

## Ge半導体検出器による In-Situ $\gamma$ 線の長期連続測定

生田美抄夫

### 要 旨

Ge半導体検出器によるIn-Situ  $\gamma$ 線測定 (In-Situ Ge測定) の長期間連続測定法を開発し、18ヶ月間の連続測定を行った。測定システムの長期間の安定した運用に成功し、また人工放射性核種の高感度の検出が可能であることを確認した。NaI(Tl)検出器を用いたモニタリングポストの測定値において、10%程度の微小な空間線量率上昇に対応するPb-214及びBi-214の計数率は約2倍を示した。本システムにより空間放射線の弁別問題が解決する。

キーワード : Ge半導体検出器、In-Situ、人工放射性核種、原子力発電所、核実験、Cs-137

### 1. はじめに

島根県は、「島根原子力発電所周辺地域住民の安全確保等に関する協定 (安全協定)」<sup>1)</sup>に基づき、発電所周辺において、11カ所のモニタリングポストで空間放射線量率測定などのモニタリングを実施し、発電所に起因する放射性物質又は放射線による周辺住民の線量が、年線量限度 (1 mSv/年) を十分に下回っているかどうかを確認している。

放出される人工放射性核種は微量であるため、空間放射線量率の測定では把握することが不可能であり、主に実験室内での環境試料の $\gamma$ 線スペクトロメトリーの結果で評価を行っている。しかし、この方法では、発電所からの放出に対して迅速で、なおかつその場を代表する濃度を求めることは困難である。

一方、In-Situ Ge測定は、実験室内で測定するのに比べ、土壌の不均一からのサンプリング誤差を減らすことができ、1/10程度の測定時間で半径約10mほどの範囲の放射能の代表値が定量可能で、土壌中や土壌表面の核種ごとの放射能濃度の算出及び系列及び核種ごとの線量率の評価が可能である。

しかし、In-Situ Ge連続測定は、通常のGe検出器を屋外に持ち出し、上向きで測定したものを含めても数例<sup>2~5)</sup>があるのみで、機器が高価で耐候性が低いこと、効率・角度校正、設置、測定、解析に知識経験を必要とすること及び外気の温度変動のためピークドリフトが発生することから、これまではバッチ的な測定に留まっていた。

今回、In-Situ Ge測定の発展をめざして、長期間連

続測定を行い、機器の対候性及び保護法の確認、ソフトウェアの改良による長期間ドリフトの補償と、解析データベース化の自動化を実現し、省力効果も実証したので報告する。

### 2. 測定期間・場所

測定期間 2006年9月～2008年3月

測定間隔 60分 (2006年9月～2007年3月)  
10分 (2007年3月～2008年3月)

測定場所 島根県原子力環境センターの西浜佐陀測定局草地 (松江市西浜佐陀町582-1)

### 3. 計測機器及び設置方法

携帯型 Ge波高分析装置

・Ge半導体検出器 : P型 Ge

相対効率110%、エネルギー分解能1.9keV

・解析プログラム : Genie2000、In-Situ測定プログラム、データベースMDB

・解析方法 HASL方式 (ICRU53) 及びISOCS  
携帯型 NaI(Tl)波高分析装置

・NaI(Tl)検出器 : 3インチ $\phi$ 球形

分解能7%、低カリウムガラス

・解析プログラム : スペクトルエクスペローラー

携帯型 Ge波高分析装置を原子力環境センター (センター) 内の西浜佐陀測定局草地に、三脚で地上から結晶中心までの距離を100cmとして固定し、直射日光からの保護のため、デュワー容器は発泡スチロール性の箱で覆った。また、降水対策のため各部をビニール袋で保護し、さらに装置全体も大型ビニール袋で保護

した。また、暴風雨対策のため装置を4脚のタープ内に設置した。液体窒素のデュワー容器は7Lあり、液体窒素消費量が1.5L/日程度であったので2回/週の頻度で液体窒素を補充した。

