

# ゲルマニウム半導体検出器を用いた $\gamma$ 線放出核種定量に関する問題点の検討 — サム効果補正について —

山崎 興樹・殿内 重政

Keywords: サム効果; ゲルマニウム半導体検出器; コバルト-60; イットリウム-88; セシウム-134.

## 1 はじめに

核実験や原子力発電所の事故によって環境に放出される可能性のある人工放射性核種の中には、1崩壊につき2個以上の $\gamma$ 線を同時(検出系の時間分解能より短い時間内のことで「カスケード」という。)に放出するものが多数存在する。

これらの $\gamma$ 線が同時に検出されると、信号は重なり合っ和の波高値を持った1個の信号として分析される。この現象は、サム効果<sup>1, 2)</sup>(coincidence summing effect)といわれ、これらの核種を検出効率の大きなゲルマニウム半導体検出器を用いて定量する場合には、 $\gamma$ 線の計数率に無視できない影響を与える。

サム効果には、着目する $\gamma$ 線の計数率が減少する場合と増加する場合の2種類が考えられる。前者は、着目する $\gamma$ 線とカスケードにある $\gamma$ 線が同時に検出器内で相互作用を行う場合であり、着目する $\gamma$ 線のピーク位置に計数されるべき信号がより高エネルギー側に計数されるため、本来のピークの計数率が減少する効果を生ずる。後者は、2個以上の $\gamma$ 線が着目する $\gamma$ 線と同じ準位間にカスケードにある(「cross over にある」という。)場合であり、cross over にある $\gamma$ 線がすべて全エネルギー吸収を行うと、和の信号が着目する $\gamma$ 線のピーク位置に計数されるため、本来の計数率が増加する効果を生ずる。

サム効果の大きさは測定条件と核種によっては数10%にもなることがある<sup>2)</sup>ため、これらの核種が含まれている環境試料を定量する場合には、解析プログラムの中で適切な補正計算を行うことが必要となる。

今回、当所のゲルマニウム $\gamma$ 線分光分析装置を用いて、サム効果の大きい<sup>134</sup>Cs、<sup>60</sup>Co及び<sup>88</sup>Yを含む標準試料についてその大きさを推定し、解析プログラムの補正計算結果と比較するとともに若干の検討を行ったので報告する。

## 2 方法

### 2.1 測定装置

$\gamma$ 線スペクトロメトリーはCANBERRA社製高純度ゲルマニウム検出器(分解能1.9keV, 相対検出効率44%)を使用した。遮蔽体は110mmの鉛の内側に無酸素銅10mm、カ

ドミウム2mm, アクリル板5mmを貼ったものを用いた。スペクトル解析及び濃度計算は東陽テクニカ社製GENIE/GAMMA $\gamma$ 線解析プログラムを使用し、ピーク面積の計算には関数フィッティング法<sup>1, 2)</sup>を用いた。

### 2.2 測定試料

サム効果の大きさの測定には財団法人日本分析センターが調製し、平成9年度分析確認調査<sup>3)</sup>に使用した分析比較試料のうち、模擬土壌と寒天標準試料を用いた。模擬土壌は、活性アルミナに放射性核種を添加し、試料高さ37.5mmとなるようU8容器に密封したものであり、寒天標準試料は寒天溶液に放射性核種を添加し、試料高さ10.51, 19.38, 29.31, 37.31, 47.33mmとなるようU8容器に入れて固化密封したものである。添加核種は、模擬土壌が<sup>144</sup>Ce, <sup>51</sup>Cr, <sup>134</sup>Cs, <sup>137</sup>Cs, <sup>58</sup>Co, <sup>54</sup>Mn, <sup>59</sup>Fe, <sup>60</sup>Co及び<sup>40</sup>K, 寒天標準試料が<sup>106</sup>Cd, <sup>57</sup>Co, <sup>139</sup>Ce, <sup>51</sup>Cr, <sup>137</sup>Cs, <sup>54</sup>Mn, <sup>88</sup>Y, <sup>59</sup>Fe及び<sup>60</sup>Coである。

