主　論　文　の　要　約

論文題目　　高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いた放射能決定過程における信頼性向上に関する研究

氏　　名　　板津　英輔

論　文　内　容　の　要　約

わが国では原子力関連施設周辺におけるモニタリング活動をはじめとして、高純度ゲルマニウム半導体(HPGe)検出器を用いた測定対象試料の中に含まれる放射能測定が日常的に行われている。この放射能測定は、HPGe 検出器内における光子の全エネルギー付与事象について、付与されたエネルギーに比例して出力されるパルスの波高およびその計数をヒストグラム化して得られるスペクトルの収集によりなされている。スペクトルからは、定量しようとする核種が放出する核種特有の光子エネルギーに着目し、その光子エネルギーに対応する、ピークの正味計数率を得る。放射能の決定は、この正味計数率、核種に固有の壊変当たりの光子放出数(放出率)および測定系の検出効率を用いてなされる。

この放射能決定過程で適用される検出効率としては、検出系の正確な幾何学的効率(幾何効率)はもとより、光子の試料中における減弱および真の同時計数加算効果(サム効果)が補正された効率が用いられなければならない。さらに、定量された放射能値は、核種壊変に伴う統計的な計数のばらつきをはじめ、様々な要因により引き起こされるばらつきをもち、真の放射能値とは異なる値を示す。真の値を知ることはできないものの、定量された放射能値を挟む一定の範囲内にある確率で真の放射能が存在することを示すことはできる。この一定の範囲は”不確かさ”と呼ばれており、妥当な不確かさの見積もりは測定の信頼性確保につながる。これら、検出効率の決定と不確かさの提示が揃ってはじめて信頼できる放射能決定が行われたといえる。

本研究では、放射能決定過程における信頼性確保を念頭に、検出効率を高精度に求める手法の提案を行った。また、多様な試料形状中の光子減弱補正(自己吸収補正)手法を開発した。とりわけ、試料充填体積が 1000-cm^3 (1 L)のマリネリ容器(1 L マリネリ容器)に対しては、はじめてその補正方法を得るとともに、補正の妥当性も併せて示した。

さらに、実際の放射能測定機関に対して、従来の試料測定時の計数統計に起因する不確かさに加えて、追加で考慮すべき不確かさをそれらの算出手法とともに示した上で、放射能値とともに不確かさとして報告する技能試験を初めて実施した。技能試験の結果は参照値およびその不確かさと比較を行い、本手法の妥当性を示した。

本論文は 5 章から構成され、以下に各章毎の要約を記す。

第 1 章：序論

本章では放射能決定過程の現状、課題および本研究の目的について述べる。放射能値の決定に直接影響を与える検出効率の決定方法および、決定された放射能値の尤もらしさを示す不確かさの決定方法は多くの手法が公表されている。特にわが国では放射能測定法シリーズ(公定法)にそれらの代表的手法が示されている。公定法に基づく放射能の決定手法は、市販のプログラムにも採用されているため、広く放射能定量を実施する機関で利用されている。

前者の検出効率の決定方法は、定量対象試料と同一の形状を有する放射能標準ガンマ体積線源(標準線源)を用いる手法が最も広く用いられているが、標準線源が事前に準備されていない、任意形状の試料に対しては適用することができない。ところで、緊急性を要する場面に対しては、事前に準備された定型の試料形状ではなく、意図しない試料形状の測定要求も生じうる。このような、迅速性を優先する放射能定量要求の存在と、その定量のための検出効率迅速決定という解決されるべき課題を示した。さらに、正確さを優先する放射能定量要求に対しては、検出効率の正確な決定に不可欠である自己吸収補正手法に関して解決されるべき課題を示した。

後者の不確かさの決定方法に関しては、現在の放射能測定における標準的な手法である公定法で考慮されている、測定時の計数統計に起因する不確かさのみを用いる決定方法に対して、妥当な放射能の不確かさを得るために、追加で検討されなければならない不確かさの存在を課題として示した。

第 2 章：HPGe 検出器のための検出効率迅速決定手法の開発

本章ではモンテカルロ・シミュレーションを用いた HPGe 検出器の検出効率決定法を述べている。HPGe 検出器を用いて得られるスペクトルから測定対象試料に含まれる放射能の決定を行うためには、検出器の測定対象試料に対する検出効率の決定が必要である。測定対象試料の形状が限定されている場合、その対象試料と比較して、同一形状かつ同一媒質の標準線源を用いた校正を実施することで検出効率が決定できる。多種類にわたる試料形状の容器に充填された試料を測定対象とする場合、それらすべての形状について校正が実施されなければならず、その校正のためには標準線源を購入または作製する必要がある。

