

緊急連載 「放射能・放射線を正しく理解する」

東日本大震災から既に4か月になりますが、原子力発電所からの放射性物質の環境への漏洩は今なお憂慮される事態であり、今後、広範囲、かつ長期間にわたるモニタリングが必要とされるでしょう。本誌では、今回の事故に関連した放射性物質について、そのふるまいなどを正しく理解するために最小限必要となる基礎的知識を広く会員に提供する必要があると考え、6号より緊急連載記事を企画しました。本連載は、原発事故で注目される放射性物質に関し、分析化学的視点に基づいて事態を正しく解釈できることを目指して企画するものであります。

この7号においては、環境中に放出された放射性物質について、大気、土壌を対象試料とした場合の計測技術を中心に記事を組みました。既に、色々な機関から、大気・土壌・水などの環境試料中の放射性物質のモニタリング結果が公表されています。会員皆様の理解の一助としていただければ幸いです。

〔「ぶんせき」編集委員会〕

大気中浮遊粒子における放射性物質の γ 線計測によるモニタリング

五十棲 泰人, 宮武 秀男, 戸崎 充男

1 はじめに

微量放射能汚染の核種同定や環境放射能の定性、定量には高分解能の γ 線測定が必要である。京都大学放射性同位元素総合センターでは、低バックグラウンド γ 線測定装置が1981年に設置されて以来、大気、土壌、雨水、河川水等に含まれる放射性核種の測定が行われている。本稿では大気中微量放射能モニタリングの現状をまとめるとともに、1981年の中国における核実験、1986年のチェルノブイリ原発爆発事故および今回(2011年)の東日本大震災に伴う福島第一原発の一連の事故によるフォールアウトの観測データを紹介する。

2 低バックグラウンド γ 線測定装置

2.1 ゲルマニウム半導体検出器

γ 線測定装置を図1に示す。検出器本体は高純度ゲルマニウム検出器(EG&G ORTEC社, GMX-18200-S)でゲルマニウム結晶の大きさは 102 cm^3 、相対効率(^{137}Cs 662 keV γ 線に対して $3''\times 3''$ NaI(Tl) (76 \times 76 mm)結晶の効率との相対比)は22.3%である。放射線の入射窓は0.5 mm厚のベリリウム板で3 keV以上のX線および γ 線を高い効率で測定できる。エネルギー分解能は ^{55}Fe 5.9 keV (Mn $K\alpha$)に対して0.54 keV, ^{60}Co 1.33 MeV γ 線に対して1.8 keVである。

ゲルマニウム検出器は γ 線に対する有感領域を大きく

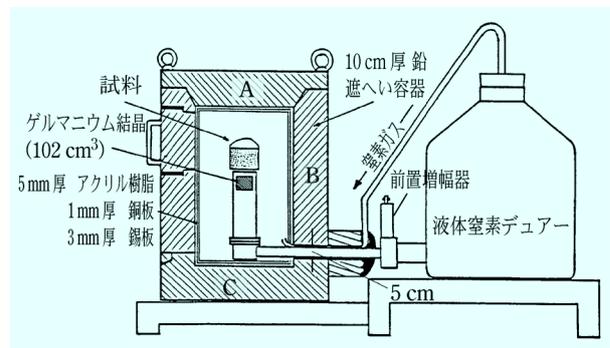


図1 低バックグラウンド γ 線測定装置

し、かつ、できる限り電気ノイズのレベルを下げるため液体窒素で冷却しなければならない。そのためゲルマニウム結晶および組み込みの前置増幅器の初段のFET(field effect transistor)は液体窒素デュアーから伸びた銅の冷却棒で冷やされている。デュアーの容量は30リットル、連続測定の場合約5日ごとに満杯にする必要がある。

2.2 遮へい容器とバックグラウンド放射線

遮へい容器はA, B, Cの三つの部分からなる。総重量は約1.5トンである。Bの部分に試料交換用の扉を取り付けてある。検出器本体を遮へい容器内に収めるには、AおよびBの部分を取り外すための専用クレーンを使

