

CdZnTe 検出器による原発放射能分析

The analysis of the radioactivity by a CdZnTe detector

大原 荘司、向井 厚志、藤原 昇
OHARA Soji, MUKAI Atsushi, FUJIWARA Noboru

1. はじめに

平成 24 年 4 月から食品に含まれる放射性物質について新たな基準が定められ、野菜、穀物、肉類などの一般食品の基準値が従来の 5 分の 1 の 100 Bq/kg (ベクレル/kg) となった。これは、食品による内部被曝を年間 1mSv (ミリシーベルト) 以下に抑えることを目標にして定められたものである。そのために、特に福島第一原発事故由来の拡散放射性核種として、その半減期が 30.1 年と長期であることから、Cs-137 がもっとも注目されている。Cs-137 が崩壊時に放出する 662 keV のガンマ線の迅速かつ正確な測定は、1) 安全な食品の生産とその適正な流通、2) 農地や居住地の効果的な放射能除染とその確認、3) 汚染土壌、がれきの適切な廃棄処理、などのためにその重要性が増大している。

このような状況に対応するため、従来から放射線測定に用いられてきた検出技術の改良を含めた様々な検討がなされている。検出素子に注目すると、NaI、LaBr₃、CdZnTe、Ge の 4 種類が実用されている。それぞれの一般的な諸元をまとめると表 1 のようになる。

| 検出素子 | 分解能(%) | 密度(g/cm ³) | サイズ(cc) | その他 |
|-------------------|---------|------------------------|---------|------|
| NaI | 7 | 3.7 | 60 以上可 | 冷却不要 |
| LaBr ₃ | 2.8~4.0 | 5.3 | 60 まで | 冷却不要 |
| CdZnTe | 1.8 | 5.8 | 1.0 | 冷却不要 |
| Ge | 0.1 | 5.4 | 10.0 | 要冷却 |

表 1 各種検出素子の特徴

分解能は、Cs-137 (662keV) 検出ピークの半価幅 (FWHM) から求められたものである。初期コストや運用コストでは、高純度 Ge 検出器が最も高く、他の 10 倍程度である。CdZnTe が最も廉価であるが、密度が高くガンマ線の阻止能は高いが結晶のサイズが小さいことや、キャリアの移動度などの関係で感度に弱点がある。最近、高圧ブリッジマン引き上げ法などの改良で、よい結晶が得られるようになり注目されている¹⁾。われわれは、原発放射能測定素子として、CdZnTe の感度の欠点が他の特徴によってどのようにカバーできるものかの検証を行った。

2. CdZnTe 放射線検出システム

CdZnTe 検出器として、(株) 仁木工芸が扱う Kromek 社 GR-1 を採用した。図 1 に GR-1 の全容を示す。



図 1 Kromek 社 GR-1 本体図

25×25×65 の筐体右側にはアルミニウム製の「窓」があり、その内側に立方体 (1cc) の CdZnTe 検出器が内蔵されている。筐体中には、マルチチャンネルアナライザーも含まれている。

半導体検出器は、入射する放射線光子のエネルギーに応じたパルス高を出力する特性を持ち、出力パルスを波高分析 (A/D 変換) して 4 k チャンルのメモリに分散記憶する仕組み (マルチチャンネルアナライザー) を含む構成である。図 2 に、パソコンを装備した検出システムの全体像を示す。図中の銅円筒カバーの下に、図 1 の GR-1 本体が縦向きに設置されている。環境放射線を遮蔽するため、銅円筒カバーの周りには厚さ 5cm の鉛ブロックを配置した。図 2 は、銅円筒カバーを示すために鉛ブロックの一部を外した状態であり、通常は、銅円筒カバーの前面および上面も鉛ブロックで覆っている。ただし、のちに示すように高エネルギー宇宙線空気シャワー (1 GeV 程度の電子線で 1 分間に 2000 発程度入射) によって鉛の蛍光 X 線が励起放射されるため、鉛ブロックに起因するノイズも存在する。この鉛の蛍光 X 線を吸収するために、0.5mm 厚の銅板で作られた銅円筒カバーを用意した。この銅板によって、約 5 割の鉛蛍光 X 線 (75keV) が吸収されるが、Cs-137 のガンマ線測定を妨害するわけではないので不要かもしれない。