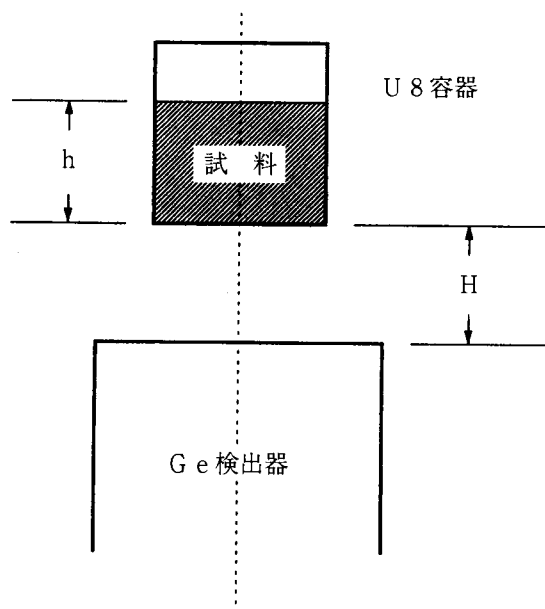


図1 試料と検出器の位置関係

2.3 サム効果の大きさの推定

2.3.1 実験方法

試料を検出器から離すと、検出器に対する立体角が小さくなるため $\gamma$ 線が入射する確率は小さくなる。サム効果はカスケードに放出された複数の $\gamma$ 線が同時に検出器に入射することにより起こるが、その確率は $\gamma$ - $\gamma$ 角相関を無視すれば個々の $\gamma$ 線が入射する確率の積となるためさらに小さくなり、試料を検出器から離すとサム効果は急速に起こり難くなる。そこで、試料と検出器との間にアクリル又は発泡スチロール製のスペーサーを挿入することにより、試料と検出器との距離を0~115mmまで5段階に変えて測定を行い、距離0mmでの計数率とサム効果が無視できる距離での計数率との差からサム効果の大きさを推定した。試料と検出器の位置関係を図1に示す。

2.3.2 解析プログラムによる補正率

試料に含まれる放射性核種の単位重量当たり濃度（放射能濃度）は、検出されたピークの正味計数率をピーク効率と試料重量で除し、半減期補正を行うことにより求めることができる。ピーク効率は、高さの異なる標準容積線源の測定結果から求めた値に、試料と標準容積線源の母材の違いによる自己吸収の差の補正及びサム効果の補正を加えて求める。容積試料では、この計算は試料を面線源が積み重なったものと考え、面線源のピーク効率を数値積分することにより行われる。

解析プログラムには、サム効果補正部分のみの計算結果を出力する機能がないため、ここではサム効果の補正率をサム効果があると仮定した場合とないと仮定した場合の二通りの放射能濃度計算結果の差から求めた。

3 結果と考察

3.1 模擬土壌における $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$ のサム効果

図2の崩壊図<sup>(1)</sup>によれば、 $^{134}\text{Cs}$ は $\beta^-$ 崩壊の後、 $^{134}\text{Ba}$ の励起準位から基底準位に遷移する際 $\gamma_1$ から $\gamma_9$ までの9本の $\gamma$ 線を放出し、そのうちの2又は3本をカスケードに放出する。同様に $^{60}\text{Co}$ は $^{60}\text{Ni}$ の励起準位から2本の $\gamma$ 線をカスケードに放出する。表1は、図2からサム効果が発生するカスケード系列を拾い上げることにより、検出される可能性があるピークを全て示したものである。このうち3本の $\gamma$ 線によるサム効果は、検出器への同時入射の確率が小さいためほとんど零に等しく、2本の $\gamma$ 線の場合も検出できるのは放出率の大きいもののみである。

図3はH=0mmとH=115mmにおける模擬土壌の $\gamma$ 線スペクトル測定結果である。サム効果の検討対象とした $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{60}\text{Co}$ と比較のため $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{40}\text{K}$ のピークを矢印で示した。最も顕著に現れているサムピークは1401keVの $^{134}\text{Cs}$ の $\gamma_4 + \gamma_5$ 、1407keVの $\gamma_1 + \gamma_6$ 及び1970keVの $\gamma_4 + \gamma_9$ である。これらのピークは試料を十分検出器から離れた場合（H=115mm）には消滅していることがわかる。

図4は放出率の大きい $^{134}\text{Cs}$ の796keV及び $^{60}\text{Co}$ の1333keV $\gamma$ 線計数率を検出器からの距離に対してプロット

