

田室 勝\*  
田口正樹\*  
西沢博志\*\*

# 放射能測定技術と適用製品

## Radioactivity Measurement Techniques and Products

Masaru Tamuro, Masaki Taguchi, Hiroshi Nishizawa

### 要旨

東日本大震災に伴う放射性物質の放出と拡散による汚染によって、食品や飲料水、及び土壌中に含まれる放射性セシウムの放射能濃度の把握が重要になっている。

放射性物質の精密分析(核種<sup>(注1)</sup>同定, 定量測定)には, 放射能分析能力に優れたゲルマニウム半導体検出器が一般的に使用されているが, 測定対象の放射性セシウムが微量な場合に測定時間がかかることに加え, 検出器の冷却のために液体窒素が必要なこと等, 運用に手間と時間がかかるため, 短時間測定のニーズがあった。

三菱電機は, 国内加圧水型原子力発電所の放射線モニタリングシステムを始めとした放射線測定器, 及び放射能測定器の様々な製品ラインアップを備えており, これまで

培った技術を基に短時間測定のニーズに応えるため, 次の放射能測定技術を開発した。

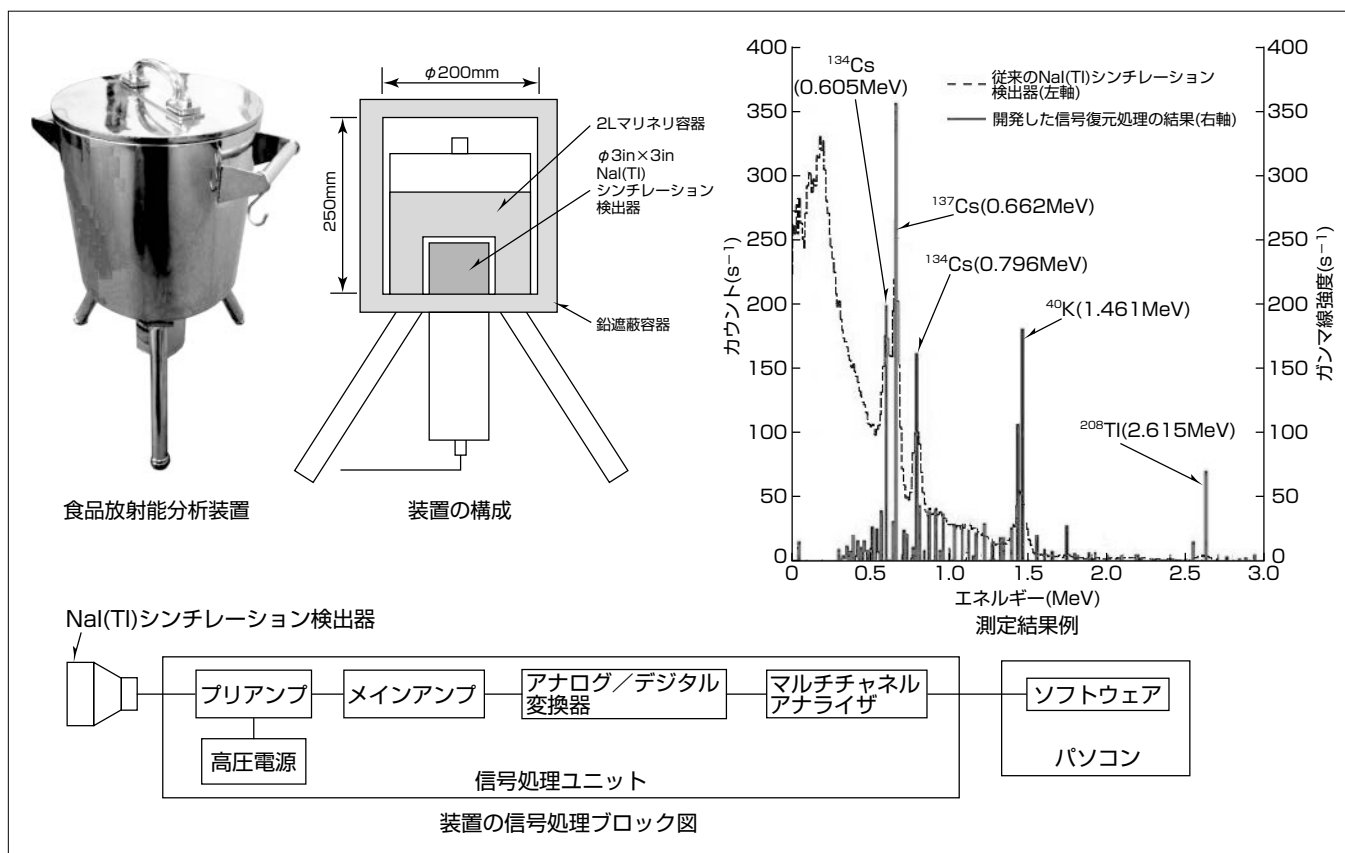
#### (1) 信号復元技術

検出効率の高いNaI(Tl)<sup>(注2)</sup>シンチレーション検出器の採用と定量分析可能なエネルギー分解能の設定, 及び検出器のゆらぎを考慮した信号復元を行うことで, 放射能分析装置の測定時間の短縮と軽量化, 及び検出器冷却レスを実現した。

#### (2) 高感度検出技術

検出器を含めた計測系の分解能を向上させることで, 放射能分析装置の短時間測定を実現した。

(注1) 原子の種類  
(注2) タリウム活性化ヨウ化ナトリウム



### 食品放射能分析装置と測定結果例

NaI(Tl)シンチレーション検出器を使用して開発した食品放射能分析装置の外観, 構成, 信号処理ブロック図及び測定結果例を示す。信号復元技術と高感度検出技術の適用によって測定時間の短縮と軽量化, 及び検出器冷却レスを実現し, また測定結果例に示すように核種<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの分離測定を可能とした。

## 1. ま え が き

2011年3月11日に発生した東日本大震災に伴う放射性物質の放出によって、空間放射線量率や人体が受ける積算線量の測定による放射線の把握が重要になっている。これまで、福島県を中心に全国的に環境の空間放射線量率を測定するモニタリングポスト(固定型、可搬型)や積算線量計が整備され、加えて航空機による広域モニタリングや海域モニタリング技術も確立され、環境のモニタリングが継続的に実施されている。

