

低バックグラウンド型Ge半導体検出器を用いた土壌中の  
U-238, Ra-226同時迅速分析法

道広憲秀 宮崎 清 清水光郎 信森達也 (放射能科)

【資 料】

## 低バックグラウンド型Ge半導体検出器を用いた土壌中の U-238, Ra-226同時迅速分析法

道広憲秀 宮崎 清 清水光郎 信森達也 (放射能科)

[キーワード: U-238, Ra-226, Th-234, U-235]

### 1 はじめに

核燃料施設の事故や異常値発見に際して汚染源と経路の特定や被曝線量評価等のためには、環境試料中の放射能のモニタリング結果を速やかに得ることが重要である。

放射線等監視測定における土壌中のU-238分析において、現行法 ( $\alpha$ 線スペクトロメトリ)<sup>1)</sup>では試料の前処理、分離・精製、測定をして結果がでるまでに、2週間程度の日数が必要である。またRa-226分析については、現行法 (BaSO<sub>4</sub>共沈+全 $\alpha$ 測定)<sup>2)</sup>では、試料の分離・精製後、測定までに子孫核種との放射平衡を待つために、結果が出るまでには約40日間を要する。筆者らが行った $\gamma$ 線スペクトロメトリによるU-238, Ra-226の非破壊同時分析<sup>3)</sup>でも、Ra-226とBi-214との放射平衡を待つために同様に約40日の期間を必要とした。

Ge半導体検出器を用いた $\gamma$ 線スペクトロメトリでは試料採取後に化学的な処理を必要とせず、試料を測定容器に詰めるだけで測定できるので速やかに結果を得ることができる。今回、低バックグラウンドの測定システムを用いて、U-238, Ra-226の測定について定量方法の検討を行った。特にRa-226については、土壌をU8容器に詰めた後その子孫核種との放射平衡を待つことなく、直ちに186 keVのピークを測定する方法を検討した。このピークは、放出比が3.3%と低い上に、U-235のピーク (放出比54%) と重複するという悪条件を伴うため、環境試料中の定量分析にはほとんど利用されていない。しかしこの方法を確立できれば、U-238, Ra-226の分析結果を2, 3日以内に得ることができるようになる。

なお $\gamma$ 線スペクトロメトリでは、付加情報としてトリウム系の核種、K-40及びフォールアウト核種の濃

度も同時に測定できる利点がある。また本方法では供試料量が50~100 gであるため、現行の5 gを用いる $\alpha$ 線測定に比べて代表性と再現性が高い長所もある。

### 2 実験方法

#### 2.1 測定方法

##### ①対象ピーク

U-238については、 $\gamma$ 線を放出する子孫核種Th-234との放射平衡を仮定してその $\gamma$ 線ピーク63keV<sup>3),4)</sup>を測定した。

Ra-226については、Ra-226の子孫核種であるPb-214やBi-214の $\gamma$ 線ピークが、一般的にはよく使われる。環境土壌中では、Ra-226が $\alpha$ 崩壊して途中Rn-222となるが、Rn-222は気体であるために少なからず空气中に散逸してしまう。従ってサンプリングした土壌では、親核種のRa-226とその子孫核種 (Rn-222, Pb-214, Bi-214) との間で、放射平衡は成立していない。そのために土壌試料をU8容器に詰めた後、完全密封してRa-226とPb-214, Bi-214が放射平衡に達するまで約1ヶ月間放置してから測定する必要がある。一方、本方法は、土壌試料をU8容器に詰めた後、Ra-226が直接出す $\gamma$ 線ピーク186keVを計測するので、1ヶ月間を待たずに直ちに測定できる。

Ra-226が出す $\gamma$ 線のエネルギーは、表1に示すように186keVのみで放出比も3.3%と低い上に、このピークはU-235が放出する $\gamma$ 線ピークの一つと重複している。したがってRa-226の定量のためにはU-235の寄与分を正確に除く必要がある。U-235には、144keVに単独ピークがあるのでこれを用いて、妨害補正を行なった。計算は(1)式となる。