放射能の定量測定のための標準試料としては、IAEA (国際原子力機関、International Atomic Energy Agency) の IAEA-372 を入手した。これは 100g の乾燥雑草粉末で、チェルノブイリで採集されたものを母体としている。9853 Bq/kg の Cs-137 と 1060Bq/kg の K-40 を含んでいる。未知試料との対比が可能のように、サンプリング容器は同一とし図 3 のように設置する。

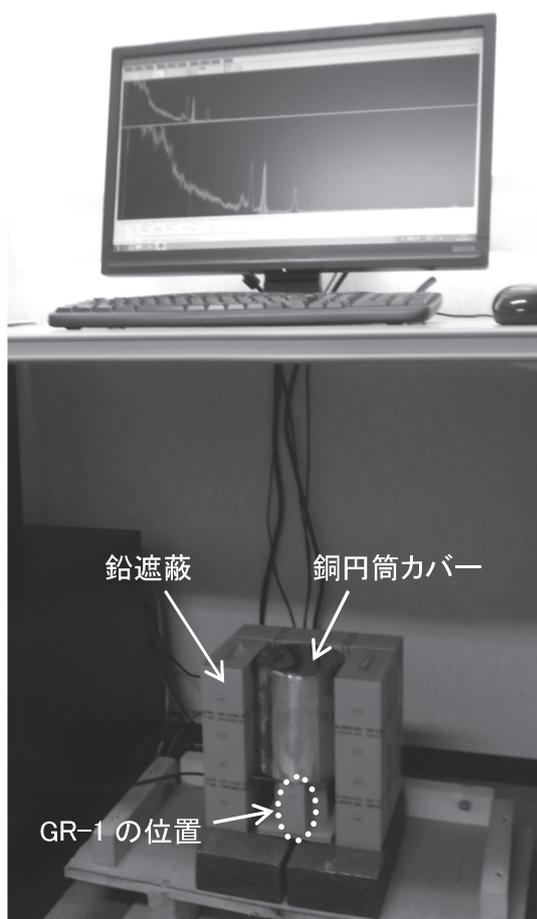


図 2 CdZnTe 放射線検出システム

下方にある銅製の円筒容器が試料室である。その内部には、直径 6cm、高さ 7cm のポリプロピレン製のサンプリング容器が内包されており、その中に試料が設置される。



図 3 サンプリング容器

直径 6cm、高さ 7cm のポリプロピレン製容器であり、その外側に銅円筒を被せて使用する。密度 0.59 g/cm³ の乾燥雑草 100g の場合の高さが 6cm、密度 1.26 g/cm³ の土壌 100g の場合の高さが 2.8cm となる。

IAEA-372 について、上記のようにサンプリングを行い、120,000 秒間 (約 34 時間) 測定した結果得られたエネルギースペクトル (放射能スペクトル) を図 4 に示す。