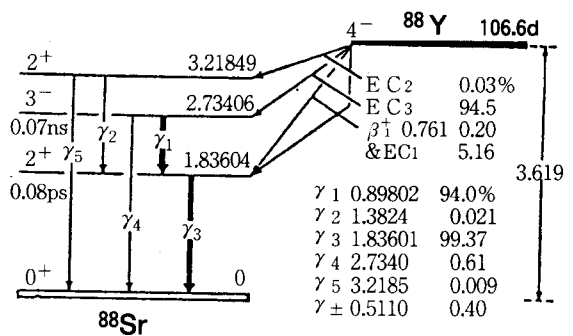
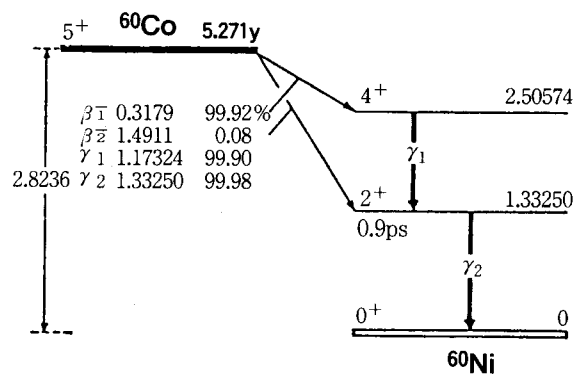
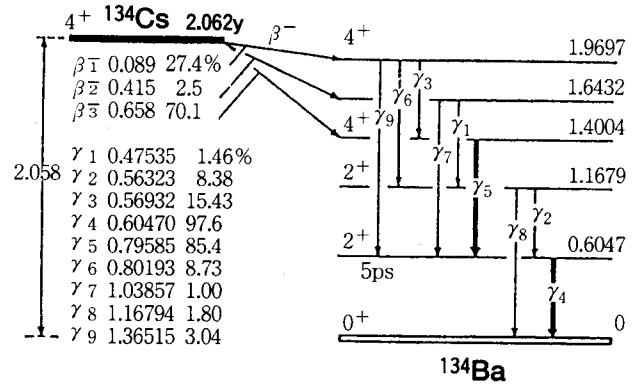


図2 崩壊図

したものである。(a)は正味計数率、(b)は相対計数率の変化を表す。結果は半減期補正を行って基準時刻に換算した。

ここで相対計数率とは、 $^{134}\text{Cs}$ の796keV $\gamma$ 線に対してはエネルギーの近接した $^{137}\text{Cs}$ の662keVを、 $^{60}\text{Co}$ の1333keVに対しては $^{40}\text{K}$ の1461keVをそれぞれ分母として正味計数率の比をとったものである。 $^{137}\text{Cs}$ と $^{40}\text{K}$ は単色 $\gamma$ 線を放出し、サム効果を起こさないため、これらを基準にとった相対計数率は計数率の距離による減衰分を相殺したものとなり、サム効果による計数率の減少が検出器からどの位の距離まで及んでいるのかを見積もることができる。

表1 検出可能性のあるピーク

核種	$\gamma$ (keV)	$\gamma_i$ (放出率)	サ ム ピ ー ク
$^{134}\text{Cs}$	475	$\gamma_1$ (1.46%)	
	563	$\gamma_2$ (8.38%)	
	569	$\gamma_3$ (15.45%)	
	605	$\gamma_4$ (97.6%)	
	796	$\gamma_5$ (85.4%)	
	802	$\gamma_6$ (8.73%)	
	1039	$\gamma_7$ (1.00%)	$\gamma_1 + \gamma_2$
	1080	—	$\gamma_1 + \gamma_4$
	1168	$\gamma_8$ (1.80%)	$\gamma_2 + \gamma_4$
	1174	—	$\gamma_3 + \gamma_4$
	1365	$\gamma_9$ (3.04%)	$\gamma_2 + \gamma_6, \gamma_3 + \gamma_5$
	1401	—	$\gamma_4 + \gamma_5$
	1407	—	$\gamma_4 + \gamma_6$
1643	—	$\gamma_4 + \gamma_7, \gamma_1 + \gamma_8, \gamma_1 + \gamma_2 + \gamma_4$	
1970	—	$\gamma_4 + \gamma_9, \gamma_6 + \gamma_8, \gamma_6 + \gamma_2 + \gamma_4, \gamma_3 + \gamma_4 + \gamma_5$	
$^{60}\text{Co}$	1173	$\gamma_1$ (99.90%)	
	1333	$\gamma_2$ (99.98%)	
	2505	—	$\gamma_1 + \gamma_2$
$^{88}\text{Y}$	898	$\gamma_1$ (94.0%)	
	1382	$\gamma_2$ (0.021%)	
	1836	$\gamma_3$ (99.37%)	
	2734	$\gamma_4$ (0.61%)	$\gamma_1 + \gamma_3$
	3219	$\gamma_5$ (0.009%)	$\gamma_2 + \gamma_3$