表1 Ra-226とU-235の核データ<sup>2)</sup>

	エネルギー (放出比%)		エネルギー (放出比%)
Ra-226	186keV (3.3%)	U-235	144 keV (11 %)
			163 keV (4.7%)
	186 keV (54 %)		
	205 keV (4.7%)		

$$C_{ra} = C_{186} - C_{U235 \cdot at144} \times \gamma_{U235 \cdot at186} / \gamma_{U235 \cdot at144} \times E_{f_{186}} / E_{f_{144}} \quad \text{---- (1)}$$

C<sub>ra</sub> : 186keVピークのRa-226正味の計数

C<sub>186</sub> : 186keVピークの計数

C<sub>U235 \cdot at144</sub> : 144keVピーク (U-235) の計数

$\gamma_{U235 \cdot at186}$  : U-235の186keVピークの放出比

$\gamma_{U235 \cdot at144}$  : U-235の144keVピークの放出比

E<sub>f<sub>186</sub></sub> : 検出器の186keVピークにおける検出効率

E<sub>f<sub>144</sub></sub> : 検出器の144keVピークにおける検出効率

## ②低バックグラウンドの確保について

低レベル放射能を精度良く測定するためには、バックグラウンドが低いことが不可欠である。特に複合ピークである186keVを用いてRa-226を定量するためには、低バックグラウンドであることが必要である。測定対象であるU-238及びRa-226は、U系の天然放射性核種として一般環境中に広く存在している。さらにTh系やK-40等も加えた天然放射性核種の影響を受けないようにすることも必要である。すなわち検出器のエンドキャップや遮蔽体を構成するアルミニウム、鉄や鉛中にも、これらの核種は不純物として多かれ少かれ含有されている。バックグラウンド対策として、今回使用した測定装置には、放射性核種の含有量が極めて少ない素材が、厳選採用されている。また測定室内空気中にもRn-222, Rn-220及びこれらの子孫核種が存在するので、冷却用のデュアビンの液体窒素から発生する窒素ガスを遮蔽体内に導入して、遮蔽体内のエアパージを行った。

## 2.2 効率校正と測定試料

効率校正は日本アイソトープ協会製の寒天試料（5つの高さのものをそれぞれ測定）を用いて行った。寒天試料は、Cd-109, Co-57, Ce-139, Cr-51, Cs-137, Mn-54, Y-88, Fe-59, Co-60の9核種混合標準である。

U-238とRa-226の分析結果の確度と精度の検証は、

比較標準模擬土壌と環境土壌を測定して行った。比較標準模擬土壌には、U-238とRa-226の放射平衡が保証され値付けされたNBL3-B (U<sub>3</sub>O<sub>8</sub>; 3.9%) を用いた。NBL3-Bをリン酸水素二ナトリウム無水塩に良く混ぜたもの60gをU8容器に詰めた後、アクリル樹脂製の円板と充填性のある接着剤（新興プラスチック株製アクリルダイン）を用いて密封した。この試料のU-238とRa-226添加濃度は、8.91Bq/gであり、その高さは、3.0cmとした。密封する理由は、Ra-226と子孫核種の放射平衡を待つて1ヵ月後にPb-214 (351keV) を測定して、その数値を本方法によるRa-226の結果と比較するためである。

環境土壌2試料については、ウラン鉱脈のある地域で採取した土壌を乾燥後に粉碎して、同様にU8容器に詰めて密封した。この2つの試料については、同時にα線測定 (U-238; α線スペクトロメトリ, Ra-226; BaSO<sub>4</sub>共沈+全α計数法) を行なった。