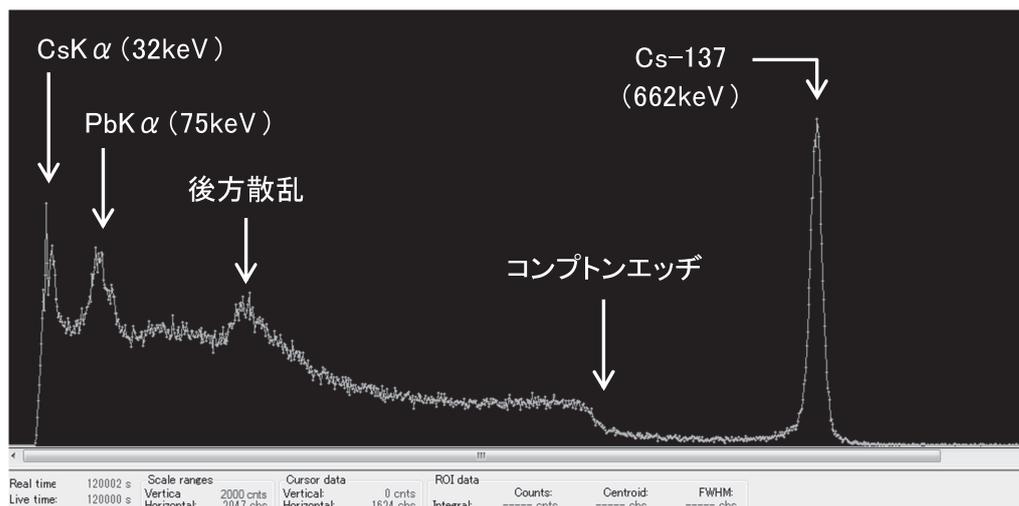


図4 IAEA-372 100gの放射線エネルギースペクトル

CsK α はCs-137原子核からのガンマ線によりK殻電子が内部励起されて蛍光X線が放出されたものである。PbK α は、前述のように宇宙線により遮蔽の鉛原子が励起されて発生した特性X線である。検出器内で光電吸収された入射ガンマ線はピークとして現れるが、検出器内で非弾性散乱を起こしたものは連続的なコンプトン散乱として現れる。後方散乱は、線源背後の遮蔽物からの散乱で、そのエネルギーとコンプトンエッジのエネルギーの和は、この場合Cs-137ピークのエネルギーに相当している。Cs-137ピークの半価幅から分解能を求めると1.8%となる。約倍のエネルギーの1170 keVピーク (Co-60) では、分解能は1.2%となる。検出素子の容積が小さいこともあって感度は満足のゆくものではないが、そのエネルギー依存性を図5に示す。

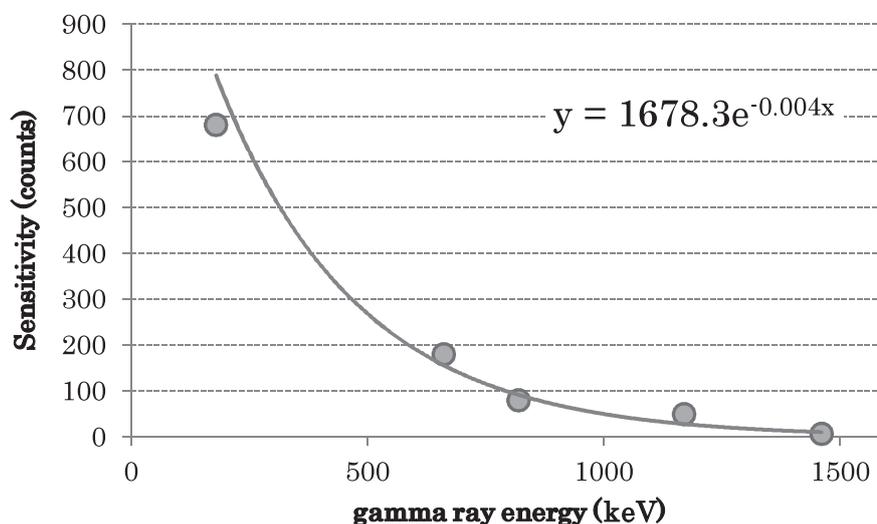


図5 CdZnTe 検出器の感度曲線

測定核種は、左より Ce-139、Cs-137、Mn-54、Co-60、K-40

IAEA372 (Cs-137:9853 Bq/kg) の60000秒による10回繰り返し測定での分析値の標準偏差は、 σ で10.6 Bq/kgであった。バックグラウンドの平方根から検出限界値を求めると25 Bq/kgとなり、CdZnTe 検出器では、60000秒測定すれば、食品基準の100 Bq/kgの放射能検出は可能である。

3. 原発放射能分析

未知試料として、福島県飯館村佐須の山道付近で採集された表層土壌の分析を行った。2012年1月に文科省より発表された放射線量マップ上で佐須の位置を図6に示す。標準試料と同様の直径6cmのポリプロピレン容器に200gを秤量して装填した。装填の高さは5.6cmとなり、IAEA372(100g)の場合の6.0cmとほぼ同等の高さとなった。図7に測定結果のエネルギースペクトルを示す。