用する。容器外部から来るバックグラウンド γ 線を効率よく遮へいするためには、容器内部と外部の間で鉛材のない隙間をできる限り少なくする必要がある。図1から分かるように、この隙間は検出器の冷却棒部分とそれを通す直径5 cm 長さ10 cm の穴との間隙だけで、容器のA, B, Cおよび試料交換用扉の部分の組み合わせ部は隙間がない構造になっている。

自然放射能として存在する ^{210}Pb (半減期: 22.3年)の娘核種 ^{210}Po からの803.1 keV γ 線(放出割合: 10^{-5})がバックグラウンド計数になるので、遮へい容器の鉛材は製錬後時間が経った古いものほどよい。遮へい材は試料からの γ 線の鉛による後方散乱線やX線を効率よく減衰させるため、容器の内側に3 mm 厚錫板, 1 mm 厚銅板および5 mm 厚アクリル樹脂板で内張りしてある。

γ 線測定装置を設置した室内の放射性エアロゾル(主に地中で発生するラドン(^{222}Rn)の娘核種 ^{214}Pb , ^{214}Bi 等を含む微粒子が付着したコロイド状態の塵埃)が遮へい容器内に入りバックグラウンド γ 線を増加させることがある。筆者らの装置がある京都大学北部キャンパスは花折断層近くに位置し、地下室での放射性エアロゾルの発生が著しい。図1に示すように、放射性エアロゾルによるバックグラウンド計数を減らすため、液体窒素デュアードで気化した窒素ガスを遮へい容器内に流している。図2に ^{210}Po および放射性エアロゾルによるバックグラウンドスペクトルの例を示す。Aは窒素ガスを流さない場合、Bは流した場合に得られたスペクトルである。流した場合には ^{214}Pb および ^{214}Bi からの γ 線によるピークは現れない。このように活断層近くの実験室に装置を設置する場合、窒素ガス流入は不可欠の措置である。

る。

また、図3に示すように宇宙線、特に μ 中間子やそれを起源とする高エネルギーの陽子および中性子がゲルマニウム検出器に検出され数十 MeV に達する連続スペクトルとなる。このバックグラウンド成分を通常の実験室で効果的に減少させることは不可能に近い。

2.3 エレクトロニクス

γ 線用ゲルマニウム半導体検出器と高分解能(1.33 MeV γ 線に対して2 keV 以下)用に最適化されたエレクトロニクスは多くのメーカーから市販されている。それらは主に検出器に電圧(〜3000 V)を印加するため