NaI(Tl)検出器も三脚で地上から1mの位置に横向きに設置して、測定した(In-Situ NaI(Tl)測定)。

データ処理装置は2007年3月までは小型テント内に設置し、温度変化低減と保護のため、ケーブルを100mmφの工業用ホースに通し、検出器と接続した。データは無線LANでセンター内でも解析可能とした。その後、ロングケーブルを使用することにより、2008年3月まで西浜佐陀測定局舎内で解析可能とした。

また、この西浜佐陀測定局では、3インチ球形NaI(Tl)検出器及び電離箱で空間線量率の2分間隔連続測定、ラドン・ラドン娘核種濃度及び全αβ濃度の1時間毎の連続測定、気象観測を行なっている。

#### 4. 測定経過及び解析方法

当初は、In-Situ Geの長期にわたる24時間連続測定は考えていなかったが、島根県が2006年9月北朝鮮核実験を警戒し、その対応策を決定したため、9月上旬に測定機器を原子力環境センター敷地内の草地に設置、In-Situ Ge連続測定を開始し、核実験影響調査の準備態勢を整えた。翌10月9日に北朝鮮が核実験を行なったため、本システムで影響調査に当たった。同月26日以降、通常の体制に戻ったが、再度の核実験に備え測定を継続した。

最初の半年間は、スペクトルの連続採取以外すべてマニュアル操作で解析した。ドリフトもK-40で最大±1.5keV程度あり同定ミスが頻発したため、ファイルごと手作業で再エネルギー校正を行い、再解析した。Genie2000の自動ゲイン調整法であるAuto Gain Adjust、Stabilizer機能は連続測定に組み込むことができなかったため、K-40のγ線ピーク(1460.8keV)に対する追尾コマンドで対応することにより、このピークのドリフトが±0.2keV以内に収まり同定精度が飛躍的に向上した。

2007年3月以降は、測定解析シーケンス及びデータベース化までを一連で処理するプログラムを開発し、省力化が実現できたので、10分間隔の測定に変更した。

解析はGe半導体検出器の測定値については、HASL方式により解析を行い、ウラン系列(U)及びトリウム系列(Th)核種については、放射平衡を仮定して、各系列内核種の個々のスペクトルより系列の線量率を求め、荷重平均により、系列ごとの線量率を評価した。

なお、地表は平滑、平坦な無限平面、自然放射性核種(U系列、Th系列、K-40)は土壌中の成分由来の

ため濃度は深さ方向一定とした。フォールアウト核種は、一般的には、 $\beta=4.8\text{g/cm}^3$  ( $\alpha=0.33\text{cm}^{-1}$ ;  $\rho=1.6\text{g/cm}^3$ )となる指数関数近似の鉛直分布とするが<sup>6)</sup>、新規のフォールアウトを評価する場合、放射能濃度を約3倍に過大評価することになるため<sup>7)</sup>、人工放射性核種及びBe-7は地表面分布と仮定した。土壌の密度は $1.6\text{g/cm}^3$ とした。

また、確認のため測定器周辺の放射性核種の土中深度分布も測定した。

そして、NaI(Tl)検出器の測定値については、エネルギー50keV~3,000keVのγ線についてG(E)関数法及びレスポンスマトリックス法(RM法)により空間線量率及び系列ごとの線量率寄与を計算した。

この測定はRM法の評価のため期間中の前半3ヶ月行ったのみで、線量率は6m北側にある西浜佐陀モニタリングポストのNaI(Tl)線量率を用いた。

#### 5. 測定結果及び考察

##### 5.1 機器校正

効率校正は2006年7月にAm-241, Ba-133, Cs-137, Co-57, Co-60, Hg-203, Mn-54, Na-22, Y-88の9核種、各約400kBqを使用し、エネルギー校正、0度効率校正、角度校正を行なった。

ISOCS効率校正では大地を半径50m、深さ30cmの円盤とし効率を作成した。ISOCS効率での鉛直分布もHASL方式と同じく、Be-7を除く自然放射性核種は一様分布、人工放射性核種とBe-7は地表面分布とした。

使用したGe半導体は長さ77mm、直径81.5mmであり、L/D=0.94と方向依存性が少ないタイプのものであるが、解析時にはHASL角度校正ファイルにより、角度