このような状況の中、空間線量率測定に加えて住民の安全・安心な暮らしを守る放射能測定が必要となっており、食品や飲料水、及び土壌中に含まれる放射性セシウムの放射能濃度の把握が重要になっている。

本稿では、今回開発した放射能測定・分析に必要な信号復元技術と高感度検出技術、及び適用例として食品放射能分析装置について述べる。

## 2. 放射能測定に必要な技術

当社は、国内加圧水型原子力発電所の放射線モニタリングシステムや自治体向けに環境放射線モニタリングシステムを納入した実績があり、大気・水中放射能レベルなどの測定技術を活用して様々な放射線測定器、及び放射能測定器の製品展開を図っている。

福島県を始めとした東北地方等では、食品や水などに含まれる放射性セシウムの放射能濃度をそれぞれの検査基準に従い測定している。放射性セシウムの測定対象は $^{134}\text{Cs}$ <sup>(注3)</sup>と $^{137}\text{Cs}$ <sup>(注3)</sup>としており、 $^{134}\text{Cs}$ の光子エネルギーが $605\text{keV}$ <sup>(注4)</sup>、 $^{137}\text{Cs}$ の光子エネルギーが $662\text{keV}$ であることから放射能分析装置は両者の近接したエネルギーを分離して分析できる能力が必要である。また、食品の分析では $25\text{Bq/kg}$ <sup>(注5)</sup>の判定値に対して、試料に含まれる放射能濃度が非常に微量であるため、時間をかけて測定しており、測定時間の短縮が必要である。

当社では微量な放射能濃度の測定について、高い放射能分析能力、短時間測定、検出器冷却レスの3つの要素を同時に実現するために信号復元技術と高感度検出技術を開発し、軽量化・運用性の改善を含め食品放射能分析装置に適用した。

(注3) ウランなどの核分裂によって生成される放射性同位体の1つ  
 (注4) 電子、又は陽子を1ボルトの電位差で加速したときに与えるエネルギー  
 (注5) 単位質量当たりの放射性物質質量

## 3. 信号復元技術と高感度検出技術

### 3.1 信号復元技術

#### 3.1.1 開発目的

放射能を分析する代表的な検出器はにゲルマニウム半導体検出器とNaI(Tl)シンチレーション検出器があり、2つ

表1. 検出器の特徴

	ゲルマニウム半導体検出器	NaI(Tl)シンチレーション検出器
放射能分析能力	エネルギー分解能 約0.001MeV $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の分離可能	エネルギー分解能 約0.05MeV $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ の分離不可
測定時間	検出効率が低いため測定に 時間がかかる	検出効率が高いためゲルマ ニウム半導体検出器に比べ 測定時間が短い
運用性	検出器冷却要	検出器冷却不要