図6 福島県の放射線量マップ
2012年1月文科省発表

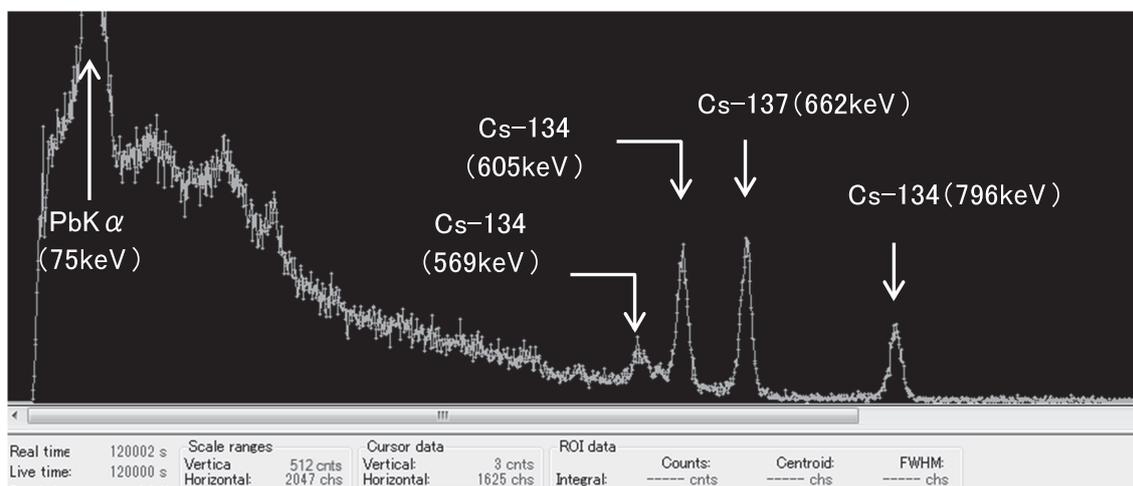


図7 飯館村佐須表層土壌の放射能スペクトル

Cs-137 ピークの積算強度（バックグラウンド除去）は、3112 cnts である。同じ測定を 100g のサンプリング（充填高さ 2.8cm）で行うと、この強度は 2210 cnts となりサンプリングの量に依存することと試料内でのガンマ線の吸収を考慮しなければならないことを示している。質量吸収係数を一定(0.048cm²/g)として、これに密度をかけて線吸収係数を求めると佐須土壌で 0.060cm⁻¹、IAEA372 で 0.0283cm⁻¹となった。この係数 μ に試料の中間高さ (d cm) での放射線の透過率を $\exp(-\mu \cdot d)$ で求め、試料全体の放射線の実効透過率とし放射線強度を算定することとした。IAEA372 と佐須土壌の Cs-137 ピーク積算強度と透過率補正強度およびそれによる Cs-137 放射

能分析値を表 2 に示す。

| 試料 | 秤量値 | Cs-137 積算強度 | 実効透過率 | 補正強度 | 分析値 |
|---------|------|-------------|-------|----------|-----------|
| IAEA372 | 100g | 10029cts | 0.918 | 10925cts | 9853Bq/kg |
| 佐須土壌 | 200g | 1556cts | 0.845 | 1841cts | 830Bq/kg |

