

ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー

セイコー・イージーアンドジー株式会社 板津 英輔
Hidesuke Itadzu

緒言

東日本大震災に伴って発生した福島第一原子力発電所事故により放射性核種の大量放出が引き起こされた。これにより日本国内では食品を含む、環境中の放射性核種に対する関心が非常に高まり、さらに2012年の4月からは食品中の放射性物質の新たな規制値が厚生労働省から発せられた。

この新たな規制値をふまえ、放射性核種、特に放射性セシウムに着目して放射能濃度の定量をしようとする事業者では食品等の試料中における微量の放射性核種の定量を目指しており、その要求は放射能濃度で10Bq/kgを大きく下回る場合もある。

γ 線スペクトロメトリーによりこの要求を現実的な時間内に満たすためには検出器にもよるが、全エネルギーにおける総計数で2~3cps程度以下のバックグラウンド及び半値幅で2keV前後の分解能が必要となり、要求を満足するためには高純度ゲルマニウム半導体(HPGe)検出器を用いた検出系の採用がもっとも適している。ここではHPGe検出器について、機器及び分析手法について紹介する。

1. 機器構成

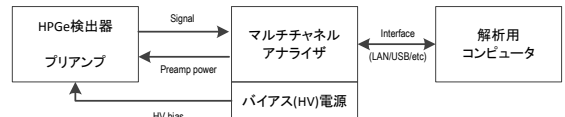
HPGe検出器を用いた検出系は、HPGe検出器、液体窒素デュワ等の冷却系、遮蔽体、マルチチャンネルアナライザ及び解析用コンピュータ等で構成される(第1図)。代表的なレイアウトを写真1に示す。

1.1. HPGe 検出器

HPGe検出器は特殊な用途のものを除き、 γ 線エネルギー感度が50keV程度から10MeV程度までを有するP型で形状が同軸状の半導体結晶を持つものが多用されている。

検出器の性能¹を表す指標として相対効率、エネルギー分解能(⁶⁰Co 1332keVにおける分解能、keV単位で表される半値幅)、ピーク/コンプトン比(P/C)等が用いられている。一般的には相対効率が大きく、エネルギー分解能が小さく、かつP/Cが大きいもの

が高性能とされている。



第1図 ブロックダイアグラム(処理系)



写真1 代表的機器レイアウト

1.2. 冷却系

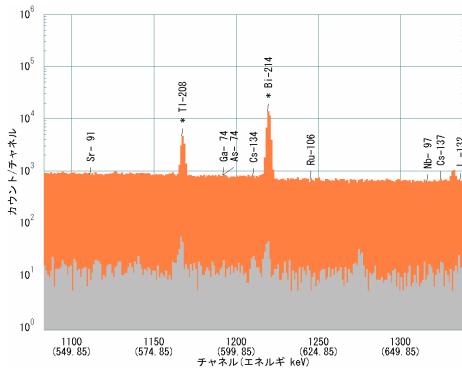
HPGe検出器は液体窒素温度程度まで冷却された状態で使用される。そのため液体窒素又は冷凍機により冷却される。近年液体窒素補充を省力化し、かつ停電時でも冷却の保持が可能な液体窒素デュワと冷凍機を組み合わせた冷却方式も普及している。しかしながら冷凍機は可動部分を含んでいるため、導入後一定期間の運用後にメンテナンス又は交換が必須とされる。

1.3. 遮蔽体

測定環境中には天然由来の放射性同位元素が多数存在しており、それらの核種に起因する γ 線、遮蔽体及び検出器自身ならびにそれらとの宇宙から降りそそぐ高エネルギー荷電粒子との相互作用で生まれる γ 線により一定のバックグラウンド計数を生ずる。これらのうち、特に天然由来で遮蔽体外部に存在する放射性同位元素からのバックグラウンド計数を抑

