

ゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリのシステム構築

下岡 順直* 清水 隆一** 北沢 俊幸* 川野 良信*

キーワード：ゲルマニウム半導体検出器、 γ 線スペクトロメトリ、自然放射線、
大型機器装置（ICP-MSおよびXRF）、測定精度

1. はじめに

熱ルミネッセンスおよび光ルミネッセンス（以下、ルミネッセンス）年代測定は、加熱もしくは露光によってゼロリセット（年代の初期化）したイベント後から試料が浴びた放射線量を定量することで年代決定する測定法である（例えば、長友1999；奥村・下岡2011など）。ルミネッセンス年代は、ゼロリセットから現在までに蓄積した放射線量（蓄積線量）と、一年間に吸収する放射線量（年間線量）を見積もり、蓄積線量を年間線量で除することで求める。ルミネッセンス年代を精度良く求めるためには、蓄積線量と年間線量を同じ精度で求める必要がある（長友1991）。ルミネッセンス年代測定の年間線量評価法には、熱ルミネッセンス線量計（TLD）素子を用いて放射線量を直接的に評価する方法と、化学分析や放射化分析などで求めた核種の濃度から見積もる間接的な評価方法がこれまでよく用いられてきた（長友1999）。しかし、前者はTLD素子の入手が困難になったことから、近年ではあまり行われなくなってきており、後者の手法を用いた測定と線量評価が主流になりつつある。

立正大学地球環境科学部環境システム学科（以下、環境システム学科）に設置するゲルマニウム半導体検出器（以下、Ge検出器）は、これまで東日本大震災後の放射能モニタリングなどに用いられてきた（立正大学地球環境科学部通信2012）。現在は、主にルミネッセンス年代測定のために、 γ 線スペクトロメトリによる年間線量評価を行っている。本研究では、従来の計数装置（キャンベラ製series 35 plus）に替えて、新しく多重波高分析器（MCA）とデータ収集ができるプログラムソフト（スペクトルエクスプローラ）を導入し、全自動で計測できるシステムを構築したので、その概要を記述す

る。また、同一試料を用いて本システムで求めたデータを、環境システム学科に設置している大型機器装置で求めたデータと比較を行ったので報告する。

2. Ge検出器を用いた γ 線スペクトロメトリの概要

環境システム学科に設置するGe検出器は、ミリオンテクノロジー・キャンベラ株式会社（旧キャンベラジャパン株式会社）製7229P-7500S-2019である。検出器は古いため型番が無く、左側の4桁の数字が結晶の形状（同軸型）、真中の4桁の数字がクライオスタットの形状（垂直型）、右側の4桁の数字の内、最初2桁が相対効率（20%）、次の2桁が分解能（1.3 MeVで2.0 keV）であることを表す。

図1に、環境システム学科に設置しているGe検出器の構成を示す。検出部は、遮蔽のため、鉛ブロックを用いて10~15 cm厚になるように囲った。検出器へのバイアス電源は、高圧電源（2.5 kV）を用いた。高電圧をかけたGe結晶で生じる電気ノイズを抑制するため、Ge結晶が入っているクライオスタットは液体窒素を用いて常に冷却している。試料から放出された γ 線が検出器に入ってくると、放射線と物質の相互作用としてパルス波形が得られる。パルス波形は、前置増幅器から主増幅器を経てMCAでアナログ信号からデジタル信号に変換され、パルス波高がパソコンにデータとして収集される。パソコンのプログラムソフト（図2）は、計測時間としてLive timeが設定でき、Dead timeを含めたReal timeが自動でカウントされる。そして、観察する核種から放出される γ 線をROI（region of interest）として設定し、スペクトル上のピーク面積からバックグラウンド（BG）を差し引いて、正味の計数値を求めることができる。

今回、ルミネッセンス年代測定の年間線量評価のた

* 立正大学地球環境科学部

** 立正大学大学院地球環境科学研究科

め、自然放射線を計測するROIを設定した。設定したROIは、 ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列の娘核種からの γ 線（ROI#1～7）と、 ^{40}K からの γ 線（ROI#8）である（表1および図2）。 ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列の娘核種からは、前者が ^{226}Ra （ROI#1）、 ^{214}Pb （ROI#2およびROI#4）、 ^{214}Bi （ROI#6）、後者が ^{228}Ac （ROI#3およびROI#7）、 ^{208}Tl （ROI#5）から放出される γ 線をROIとして設定した。なお、 ^{238}U 系列および ^{232}Th 系列は、放射壊変系列の途中に希ガスのRnを含むため、Rn損失（Aitken1985）が起これると放射非平衡になり、年間線量を過小評価することになる。そのため、Rnに壊変する前後の核種を観察することで放射平衡が保たれているかを確認できるようにROIを設定した。