表 2 飯館村佐須表層土壌の Cs-137 放射能分析結果（強度は 60000 秒測定値の値）

佐須土壌 200g では Cs-137 の放射線強度は 166 Bq であるが、この値から 200g 中の Cs-137 原子数を計算すると、Cs-137 の半減期は 30.1 年と長いので、 2.3×10^{11} 個という大きな値になる。ちなみに、空間線量計を試料容器に触れるようにして測定すると、IAEA372、佐須土壌ともに $0.12 \mu\text{Sv/h}$ であった。その場のバックグラウンド線量は $0.09 \mu\text{Sv/h}$ である。この土壌の採集位置から 10 m 以内の場所で採集された別の土壌（密度は 30 % 低い）50 g を分析すると Cs-137 で 15740Bq/kg であった。ほぼ同一場所でも、わずかな条件の違いで含有放射能に大きな違いが現れることを示している。Cs-134 の 605 keV ピークと Cs-137 ピークの強度比は、9 : 10 となり、ベクレル値もこの比となるが、Cs-134 の 3 つのピークの積算強度の和は 2394 cts となり、実効透過率を 0.845 として補正強度を求めると 2833 cts となり Cs-137 の放射線量そのものは約 1.5 倍となる。Cs-134 の半減期は 2.07 年であるので、3.11 より約 1.5 年を経た現在、その放射能は、生成時の約 60% に減っていてこの値である。Cs-134 と Cs-137 は全く異なる過程で生成され²⁾、放射能比によって福島原発の何号機から発生したものか推定できるということで興味深い。標準試料の IAEA372 はチェルノブイリ周辺の雑草から採集されたものであるので、26 年を経て Cs-134 はほとんど検出されなくなっている。バックグラウンドの平方根から求める土壌中 Cs-137 の検出下限値は 7Bq/kg (60000 秒測定) であるから、環境省が定めた廃棄物を安全に再利用できる基準である 100Bq/kg の判定は土壌の場合 1 時間以内の測定で可能である。また、廃棄物を安全に処理するための基準は 8000Bq/kg と定められているので、その判断のための分析は、さらに短時間で実施可能である。

佐須表層土壌採集地の近くで採集されたナラ、ブナなど広葉樹の枯葉 7.9g の放射能測定結果を図 8 に示す。

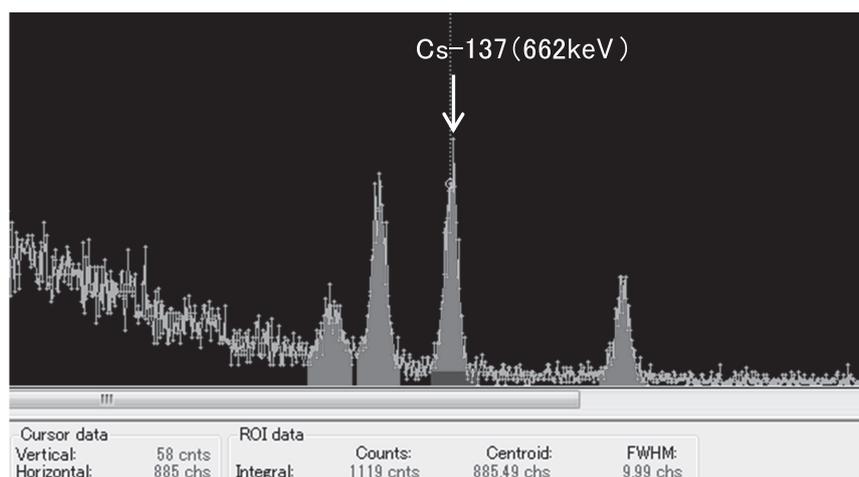


図 8 飯館村佐須山道付近の枯葉 7.9g の放射能スペクトル

Cs-137 の積算強度は 656 cts (60000 秒)。Cs-134 の 3 つのピークの積算強度の和は、1165 cts である。

IAEA372 の放射能強度との比較から得られる枯葉の放射能は、 7489Bq/kg となり、周辺土壌より 10 倍程度濃縮されていることがわかる。降り注いだ放射能が葉に付着したと考えるより、根を通じて土壌から吸収され光合成によって濃縮されたと考えるのが妥当だろう。

1人当たりが自然放射線から受ける線量は世界平均で 2.4mSv (ミリシーベルト) で、このうち宇宙線から受けるものが 0.39mSv 、大地から受けるものが 0.48mSv である。医療行為による被爆を含めると日本人の場合平均年間 3.75mSv といわれている³⁾。前述の食品中の放射性物質についての新基準値は、この値をもとにさらに年間 1mSv 以内の被爆とすることから計算されたものである。すでに年間 4mSv 近く被爆するのであるから子供のためとはいえ年間上限 1mSv は実際的でないという議論もあるだろうが、それはともかく、大地から受ける 0.48mSv はかなり大きな値であることがわかる。関西は花崗岩質でこの値が比較的大きいといわれている。図9は、神戸御影の花崗岩の放射能スペクトルである。(縦軸は log スケール)