制し、着目ピークエネルギーの検出限界を下げるために遮蔽体が使用される。第2図に相対効率20%程度のHPGe検出器における遮蔽体が無い場合のスペクトル及び、遮蔽された状態におけるスペクトルの一例を示す。それぞれには同一の ^{134}Cs の計数が含まれており、検出器を良好に遮蔽することでバックグラウンド計数が2桁程度減少しているため ^{134}Cs のピークが視認可能である。

遮蔽体は通常、厚さ100mm程度の鉛又は相当する厚みの鉄が用いられ、全計数で2-3cps程度を容易に達成することができる。これを大幅に下回る低バックグラウンド計数を達成するには遮蔽体構成材、設置場所又は検出器構成材料の厳選ならびに、遮蔽体と検出器の寸法及び位置関係について最適な設計を行う必要があり、導入費用が著しく高額となる。



第2図 遮蔽体の有無によるスペクトル差異の例

1.4. マルチチャンネルアナライザ(MCA)

MCAは波高分析器ともいわれ、検出器が出力する γ 線エネルギーに比例した波高値(電圧値)を持つパルスを波高別に計数するための装置である。波高値と γ 線エネルギー値を対応付けるためには2.2項で後述するエネルギー校正の実施が必要である。

以前はHPGe検出器のプリアンプ出力の増幅から波形整形までをアナログ回路で行われることが多かったが、デジタル波形処理技術の向上により近年ではプリアンプ出力以降を直接デジタルMCAに入力し処理する手法が大半を占めており、それらは高圧電源、波高弁別回路をモジュール化し、交換可能としたタイプ及び一体化したタイプに大別できる。

1.5. 試料容器

従来、環境試料中の放射能定量という目的のためには2lマリネリ容器及び100mlプラ軟膏容器(代表的商品名: U-8 容器)が用いられている。また、これ

らの容器に充填された試料定量に必要な値付けのための体積標準線源が市販されている。

マリネリ容器及びU-8 容器に関しては文部科学省制定の放射能測定法シリーズ(文科省マニュアル)²中にその形状及び寸法が紹介されている。

2. 校正

2.1. 効率校正

放射能を定量しようとするとき、前述1.4項のMCAから得られる情報はチャンネル毎の計数でありここから単純に得られる値は毎秒あたりの計数(cps)でしかない。放射能値に換算するためには試料中で放出される γ 線に対して検出器で得られる計数の割合が機知でなければならぬ。この割合がピーク検出効率と呼ばれるものであり、試料中で γ 線が1本発生するときの検出系における計数で定義され、その単位は通常counts/ γ で与えられる。ピーク検出効率は測定しようとする試料形状、媒質及び密度ごとにあらかじめ標準線源を用いて求めておかなければならないが、媒質及び密度に関しては後述する3.3項により補正できる場合があり、その場合は代表的な充填材の標準線源により校正が実施される。

また、U-8 容器に充填された試料のように柱状の試料に対してはあらかじめ複数の充填高さの標準線源を用いた校正を実施することで分析時にはその高さ vs. 効率値から内挿により任意充填高の効率を算出できる場合がある。

健全な環境で使用され続けている検出器の効率値は同一の形状、媒質及び密度の試料に対しては通常有意に変化することは無いため、測定毎の校正は必要とされないが、定量値の信頼性を確保するための定期的な効率校正又は定量値の定期的な確認は不可欠である。

なお効率校正するエネルギー範囲に関しては標準線源として実用的に使用可能な核種が10種程度と限られており、多くの場合、88keV~1836keVの範囲で行われる。

ところで、放射能強度毎の標準線源を用いた検量線の取得は通常実施されない。これは放射能の多少に起因するデッドタイム(不感時間)という計数の数え落とし補正の必要性はあるものの、デッドタイムの補正は通常のMCAハードウェア内に実装されており、環境レベルの試料ではその補正の範囲内で実用上十分な定量が可能という理由によるものである。