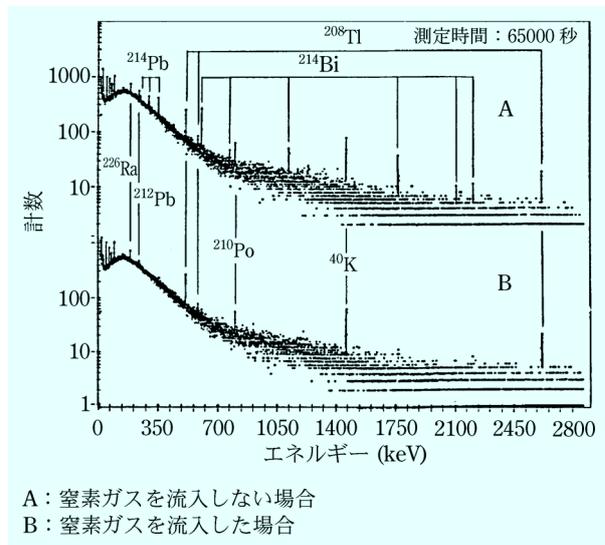


図2 γ 線測定装置のバックグラウンドスペクトル

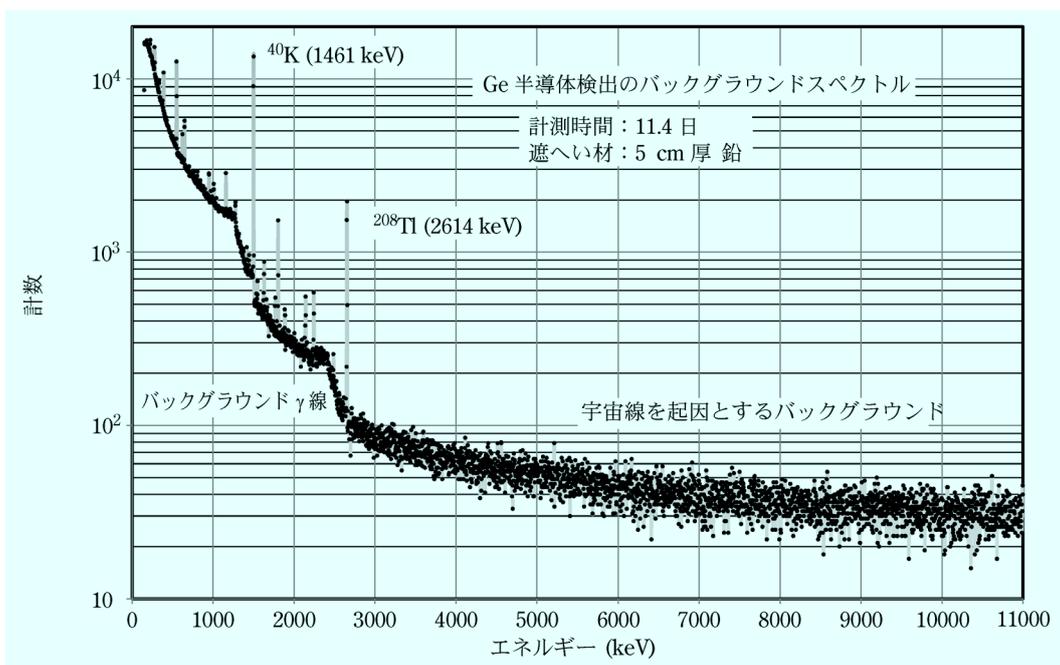


図3 高エネルギー (<10 MeV) 部分を含むバックグラウンドスペクトル

の高電圧回路、突発的な停電時に検出器を痛めないよう印加電圧を徐々に下げるための高圧バッファ、前置増幅器からの信号を低雑音で増幅するための線形増幅器、線形増幅器からのパルス波高をデジタル化するためのADC (analog to digital converter) およびADCからのデジタル信号を集積してエネルギースペクトルを作るためのMCA (multichannel analyzer) からなる。

特にMCAはPC (personal computer) に組み込まれて、スペクトルデータを直接定量分析コードにかけて分析結果まで出力できるようにしたものが多い。筆者らは現在Princeton Gamma-Tech社製QuantumMCAおよびQuantumGoldを使用している。

3 試料採取

捕集装置を使って大気中からエアロゾルを濾し取ったフィルターを測定試料とする。今回、捕集装置は2台使用した。1台 (SIBATA HVC-500) は空気捕集量500リットル/分で径110mmのフィルター (ADVANTEC, GB-100R) を装着する。もう1台 (SIBATA SL-15P) の空気捕集量は200リットル/分で径55mmのフィルター (ADVANTEC, CP-20) を装着する。CP-20はチャコールフィルターでヨウ素に対しても十分な吸収能力を持つ。

検出感度を上げたモニタリングを行うためには、大容量の大気捕集装置を使う必要がある。1981年から数年間は核爆発実験による低濃度のフォールアウトをできるだけ効率よく捕らえるため、大型のフィルター (ADVANTEC, GB-100R; 203mm×255mm) と大型の捕集装置 (柴田科学 HV-1000; 1000リットル/分) を使用していた。

4 検出効率

エアロゾルを捕集したフィルターは一定の容器に詰め込んでγ線スペクトルを測定する。γ線スペクトルからエアロゾルに含まれる放射能強度 (Bq) を決めるには、あらかじめ容器に対応した体積線源の検出効率を求めておく必要がある。体積線源の作製や検出効率の求め方については文献1に詳しくまとめられている。それに準じた筆者らのやり方を説明する。