の検出器の特徴を表1にまとめた。

ゲルマニウム半導体検出器はエネルギー分解能が高く放射能分析能力が優れているため、一般的に放射能の核種分析などに使用されているが、測定対象の放射性セシウムが微量な場合に測定時間がかかることに加え、液体窒素による冷却が必要なため運用に手間と時間がかかっている。

一方、簡易分析として使用されているNaI(Tl)シンチレーション検出器は冷却の必要がなく、大型のNaI(Tl)結晶の製造が可能のため検出効率の高い検出器を製作でき、ゲルマニウム半導体検出器に比べて測定時間を短縮できる利点があるが、エネルギー分解能が粗く、近接する核種の放射能の分析ができなかった。

このことから開発条件を次のとおり設定した。

- (1) NaI(Tl)シンチレーション検出器を選択し、分解能の向上を図る。
- (2) 従来の信号復元技術を適用し、測定時間の短縮を図る。信号復元技術は検出器のパルス波高分布から線源スペクトルをソフトウェア演算処理によって復元する処理である。
- (3) NaI(Tl)シンチレーション検出器は、ゲルマニウム半導体検出器と比較してエネルギー分解能が粗く、 $^{134}\text{Cs}$ と $^{137}\text{Cs}$ のような近接した核種の分離測定が困難であるため、放射能分析能力の向上を図った信号分析技術を新たに開発する。

#### 3.1.2 開発内容

- (1) 従来の問題点

放射性核種から出る放射線(ガンマ線)のエネルギーは、本来は核種ごとに一定の値であるが、ガンマ線を放射線測定器で測定すると検出器の物理特性(ばらつき)によって測定結果にゆらぎがでる。NaI(Tl)シンチレーション検出器ではエネルギー測定結果のゆらぎ幅が大きいため、近接したエネルギーを分離して測定ができないという問題点があった。

エネルギー分解能を向上させる方法として、放射性物質からのガンマ線エネルギーと測定結果の関係を検出器の応答関数とし、この応答関数を用いてNaI(Tl)シンチレーション検出器のパルス波高分布から線源スペクトルを復元する信号復元技術が知られている。

しかし、この信号復元技術は、従来は空間線量率の測定を目的としており、応答関数のエネルギーメッシュ幅は最も細かい場合でも0.05MeVであった。このため、従来の信号復元技術によって復元した線源スペクトルのエネルギー分解能は0.05MeVに制限されてしまい、放射性セシウムを正確に測定することができないという問題があった。

この問題を解決するために、核種のエネルギーが近接する<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csを分離して測定し、かつ正確に測定可能な応答関数を開発した。

(2) 応答関数の開発

<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csを正確に測定するためには線源スペクトルのエネルギー分解能を0.01MeV以下とする必要があり、応答関数は測定エネルギー0~3MeVの範囲で、0.01MeVの分解能とした。NaI(Tl)シンチレーション検出器での放射線の挙動(γ線・β線やそれに伴う相互作用で発生したX線・電子などの動き)は一般的にEGS(Electron-Gamma Shower)5を用いてシミュレーション解析しており、EGS5による計算結果から応答関数を算出した。

また、NaI(Tl)シンチレーション検出器の出力信号のゆらぎを考慮する必要がある。しかし、EGS5で算出した応答関数は、ゆらぎが含まれていないため、9核種混合体積線源の光電ピークの半値幅からNaI(Tl)シンチレーション検出器の出力信号のゆらぎを測定した。

この応答関数の算出結果とゆらぎの測定結果を組み合わせ、最適値を算出し、ゆらぎを考慮した応答関数を決定した。

(3) ソフトウェア演算処理の開発

検出器のパルス波高分布から信号である線源スペクトルを復元する方法は、アンフォールディング手法として知られている。アンフォールディング手法とは、放射性物質から放出するガンマ線のエネルギーと測定結果の関係をあらかじめ応答関数データベースに記憶しておき、このデータベースを使って測定結果をガンマ線のエネルギーに戻す処理である。

測定試料に複数の放射性核種が含まれる場合、核種ごとに放出するガンマ線のエネルギーが異なるため、NaI(Tl)シンチレーション検出器で測定したパルス波高分布は図1に示すように、エネルギーごとのガンマ線強度と応答関数の重ね合わせとなる。NaI(Tl)シンチレーション検出器の応答関数があらかじめ分かっている場合、測定したパルス

