JAEA-Testing 2023-005 DOI:10.11484/jaea-testing-2023-005



Srl₂(Eu)シンチレーション検出器のin-situガンマ線 スペクトロメトリへの適用性に関する検討

Study of the Applicability of Srl₂(Eu) Scintillation Detector to In-situ Gamma-ray Spectrometry

竹安 正則 三上 智 安藤 真樹 外間 智規

Masanori TAKEYASU, Satoshi MIKAMI, Masaki ANDOH and Tomonori HOKAMA

安全研究・防災支援部門 原子力緊急時支援・研修センター

Nuclear Emergency Assistance and Training Center Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness

P

March 2024

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。 本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。 本レポートの成果(データを含む)に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の 条件で利用してください。(<u>https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja</u>) なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト(<u>https://www.jaea.go.jp</u>) より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課 〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49 E-mail: ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency. This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en).

Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.

For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, Japan Atomic Energy Agency.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan

E-mail: ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2024

JAEA-Testing 2023-005

SrI₂(Eu) シンチレーション検出器の in-situ ガンマ線スペクトロメトリへの適用性 に関する検討

日本原子力研究開発機構 安全研究・防災支援部門 原子力緊急時支援・研修センター

竹安 正則、三上 智、安藤 真樹、外間 智規

(2023年12月8日受理)

In-situ ガンマ線スペクトロメトリを簡便に行うための検出器開発を目的とした研究の一環 として、取り扱いが容易な SrI₂(Eu)検出器を in-situ ガンマ線スペクトロメトリへ適用するこ とを試みた。本研究では、in-situ ガンマ線スペクトロメトリに必要な SrI₂(Eu)検出器の特性 評価を行った。また、SrI₂(Eu)検出器と Ge 検出器を用いた in-situ ガンマ線スペクトロメトリ の相互比較試験を行い、SrI₂(Eu)検出器の in-situ ガンマ線スペクトロメトリへの適用性につ いて検討を行った。

 $SrI_2(Eu)$ 検出器の特性評価として、入射ガンマ線のエネルギーの変化に対する $SrI_2(Eu)$ 検出器のピーク効率を測定した。また、 $SrI_2(Eu)$ 検出器のピーク効率の角度依存性を測定した。

SrI₂(Eu)検出器とGe検出器を用いたin-situガンマ線スペクトロメトリの相互比較試験の結 果、Ge検出器で定量されたCs-134、Cs-137、Pb-214、Bi-214、T1-208、Ac-228及びK-40のう ち、SrI₂(Eu)検出器では、放射能強度が比較的強いCs-137とK-40が定量された。SrI₂(Eu)検 出器での測定により得られたCs-137の地表面沈着量及びK-40の土壤中濃度は、Ge検出器での 測定により得られたそれらと比較的良い一致を示した。これらの結果より、放射能強度が強く、 かつガンマ線スペクトル上で他の核種のガンマ線ピークが妨害ピークとならない核種に対して、 SrI₂(Eu)検出器を用いたin-situガンマ線スペクトロメトリは有効であることが示された。

原子力発電所等の事故時には様々な放射性核種が環境中へ放出されるが、短半減期核種が減 衰し、長半減期核種のみが存在する事故後中長期における環境モニタリングにおいて SrI₂(Eu) 検出器により簡便に in-situ ガンマ線スペクトロメトリが可能である。

原子力緊急時支援・研修センター:〒311-1206 茨城県ひたちなか市西十三奉行 11601-13

Study of the Applicability of SrI₂(Eu) Scintillation Detector to In-situ Gamma-ray Spectrometry

Masanori TAKEYASU, Satoshi MIKAMI, Masaki ANDOH and Tomonori HOKAMA

Nuclear Emergency Assistance and Training Center Sector of Nuclear Safety Research and Emergency Preparedness Japan Atomic Energy Agency Hitachinaka-shi, Ibaraki-ken

(Received December 8, 2023)

As part of the research aimed at developing a detector to easily perform in-situ gamma-ray spectrometry, the applicability of a $SrI_2(Eu)$ scintillation detector to in-situ gamma-ray spectrometry was investigated. In this study, the characteristics of the $SrI_2(Eu)$ detector were evaluated for in-situ gamma-ray spectrometry. Intercomparison measurements of in-situ gamma-ray spectrometry using the $SrI_2(Eu)$ detector and Ge semiconductor detectors were conducted, and the applicability of the $SrI_2(Eu)$ detector was examined.

To characterize the $SrI_2(Eu)$ detector, the peak efficiency of the $SrI_2(Eu)$ detector was measured with respect to the change of incident gamma-ray energy. The angular dependence of the peak efficiency of the $SrI_2(Eu)$ detector was also measured.

As the result of the intercomparison measurement of in-situ gamma-ray spectrometry, the radionuclides quantified by Ge detectors were Cs-134, Cs-137, Pb-214, Bi-214, Tl-208, Ac-228 and K-40. On the other hand, those by $SrI_2(Eu)$ detector were only Cs-137 and K-40 which had relatively high radioactive intensity. The deposition density of Cs-137 and the concentration of K-40 in soil measured by the $SrI_2(Eu)$ detector showed relatively good agreements with those by Ge detectors. From these results, it was suggested that the in-situ measurement using a $SrI_2(Eu)$ detector was available for radionuclides which had high radioactive intensity and whose gamma-ray peaks were not interfered by those of other radionuclides in gamma-ray spectrum.

During an accident at nuclear power plant, various radionuclides are released into the environment, but radionuclides with short half-life decayed and radionuclides with long half-life only exist at mid-to-long term environmental monitoring situations, when in-situ gamma-ray spectrometry using a SrI₂(Eu) detector is applicable.