4.1 標準線源および標準溶液

市販の標準線源や標準溶液のうち検出効率を求めるために利用されるものに、¹⁵²Euの標準線源と多くの放射性核種を混合した標準溶液がある。筆者らが使用した線源の仕様を表1に示す。

標準線源には検定日の放射能強度 (Bq) が与えられる。線源の実際の大きさは径1.5mm程度で距離を離せば点線源として扱える。¹⁵²Eu標準線源を基にして¹⁵²Euの非密封の原液から放射能強度が決まった標準溶

表1 検出効率決定に使用する標準線源

¹⁵² Eu 標準線源		混合標準溶液			
LMRI, Bureau de Métrologie, France (EGMA 2)		Radiochemical Center Ltd., Amersham (QCY.44)			
検定日: 1992.5.4		検定日: 1992.4.23			
強度: 2.87 MBq		重量: 5.3273 g			
半減期: 13.54 年		密度: 1.066 g/cm ³			
エネルギー (keV)	放出割合 (%)	核種名	半減期	エネルギー (keV)	強度 (/g/秒)
40.12	37.90	¹⁰⁹ Cd	461.4 日	88.03	631
121.78	28.67	⁵⁷ Co	271.7 日	122.06	582
244.70	7.61	¹³⁹ Ce	137.6 日	165.86	752
344.28	26.60	²⁰³ Hg	46.6 日	279.19	1920
443.97	2.83	¹¹³ Sn	115.09 日	391.70	2097
778.90	12.96	⁸⁵ Sr	64.84 日	514.01	3888
867.37	4.26	¹³⁷ Cs	30.08 日	661.66	2512
964.08	14.65	⁸⁸ Y	106.63 日	898.04	6118
1085.87	10.24	⁶⁰ Co	1225.98 日	1173.23	3275
1112.07	13.69	⁶⁰ Co	1225.98 日	1332.49	3279
1408.01	21.07	⁸⁸ Y	106.06 日	1836.06	6522

液を比較的簡単に作製できる。表1には¹⁵²Euから放出される主なγ線のエネルギーと放出割合 (>2%/壊変) が与えられている。γ線は最大1408keVで適度な間隔で分布しているのが分かる。1408keVまでの検出効率が決まれば、大抵の放射性核種を定量できる。

混合標準溶液を使うとさらに高い領域まで検出効率を求めることができる。表1には¹⁰⁹Cd, ⁵⁷Co, ¹³⁹Ce, ²⁰³Hg, ¹¹³Sn, ⁸⁵Sr, ¹³⁷Cs, ⁸⁸Y, ⁶⁰Coを混合した標準溶液の主なγ線とその強度が与えられている。最大のγ線エネルギーは⁸⁸Yの1836keVである。γ線強度は検定日におけるそれぞれの核種のγ線の、溶液1g当たり、1秒当たりの放出数である。

4.2 試料容器と標準体積線源の作製

筆者らは図4および表2で示す円筒型容器D1, D2とマリネリ型容器M1, M2の4種類の容器を使用している。空気中放射能モニタリングのフィルター試料の測定にはD1とD2を使用する。土壌や水試料はその量に応じてD1~M2を使い分ける。

標準体積線源を作製する場合、母材として水、クロマト用アルミナ粉末 (Al₂O₃)、寒天等を使用する。筆者らはアルミニウムシリケート (Al₂O₃・SiO₂, 200メッシュ) の粉末を母材とし、市販の混合標準溶液を使って次の手順に沿って作製した。

- 1) 混合標準溶液 (4M HCl, 容量: 約5cm³) の全量を2倍に薄める。
- 2) 希釈した溶液の正確な半分量にメチレンブルー溶液約5cm³を加える。
- 3) メチレンブルーを加えた溶液 (約10cm³) をアル