2.2 エネルギー校正

MCAで得られるスペクトルに現れる γ 線ピークの中心位置は電圧値に比例する便宜上の数値であるチャンネル番号でしかない。このため、エネルギー校正されていない状態ではそのピークの γ 線エネルギーを知ることはできない。エネルギー値を求めるためには十数本のエネルギーが機知である γ 線を放出する2.1項で使用する標準線源を用いてエネルギー対チャンネルの関係を求めておき、この結果をエネルギー校正データとして分析時に得られるピーク中心チャンネルに対して適用し、ピークエネルギーを求める。

エネルギー対チャンネルの関係は常に機知でなければならぬため、日常的なエネルギー校正、又はこの関係が一定であることの確認が求められる。 ^{60}Co の標準線源を測定し、1332keVの γ 線が形成するピークの中心が2665チャンネルであることの実例もこの一例であり、広義のエネルギー校正といえる。この確認を怠り、実際のエネルギー対チャンネルの関係と校正データとの間に差異がある場合、スペクトル上に定量対象核種のピークが認められるにもかかわらず有意なピークが不検出又は他核種のピークと取り扱われる致命的な結果を得ることとなる。

なお、エネルギー校正の実施と同時にエネルギー対ピーク半値幅(FWHM)の校正も実施され、併せてその情報が保存される。この情報は後述のピークサーチ及びピーク計数算出のためのピーク領域決定に使用されるため、HPGe 検出器の劣化等で導入当初と比較しFWHMの広がりが増える場合は再度校正を行う必要がある。

3. 分析手法

国内で入手可能な日本語に対応した γ 線スペクトルを分析し定量するソフトウェアは文科省マニュアルに沿った分析を実現しているものが多い。定量分析に含まれるいくつかのパートについて本項で紹介する。

3.1 ピークサーチ及び核種同定

ピークサーチはスペクトルに着目エネルギーにおけるFWHMを考慮したフィルタを使用し実施される。

サーチされたピークの中心チャンネルを2.2であらかじめ得られているエネルギー対チャンネルの関係に当てはめ、エネルギーに換算する。この換算されたエネルギーと γ 線ピークエネルギーが登録された核

ライブラリを比較することで核種同定が行われる。

3.2 ピーク/検出限界計数の決定

定量対象核種についてはその核種が放出するピークの領域に関してその正味計数及び検出限界計数が求められる。試料とは別に測定したバックグラウンドスペクトル中に定量対象核種のピークが認められる場合はバックグラウンド計数として差し引く、ピークバックグラウンド補正(PBC)処理が行われ、ピーク計数及び検出限界計数にPBCの結果が加味される。

このほか定量対象核種のピーク位置に他の核種のピークが重畳するときはこの影響も妨害ピーク処理として加味される場合がある。

なお、我が国での市販分析ソフトウェアにおける検出限界算出方法はマニュアルに紹介されているCooperの手法を採用している。

3.3 自己吸収補正

媒質の元素組成、密度が試料ごとに異なる場合は媒質中を γ 線が透過するとき媒質中で相互作用を受ける確率、すなわち減弱の度合いもそれぞれ異なる。

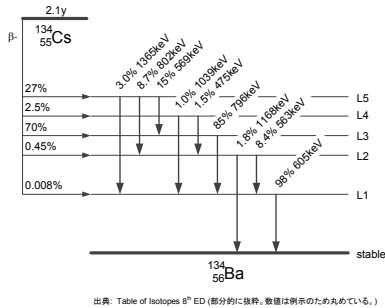
多くの場合体積線源はアルミナ又はエポキシで作成されておりそれぞれの密度は 1g/cm^3 程度である。校正の標準となる線源の媒質及び密度は定量対象試料のそれとは異なる場合がほぼ全てであるため、近似できる場合を除き校正時及び測定時の媒質自身による γ 線の減弱を補正する自己吸収補正が必要である。