Keywords: SrI₂(Eu) Scintillation Detector, In-situ Gamma-ray Spectrometry, Cs-137, K-40

目 次

1.	は	まじめに	1
2.	測	定方法及び評価方法	2
2	. 1	SrI2(Eu)検出器	2
2	. 2	in-situ ガンマ線スペクトロメトリによる地表沈着放射性物質量の評価	3
2	. 3	SrI ₂ (Eu)検出器により測定された波高分布からの空間線量率の算出	5
2	. 4	SrI2(Eu)検出器と Ge 検出器を用いた in-situ 測定の相互比較試験	5
3.	結	吉果と考察	7
3	. 1	SrI2(Eu)検出器と Ge 検出器を用いた in-situ 測定の相互比較試験結果	7
3	. 2	緊急時モニタリングにおける SrI2(Eu)検出器の活用に係る検討	8
4.	ま	ミとめ	
謝話	莽		
参考	新文i	て献	
付銀		 SrI ₂ (Eu)検出器システムの操作手順	

Contents

1.	Int	troduction1
2.	Me	ethods for measurement and evaluation2
	2.1	$SrI_2(Eu)$ detector2
	2.2	Evaluation of ground deposition amounts of radionuclides by in-situ
		Gamma ray spectrometry3
	2.3	Evaluation of air dose rate from pulse height distribution measured by
		$SrI_2(Eu)$ detector5
	2.4	Intercomparison of in-situ measurement using $\mathrm{SrI}_2(\mathrm{Eu})$ detector and
		Ge detector5
3.	Re	sults and discussion7
	3.1	Results of intercomparison of in-situ measurement using a $\mathrm{SrI}_2(\mathrm{Eu})$ detector
		and Ge detector7
	3.2	Discussion on application of SrI ₂ (Eu) detector to emergency monitoring8
4.	Su	mmary10
Ac	knov	wledgments10
Re	fere	nces11
Ap	pen	dix Operation procedure of SrI ₂ (Eu) detector system13

1. はじめに

福島第一原子力発電所事故時には、環境中へ放射性物質が放出され、地表へ沈着した。事故後、 沈着した放射性物質の環境影響に対する効果的な対策を実施するための基礎情報を得ることを目 的として、表層土壌中の放射性物質の分布が測定されてきた¹⁾。

表層土壌中の放射性物質沈着量を測定する方法としては、①土壌を採取して実験室に持ち帰り、 土壌中に含まれる放射性物質を測定する方法、②地上に放射線測定器を設置し、土壌からの放射 線スペクトルを直接測定する方法(in-situガンマ線スペクトロメトリ)等がある。In-situガン マ線スペクトロメトリでは実際の地表面を対象として測定を行うため、土壌の採取時間及び土壌 を実験室に持ち帰る時間等を含めた測定のために要する時間が短い。また、風雨等の影響によっ て地表面に沈着した放射性物質が均質に分布していない場合に、土壌を採取して代表的な値を得 るのは困難であるが、in-situガンマ線スペクトロメトリでは測定地点周辺の平均的な測定結果を 得ることができる。放射性物質が環境中に放出され広い範囲に沈着し、その沈着の分布図を作成 する場合、特に有効な測定法である。これらの特徴及び利点により、in-situガンマ線スペクトロ メトリの重要性は高い。福島第一原子力発電所後においては、放射性物質の沈着の分布を把握す るために活用されてきた¹⁾。

近年、in-situガンマ線スペクトロメトリでは可搬型のゲルマニウム半導体検出器(以下、「Ge 検出器」という。)が広く使用されており、信頼できる結果が得られることが知られている²⁾。し かしながら、Ge検出器は、1)液体窒素等により使用中常時冷却が必要であること、2)液体窒素容 器を含めた検出器全体が大きく、測定機材一式が大掛かりであるなどの点で機動性が良くない。 また、Ge検出器は、冷却—昇温を繰り返すことによる不感層の厚さが増えるという機械的な経年 劣化のため、効率校正をやり直す必要がある。それゆえ、Ge検出器に代わるin-situガンマ線スペ クトロメトリ用検出器として様々な素材が検討され、特に高い原子番号を持ちエネルギー分解能 が良いシンチレーション式検出器(以下、「シンチレータ」という。)が開発されてきている³⁾。 シンチレータは、使用に際し冷却が不要で、かつUSB等での電圧印加のみで測定に使用できるなど、 取り扱いが容易である。

In-situガンマ線スペクトロメトリでは、エネルギー分解能及び自己放射能汚染の有無などが検 出器を選ぶ際に考慮される。臭化セリウムシンチレータ(以下、「CeBr₃シンチレータ」という。) は比較的エネルギー分解能が良く、自己放射能汚染が少ないため、携帯型のガンマ線スペクトロ メータの検出器に採用されている⁴⁾。また、近年、ユーロピウム活性化ヨウ化ストロンチウムシン チレータ(以下、「SrI₂(Eu)シンチレータ」という。)が、エネルギー分解能が比較的良く、自 己放射能汚染がないといった良い性能を持つことが知られるようになった⁵⁾。

筆者らは、in-situ ガンマ線スペクトロメトリを簡便に行うための検出器開発を目的とした研 究の一環として、機動性に富むとともにエネルギー分解能が比較的良く自己放射能汚染がない SrI₂(Eu)シンチレーション検出器(以下、「SrI₂(Eu)検出器」という。)を、in-situ ガンマ線ス ペクトロメトリに適用することを試みた。本研究では、in-situ ガンマ線スペクトロメトリに必 要な SrI₂(Eu)検出器の検出効率のガンマ線エネルギー依存性などの特性評価を行った。また、 SrI₂(Eu)検出器と Ge 検出器を用いた in-situ ガンマ線スペクトロメトリの相互比較試験を行い、 特に長半減期核種のみに人工放射性核種が限定される原子力発電所等事故後の中長期の環境モニ タリングにおいて SrI₂(Eu)検出器の in-situ ガンマ線スペクトロメトリの適用性について検討を 行った。