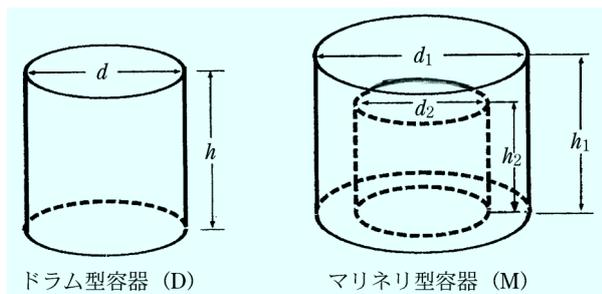


図4 試料容器

表2 体積試料のための容器の寸法

	円筒型		マリネリ型		
	D1	D2	M1	M2	
d (mm)	49.0	59.0	d_1 (mm)	116.0	90.0
h (mm)	9.0	42.0	d_2 (mm)	76.0	76.0
内容積 (cm ³)	15.1	115.0	h_1 (mm)	98.0	50.0
			h_2 (mm)	77.0	35.0
			内容積 (cm ³)	689.0	199.0

ミニウムシリケートの粉末約 200 g を入れて、粉末全体が一様になるまで攪拌器を使ってかき混ぜる。

- 4) 約 20 リットルのポリエチレン容器に約 2 kg のアルミニウムシリケート粉末を入れておき、それに 3) の粉末をすべて加える。
- 5) ポリエチレン容器内の粉末のメチレンブルーの色が一様になるまで攪拌する。
- 6) 粉末の総重量を正確に計量する。
- 7) 粉末内の放射能分布が一様と見なせるかを調べるため、容器 D1 に粉末を詰めた試料を複数個 (>3) 作製し、NaI (TI) シンチレーションカウンター等を使って計数を比較する。
- 8) 明らかに計数がばらついて一様性が充分で得ないと判断する場合はさらに攪拌を続ける。充分と見なせる場合は各試料容器に粉末を詰め粉末の重量を正確に計量する。
- 9) 粉末の重量を計量した容器を標準体積線源とし、各線源から放出される γ 線の絶対強度 (/秒) を容器内の粉末の重量と総重量の比、検定日の混合標準溶液全量の γ 線放出数 (/秒)、検定日から線源作成日までの時間および混合標準溶液を構成する核種の半減期を使って計算する。

各容器の体積試料の検出効率は、実際にゲルマニウム検出器で標準体積線源からの γ 線を測定して得た計数率 (/秒) とその γ 線の絶対強度 (/秒) との比で与えられる。図 5 に D2 の体積試料の検出効率を示す。明らかに ²⁰³Hg の 279 keV γ 線の値が周りから期待される値より下がっている。ポリエチレン容器内の攪拌時に水銀が容器壁に一部吸着したためである。実際の定量では 279

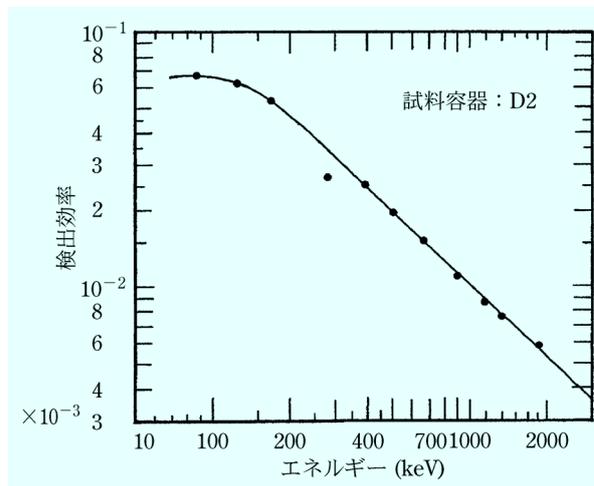


図5 容器 D2 に対する検出効率

表3 検出効率

エネルギー (keV)	D1	D2	M1	M2
88	0.1473	0.0655	0.0548	0.0809
122	0.1384	0.0623	0.0546	0.0788
166	0.1040	0.0502	0.0465	0.0649
279	0.0636	0.0320	0.0288	0.0415
392	0.0486	0.0238	0.0219	0.0304
514	0.0367	0.0180	0.0168	0.0234
662	0.0282	0.0141	0.0133	0.0183
898	0.0194	0.0101	0.0097	0.0132
1173	0.0161	0.0078	0.0075	0.0102
1333	0.0132	0.0068	0.0067	0.0090
1836	0.0098	0.0052	0.0051	0.0068