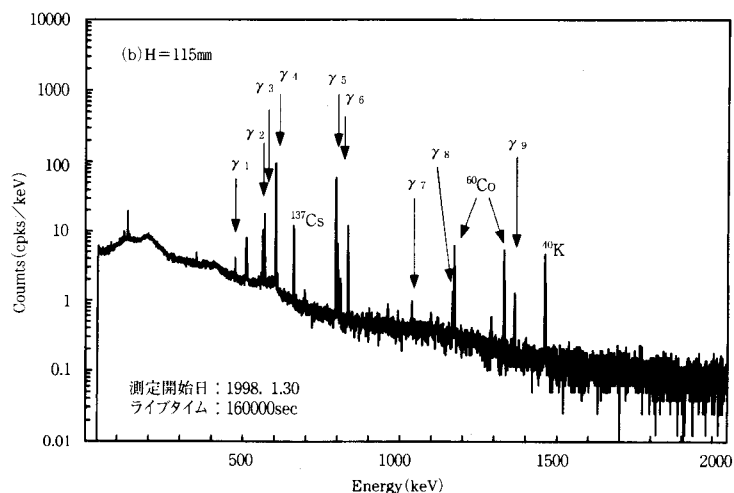
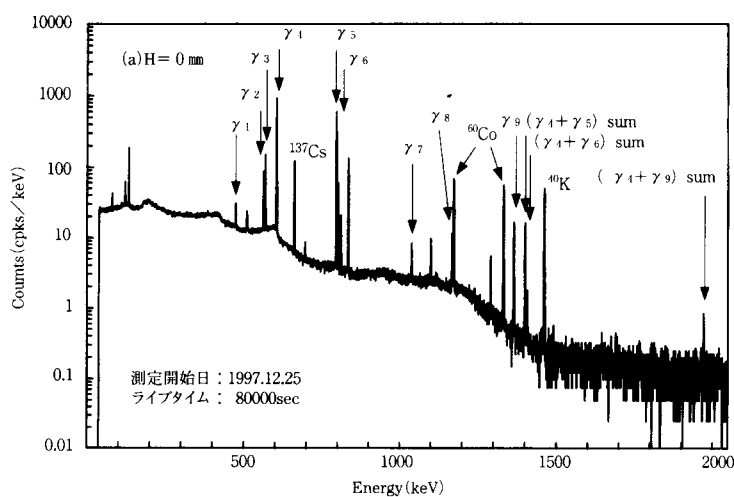