本報告書では、これらの検討結果について報告する。

2. 測定方法及び評価方法

2.1 Srl₂(Eu)検出器

代表的なシンチレータのエネルギー分解能と自己放射能汚染の有無をTable 1に示す。

タリウム活性化ヨウ化ナトリウムシンチレータ(以下、「NaI(T1)シンチレータ」という。) 及びタリウム活性化ヨウ化セシウムシンチレータ(以下、「CsI(T1)シンチレータ」という。) のエネルギー分解能は、セシウム-137(以下、「Cs-137」という。)の662keVのガンマ線に対 し8%程度と悪い。セリウム活性化ランタンブロマイドシンチレータ(以下、「LaBr₃(Ce)シンチ レータ」という。)、CeBr₃シンチレータ及びSrI₂(Eu)シンチレータのエネルギー分解能はそれ ぞれ3.3%、4%及び4%以下と比較的良い。自己放射能汚染は、NaI(T1)シンチレータ、CsI(T1)シ ンチレータ、CeBr₃シンチレータ及びSrI₂(Eu)シンチレータはなく、検出器自体の放射能のバッ クグランドが低い。一方、LaBr₃(Ce)シンチレータは自己放射能汚染があり、検出器自体のバッ クグランドが高い。SrI₂(Eu)検出器はエネルギー分解能が比較的良く自己放射能汚染もないこ とが分かる。

本研究では、in-situ ガンマ線スペクトロメトリ用検出器として RMD 社製1インチ $\phi \times 1$ インチLの SrI₂(Eu)シンチレータ⁹⁾を使用した。本 SrI₂(Eu)シンチレータは光電子増倍管ととも にアルミ製筐体に組み込まれており、高圧電源供給器と前置増幅器及び増幅器を組み込んだ GBS Elektronik GmbH 社製マルチチャンネルアナライザ(モデル名: Base 527)¹⁰⁾と接続し、 PC からの USB 給電により駆動するように設計されている。PC で検出器を制御するソフトウェ アとしてアドフューテック社製のソフトウェア(Prime Spectrum User Interface)¹¹⁾を使用し た。測定器システムの外観を Fig.1 に示す。

種類	エネルギ分解能	自己放射能污染
NaI(Tl)	7~10% ⁶⁾	なし ⁷⁾
CsI(Tl)	8 % ⁸⁾	なし
LaBr ₃ (Ce)	3.3 % ⁷⁾	あり ⁷⁾
CeBr ₃	4% ⁴⁾	なし ⁴⁾
SrI ₂ (Eu)	< 4% ⁹⁾	なし 9)

Table 1 代表的なシンチレータの特性



Fig.1 測定器システムの外観

2.2 in-situ ガンマ線スペクトロメトリによる地表沈着放射性物質量の評価

本研究では、in-situガンマ線スペクトロメトリにより土壌の単位面積当たりの放射能 A_a [Bq cm⁻²]を評価する。放射能 A_a は、以下の式により算出する¹²⁾。

$$A_a = N_f / (N_f / A_a)$$

(1)

(2)

ここで、

 N_{f} : in-situガンマ線スペクトロメトリにおけるエネルギーEのガンマ線に対するピーク計 数率 [s⁻¹]

- N_{t}/A_{a} : in-situガンマ線スペクトロメトリにおける効率
- また、N_f/A_aは、以下の式によって算出する¹²⁾。

 $N_f/A_a = N_0/\phi N_f/N_0 \phi/A_a$

ここで、

- N/ϕ :検出器軸方向(0°)でのフルエンス率[cm⁻²s⁻¹]当たりのピーク計数率[s⁻¹]
- N。:検出器軸方向(0°)から入射するエネルギーEのガンマ線に対するピーク計数率[s⁻¹]
- N_t/N₀: 検出器の効率の方向依存性を補正するための項
- ϕ/Aa: 土壌の単位面積当たりの放射能に対する検出器位置でのガンマ線フルエンス率

以下に、本研究で用いたSrI2(Eu)検出器における式(2)の各項について検討する。

(1) N_0/ϕ

入射ガンマ線のエネルギー*E*[keV]の変化に対する、*N*/φ[s⁻¹(cm⁻²s⁻¹)⁻¹]を測定した。その結 果をFig. 2に示す。測定では、原子力規制委員会が定めた下限数量未満の放射能を有するコバ ルト-60(以下、「Co-60」という。)、バリウム-133(以下、「Ba-133」という。)及びCs-137 のチェッキング線源を使用した。

Fig. 2 より、Cs-137 の 662 keV のガンマ線に対するピーク効率は 1. 42×10⁻⁴ [s⁻¹(cm⁻²s⁻¹)⁻¹] であった。このピーク効率は、一般的に使用されている in-situ 用の Ge 検出器と比較してお よそ 10 倍程度であった。

(2) N_f/N_0

検出器の効率の方向依存性を補正するための項である*N_f*/*N*₀は、環境中において真横や斜め横 方向から検出器へ入射してくるガンマ線のピーク効率が大きく変化していないか、変化する場 合はどの程度変化するかを把握するために評価される。*N_f*/*N*₀は、ガンマ線のエネルギーの他、 特に検出器の有感領域の形状及びサイズにより変化し、直径と長さが等しい円筒形の検出器は、 その効果が小さいとされている¹³⁾。本研究で使用したSrI₂(Eu)検出器の有感領域の形状は、1 インチφ×1インチLの円筒形である。

本研究では、チェッキング線源を使用した測定により入射ガンマ線エネルギー毎の*N_t/ M*を評価した。得られた結果をFig. 3に示す。なお、鉛直方向を0°、水平方向を90°と定義し、0°で得られたピーク効率に対する割合で規格化した。0°から90°で*N_t/ M*の値の変化は概ね±20%の範囲内であり、文献¹⁴と同程度であった。極端な角度依存は見られなかった。