keV の点を除いて最小自乗法でフィットした曲線の値を使用している。表 3 に D1~M2 の体積試料に対して得られた検出効率の数値を表にした。

5 大気中放射能濃度のモニタリング

2011 年 3 月 11 日の東日本大震災の際、福島第一原子力発電所で水素爆発、引き続いて大規模な放射能漏れ事故が発生した。京都大学放射性同位元素総合センターでは 3 月 13 日に測定システムを立ち上げ、3 月 15 日以降大気中の放射能モニタリングを毎日実行している。捕集時間はタイマーを付けて午前 9 時から 11 時の 2 時間に設定して。測定試料は容器 D1 に詰め込み、 γ 線スペクトル解析に必要な検出効率は容器 D1 に対応する値を使った。3 月 15 日以降、福島第一原発事故のフォールアウトが観測にかかったのは 4 月 7 日と 4 月 18 日のみである。4 月 18 日と 19 日の試料で得た γ 線スペクトルを図 6 に示す。18 日のスペクトルには ¹³¹I, ¹³⁴Cs, ¹³⁷Cs の γ 線によるピークがはっきりと見えるが、19 日にはこれらのピークは確認できない。表 4 にデータ解析で得られた濃度値 (mBq/m³) を示す。

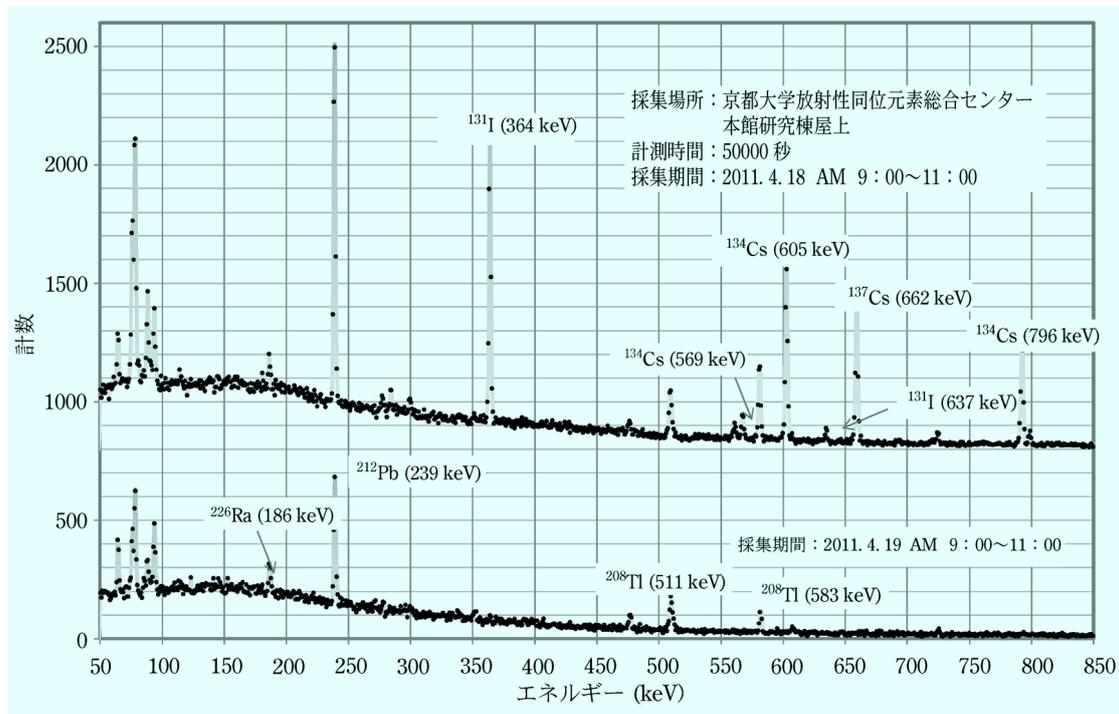


図6 福島第一原発事故のフォールアウト

表4 京都における空气中放射性同位元素濃度の測定結果

空气中放射性同位元素濃度 (mBq/m ³)				
起源	核爆発実験	チェルノブイリ 原発事故	福島第一原発事故	
採集期間	1981.7.24- 8.3	1986.5.3- 5.5	2011.4.7	2011.4.18
大気量(m ³)	14600	2650	62.4	62.4
⁵⁴ Mn	0.0017			
⁹⁵ Zr	0.42			
⁹⁵ Nb	1.4			
¹⁰³ Ru	0.13			
¹⁰⁶ Ru-Rh	0.37			
¹²⁵ Sb	0.37			
¹³¹ I	*	1150	62	110
¹³⁴ Cs	*	803	20	54
¹³⁷ Cs	0.056	637	20	40
¹⁴¹ Ce	0.074			