図3 模擬土壌の $\gamma$ 線スペクトル  
 $\gamma_1$ は $^{134}\text{Cs}$ の $\gamma$ 線を表す

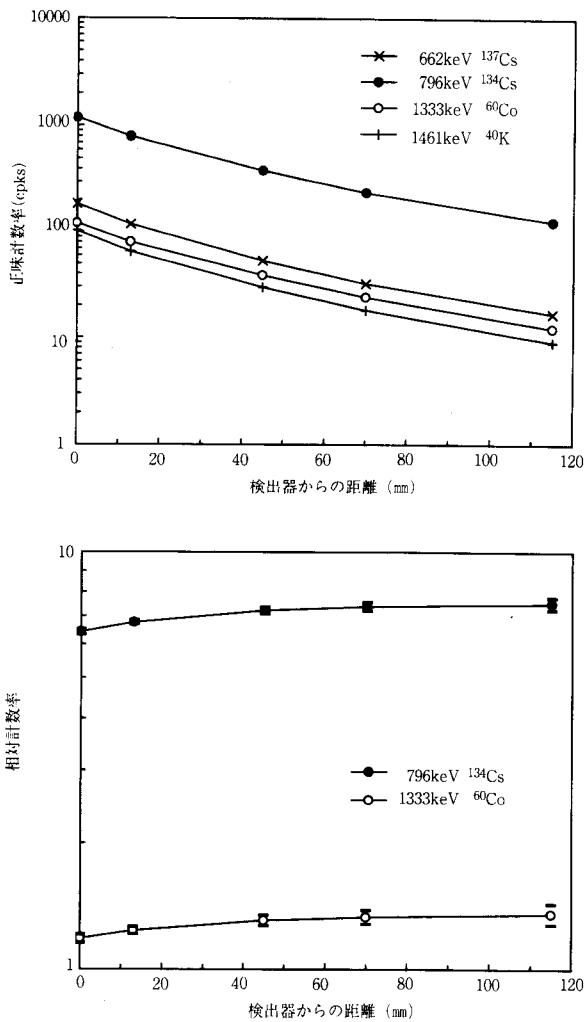


図4 検出器からの距離と計数率の関係 (模擬土壌)  
測定値上下の—は計数誤差の範囲を示す

図4(b)から、相対計数率は距離が7cm程度離れると一定値に近づくことがわかる。そこで、 $H=115\text{mm}$ ではサム効果を見捨てることと仮定すれば、 $H=115\text{mm}$ での相対計数率  $n_{115}$  を基準とした  $H=0\text{mm}$  での相対計数率  $n_0$  の減少割合  $(n_{115}-n_0)/n_{115}$  は、サム効果の程度を表す目安と考えることができる<sup>5)</sup>。この値は、 $^{134}\text{Cs}$  で0.15、 $^{60}\text{Co}$  で0.12となった。

次に、解析プログラムによるサム効果の補正率は、 $H=0\text{mm}$  での測定結果からサム補正有りとして解析した濃度  $A$  (有) とサム補正無しとして解析した濃度  $A$  (無) を用いて、 $\{A(\text{有}) - A(\text{無})\} / A(\text{無})$  として求めた。サム効果補正率は $^{134}\text{Cs}$  で0.15、 $^{60}\text{Co}$  で0.11となり、相対計数率の減少割合と良く一致した (表2)。

なお、 $^{134}\text{Cs}$  の605keV については宇宙線と検出器構成物質との相互作用に起因する干渉がある<sup>1)</sup> こと、また $^{60}\text{Co}$  の1173keV については表1からもわかるように共存する $^{134}\text{Cs}$  のサムピーク  $\gamma_3 + \gamma_4$  の干渉があることから考察対象外とした。

3.2 寒天標準試料における $^{60}\text{Co}$ 、 $^{88}\text{Y}$ のサム効果

$^{88}\text{Y}$  は軌道電子捕獲崩壊又は $\beta^+$ 崩壊の後、 $^{88}\text{Sr}$  の励起準位から規定準位に遷移する際5本の $\gamma$ 線を放出し、そのうちの2本をカスケードに放出する。測定は高さの異なる5個の寒天試料について行い、 $^{88}\text{Y}$ の898keV、1836keV及び $^{60}\text{Co}$ の1173keV、1333keV $\gamma$ 線について模擬土壌の場合と同様にサム効果による相対計数率の減少割合と解析プログラムによるサム効果補正率を求めた。結果を図5に示す。図では、解析プログラムによるサム効果補正率を曲線で、相対計数率の減少割合をマークでプロットした。なお、寒天試料は $^{40}\text{K}$  を含まないため、この場合の相対計数率は全エネルギーについて $^{137}\text{Cs}$ の662keV $\gamma$ 線を基準とした。

同じ濃度の放射能を含む試料でも、高さが高くなると試料中の検出器から離れた部分は近接した部分よりもサム効果が起こり難くなるため、低い試料よりも高い試料のほうがサム効果による影響が少なくなることが予測される。

図5から、解析プログラムによるサム効果補正率は全エネルギーで高さとともに滑らかに減少しており、試料高さを考慮した補正が行われていることがわかる。これに対し、相対計数率の減少割合から見たサム効果の大きさはばらつきが大きく、エネルギーの低い898keVの $^{88}\text{Y}$ を除いて高さとともに減少する傾向は明確には見られなかった。

この理由の一つとして、相対計数率を求める際全エネルギーについて $^{137}\text{Cs}$ の662keV $\gamma$ 線を基準としたため、高エネルギー側で自己吸収の違いが現れたことが考えられる。すなわち、エネルギーが高いほど $^{137}\text{Cs}$ の662keV $\gamma$ 線に比べて自己吸収による減衰を受け難く、また試料高さが高くなるほどその差は大きくなる。このためエネルギーの高い $^{88}\text{Y}$ の1836keVで顕著に見られるように、試料高さが高いほど見かけ上相対計数率が大きくなり、サム効果による相対計数率の減少割合が実際よりも大きくなって現れたものと思われる。この他の理由については今後の検討課題である。