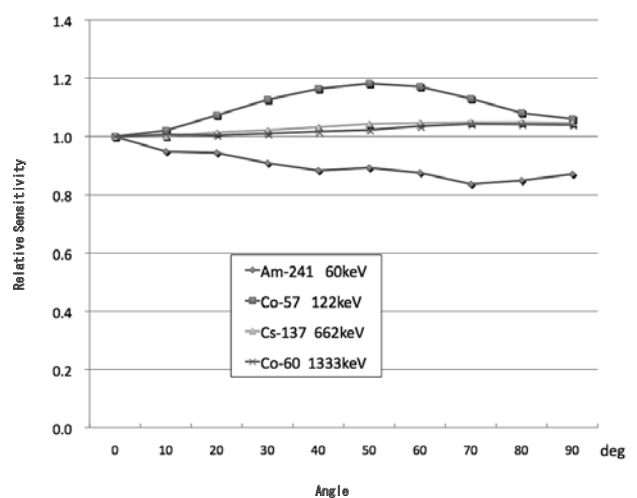


図1 Ge検出器の角度依存性

補正した。図1にこの検出器の角度依存性を示した。

高エネルギーにおいては方向依存性はほとんど認められないが、低エネルギーの60keVでは斜め入射に対し効率が低下した。これはGe半導体結晶を外周方向で保持している1.5mmのアルミ製クリスタルホルダーによる遮へいと考えられる。また、122keVのエネルギーでは斜め50度程度が最も効率が大きく、斜め方向の方が高効率である。これはマウントキャップの遮へいよりGe半導体結晶の見かけの断面積がこのエネルギー帯には効率に有効なためと考えられる。

また、この検出器のおおよその測定下限値をCurrie MDA法（95%信頼度から計算したもの）で算出し、表1に示した。これよりCs-137のフォールアウトがあった場合、線量率の上昇が確認できなくても、検出が可能であることが解る。他の人工放射性核種の場合も同様である。

表1 検出下限値

測定時間	Currie MDA法で算出					
	Cs-137		Be-7		K-40	
	線量率 nGy/h	面密度 Bq/m <sup>2</sup>	線量率 nGy/h	面密度 Bq/m <sup>2</sup>	線量率 nGy/h	土壤濃度 Bq/kg
10分	0.04	50	0.08	500	0.33	8
60分	0.02	20	0.03	200	0.17	4

## 5. 2 線源照射実験

2007年2月、In-Situ Ge測定システムでの人工放射性核種検出能力を検証するため、校正用線源（7核種、177~441kBq）を用いて照射実験を行なった。照射距離は0.5~15mまでの8ポイント、測定時間は600秒とし、3インチ球形NaI(Tl)でのRM法解析もおこなった。図2に線源と検出器の距離1mでのGe及びNaI(Tl)のスペクトルを示す。

分解能の差は歴然としており、Geでは照射した全ての核種が同定されたが、NaI(Tl)では他核種のピークが重なり一つのブロードピークとなっているピークも多く、同定はほぼ不可能である。

図3にIn-Situ Geでの核種毎の線源距離と線量率の関係を示した。線量率は距離とともに急減するが、0.01nGy/h程度まで定量可能であった。また、図4にIn-Situ Ge、G(E)関数、RM法での線量率計算結果を示した。3方法とも自然放射線も含むトータル線量率は一致しており、In-Situ Ge計算で仮定している地表面分布線源とは異なった照射ではあるが、線量率は正しく計算されていた。また、人工放射性核種のみを見た場合でも、線源が与える理論上の線量率とIn-Situ Geの人工放射性核種のトータル線量率は良い一致を見せた。