¹⁴⁴ Ce	0.74			

同様のモニタリングは1981年から約12年間月1回の頻度で行った。その間に得た典型的なフォールアウトの例を図7と図8に示す。図7は1981年7月24日から8月3日までの10日間エアロゾルを捕集した試料で得られたγ線スペクトルで、当時の中国の核実験によるフォールアウトによるものである。図8は1986年4月26日のチェルノブイリ原発の爆発事故のフォールアウトのスペクトルで、試料捕集期間は5月3日から5日までの実質2日間である。主な放射性核種の濃度を表4に示しておいた。

図6から図8でスペクトルのパターンが大きく異なる。これは核実験や事故の内容、放射性核種の大気中放出から捕集までの空間的および時間的経過により観測される核種とその濃度が変わるためである。また、京都では、今回の福島の事故による¹³¹I、¹³⁴Cs、¹³⁷Csのフォールアウト量はチェルノブイリの事故より1桁は低かったことが分かる。1981年の核実験で観測できた¹³⁷Csのフォールアウトの濃度は0.056 mBq/m³で今回の観測した量より2~3桁低い。この感度の違いは主に捕集大気量の違いにある。1981年から数年間は低濃度のフォールアウトをできるだけ効率よく捕らえるため、大型のフィルター(20.3 cm×25.5 cm)と大気捕集装置(1000リットル/分)を使用し、1回の捕集期間を10日とした。今回の福島第一原発の事故に対しては、放射性核種の濃度の経時変化を少なくとも半日単位で追えるように捕集時間を2時間とした。この場合、検出限界は¹³⁷Csで0.1 mBq/m³程度になる。

6 おわりに

京都大学放射性同位元素総合センターの大気中放射性物質のモニタリングは10年以上も休止の状態にあった。福島第一原発の事故のニュースを聞いて急遽再開することになったが、以前専用で使用していたデータ解析装置、解析コードや大容量大気捕集装置は使いものにならず、有り合わせの装置を集めてシステムを組み上げた。それでも¹³⁷Csにして0.1 mBq/m³の感度で日1回のモニタリングを続けることができた。その後、大容量大気捕集装置の設置が決まり、より感度の高いモニタリ