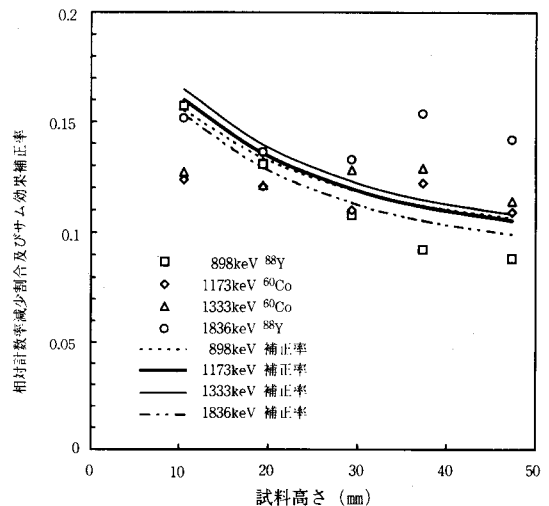


図5 試料高さとサム効果の大きさとの関係 (寒天標準試料)

表2 模擬土壌の<sup>134</sup>Csと<sup>60</sup>Coに対するサム効果の影響

(a)サム効果による相対計数率の減少割合

	H (mm)	相対計数率n	$\{n_{115}-n_0\}/n_{115}$
<sup>134</sup> Cs (796keV)	0	6.41±0.09	
	115	7.50±0.25	0.15±0.04
<sup>60</sup> Co (1333keV)	0	1.18±0.03	
	115	1.35±0.08	0.12±0.06

(b)解析プログラムによるサム効果補正率

	サム補正	放射能濃度A (Bq/g)	$\{A(\text{有})-A(\text{無})\}/A(\text{無})$
<sup>134</sup> Cs (796keV)	無	0.9062±0.0048	
	有	1.0413±0.0055	0.15±0.01
<sup>60</sup> Co (1333keV)	無	0.1171±0.0018	
	有	0.1305±0.0020	0.11±0.02

#### 4 ま と め

容積線源を用いて測定値に及ぼすサム効果の大きさについて検討した。その結果、

- 1) サム効果の影響は試料を検出器から7cm程度以上離すとほぼ無視できる。
- 2) 模擬土壌の<sup>134</sup>Cs及び<sup>60</sup>Coの測定値におけるサム効果の割合はそれぞれ0.15及び0.12であり、解析プログラムの補正率0.15及び0.11とよく一致した。
- 3) 寒天標準試料を用いたサム効果の試料高さ依存性についての測定結果では、エネルギーの低い898keVの<sup>90</sup>Yを除いて試料高さとともにサム効果の大きさが減少する傾向は明確には見られなかった。その理由の一つは、相対計数率の基準を全エネルギーについて<sup>137</sup>Csの662keV $\gamma$ 線としたため高エネルギー側で自己吸収の違いが現れ、試料高さが高いほど見かけ上のサム効果の大きさが大きくなったためと考えられた。

なお、解析プログラムのサム効果補正率は全エネルギーで高さとともに滑らかに減少しており、試料高さを考慮した補正が行われていた。

今回の検討により、相対検出効率40%程度の検出器ではサム効果がどの程度測定値に影響を及ぼしているか把握す

ることができた。今後は相対検出効率の異なる検出器についてもサム効果の大きさを把握するとともに、試料高さとの関係についてさらに検討を行うこととしたい。

#### 5 謝 辞

この研究は、金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設長の小村教授にサム効果について助言をいただいたことがきっかけとなりました。ここに改めて感謝申し上げます。

#### 文 献

- 1) 科学技術庁：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（3訂），平成4年8月。
- 2) 野口 正安： $\gamma$ 線スペクトロメトリー，日刊工業新聞社（1980）。
- 3) 平成9年度 放射能分析確認調査放射能分析確認事業（立地県）実施要領，科学技術庁 防災環境対策室。
- 4) 村上悠紀雄，團野 皓文，小林 昌敏編：放射線データブック，地人書館（1982）。
- 5) 石川 陽一，他：宮城県原子力センター年報，5，52（1986）。