## 2.3 測定機器

測定には、下表の高純度ゲルマニウム半導体検出装置を使用した。測定時間は、80,000秒とした。

表2 高純度ゲルマニウム半導体検出装置の仕様

項目	規格仕様
検出器	CANBERRA社製 ULB-GR3019 ウインドウ;ベリリウム製 (0.5mm)
前置増幅器	CANBERRA社製 2002C
主増幅器	CANBERRA社製 9615
高圧電源	CANBERRA社製 9645
波高分析器	CANBERRA社製 9633
印加電圧	-4,000V
測定エネルギー範囲	25~2000 keV
分解能	0.92keV at 122keV
試料容器	アクリル樹脂製U8容器
遮蔽体	鉛;15cm, 銅;0.2cm
設置環境	室温;23±2℃, 湿度;50~80%
スペクトル解析	CANBERRA社製 γ線エクspロー

## 3 結果及び考察

バックグラウンドのスペクトルを図1に示したが、わずかな陽電子消滅放射線511keVのピーク以外は認められず、必要な低バックグラウンドは十分に達成できた。図2-1, 図2-2には、比較標準模擬土壌のスペクトルとその拡大スペクトルを示した。

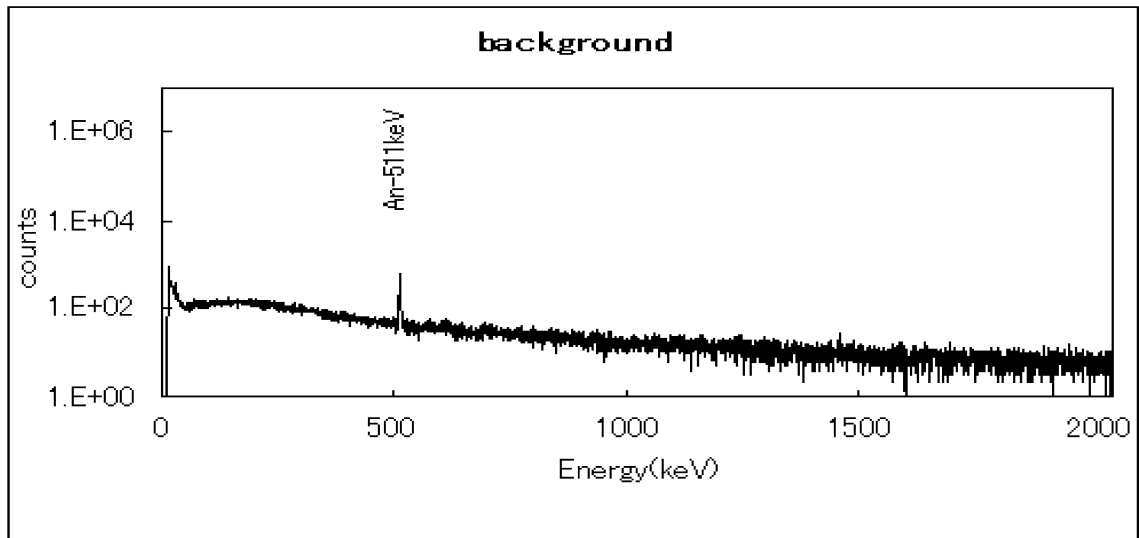


図1 バックグラウンドのスペクトル

