3種類の測定装置で $\gamma$ 線エネルギースペクトルの測定を行った。核分裂生成物である $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ のピークが観測された。NaI(Tl)ではエネルギーピークが重なってしまったが、4つのピークカウントと放出率の関係及びガウス関数近似の2つの方法で見積もった放射能の大きさは、Ge 検出器で見積もった放射能を基準とした場合、不確かさ約12%内で測定できた。

発見現場での不明放射性物質の解析を前提に劣化ウランを含む試薬の測定をNaI(Tl)及びLaBr<sub>3</sub>(Ce)の測定装置で行った。ウラン系列の $^{234}\text{Th}$ 及び $^{234\text{m}}\text{Pa}$  ( $^{234}\text{Pa}$ )のピークとアクチニウム系列の $^{235}\text{U}$ のピークが観測された。ウラン系列の各ピークのネットカウント数、検出効率及び $\gamma$ 線放出率から求めた値の近似曲線と $^{235}\text{U}$ のピークのネットカウント数、検出効率及び $\gamma$ 線放出率から求めた値に天然ウラン又は劣化ウランの考慮を加えたものを計算し同時に図にした結果、劣化ウランと正しく判別できることがわかった。今後は、モンテカルロシミュレーション等を使い遮蔽の影響を考慮することにより、ウラン量の推定ができるかを確かめたい。

## 参考文献

- [1] 社団法人日本アイソトープ協会, アイソトープ手帳 11 版
- [2] 庄司美樹ら, “ $\gamma$ 線スペクトル解析による天然ウランと劣化ウランの判別”, 北陸地域アイソトープ研究会誌 第3号 2001年, P75-80