## 5. 3 大地中の放射性核種の深度分布

2007年7月、土壌サンプラーを用いて直径10cm、深さ20cmのコア土壌を採取し、各1cm層に切断、乾燥後γ線スペクトロメトリーを行なった。その結果を図5

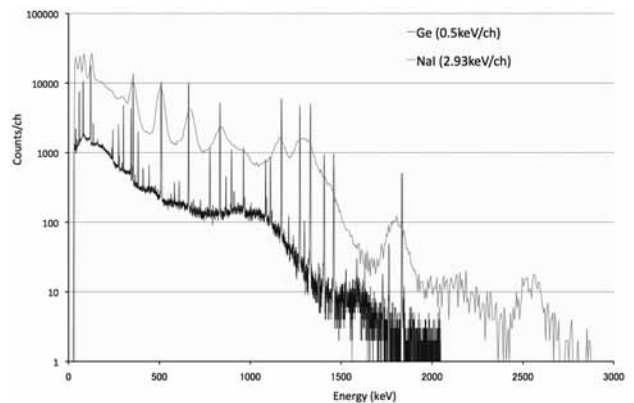


図2 NaI(Tl)とGeによる測定スペクトル線源との距離1m

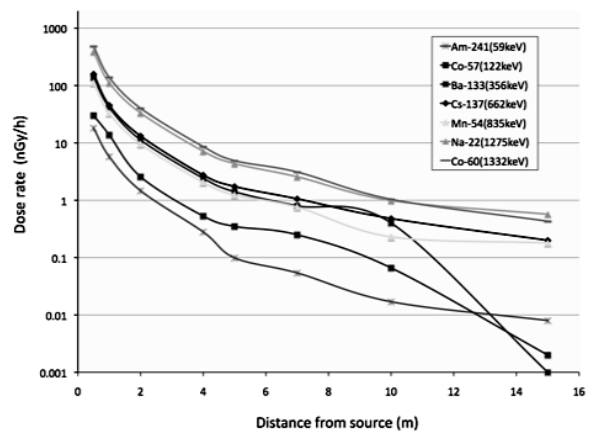


図3 線源との距離と核種別線量率

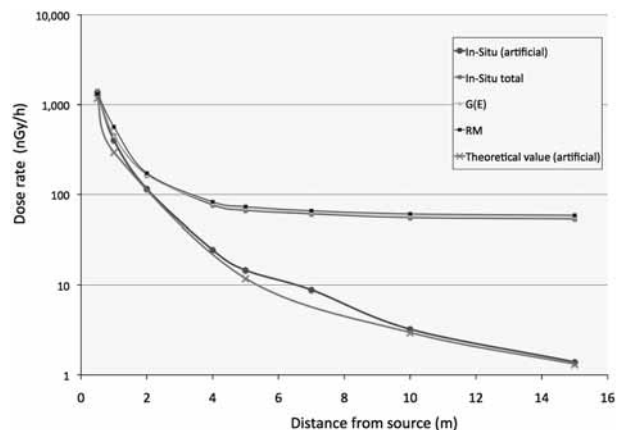


図4 線源との距離とIn-Situ Ge、G(E)関数、RM法での線量率計算

に示した。

In-Situ Ge測定を行なっている草地の土壌は、1976年に研究所が建設されたときに、マサ土を客土し造成されたもので、周辺土壌に比べU,Thの濃度が高く、線量率も50nGy/hと連続モニタリング地点の中では、一番高いところである。土壌採取時は2cm層まで腐葉土化していた。植物影響のある0~5cmまで含水率は下がり、その下では一定であった。K-40濃度は植物生育の影響と見られる低下が0~3cmまであり、その下では一定であった。

Pb-210を除くU、Th系列核種は全層で大きな変化はなかった。Pb-210は大气からの沈着量が多いため0~5cmまでUの放射平衡濃度より高く、特に表層では平衡濃度の8倍であった。また、Be-7は半減期が53日と短いため、表層のみの分布であった。フォールアウト核種のCs-137は0~6cmまで減少せず検出されたが、その下では測定下限値以下であった。このCs-137についてはIn-Situ Ge解析において地表面分布を仮定して解析しているため、放射能濃度(面密度)で過小評価していることになる。

なお、この測定は試料調整中にRnが気散するため、Ra-Rnが放射平衡になるのを待って行なったが、表層は現場ではRn散逸しているため、実験室での測定は表層のラドン娘核種を過大に見積もっている可能性がある。