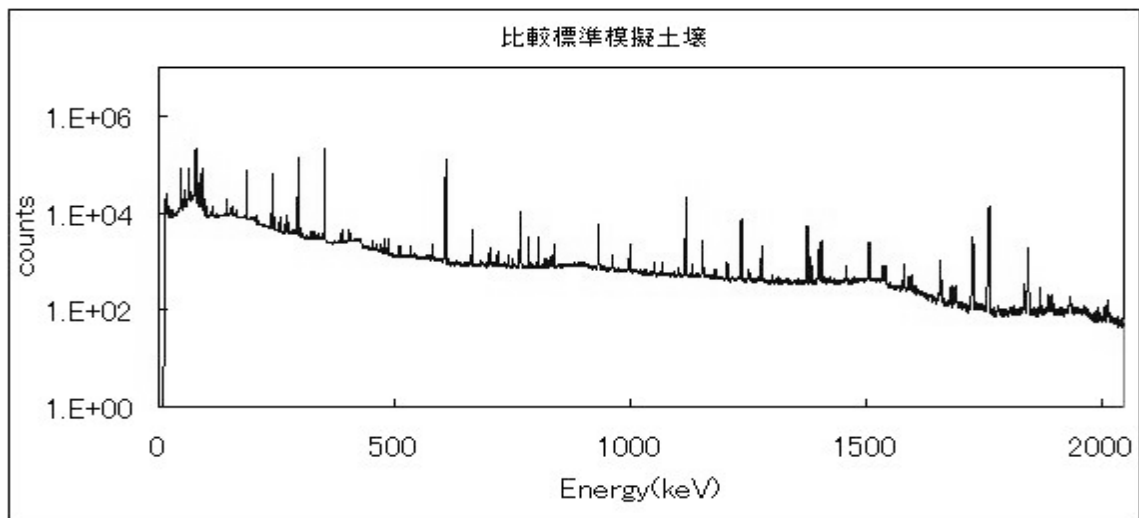


図2-1 比較標準模擬土壌のスペクトル

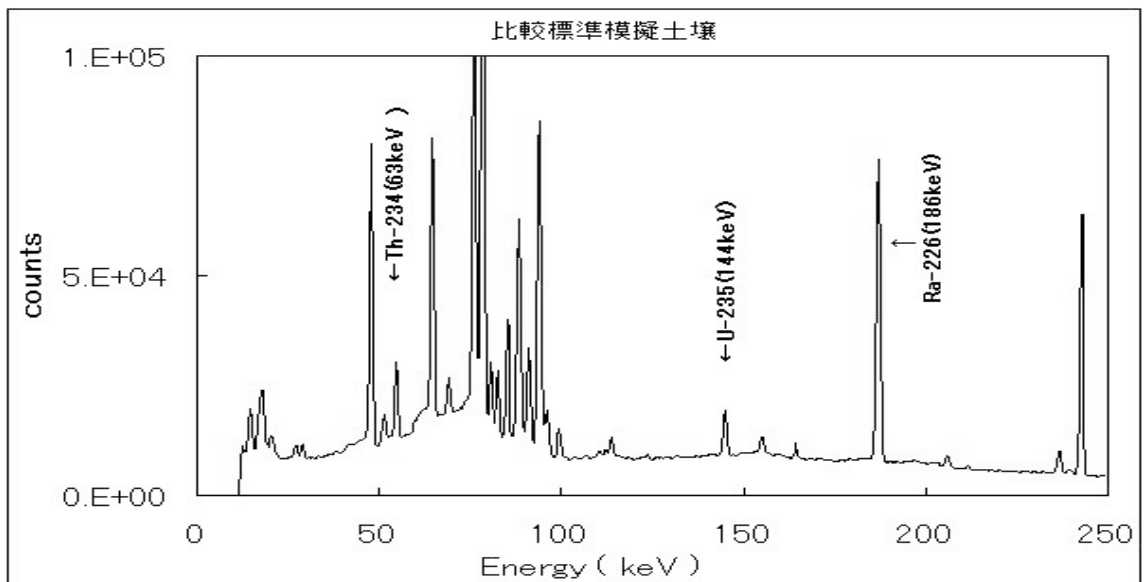


図2-2 比較標準模擬土壌のスペクトル (目的ピークの拡大)

表3 測定結果の比較

単位 : Bq/g

試料名		γ線分光分析		現行法 U-238: α線スペクトロメトリ Ra-226: BaSO <sub>4</sub> 共沈 + 全α計数法	他機関の結果 (γ線分光分析)
		本方法	Ra-226の1ヶ月後の測定 (Pb-214; 351keV)		
S-1 (比較標準模擬土壌) 添加値は、U-238, Ra-226 ともに8.91 Bq/g	U-238	8.92 ± 0.032	—	—	—
	Ra-226	8.66 ± 0.14	8.61 ± 0.012	—	—
S-2	U-238	0.185 ± 0.0056	—	0.129 ± 0.0026	0.158 ± 0.010
	Ra-226	0.356 ± 0.026	—	0.262 ± 0.0006	—
S-3	U-238	1.17 ± 0.011	—	1.23 ± 0.045	1.31 ± 0.022
	Ra-226	1.16 ± 0.048	1.24 ± 0.004 (0.95 ± 0.0025)	1.24 ± 0.012	—