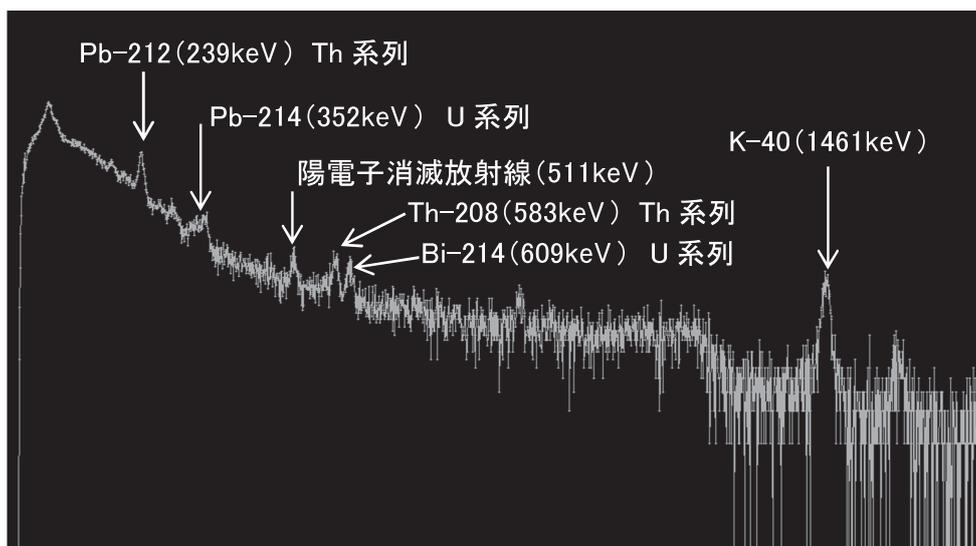


図9 神戸御影花崗岩の放射能スペクトル

前述の土壌の場合と同様に吸収係数から測定強度を補正し、IAEA372 を標準にして K-40 の放射能強度を求めると 557Bq/kg となった。同様に求めた香川県産の花崗岩中の K-40 は 467Bq/kg 、黒竜江省産の花崗岩では、 867Bq/kg であった。U-238 を親核種とするウラン系列の核種や Th-232 を親核種とするトリウム系列の核種からのガンマ線もいくつか観測された。同様のトリウム系列核種からのガンマ線は、40年以上前に製造のカメラレンズからも顕著に検出された。これは、