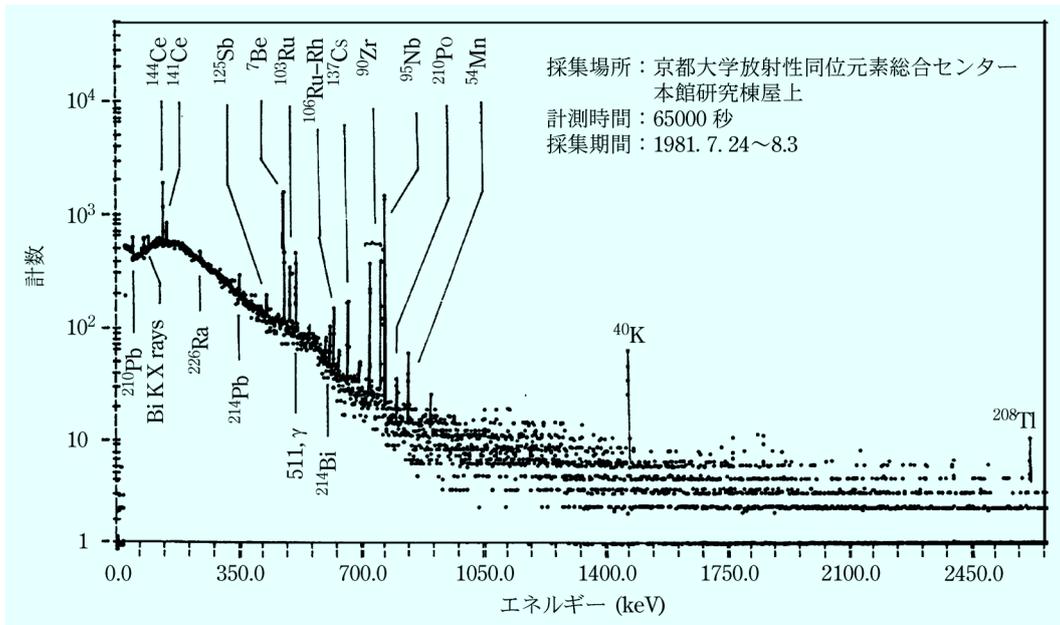


図 7 核実験のフォールアウト

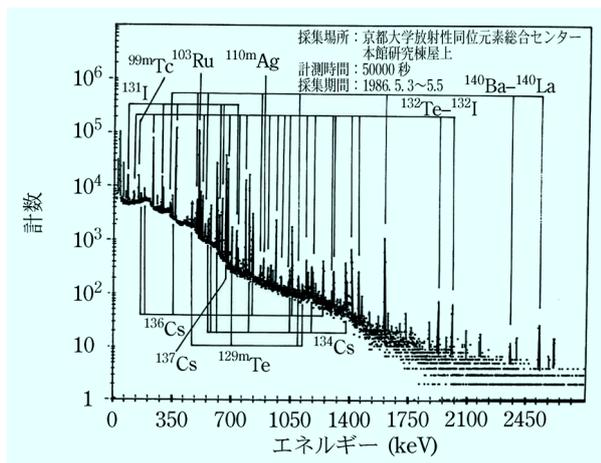


図 8 チェルノブイリ事故のフォールアウト

ングが可能になった。

福島事故以来、土壌や食品中の放射性核種の濃度を測定する機会が増加している。測定結果の信頼性は、主に、いろいろな体積試料に対応した検出効率をあらかじめ求めておくことにかかっている。 ^{152}Eu を使った標準溶液から系統的に標準体積線源を作製し、関連する研究機関とのクロスチェックを経て、今後予想される大量の濃度測定に備えたい。 ^{152}Eu による標準線源の作製は混合標準溶液を使う場合より安価であり、その半減期(13.54年)の長さから数年にわたり長期間使用できるからである。

文 献

- 1) “ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー (2訂)”, (1991), (日本分析センター).



五十榎泰人 (Yasuhiro ISOZUMI)
 京都大学放射性同位元素総合センター (名誉教授) (〒611-8501 京都市左京区吉田近衛町)。京都大学工学部原子核工学科博士課程修了。工学博士。《現在の研究テーマ》放射線計測のための回路技術と新しい検出器の開発。《趣味》“もの作り”と“お酒の伴う団欒”。
 E-mail: y.isoizumi@isoshield.jp



宮武秀男 (Hideo MIYATAKE)
 京都大学放射性同位元素総合センター (〒611-8501 京都市左京区吉田近衛町)。近畿大学理学部化学科卒。《現在の研究テーマ》大学における放射線安全管理。《趣味》“四季折々の釣り”と“酒と肴”を楽しむ。
 E-mail: miyatake.hideo.7v@kyoto-u.ac.jp



戸崎充男 (Mitsuo TOSAKI)
 京都大学放射性同位元素総合センター (〒606-8501 京都市左京区吉田近衛町)。大阪大学大学院理学研究科理学博士課程修了。理学博士。《現在の研究テーマ》核共鳴を伴う原子過程環境放射線計測。《趣味》“カメラ”。
 E-mail: tosaki.mitsuo.3v@kyoto-u.ac.jp