#### 5. 4 雪によるγ線の遮へい

2008年2月中旬に数回の降雪があり最大20cmの積雪となった。通常50nGy/hである線量率が13日47nGy/h、16日42nGy/h、17日40nGy/hまで低下した。この雪によるγ線の遮へい効果を見るため、そのときのIn-Situ Ge測定結果から各エネルギーの計数率の減少量を図

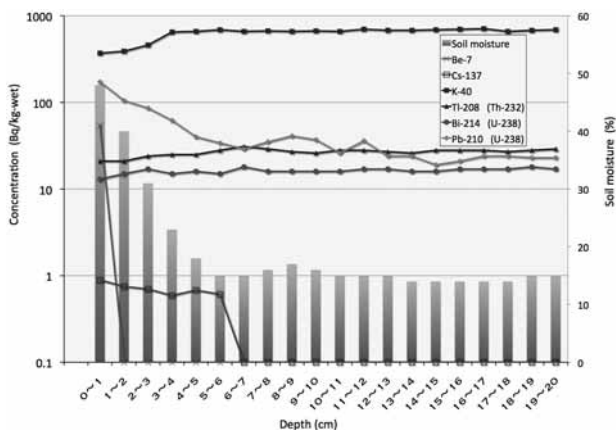


図5 土壌の深度別放射性核種濃度及び含水率

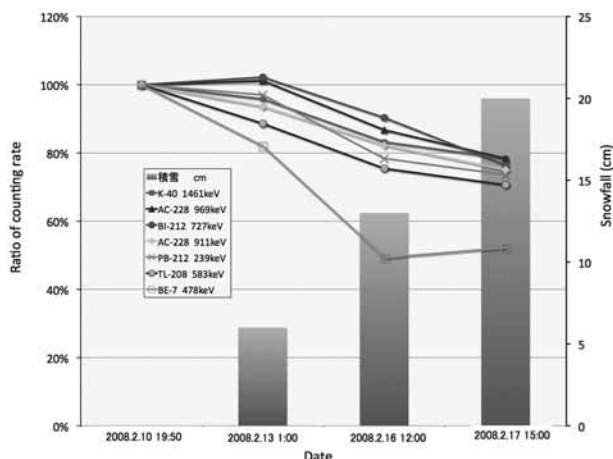


図6 積雪によるγ線の遮へい

6に示した。(降水による影響を排除するためU系列核種は除いた)これより、エネルギーが低いほど減少率が大きかった。

#### 5. 5 Ge半導体検出器とNaI(Tl)検出器での線量率評価結果の相違

2006年9月から11月まではIn-Situ Ge測定と同時に、In-Situ NaI(Tl)測定でもγ線の測定を行なった。その期間中から、ラドン娘核種濃度の低い無降水時、接地逆転時、線量率上昇時(通常約2倍に上昇)について、In-Situ Ge測定では効率校正をHASLかISOCSか、核種テーブルをHASLかICRU53かで場合分けしたとき、NaI(Tl)検出器の測定ではRM法かG(E)関数かで、線量率をそれぞれ求めた。その結果を表2に示した。

U系列核種による線量率ではIn-Situ Geでの4つの解析方法では相違がないが、RM法から求めたものは非降水、逆転時のわずかな線量率上昇ではIn-Situ Geより若干高く、降水時の線量率上昇時には逆にIn-Situ Geより低くなっているが、これはIn-Situ Ge測定が自然放射性核種の濃度が深さ方向に一定と仮定しているためであり、降水により地表面線源となったPb-214及びBi-214を地中均一線源と計算し、線量率が過大に評価されたためである。

Th系列核種ではIn-Situ Geの線量率の方がRM法より高い傾向にあるが、大きなものではない。しかし、降水で線量率が上昇した時ICRU53核種テーブルでの解析においては、HASL核種テーブル解析に比べ4倍近い値となった。これはICRU53にはHASLにはないRa-224がTh系列に取り入れられているためであり、Ra-224のγ線のエネルギーが240.98keVとPb-214の241.98keVと1keVの差しかなく、降水時にPb-214の