表1 各ROIの核種とその γ 線エネルギー

ROI#	Series	Nuclide	Energy (keV)
1	U (pre Rn)	Ra-226	186.0
2	U (post Rn)	Pb-214	295.2
3	Th (pre Rn)	Ac-228	338.4
4	U (post Rn)	Pb-214	351.9
5	Th (post Rn)	Tl-208	583.1
6	U (post Rn)	Bi-214	616.5
7	Th (pre Rn)	Ac-228	968.9
8	—	K-40	1460.8

3. 自然放射線の定量分析

検量線作成試料として、産業技術総合研究所地質調査総合センターの標準試料JA-3、JB-2、JB-3、JG-1a、JR-1を用いた。標準試料の推奨値は、Imai *et al.* (1996)から引用した。測定する幾何学系を同じ条件にするために、試料は外形57.8 mm×63.5 mm×20.0 mmのプラスチックケースに封入して作成した。なお、放射平衡になるまで、試料は封入後約30日間程度静置してから測定を行った。検量線は、土器片や焼石、火山灰を含む土壌などルミネッセンス年代測定の様々な対象試料に合わせるため、試料重量10、20、30 gでそれぞれ作成した。図3

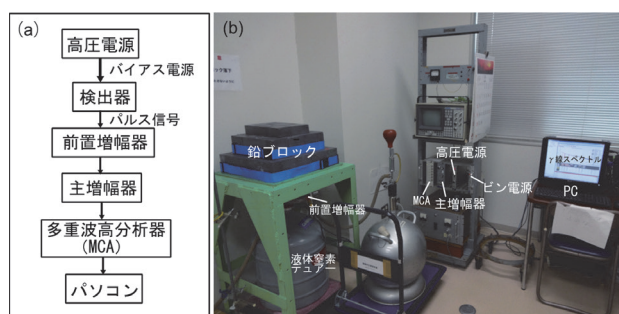


図1 Ge検出器のブロックダイアグラム (a) と計測機器システムの構成 (b)