 $\bigcirc \phi / A_a$

 ϕ/A_a は、土壌中放射能濃度(A_a)と検出器位置(1mの高さ)のガンマ線フルエンス率 ϕ の関係を示す。 ϕ/A_a は、線源分布によって異なった値となり、地表面に沈着して次第に地中へ浸透する人工放射性核種と、地中に一様に分布している天然放射性核種とでは、評価の仕方が異なってくる。人工放射性核種に対する評価については、代表的な核種について、放射性物質の土壌中における鉛直分布の程度を表す重量緩衝深度(β)毎に ϕ/A_a の値が文献^{12,13)}に示されている。

天然放射性核種に対する評価では、放射性核種が土壌中に均質に分布していると仮定して評価を行う。放射能濃度は、単位重量当たりの放射能*A*_aとなり、単位はBq/gである。天然放射性核種に対する ϕ/A_{a} の値は、文献¹²⁾に示されている。



Fig.2 入射ガンマ線エネルギーの変化に対するフルエンス率当たりの計数率(N/ ()の変化



Fig.3 入射ガンマ線の方向の変化に対するピーク効率の変化

2.3 Srl₂(Eu)検出器により測定された波高分布からの空間線量率の算出

SrI₂(Eu)検出器を用いた環境中での測定により得られた波高分布を、波高分布全体に演算子を適応するG(E)関数法と呼ばれる手法¹⁵⁾を用い、その場の空間線量率を推定した。

G(E)関数は、アドフューテック社製ソフトウェア(Prime Spectrum User Interface)¹¹⁾に付属した関数を使用した。

2.4 Srl₂(Eu)検出器と Ge 検出器を用いた in-situ 測定の相互比較試験

SrI₂(Eu)検出器とGe検出器を用いたin-situガンマ線スペクトロメトリの相互比較試験を、 2023年8月3日に実施した。測定地点としては、福島第一原子力発電所事故により地表面へ放射 性セシウム等が沈着した地点で、周囲が開けた平坦な裸地を選択した。空間線量率は、0.2 µ Sv h⁻¹程度の地点であった。SrI₂(Eu)検出器及びGe検出器を鉛直下向きに地面へ向け、検出器 を鉛直になるように支持した。地面と検出器中心の間の距離は1mとなるようにした。SrI₂(Eu) 検出器とGe検出器を隣接して設置し(設置間隔:約4m)、in-situガンマ線スペクトロメトリ を実施した。測定時間は30分とした。なお、SrI₂(Eu)検出器とGe検出器のそれぞれの設置場所 において、NaI(T1)シンチレーションサーベイメータを用いて1m高の線量当量率を測定した。 NaI(T1)シンチレーションサーベイメータでは、時定数10秒で、30秒間隔で5回指示値を読み取 り、その平均を測定値とした。その結果、測定された空間線量率はそれぞれ0.19±0.007 μ Sv h⁻¹ 及び0.19±0.005 μ Sv h⁻¹と同程度であり、2つの検出器による測定場所の線量率分布が概ね均 ーであることを確認した。Fig.4に、相互比較試験の様子を示す。

SrI₂(Eu)検出器での測定により求められた地表面での放射性物質濃度とGe検出器での測定により求められた濃度を比較した。



Fig. 4 SrI₂(Eu)検出器と Ge 検出器の相互比較試験 (左側が SrI₂(Eu)検出器、右側が Ge 検出器)

3. 結果と考察

3.1 Srl₂(Eu)検出器と Ge 検出器を用いた in-situ 測定の相互比較試験結果

Fig.5 に、in-situ 相互比較試験時に SrI₂(Eu)検出器により測定されたガンマ線エネルギー スペクトルを示す。Fig.5より、SrI₂(Eu)検出器により定量された放射性核種は Cs-137 とカリ ウム-40 (以下、「K-40」という。)であった。これらの放射性核種は、後述するように放射能 強度が比較的強い核種であった。一方、Ge 検出器により定量された放射性核種は、放射能の強 度順に Cs-137、K-40、Cs-134、タリウム-208 (以下、「T1-208」という。)、アクチニウム-228 (以下、「Ac-228」という。)、鉛-241 (以下、「Pb-214」という。)、ビスマス-214 (以下、「Bi-214」 という。)であった。この原因としては、①SrI₂(Eu)検出器は Ge 検出器と比較してエネルギー 分解能が悪く定量下限値が高いこと、②定量下限値と比較して Cs-137 と K-40 の放射能強度が 強かった一方、その他の核種は放射能強度が弱かったこと、③Cs-137 と K-40 のガンマ線ピー クの近傍に他の核種によるガンマ線ピークがなかったことが考えられる。

Table 2 に、SrI₂(Eu)検出器を用いた in-situ 測定で得られた放射性セシウムの地表面への 沈着量と自然放射性核種の土壌中濃度を示す。推定された Cs-137 の地表面沈着量は 2. 67×10⁴ Bq m⁻²、K-40 の土壌中濃度は 1.0 Bq g⁻¹であった。Table 2 には、G (E) 関数法により波高分 布から推定された空間線量率も示した。また、測定点の線量当量率について、環境モニタリン グで広く使用されている日立アロカメディカル社製 NaI (T1)シンチレーション式サーベイメー タにより測定された結果を記載した。SrI₂(Eu)検出器を用いG (E) 関数法により推定された空 間線量率は、0. 20±0. 005 μ Sv h⁻¹、NaI (T1)シンチレーションサーベイメータにより測定され た線量当量率は、0. 19±0. 007 μ Sv h⁻¹ であった。SrI₂(Eu)検出器により推定された空間線量率 は、NaI (T1)シンチレーションサーベイメータにより測定され