自己吸収補正は21マリネリ容器又はU-8容器等のようにその計算法が明らかな場合に限り可能である。これら以外の容器で定量を行う場合は近似できることが明らかな場合を除き自己吸収の度合いを独自に評価する必要があることに注意されたい。

3.4 サム効果補正

放射性核種の一部には ^{134}Cs のように1壊変あたり検出系が弁別できない時間内に γ 線を2本以上放出するものがある。この場合で2本以上の γ 線が同時に検出器に入射し計数される時独立の γ 線としてではなく、それぞれの γ 線が検出器に与えたエネルギーの和に相当するパルスが検出器から出力される。この確率は検出器のピーク効率及び全効率ならびに核種に固有の壊変パターンにより決定される。一例として ^{134}Cs の壊変パターンを第3図に示す。

このようにサム効果を生ずる核種のピークはサム効果が無い場合の計数と比較して減少又は増加する場合があります、その割合をサム効果補正係数と呼ぶ。サム効果の寄与は本来の計数と比較し±10%程度、場合によっては±50%を超える差異を与える場合もあるので注意が必要である。



第3図 壊変パターンの一例

サム効果の補正をする際は効率校正で得られるエネルギー対ピーク効率の関係のほか、前述の全効率が検出器毎に必要となる。この全効率は実際には単一エネルギーのγ線を放出する複数の核種を個別に測定し得られるピーク面積と全面積の比を複数のエネルギーに対して求めたものでありこの校正を、ピーク・トータル比の校正(PT校正)と呼ぶ。効率校正の実施時に使用する混合標準線源を用いてこの校正はできないため、複数の単一核種の線源が用いられるが、これらの線源のなかには短半減期のものもあり、定期的な校正の都度実施するのは合理的でないためHPGe検出器の相対効率から近似的に求める経験式が多用されている。なお、この経験式は相対効率50%程度以下での検出器で実測との限定的一致が確認されているが、大型の検出器への適用及び精密な測定への適用にはその影響を都度評価することが必要である。

3.5. 放射能濃度及び検出限界算出

放射能値及び検出限界放射能値ならびにそれらの濃度はそれぞれピーク面積(計数)及び検出限界計数ならびにサム効果補正係数、自己吸収補正係数等、各種の補正係数から算出される。

ここで得られた放射能値に対し核種別の半減期及び経過日数を必要に応じ考慮した減衰補正係数を考慮し、さらに試料量で除算することで放射能濃度及び検出限界放射能濃度を得ることができる。

4. 応用例

近年では原子力発電に関連する人工放射性核種定量のためにHPGe検出器が用いられることが多いが、このほか、微量元素定量手法として試料に対し原子炉又は加速器により中性子を照射し放射化した試料の放射能から含有元素を定量する手法がある。

また、近年では生活用品の一部に天然に存在するウラン系列、トリウム系列等の放射性核種(NORM)を含んでいるものもある。これらに対する規制も始まりつつあり、場合によっては放射能定量が求められる。

これらいずれの用途にもHPGe検出器が利用可能な事例があるが、事例に応じた分析条件、核種データ、場合によっては専用ソフトウェアの準備が必要とされる。

結言

HPGe検出器を利用した放射性核種定量はハードウェア及びソフトウェアの性能又は機能向上により放射線計測の知識をさほど求められることなく導入し使用を開始することができる。しかしながら、測定試料の準備、配置、測定時の分析条件が適切であることの確認、ならびに機器が正しく動作することの日常的確認は必要不可欠であり、これらを適切に実施するために放射性核種に対する知識にとどまらず、放射線計測のエレクトロニクスに関する知識も得ておくことが望ましい。

これらを念頭に適切にHPGe検出器を導入・使用し、最も高い部類の放射能定量性能を発揮いただきたい。

参考文献

1. ゲルマニウムγ線検出器の試験方法, JIS Z 4520:2007
2. 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(放射能測定法シリーズ7), 文部科学省 科学技術・学術政策局 原子力安全課防災環境対策室, 1992