表2 解析手法での結果の違い

Nuclide	Table	nGy/h			
		HASL calib.	ISOCS calib.	RM method	G(E)
nonRain					
U-238series	HASL	8.9	8.2	10.5	-
	ICRU53	8.8	8.1		
Th-232series	HASL	19.0	17.7	16.8	-
	ICRU53	18.9	17.5		
K-40	HASL	30.0	28.0	22.9	-
	ICRU53	30.0	27.7		
Amount	HASL	58.0	54.0	56.3	53.7
	ICRU53	57.7	53.3		
Inversion dose rate 3% up					
U-238series	HASL	12.2	11.2	13.4	-
	ICRU53	12.2	11.2		
Th-232series	HASL	19.1	17.8	14.3	-
	ICRU53	18.8	17.5		
K-40	HASL	29.8	27.8	22.6	-
	ICRU53	29.7	27.3		
Amount	HASL	61.0	56.8	58.2	55.5
	ICRU53	60.7	56.0		
Dose rate50% up by Precipitation					
U-238series	HASL	66.7	61.1	51.0	-
	ICRU53	67.1	61.0		
Th-232series	HASL	16.4	15.3	13.8	-
	ICRU53	58.6	55.6		
K-40	HASL	27.0	25.2	19.9	-
	ICRU53	27.0	25.0		
Amount	HASL	110.2	101.7	86.0	82.1
	ICRU53	152.7	141.5		

計数率が上昇しピーク面積が大きくなると、Ra-224に同定ミスするためと思われる。

そのため、過大な線量率計算結果となった。

これを防ぐためには線量率への評価法の改善あるいはRa-224の核種テーブルからの一時的削除などの対応が必要となろう。

K-40ではIn-Situ GeがRM法に比べ非降水時、逆転時、降水時ともに約25%線量率が高かった。トータル線量率では非降水時、逆転時ではIn-Situ Ge、RM法、G(E)関数ともほぼ一致していたが、降水時は、先にも述べたようにIn-Situ GeではPb-214、Bi-214の過大評価及びPb-214のRa-224への同定ミスにより、RM法及びG(E)関数に比べ高い計算結果であった。

### 5. 6 降水によるエネルギー別計数率の増加

降水時にはラドン娘核種RaB (Pb-214) 及びRaC (Bi-214) の地上への降下により線量率が増大することは前述したが、Pb-214及びBi-214のどのエネルギーのγ線が線量率上昇の原因かを見るため、図7に線量率の上昇値とPb-214及びBi-214の各エネルギーでの計数率の関係を示した。

この図から、線量率の上昇にはPb-214の352keV、Bi-214の609keVのγ線の影響が大きいことが解る。また線量率寄与としてはBi-214がPb-214の約7倍大きい<sup>8,9)</sup>。