In-situ 測定の相互比較試験において、Ge 検出器を用いた測定で得られた放射性セシウムの 地表面への沈着量と自然放射性核種の土壤中濃度をTable 3 に示す。Ge 検出器を用いた測定は、 7 つの Ge 検出器を用いて計 7 回実施した。Table 3 より、Cs-137 の地表面沈着量の平均は 2.33 ×10⁴ Bq m⁻²、標準偏差は 4.12×10³ Bq m⁻²、最小値は 1.93×10⁴ Bq m⁻²、最大値は 2.97×10⁴ Bq m⁻²であった。K-40 土壤中濃度の平均は 8.8×10⁻¹ Bq g⁻¹、標準偏差は 6.07×10⁻² Bq g⁻¹、最小 値は 7.97×10⁻¹ Bq g⁻¹、最大値は 9.51×10⁻¹ Bq g⁻¹であった。これらの結果より、SrI₂(Eu)検 出器での in-situ 測定により得られた Cs-137 の地表面沈着量は、Ge 検出器での測定により得 られたそれとよく一致した。K-40 の土壤中濃度についても、SrI₂(Eu)検出器での測定結果は Ge 検出器を用いた測定結果と比較的良い一致を示した。以上より、SrI₂(Eu)検出器を用いた in-situ 測定による放射性セシウムの地表面への沈着量及び自然放射性核種の土壤中濃度の測 定妥当性が示唆される。



Fig.5 SrI₂(Eu)検出器により測定されたガンマ線エネルギースペクトル.

Surface deposition density of Cs-137 on soil	Concentration of K-40 in soil	Air dose rate by the G(E) function method	Air dose rate by the conventional Nal(TI) scintillation survey meter
[Bq m ⁻²]	[Bq g ⁻¹]	$\left[\muSvh^{\text{-}1} ight]$	[<i>μ</i> Sv h ⁻¹]
2.67×10^{4}	1.00×10^{0}	0.200 ± 0.005	0.190 ± 0.007

Table 2 Results of intercomparison using a $SrI_2(Eu)$ detector.

Table 3 Results of intercomparison using Ge detectors.

Radionuclide	Mean	Std. Devi.	Coeff. Vari.	Number <i>n</i>	Min.	Max.
	[Bq m ⁻²] or [Bq g ⁻¹]	[Bq m ⁻²] or [Bq g ⁻¹]	%		[Bq m ⁻²] or [Bq g ⁻¹]	[Bq m ⁻²] or [Bq g ⁻¹]
Cs-137	2.33×10^{4}	4.12×10^{3}	17.7	7	1.93×10^{4}	2.97×10^{4}
K-40	8.80×10 ⁻¹	6.07×10 ⁻²	6.90	7	7.97×10 ⁻¹	9.51×10 ⁻¹

3.2 緊急時モニタリングにおける Srl₂(Eu)検出器の活用に係る検討

前述のとおり、SrI₂(Eu)検出器は、使用に際し冷却が不要で、かつ USB 等での電圧印加のみ で測定に使用できるなど、Ge 検出器と比較して取り扱いが容易である。一方、SrI₂(Eu)検出器 と Ge 検出器を用いた in-situ ガンマ線スペクトロメトリの相互比較試験の結果、Ge 検出器で 定量された Cs-137、K-40、Cs-134、T1-208、Ac-228、Pb-214、Bi-214 のうち、SrI₂(Eu)検出器 で定量された放射性核種は、放射能強度が比較的強い Cs-137 と K-40 のみであった。

原子力発電所等の事故の直後では、様々な核種から放出されたガンマ線がガンマ線スペクト

ル測定結果に現れる。一例として、福島第一原子力発電所事故発生直後にモニタリングポスト に設置された NaI(T1)シンチレーション検出器で観測されたガンマ線スペクトル¹⁶⁾を Fig. 6 に 示す。Fig. 6 より、キセノン-133(図中、「Xe-133」)、テルル-132(同、「Te-132」)、ヨ ウ素-131(同、「I-131」)、ヨウ素-132(同、「I-132」)、ヨウ素-133(同、「I-133」)な どの短寿命放射性核種のガンマ線ピークが観測されている。特にヨウ素-132(半減期:2.295 時間)のガンマ線は 668 keV と 773 keV のエネルギーを持ち、662 keV の Cs-137 のガンマ線ピ ークと 796 keV の Cs-134 のガンマ線ピークと干渉し合う。このように、様々な核種のガンマ線 ピークが干渉し合う事故後初期には、SrI2(Eu)検出器では様々な核種のガンマ線ピークを弁 別し定量できないため in-situ 測定への適用は困難であると考えられる。一方、事故後中長期 では、短半減期核種が減衰し数種の長半減期核種のみに限定され核種を弁別し定量することが 可能となるため、in-situ 測定への適用が可能となると考えられる。Ge 検出器と比較して SrI2 (Eu)検出器により簡便に in-situ 測定が可能である。



Fig.6 福島第一原子力発電所事故発生直後のガンマ線スペクトルの例

4. まとめ

福島第一原子力発電所事故後、広域の表層土壌へ沈着した放射性物質を直接的に測定する方法 として in-situ ガンマ線スペクトロメトリの重要性が高まっている。in-situ ガンマ線スペクト ロメトリを簡便に行うための検出器開発を目的とした研究の一環として、エネルギー分解能が比 較的良く自己放射能汚染もない SrI₂(Eu)検出器を in-situ ガンマ線スペクトロメトリへ適用する ことを試みた。本研究では、in-situ ガンマ線スペクトロメトリに必要な SrI₂(Eu)検出器の特性 評価を行った。また、SrI₂(Eu)検出器と Ge 検出器を用いた in-situ ガンマ線スペクトロメトリの 相互比較試験を行い、SrI₂(Eu)検出器の in-situ ガンマ線スペクトロメトリへの適用性について 検討を行った。