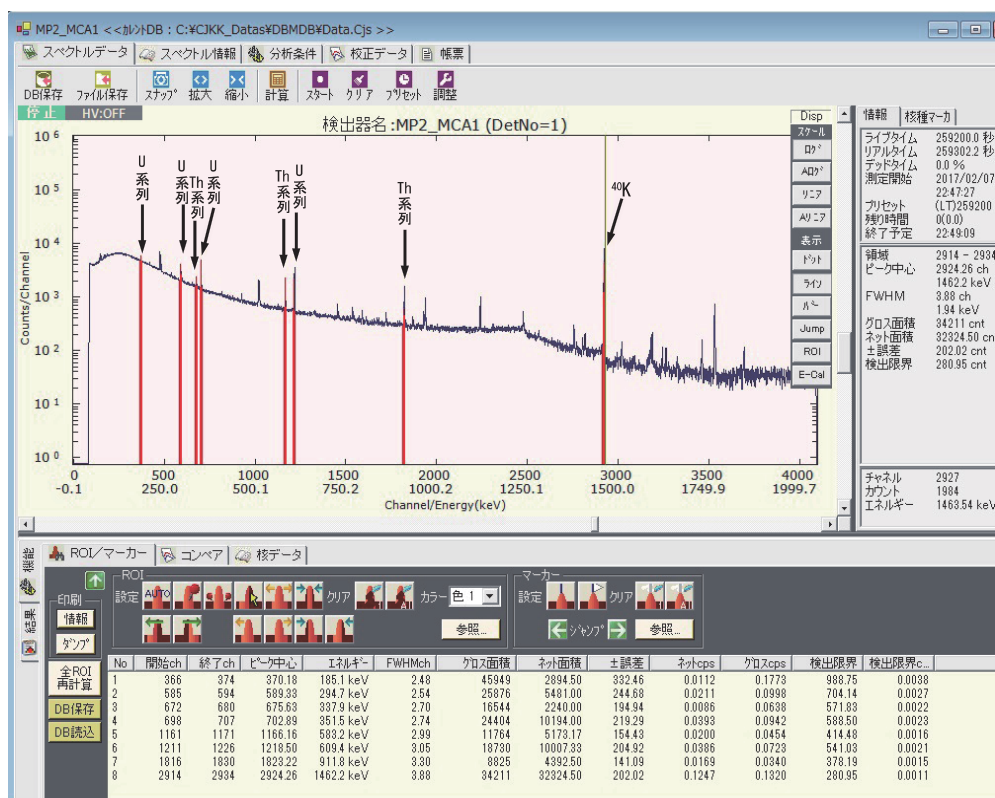


図2 プログラムソフトによる γ 線スペクトルとROIデータ

に、試料30 gを用いた検量線を示す。

各ROIの検量線は、最小二乗法を用いて一次式で作成した。各検量線の相関係数 (R^2) も、図3に示した。U系列では、相関係数がROI#1で0.9693、ROI#2、#4、#6で0.9866~0.9910であった。ROI#1は低エネルギー (186.0 keV) であり、コンプトン散乱や後方散乱ピークの影響を受けやすいため、低濃度側で若干ばらつきが生じたと考えられる。よって、ROI#1の値は参考値とし、U濃度はROI#2、#4、#6で得られた値を放射平衡であるとして、加重平均で求めた。Th系列では、ROI#3、#5、#7の相関係数は0.9955~0.9993であり、Th濃度はこれら3つのROIで得られた値を放射平衡であるとして、加重平均で求めた。Kは、相関係数0.9987であった。本来、年間線量評価のために濃度はKのみで求めるが、今回は後述する比較検討のため酸化物 (K_2O) 濃度として求めた。

4. 大型機器装置を利用した測定精度比較

Ge検出器を用いた自然放射線計測の測定精度保証のため、Ge検出器と、環境システム学科で設置している大型機器装置を利用して、同一試料の核種濃度の比較を行った。試料は、栃木県宇都宮市で採取した斑状細粒花崗岩 (以下、宇都宮花崗岩) を用いた (西川ほか2015)。Ge検出器では、宇都宮花崗岩を粉碎後、プラスチックケースに封入して5日間計測し、U、Th および K_2O 濃度を求めた。

大型機器装置では、宇都宮花崗岩のU濃度はSII社製誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS) 装置 (新藤ほか2009)、Thおよび K_2O 濃度はリガク社製波長分散型蛍光X線 (XRF) 装置 (川野2010) を用いて分析した。ICP-MSとXRFの測定精度の確認は、新藤ほか (2009) および川野・清水 (2017) や、川野 (2010) などですすでに行

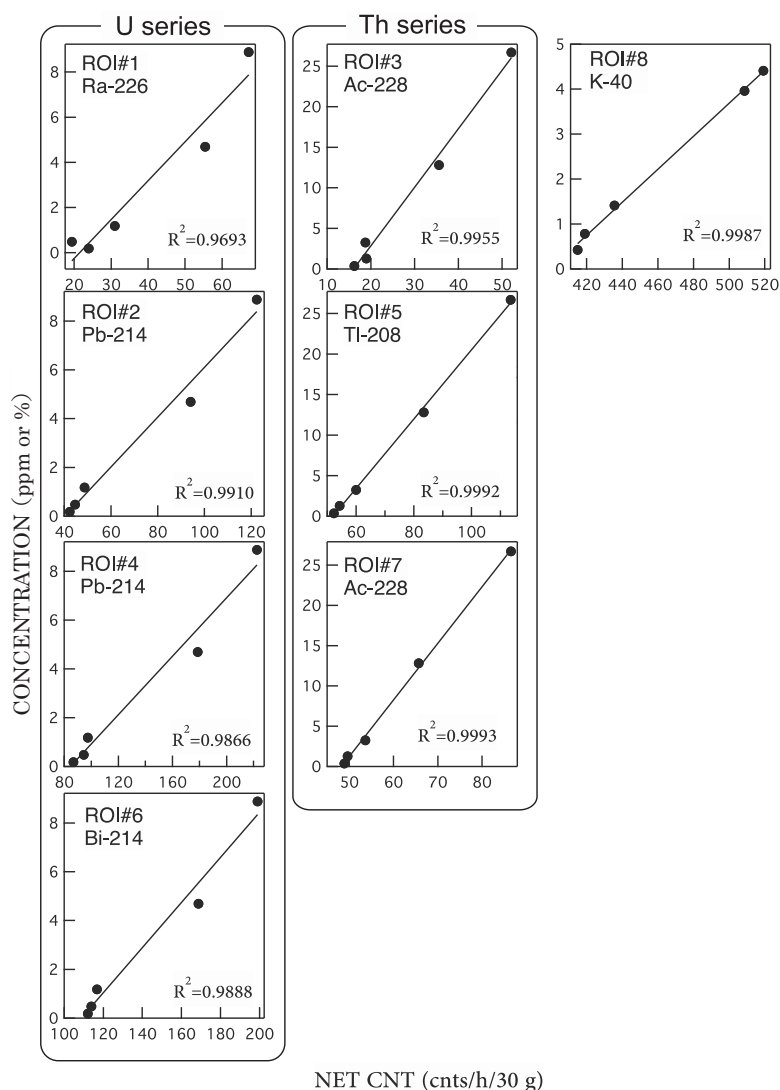


図3 標準試料から求めた各ROIの検量線
U系列はROI#1、#2、#4、#6、Th系列はROI#3、#5、#7、KはROI#8である。

われており、同一試料を測定して比較することでGe検出器を用いた自然放射線計測の測定精度保証ができると考える。

Ge検出器と、ICP-MSおよびXRFで得られた結果を比較した（表2）。その結果、核種3種類で両者の比はUで0.90、Thで0.99、K₂Oで1.05となり、どれも $\pm 10\%$ の間に入ることからよく一致する結果となった。このことから、これら大型機器装置により、Ge検出器の測定精度が保証できるだろう。