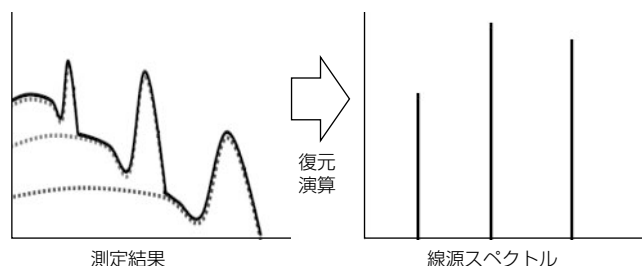


図1. 信号復元技術による線源スペクトル復元

波高分布と応答関数から線源スペクトルを復元することが可能である。

(2)で算出した応答関数を用いてアンフォールディング計算するソフトウェア演算処理を開発した。この結果、NaI(Tl)シンチレーション検出器を使用して<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの核種の分離測定を可能とした。

3.2 高感度検出技術

NaI(Tl)シンチレーション検出器を使用した放射能測定の測定時間短縮には測定系の放射線収集効率を向上させる必要がある。

この実現手段として計測系の分解能を向上させる次の高感度検出技術を適用し、従来のNaI(Tl)シンチレーション検出器と比較して放射線を効率よく計測することを可能とし、測定時間の短縮を図った。

(1) 検出器単体の分解能向上

NaI(Tl)シンチレーション検出器と光電子増倍管接着面の光収集効率向上と量子効率の高い光電子増倍管を採用

(2) プリアンプ回路の雑音低減

プリアンプ回路コモン安定化

(3) 低汚染(低バックグラウンド)部品の適用

光電子増倍管などの部品に低汚染品を選定

(4) 試料と検出器の配置構造最適化による収集効率向上

NaI(Tl)シンチレーション検出器及び試料の適切なサイズと相互位置の決定

4. 適用例

信号復元技術と高感度検出技術を適用した放射能分析装置は、食品や飲料水、土壌の分析に適用を予定している。この章では放射能分析装置の適用例として食品放射能分析装置について述べる。