SrI₂(Eu)検出器の特性評価として、入射ガンマ線のエネルギーの変化に対する SrI₂(Eu)検出器 のピーク効率(N_{0}/ϕ)を測定した。また、SrI₂(Eu)検出器のピーク効率の角度依存性(N_{f}/N_{0})を測定 した。ピーク効率の角度依存性(N_{f}/N_{0})は、0°(鉛直方向)から 90°(水平方向)の間での変化 は概ね±20%の範囲内であり、極端な角度依存はなかった。

SrI₂(Eu)検出器とGe検出器を用いた in-situ ガンマ線スペクトロメトリの相互比較試験の結果、Ge検出器で定量された Cs-137、K-40、Cs-134、T1-208、Ac-228、Pb-214、Bi-214 のうち、SrI₂(Eu) 検出器で定量された放射性核種は、放射能強度が比較的強い Cs-137 と K-40 であった。SrI₂(Eu) 検出器での測定により得られた Cs-137 の地表面沈着量は、Ge 検出器での測定により得られたそ れと良く一致した。また、SrI₂(Eu)検出器での測定により得られた K-40 の土壌中濃度は、Ge 検出 器を用いた測定により得られたそれと比較的よい一致を示した。これらの結果より、放射能強度 が比較的強く、かつガンマ線スペクトル上で他の核種のガンマ線ピークが妨害ピークとならない 核種に対して SrI₂(Eu)検出器を用いた in-situ ガンマ線スペクトロメトリは取り扱いが容易かつ 有効であることが示された。

謝辞

In-situ ガンマ線スペクトロメトリの相互比較試験では、福島研究開発部門廃炉環境国際共同 研究センター環境影響研究ディビジョンの中間茂雄氏と越智康太郎氏に協力いただきました。感 謝の意を表します。

参考文献

- 三上 智,斎藤 公明,平成26年度放射性物質測定調査委託費(東京電力株式会社福島第一 原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約及び移行モデルの開発)事業成果報 告書 放射性セシウム沈着量の面的調査, https://radioactivity.nra.go.jp/ja/contents/11000/10921/32/1-5_H26insitu.pdf,(参 照:令和5年11月6日).
- Mikami, S., Sato, S., Hoshide, Y., Sakamoto, R., Okuda, N. and Saito, K., In situ gamma spectrometry intercomparison in Fukushima, Japan, Jpn. J. Health Phys., vol. 50(3), 2015, pp. 182-188.
- Ji, Y.Y., Lim, T. and Lee, W., In situ gamma-ray spectrometry using an LaBr₃(Ce) scintillation detector, Radiation Protection and Research, vol. 43(3), 2018, pp. 85-96.
- 4) EMF ジャパン株式会社, EMF211型ガンマ線スペクトロメータ<CeBr3 検出器>, https://www.emf-japan.com/emf/emf211_airdose-cebr.html, (参照:令和5年11月2日).
- Takabe, M., Kishimoto, A., Kataoka, J., Sakuragi, S. and Yamasaki, Y., Performance evaluation of newly developed SrI₂(Eu) scintillator, Nucl. Instrum. Methods A, Vol. 831, 2016, pp. 260-264.
- 6) 文部科学省, NaI(T1)シンチレーションスペクトロメータ機器分析法, 放射能測定法シリーズ No. 6, 昭和 49 年.
- 7) 鈴木 敏和, 4. シンチレータにおける近年の動向について, 第6回 JRSM シンポジウム, 日本放射線安全管理学会誌, Vol.8(2), 2009, pp. 120-122.
- 8) 津田 修一,堤 正博,種々の大きさのCsI(T1)シンチレーション検出器のγ線に対するスペクトルー線量変換演算子(G(E)関数)の計算と評価, Jpn. J. Health Phys., vol. 47(4), 2012, pp. 260-265.
- 9)株式会社アドフューテック、SrI₂:Eu ヨウ化ストロンチウムシンチレータ、 https://www.adfutec.com/pdf/Catalog_130701_SrI2SpM.pdf, (参照:令和5年6月5日).
- 10) GBS Elektronik GmbH, Multi Channel Analyzer, Base527series, https://www.gbs-elektronik.de/en/nuclear-measurements/multi-channel-analyzer.php, (参照:令和5年8月9日).
- 11)株式会社アドフューテック, Prime Spectrum User Interface, https://www.adfutec.com/pdf/AFT_Prime_Catalog_Ver2.1.pdf, (参照:令和5年8月9日).
- 12) 原子力規制庁監視情報課, ゲルマニウム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 No. 33, 平成 29 年 3 月改訂.
- 13) International Commission on Radiation Units and Measurements, Gamma-ray spectrometry in the environment, ICRU Report 53, Vol. 27(2), 1994.
- 14) Helfer, I. K. and Miller, K. M., Calibration Factors For Ge Detectors Used For Field Spectrometry, Health Phys., vol. 55(1), 1988, pp. 15-29.
- 15) Moriuchi, S. and Miyanaga, I., A Method of Pulse Height Weighting Using the Discrimination Bias Modulation, Health Phys., vol. 12(10), 1966, pp. 1481-1487.

- 16) 水谷 朋子,小沼 利光,森澤 正人,渡辺 一,菅井 将光,中田 陽,住谷 秀一,東 海再処理施設周辺の空間線量率監視における福島第一原子力発電所事故の影響について,日 本保健物理学会第44回研究発表会要旨集,2011.
- 17) 星出 好史, 私信.