表2 Ge検出器とICP-MSおよびXRF装置で得られた同一試料の核種濃度の比較

	Ge検出器 ^①	ICP-MS/XRF ^②	①／②
U (ppm)	2.34 $\pm$ 0.12	2.6	0.90
Th (ppm)	21.67 $\pm$ 0.59	22	0.99
K ₂ O (wt%)	4.61 $\pm$ 0.11	4.38	1.05

5. まとめ

Ge検出器の測定精度を、環境システム学科で設置している大型機器装置のICP-MSとXRFを用いて比較検討を行い、Ge検出器では精度良く自然放射線計測が行われていることが確認された。ただし、今回は1試料のみでの精度比較であることから、今後もほかの複数の試料を用いて比較検討する必要がある。また、川野（2010）の報告にあるように、標準試料を繰り返し計測して検量線の再現性を検証することも重要である。

現在、鉛ブロックを用いて検出部分は遮蔽しているが、さらに精度向上のためにBG軽減の方策を検討している。例えば、高エネルギーの γ 線や²¹⁰Pbからの寄与を更に低減できるように鉛遮蔽内部を無酸素銅板で覆うことや、鉛遮蔽内部空間の空気に含まれるRnの娘核種等から放出される放射線を低減するために、冷却用液体窒素から蒸発した窒素ガスを鉛遮蔽内部空間に封入する（戸崎・角山2017）などの改良を行っていく。これにより、より高精度に放射線計測できるようになることが期待される。

謝辞

立正大学地球環境科学部環境システム学科に設置する

Ge検出器の維持管理は、環境システム学科の先生方のご理解、ご協力の下に行われている。福岡孝昭先生、清水 洋先生、平井壽子先生には、校正用放射線源管理の件でご指導、ご教示いただいた。毎週の液体窒素購入手続きでは、学科事務の松井一恵さんにお世話になっている。また、本稿作成にあたっては、（株）蒜山地質年代学研究所の小畑直也氏から、粗稿に対して有意義なコメントをいただいた。さらに、本稿は匿名査読者のコメントにより改善された。ここに、以上の皆様に感謝申し上げる。なお、本研究には、日本学術振興会科学研究費（若手研究A：課題番号25702011）の一部を使用した。

引用文献

- Aitken, M.J. (1985) Thermoluminescence dating. Academic Press, 357p.
- Imai, N., Terashima, S., Itoh, S. and Ando, A. (1996) 1996 compilation of analytical data on nine GSJ geochemical reference samples, "Sedimentary rock series", Geostandards Newsletter, 20, 165-216.
- 川野良信（2010）蛍光X線装置による珪酸塩岩石および堆積物の定量化学分析. 地球環境研究, 12, 85-97.
- 川野良信・清水隆一（2017）レーザーアブレーションICP-MS分析法によるガラスビード試料定量分析条件の再検討. 地球環境研究, 19, 11-19.
- 長友恒人（1991）TLおよびESR年代測定のための年間線量率の測定. 月刊地球, 13, 249-253.
- 長友恒人（1999）ルミネッセンス法. 考古学のための年代測定学入門, 古今書院, 59-76.
- 西川晃太郎・清水隆一・川野良信（2015）栃木県、宇都宮市北部に分布する花崗岩質岩の岩石学的研究. 地球環境研究, 17, 27-34.
- 奥村 輔・下岡順直（2011）ルミネッセンス年代測定を開始するための心得—日本における年代研究の現状—. 地質技術, 1, 5-17.
- 立正大学地球環境科学部通信（2012）放射エネルギーを定期的に観測. 第3号, 立正大学地球環境科学部.
- 新藤智子・杉内由佳・嶋田有里奈・福岡孝昭（2009）レーザーアブレーション誘導結合プラズマ質量分析（LA-ICP-MS）法によるガラスビード試料の定量分析. 地球環境研究, 11, 103-119.
- 戸崎充男・角山雄一（2017）放射能分析. ぶんせき, 4, 132-139.

Measurement of Natural-Radiation using Ge detector for Luminescence dating, and comparison of the measurement accuracy using ICP-MS and XRF apparatuses

SHITAOKA Yorinao*, SHIMIZU Ryuichi**, KITAZAWA Toshiyuki*, KAWANO Yoshinobu*

* Faculty of Geo-environmental Science, Rissho University

** Graduate School of Geo-environmental Science, Rissho University

Key words: Ge detector, Gamma-ray spectrometry, natural radiation, ICP-MS and XRF apparatuses, measurement accuracy