図2に食品放射能分析装置の構成を示す。

食品放射能分析装置はNaI(Tl)シンチレーション検出器

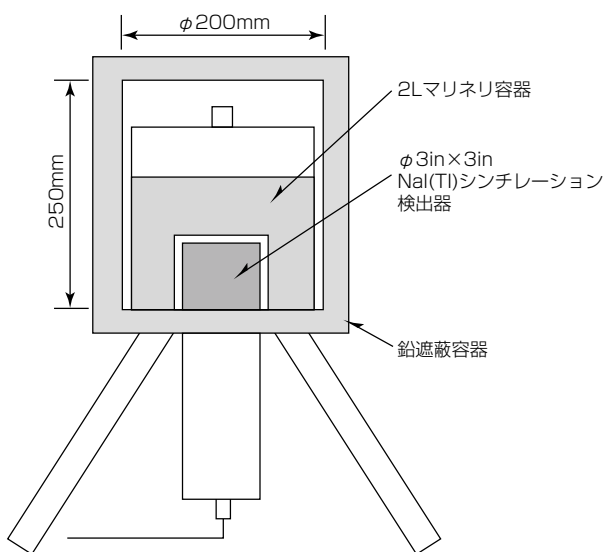


図2. 食品放射能分析装置の構成

◇ 一般論文 ◇

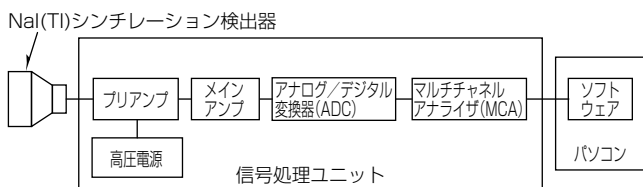


図3. 食品放射能分析装置の信号処理ブロック図

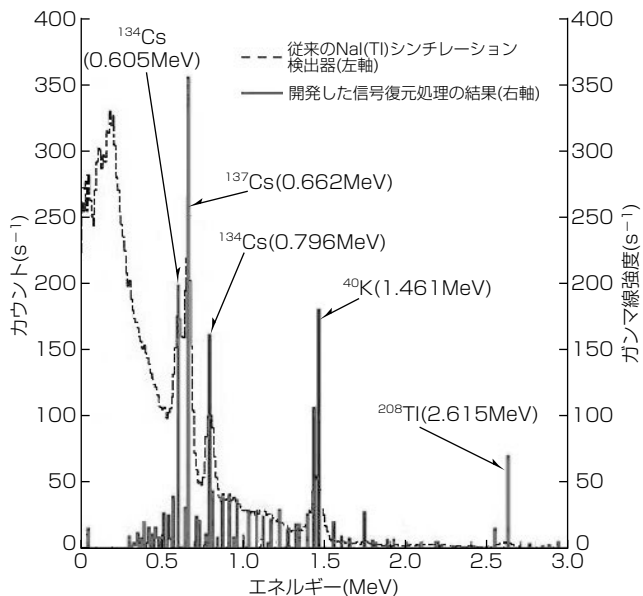


図4. 信号復元技術を適用した測定結果例

と鉛遮蔽容器で構成しており、試料は開発した2Lマリネリ容器に充填して測定する。NaI(Tl)シンチレーション検出器の出力信号は、高電圧ケーブルを介して信号処理ユニットに伝送する方式とした。

図3に食品放射能分析装置の信号処理ブロック図を示す。

まず、NaI(Tl)シンチレーション検出器が出力するパルス信号を信号処理ユニットに伝送し、内蔵のプリアンプで増幅後、メインアンプで波形整形する。次に、ADCでパルスの波高をデジタル値(パルス波高値)に変換し、MCAによってパルス波高分布ごとのカウントを積算する。最後にMCAのパルス波高分布をパソコン上のソフトウェアによってアンフォールディング手法で計算し、線源スペクトルの復元を行う。

放射能分析用玄米認証標準物質をマリネリ容器に充填して測定を行った。図4に測定したエネルギースペクトルと信号復元技術によって復元した線源スペクトルの比較を示す。

信号復元技術の適用によって、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csのピークがエネルギー幅0.01MeVの範囲内に収束しており、両者を分離可能であることを確認した。また、信号復元技術によって線源スペクトルを復元することで、光電ピーク以外の連続エネルギー部分も線源スペクトルとして回収されることによって、ピーク効率が高くなり、測定時間の短縮が図れることを確認した。

さらに信号復元技術に加えて高感度検出技術の適用に

表2. 従来の測定装置との比較

	従来のゲルマニウム半導体検出器を採用した装置	従来のNaI(Tl)シンチレーション検出器を採用した装置	開発した食品放射能分析装置(NaI(Tl)シンチレーション検出器+信号復元技術+高感度検出技術)
測定時間 <sup>(注6)</sup>	10~15分	2~5分	1分
核種分析	可	不可	可 <sup>(注7)</sup>
装置質量	1,500~2,000kg	150~250kg	30~160kg (設置環境による)
検出器冷却	必要	不要	不要

(注6) 試料質量2kg, 検出下限25Bq/kgの場合

(注7) <sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Cs

よって、食品放射能分析装置に使用するNaI(Tl)シンチレーション検出器の出力信号のゆらぎをハードウェア的に小さくし、測定時間の短縮を可能とした。

表2に従来のゲルマニウム(Ge)半導体検出器とNaI(Tl)シンチレーション検出器を採用した装置、及び開発した食品放射能分析装置の比較を示す。

開発した食品放射能分析装置は、信号復元技術と高感度検出技術を適用したことで測定時間の短縮(1分)、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの分離測定が可能、装置の軽量化(30~160kg)、検出器冷却レスを実現した。

5. むすび

微量な放射能濃度の測定について、高い放射能分析能力、短時間測定、検出器冷却レスの3つの要素を同時に実現するために開発した信号復元技術と高感度検出技術、及びその適用例として食品放射能分析装置について述べた。

開発した技術を各製品に適用することで震災復興での住民の安全・安心な暮らしを守る一助となるよう貢献していく。

この放射能測定技術は独立行政法人科学技術振興機構の研究開発成果展開事業(先端計測分析技術・機器開発プログラム)による成果である。

参考文献

- (1) 東 哲史, ほか: アンフォールディング手法を用いたNaI(Tl)シンチレーション式食品放射能分析装置の開発, 日本原子力学会「2013年秋の大会」, E50 (2013)
- (2) 西沢博志, ほか: 環境放射線センシング技術, 三菱電機技報, 87, No.6, 349~352 (2013)
- (3) Minato, S., et al.: Evaluation of Exposure due to Terrestrial Gamma-Radiation by Response Matrix Method, Journal of Nuclear Science and Technology, 7, No.8, 401~406 (1970)
- (4) Hirayama, H., et al.: The EGS5 code system, SLAC-R-730 and KEK Report 2005-8 (2005)
- (5) 文部科学省: 放射能測定シリーズ20「空間γ線スペクトル測定法」, 日本分析センター (1990)