付録 Srl₂(Eu)検出器システムの操作手順¹⁷⁾

第 2.1 節に記載した SrI₂(Eu)検出器システムを使用して in-situ 測定するためのシステムの操 作手順を以下に示す。

- 1. 基本操作
- 1.1. システムの起動
 - ① PCと検出器(MCA)をUSBケーブルで接続する。
 - 「Prime Spectrum User Interface」ショートカットアイコンをダブルクリックすること によりソフトウェアを起動する。
 - ③ 「接続」をクリックすることにより検出器(MCA)をソフトウェアに接続する。
- 1.2. 測定条件の設定
 - 「プリセット」をクリックし「プリセット設定」ウィンドウを開き、測定時間(例えば 3,600秒)をライブタイムで設定する。
 - 「セットアップ」-「HV 設定」をクリックし「HV 設定」ウィンドウを開き、設定電圧値 を 650V へ変更し、HV を印加する。
 - ③ 「セットアップ」―「ADC 設定」をクリックし ADC の設定を行う。「conversion gain」 「1024」,「LLD」 – 「0」,「ULD」 – 「1023」,「Energy Threshold」 – 「0.5」,「ADC Input」 – 「shaping」とする。
 - ④ 「セットアップ」―「AMP 設定」をクリックし AMP の設定を行う。「Polarity」-「Pos」, 「Pile Up Reject」-「On」,「Coarse Gain」-「5」,「Trigger Filter」-「4*+1, 4*0, 4*-2, 4*0, 4・・」,「Fine Gain」-「2.05」¹⁾,「Flat Top」-「9.5」,「Shaping Time」¹⁾ -「2」,「Pole/Zero」-「1903」とする。 自然放射性核種等を測定することにより、測定開始毎に 1024 チャンネルで 3 MeV が測定 できるように微調整する。
- 1.3. 測定の開始と測定結果の保存
 - ① 「スタート」をクリックし、測定を開始する。(「ストップ」で測定を中止する。)
 - ② 「ファイル」-「スペクトルを名前を付けて保存」をクリックし、スペクトルをファイル(*. cnt)として保存する。
 - ③ 「クリア」をクリックし、スペクトルを消去する。
- 1.4. 測定の終了
 - 「セットアップ」-「HV 設定」をクリックし「HV 設定」ウィンドウを開き、「HV OFF」、
 「閉じる」をクリックし、印加電圧をオフにする。
 - ② 「切断」をクリックし、ソフトウェアから検出器(MCA)を切断する。
 - ③ 「ファイル」-「アプリケーションの終了」をクリックし、ソフトウェアを終了する。
 - ④ PCと検出器(MCA)を繋いだUSBケーブルをはずす。

- 2. エネルギー校正の手順
 - 2.1. エネルギー校正用スペクトルの測定
 - エネルギー校正のために使用するスペクトルを、通常の測定と同様の手順で測定する。
 1核種につき1つのスペクトルとなるように測定する。
 - 2.2. エネルギー校正で使用する核種の登録(核データファイルの作成) 核データ編集プログラムを用いて、エネルギー校正で使用する核種を登録する。なお、 エネルギー校正で使用する核種としては、測定すべきエネルギーレンジをカバーするようなガンマ線を放出する核種を選択する。
 - 「核データ編集」ショートカットアイコンをクリックし、核データ編集のメインウィンドウを表示する。
 - ② 以下の手順で、エネルギー校正に使用する核種を登録する。効率校正用にチェックを入れた後、「新しい核種」をクリックし「新しい核種」ウィンドウを表示する。
 - ③ 核種の名前、半減期の値及び単位、校正値[Bq]、校正日(年/月/日 時:分:秒)を入 力する。(校正値[Bq]、校正日(年/月/日 時:分:秒)は、効率校正用にチェックを入 れた後の場合のみ入力可能である。)
 - ④ 以下の手順で、ガンマ線ピークを登録する。「新しいピーク」をクリックし「新しいピー ク」ウィンドウを表示する。
 - ⑤ ガンマ線のエネルギー(keV)、ガンマ線の放出率(%)、ガンマ線の核種内での優先順位を 入力する。
 - ⑥ 以下の手順により核データファイルを保存し、核データ編集プログラムを終了する。「フ ァイル」―「名前を付けて保存」をクリックし、核データファイル(*. nus)を保存する。
 - ⑦ 「ファイル」―「終了」をクリックすることにより、核データ編集プログラムを終了する。
 - 2.3. エネルギー校正ファイルの作成
 - 「Prime Spectrum User Interface」ショートカットアイコンをダブルクリックすること によりソフトウェアを起動する。
 - ② 「G(E) 関数法」―「エネルギー校正」-「スペクトルからエネルギー校正」をクリック し、エネルギー校正のウィンドウを表示する。
 - ③ 2.2 で作成した核データファイル(*. nus)を指定する。
 - ④ 2.1 で測定した校正スペクトルファイル(*. cnt)(複数)を同時に開く。
 - ⑤ 以下の手順で、校正スペクトルファイルと核種の対応付けを行う。校正スペクトルファ イルを選択した状態で、対応すべき核種をプルダウンから選び、「核種登録」をクリック する。
 - (ピーク)サーチ感度を「4.0」、エネルギー校正次数を「1」、ch ゲイン(keV/ch)を「2.00」、
 半値幅校正次数を「1」、核種同定幅を「1」と指定する。
 - ⑦ 「校正」をクリックし実行する。
 - ⑧ メニュー「ファイル」―「名前を付けて保存」により、エネルギー校正ファイルを保存 する。