注) 括弧内は、最初の測定結果である。密封が不完全であったため低目の値となったので、詰め替えて再測定をした。

測定結果の比較を表3に示した。比較標準模擬土壌S-1について、U-238とRa-226の結果は、両者ともに添加値と10%内で一致しており、環境モニタリングの精度として満足できるものであった。なおS-1の試料ブランク中のU-238とRa-226濃度は、添加値に対して無視できるレベルであった。S-1に用いたNBL3-Bについては、濃度とともにU-238とRa-226の放射平衡の成立が保証されている。このため、U-238濃度とRa-226濃度は本来一致するはずであるが、結果は計数誤差の2倍をわずかに超えていた。このことについては次のように考えられた。

α線スペクトロメトリやICP-MS法によるウラン同位体比の測定においては、検出効率がどの同位体も同一であるが、γ線スペクトロメトリで核種間の比率を求める場合には、エネルギーにより効率は異なり、検出効率曲線の介在による不確かさが原理的に発生する。そのため同時分析であっても、この程度の誤差は生じるものと考えられた。Ra-226の結果について、1ヶ月後にPb-214 (351keV) 測定を行って得た結果とは、良く一致した。

環境土壌(S-2, S-3)については、現行法であるα線測定による結果との比較を表3に示した。α線測定の結果については、前処理としてU-238は硝酸浸出を、Ra-226は硫酸分解を行っているため、直接、本方法の結果とは比較はできないため参考値となる。S-2の結果は、U-238とRa-226はともにα線測定の方が約30%低かったが、S-3では計数誤差の範

囲で両方法は一致した。U-238については、S-2, S-3について他機関(日本分析センター)とクロスチェックを行ったが、「両機関の差が日本分析センターの分析値の20%内」という検討基準に合致した。

Ra-226の結果についてS-3はPb-214の(351keV)測定では、186 keVの結果1.16 ± 0.048 Bq/gに比べて、最初はカッコ内に示されているようにやや低目の結果であった。容器の密封が不十分であったためRn-222が漏れ出たためと考えられた。そのために試料を詰め込み直して密封をして1ヶ月経過した後に再測定した結果は、Ra-226(186keV)の直接測定の結果と計数誤差2σ内で一致した。このことから気体をアクリル樹脂製U8の容器に完全密封することはかなり困難を伴い、外観からは確認できない程度の僅かな隙間、ひびや縦方向の擦り傷によって、容器の密封が損なわれることが考えられた。その点からも本方法は、Ra-226測定のために密封する必要はないので、確実に利便性が高いことになる。

#### 4 まとめ

γ線スペクトロメトリの利点を生かして、U-238とRa-226を迅速かつ正確に同時測定する方法を開発することができた。今後は、一定数の環境試料を測定しながら、効率校正についてもさらに検討して精度の向上を図りたい。

## 文 献

- 1) 文部科学省：ウラン分析法（平成14年度版），放射能測定シリーズ14，（財）日本分析センター，千葉，2002
- 2) 文部科学省：ラジウム分析法，放射能測定シリーズ19，（財）日本分析センター，千葉，1990
- 3) 道広憲秀，杉山広和等： $\gamma$ 線スペクトロメトリによる土壌中の $^{238}\text{U}$ ， $^{226}\text{Ra}$ の非破壊同時測定法，岡山県環境保健センター年報，11，116～119，1987
- 3) Taylor H.W.：Gamma Rays Emitted by Uranium and Thorium in the Energy Range 10-120keV，Int.J.Appl.Radiat.Isot.，24,593,1973
- 4) Browne E.，Firestone R.B.，Shirley V.S.，Table of Radioactive Isotopes，WILEY-INTERSCIENCE，New York(1987)