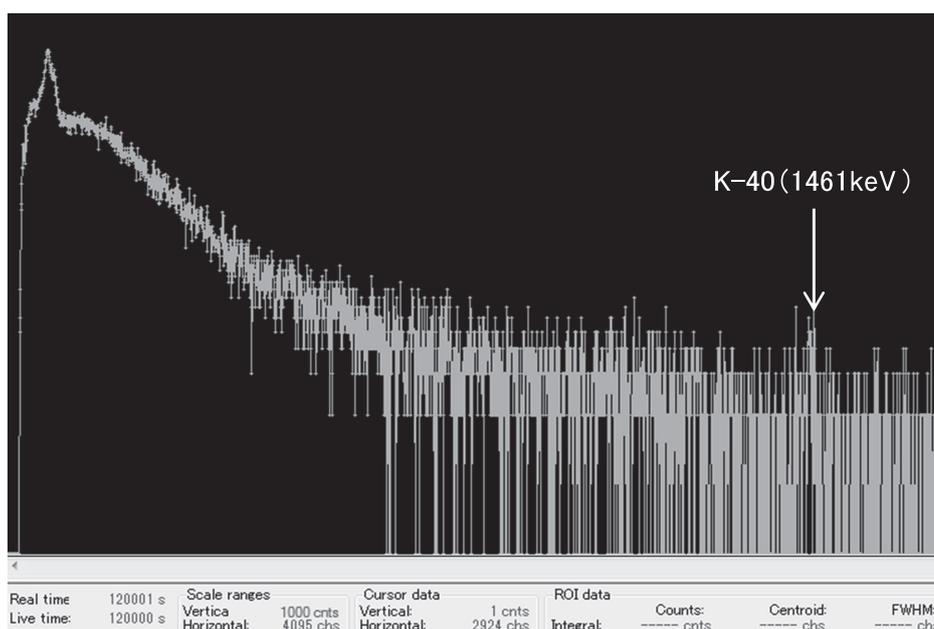


図10 宮城県伊具郡丸森町産玄米の放射能スペクトル。原発放射能は検出されず。

レンズの屈折率を上げるために酸化トリウムを添加したことによる。宮城県伊具郡丸森町で 2011 年秋に収穫された玄米の放射能スペクトルを図 10 に示す。(縦軸は log スケール) K-40 がわずかに検出されている(120000 秒測定)が、分析値は 283 Bq/kg である。Cs などの原発放射能は検出されていない。

4. まとめ

市民の視点で、お互いに情報と知識を共有しながら、放射能分析を行い、原子力や放射能についての知識を深めてゆくための放射能分析装置として Kromek 社の CdZnTe 検出器を用いた分析システムの活用を検討した。

物質中に含まれる放射能を正確に分析するには、主成分が同じ標準試料を入手するのが最善であるが、現在は以下の手順で分析を行うのが適正と考えている。

- ① IAEA372 (100g) を標準試料とし、ポリプロピレン容器に直径 6cm、高さ 6cm にサンプリングする。
- ② 未知試料を標準試料と同様の光学系となるようにサンプリングし、重さと密度を求めておく。
- ③ 標準試料と未知試料を同一時間測定し、核種から放射されるガンマ線のバックグラウンドを差し引いた積算強度を求め、線吸収係数の中央値を算出して補正し標準試料との対比から放射能強度を Bq (ベクレル) 単位で求める。
- ④ 未知試料の重さから放射能強度を Bq/kg 単位に換算して求める。

CdZnTe 放射能検出器のコストの手軽さ、コンパクトさから、上記の手順で若干の時間をかけて測定すれば、十分な精度で粉末を含めた固形食品や土壌中の 100Bq/kg 程度の Cs-137 の分析は可能である。マリネリサンプル容器などの光学系の工夫や、CdZnTe 素子のサイズの改善などによる感度の改良は必要である。予備実験では、マリネリ化によって 6 割以上の感度改善がみられた。土壌の分析で見たように、原発放射能の局在性は定性的には知られているが、CdZnTe 検出器のポータブルな特徴を活用して、放射能の空間的な拡散状況や地中への浸透状況を定量的にその場分析する必要性は今後増大するだろう。現在のところ、大量、多数の未知試料を短時間で経常的に分析する⁴⁾ のには適していないが、その構成の透明性や手軽さのゆえに、地域の市民⁵⁾ と放射能についての知識と分析手法についての知識、技能を共有し、原子力や放射能との向かい合い方の展望を築きあげてゆくには適した放射能分析システムである。

謝 辞

Kromek 社 CdZnTe 放射能検出器を入手後、アイソトープを用いた感度の確認に際して、高エネルギー加速器研究機構の放射線科学センター長の伴秀一先生にご協力いただき、貴重なアドバイスもいただきました。また、飯館村の土壌を入手するに際しては、京大名誉教授で本学情報学部の元学部長の政池明先生にご尽力をいただき、佐須土壌の分析結果を前にしていろいろ貴重なディスカッションをしていただきました。心から感謝いたします。

参考文献

- 1) 大野良一、「CdTe 系放射線検出器の開発動向」、放射線 Vol.30、No.1、2004
- 2) 河田 燕、山田崇裕、Isotope News、2012 年 5 月号、No.697
- 3) 佐治英郎、「放射性ヨウ素、セシウム、ストロンチウムの体内動態」、現代化学、2012 年 8 月
- 4) この目的のためには、古川金属と東京大学が開発した GdAlGa ガーネット結晶を用いた漁獲全量を放射線検査する装置などがある。(日経新聞、2012 年 5 月 28 日)
- 5) 戸上昭司、「市民による、市民のための放射線測定所」、KAGAKU、Sep.2011、Vol.81、No.9