次に全期間を通してモニタリングポスト線量率と

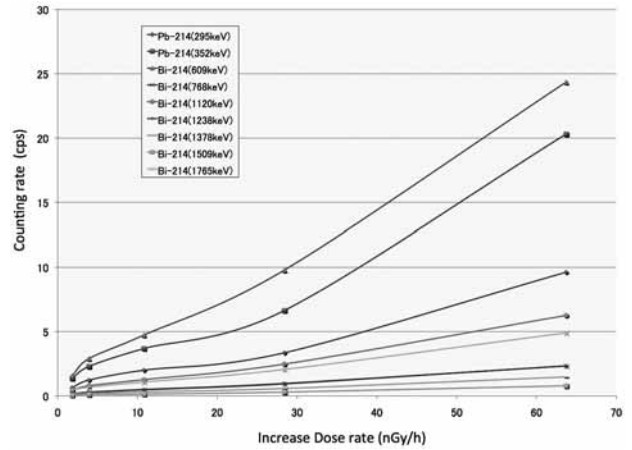


図7 線量率上昇量とPb214, Bi214エネルギー別計数率

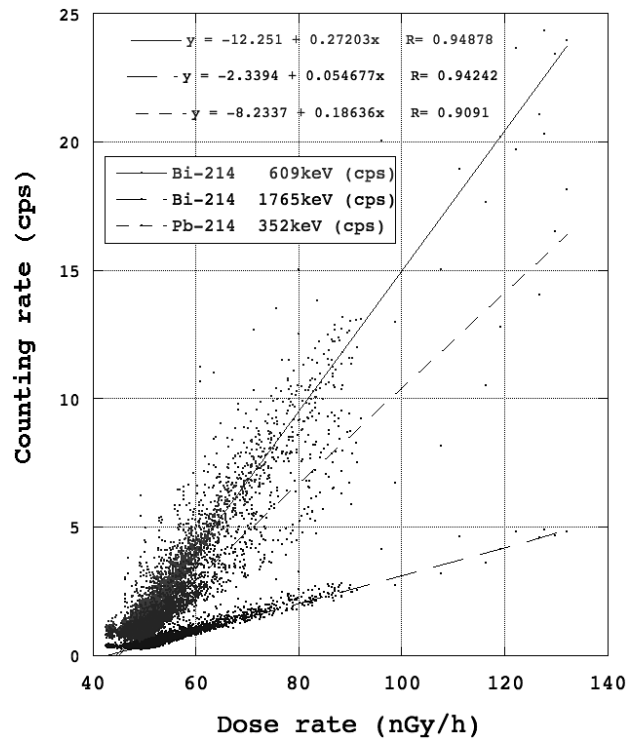


図8 モニタリングポスト線量率とPb214, Bi214計数率

In-Situ Ge測定でのPb-214 (352keV), Bi-214 (609 keV, 1765keV) の計数率との関係を図8に示した。この図のようにPb-214計数率は、降雨後、放射平衡から大きくずれることと、線量率への寄与がBi-214の1/7と小さいため、相関関係が弱い。Bi-214の計数率は609keV及び1765keVともに線量率と強い相関関係があり、土壌含水率や積雪によるバックグラウンドの線量率変動がなく、自然放射線のみをモニタリングするのであれば、Bi-214計数率 (609keV、1765KeV) だけでも推定可能である。

## 6. まとめ

2006年9月に始まったIn-Situ Ge測定は途中で大きなトラブルもなく順調に稼働したが、開始直後マルチチャンネルアナライザー（MCA）のチャンネルドリフトが大きく核種の同定ミス、同定不能が頻発し、ひとつひとつのファイルをマニュアルでエネルギー再校正しなければならなかった。期間後半、ピーク自動追従方式を改良してからは同定精度が上がり、同定ミスが激減した。期間中、人工放射性核種はCs-137が連続して検出されたが、過去の大気圏内核実験等による影響と判断した。また、自然放射性核種はU系列核種（Pb-214、Bi-214）、Th系列核種（Ac-228、Pb-212、Bi-212、Tl-208）、K-40、Be-7が検出されたが、Pb-210は存在量は多いもののエネルギーが低いため検出頻度は少なかった。

降水時には、線量率の10%程度の上昇に対し、Pb-214及びBi-214のみ計数率が2倍程度上昇し、線量率上昇寄与核種を精度よく弁別していた。

またHASL方式で求めた系列ごとの線量率とNaIによるG(E)関数法及びレスポンスマトリックス法で求めた線量率はほぼ一致した。

In-Situ Geの線量率測定において、降水時のRn娘核種が地表面に降下したときは、それを土壤中一様分布と解析するため大きな誤差となったが、人工放射性核種の場合、地表面分布と仮定したにも関わらず、横一方向照射であっても、満足できる線量率が得られた。

## 7. おわりに

先にも述べたように、地方自治体に課せられた原子力発電所周辺におけるモニタリングは、原子力発電所に起因する被曝線量が1 mSv/年を十分下回っていることの確認であるが、今かりにその量を空間放射線量で線量目標値の0.05mSv/年とすると5.7nGy/hの判別が必要となる。しかし、降水時には数十nGy/hの線量率上昇は珍しくなく、この降水時に原子力発電所由来のプルームによる数nGy/h程度の線量率上昇があったとしても、検知は困難である。