- 3. 効率校正及び角度依存校正の手順
 - 3.1. 効率校正用スペクトルの測定
 - ① 効率校正のために使用するスペクトルを、検出器まで距離 1m で測定する。
- 3.2. 校正で使用する核種の登録(核データファイルの作成) 核データ編集プログラムを用いて、校正で使用する核種を1つのファイルに登録する。
 - 「核データ編集」のショートカットアイコンをクリックすると、メインウィンドウが表示される。
 - ② 以下の手順で、測定する核種を登録する。
 - ③ 効率校正用をチェックする。
 - ④ ツールバー「新しい核種」をクリックすると、新しい核種のウィンドウが表示される。
 - ⑤ 核種名、半減期の値及び単位、校正値[Bq]、校正日(年/月/日 時:分:秒)を入力す る。
 - ⑥ 以下の手順で、新しいピークを登録する。
 - ⑦ ツールバー「新しいピーク」をクリックすると、新しいピークのウィンドウが表示される。ガンマ線のエネルギー(keV)、ガンマ線の放出率(%)、ガンマ線の核種内での優先順位を入力する。
 - ⑧ 核データファイルの保存と核データ編集プログラムを終了する。
 - ⑨ メインウィンドウの「ファイル」―「名前を付けて保存」により、核データファイルを 保存する。
 - ・ メインウィンドウの「ファイル」―「終了」により、核データ編集プログラムを終了する。
- 3.3. 効率校正
 - ① 「In-situ」-「In-situ校正」-「効率校正」をクリックする。
 - ② 校正で使用する核データファイル(*. nus)を指定する。
 - ③ 校正で使用するエネルギー校正ファイル(*. ecl)を指定する。
 - ④ 校正で使用するスペクトルファイル(*. cnt)を指定する。
 - ⑤ サーチ感度を「3.0」、効率校正次数を「2」と指定する。
 - ⑥ 「校正」をクリックして実行する。
 - ⑦ メニュー「ファイル」―「名前を付けて保存」により、校正ファイルを保存する。
- 3.4. 角度効率データ結合
 - ① 「In-situ」-「In-situ校正」—「角度効率データ結合」をクリックする。
 - ② 「参照」をクリックすることにより、角度効率ファイルを複数選択する。
 - ③ 各角度効率ファイルについて角度を入力する。
 - ④ 「結合」をクリックすることにより、実行する。
 - ⑤ 「ファイル」-「結合ファイルを名前を付けて保存」により、角度効率ファイル(*.fcls) を保存する。

- 4. G(E) 関数を用いた空間線量率の計算手順
 - 4.1. 計算対象とするガンマ線スペクトルの表示
 - ① 空間線量率を計算するガンマ線スペクトルを表示する。
 - 4.2. 計算条件の設定と計算
 - メニュー「G(E) 関数法」—「G(E) 関数法分析条件」により、計算条件設定ウィンドウを 表示する。
 - ② G(E)関数として、デフォルトのファイルを選択する。
 C:¥Adfutec¥PrimeData¥SamplesDose¥SrI2_G(E) Adfutec.XML
 - ③ 検出器として SrI₂(Eu) 1 inch ϕ ×1inch を選択する。
 - ④ エネルギー校正:使用するエネルギー校正ファイルを選択する。
 - ⑤ 線量率単位: μ Sv/h を選択する。
 - ⑥ 系統的な不確実さ加味にチェック、2.0%とする。
 - ⑦ 簡易核種定性にチェックを入れる。
 - ⑧ 核データを登録する。
 C:¥Adfutec¥PrimeData¥SamplesInSitu¥ICRU53(SrI2 用-3Me).NUS
 - ⑨ 再エネルギー校正と線量率計算へのフィードバックにチェックを入れる。
 - ⑩ 「登録」―「はい」により、計算条件設定を終了するとともに、計算を開始する。
 - ⑪ 正常に終了すると、結果が画面下段に表示される。
 - 迎 メニュー「G(E)関数法」―「G(E)関数法分析結果の印刷」により結果を出力する。
- 5. In-situ スペクトル分析手順
 - 5.1. 分析対象とするガンマ線スペクトルの表示
 - ① In-situ 分析対象とするガンマ線スペクトルを表示する。
 - 5.2. 分析条件の設定
 - メニュー「In-situ」―「In-situ 分析開始」により、分析条件設定ウィンドウを表示する。
 - ② 分析対象のスペクトルファイルを選択する。
 - ③ 「測定情報」タブ上で、必要に応じて、「測定場所」「測定者」「コメント」を入力する。
 - ④ 「スペクトル処理条件」タブ上で、使用するエネルギー校正ファイルを選択する。
 - ⑤ 核データファイルは、デフォルトの以下のファイルを使用する。

C:\Adfutec\PrimeData\SamplesInSitu\ICRU53(SrI2 用—3MeV).nus

- ⑥ 短半減期核種除去:20日未満、微弱ガンマ線除去:5.0%未満、低エネルギーガンマ線除去:100keV 未満、消滅ガンマ線近傍除去:5.0keV 以内及び 20.0%未満をチェックする。
- ⑦ サーチ感度:2.75%、再エネルギー校正にチェック、核種同定幅:0.8,核種同定時に親 娘関係チェックをチェックする。
- ⑧ 「線量率計算処理条件」タブで、角度効率ファイルを選択する。

デフォルトで、C:¥Adfutec¥PrimeData¥SamplesInsitu¥Angle(1.0inchx1.0inch).fcls

- ⑨ 「角度依存を考慮する」にチェックを入れる。
- ⑩ 鉛直分布パラメータβ[g/cm²]の値を入力する。
- 線量率の出力単位を「µSv/h」にする。
- 迎 Cs-137 と Ba-137m の放射能比は「核データ登録の放出率で自動計算」を選択する。
- 13 線量率計算対象ガンマ線で「ネット面積>検出限界」か「ネット面積>3σ」を選択する。
- 5.3. 分析実行と分析結果出力
 - ① 「実行」で分析が実行される。正常に終了すると、分析結果が表示される。
 - ② メニュー「In-situ」―「In-situ 分析結果の印刷」により結果を出力する。

This is a blank page.