原子力発電所周辺の空間放射線をモニタリングしている地方自治体では、これまで、NaI(Tl)検出器で検出したパルスのDBM回路通過率、シングルチャンネルアナライザー（SCA）の計数及びスペクトルの解析で原子力発電所起因の $\gamma$ 線の弁別に努力してきた。しかし、完全には達成できていない。これはひとえに人工放射性核種の同定が、NaI(Tl)検出器では困難であるためであり、1 nGy/hオーダーの線量率上昇が自然か人工かの判別は、分解能に優れているGe検出器による方法しか考えられない。このIn-Situ Geシス

テムを使用すると、人工放射性核種の地上1 mに及ぼす線量率が $10^{-2}$  nGy/hオーダーであっても検出可能である。

また、緊急時モニタリングにおいても放出核種を迅速に決定できることは、屋内退避及び避難等の指示や飲食物の摂取制限の防護対策を講ずる場合に重要な情報になるだけでなく、将来の外部被曝線量を予想し、また除染方法を決定する場合にも重要な情報となる。さらにはIn-Situ Geシステムを常時稼働しておくことは、外国の原子力発電所の事故および核実験などの影響の早期発見に役立つものと考えられる。

以上のように、Ge半導体検出器による一般環境中での $\gamma$ 線スペクトロメトリーは、原子力発電所から放出されるわずかな人工放射性核種の蓄積状況把握、被曝線量評価及び事故時の迅速な放出核種決定の最も有力な手段である。In-Situ Ge測定をこのような長期間にわたり継続し、連続的にかつ安定的な測定が可能であったことは、Ge半導体検出器が原子力発電所周辺の空間放射線の連続モニタリングに応用可能となったという意味で、画期的なことであり、今後のモニタリングシステムの方向性を示すものと考えられる。

## 文 献

- 1) 島根県、松江市、中国電力株式会社；島根原子力発電所周辺地域住民の安全確保等に関する協定（平成20年）
- 2) 阪井英次、寺田博海、片桐政樹：可搬型Ge (Li) 検出器を用いた環境ガンマ線の in-situ 測定，JAERI-M6498（1976）
- 3) TAKEUCHI N, KATASE A : Rainout-Washout model for variation of environmental gamma-ray intensity by precipitation, J Nucl Sci Technol, 19, 393-409（1982）
- 4) 寺井邦雄、藤井幸一、中澤正治、濱田達二：チェルノブイリ事故影響調査結果（In-situ  $\gamma$ 線スペクトル測定データを中心として），島根県衛生公害研究所報, 33, 29-37（1991）
- 5) 伊知地 猛、服部隆利：Ge 半導体検出器を用いた東京における環境 $\gamma$ 線の連続測定，放射線地学研究所特別寄稿集, SCS-0019（2006）
- 6) 原子力安全委員会：発電用軽水型原子炉施設の安全審査における一般公衆の線量評価について（平成13年）
- 7) 文部科学省：Ge 半導体検出器を用いた in-situ 測定法，放射能測定法シリーズ33（平成20年）
- 8) 西川嗣雄、青木正義、岡部 茂：大気中ラドン娘核種からの $\gamma$ 線線量率，「大気中のラドン族と環

境放射能Ⅲ」(日本原子力学会), 69-71 (1995)  
9) MINATO Susumu : Monte Carlo Calculation  
of Gamma Radiation Field Due to Precipitation

Washout of Radon Daughters from the  
Atmosphere to the Ground Surface, Hoken  
Butsuri, 15, 19-24 (1980)

## **Gamma-Ray Energy Long-term Continuous Measurements by In-Situ Ge**

Misao IKUTA

### **Summary**

A long-term continuous measurement method of the In-Situ gamma-ray measurement (In-Situ Ge measurement) with the Ge semiconductor detector was developed, and 18 months were measured continuously. It succeeded in a long-term, of measurement system steady operation. It was confirmed to be able to detect high sensitivity of the artificial radioactive nuclide. The counting rate of Pb-214 and Bi-214 showed the twice to a minute air dose rate rise of the monitoring post of about 10%. The distinction problem of air dose rate is solved by this system.

Key word: Ge semiconductor detector, In-Situ, artificial radioactive nuclide, nuclear plant, nuclear test, Cs-137