ところで、緊急時をはじめとする、事前に想定されていない容器に充填された試料の定量要求に対しては前述の標準線源は形状が異なるため利用できない。このような場面では、検

出効率決定手段の一つとして従来からモンテカルロ・シミュレーションが用いられている。

しかしながら、モンテカルロ・シミュレーションを行うためには検出器内部の有感領域と、その表面に存在する不感層を忠実に再現しなければならない。メーカが提示する不感層の厚さおよび分布は公称値であり、実際の数値が表記されているものではない。そのため、この数値をもとにしたシミュレーションで得られる計算された検出効率の結果は実測結果に一致しない。

本研究では HPGe 検出器に関して、検出器の詳細モデル化のための有感領域の外部に存在する不感層の位置および厚さを 59 keV～1332 keV の光子を用いて決定する手法を提案し、実際の検出器に本手法を適用して検出効率算出を行った。その結果、標準線源の校正値と比較して、放射性セシウムの定量に使用されるような、実用的な光子エネルギー範囲で、校正放射能値の不確かさ(包含係数 $k = 2$, 95%の信頼水準において)程度である 5～10%の差異で測定対象の放射能が決定できることを示した。

第 3 章：1 L マリネリ容器を用いる放射能定量手法の高度化

本章では、体積状試料の中でも特に要求が多く、わが国の放射能測定の現場で緊急的に解決する必要がある 1L マリネリ容器に充填された試料内部における光子減弱の補正(自己吸収補正)方法の開発に関して述べている。

当該容器は、充填体積が試料を準備するうえで適当であり、なおかつ前処理が簡易であることから、食品中の放射能決定のために用いられてきた。特に福島第一原子力発電所事故以降では、当該容器による測定要求が著しく拡大した。しかしながら、当該容器を利用した放射能決定過程での自己吸収補正方法は確立されておらず、さらに公定法でもその具体例は示されていないため、当該容器を用いた放射能決定では、自己吸収の補正が実施されていなかった。そこで本研究では当該容器に充填された媒質内における自己吸収補正方法を新たに開発し、独自に準備した放射性セシウムを含む玄米を用いて、補正方法の妥当性を予備的に示した。

次に、組成および密度が異なる標準線源を 4 種類作製し、本手法を用いて放射能が未知の試料とみなして定量を行い、実際の環境試料に対して十分な線減弱係数の範囲の媒質における補正の妥当性確認を行った。その結果、線減弱係数が 1 cm^{-1} 程度までの範囲において、本手法を用いた自己吸収補正が妥当に適用された検出効率が得られ、決定された放射能値は校正された放射能値と不確かさの範囲で一致し、本手法を用いた正確な放射能定量が可能であることが示された。

さらに、本研究の成果をもとに開発されたソフトウェアを、複数の測定機関に頒布し、実際の環境試料である放射性セシウムを含む玄米認証標準物質を用いた相互比較試験を行った。その結果、これらの機関が所有する、互いに異なる寸法の検出器を用いた放射能決定においても得られた放射能値は認証値と比較して不確かさの範囲で一致するという妥当な結果が得られた。これにより本手法を用いた放射能決定手法が実用的に用いられている HPGe

検出器に対しても有効であることが示された。

第 4 章：放射能測定機関を対象とした不確かさ決定手法の開発

本章では、放射能測定の信頼性を示す重要な指標である不確かさに関する実用的な算出手法の提案について述べている。提案した手法は広く放射能測定を手がける測定機関がすでに所有するソフトウェアを用いて算出可能な手法とした。

そのうえで、HPGe 検出器を用いた放射能測定を業務としている機関を中心に 145 機関を対象として、この提案に基づいた不確かさ算出を伴う放射能測定の技能試験を実施した。技能試験では参加者に対して放射性セシウムを含む玄米が試料として配付された。参加者に対しては自ら所有する HPGe 検出器を用いて試料の測定を行い、放射性セシウムの放射能値を決定し、報告することを依頼した。併せて、今回提案した不確かさ算出手法を参考として示し、参加者に不確かさの見積もりを依頼した。この結果、本手法に基づく全ての測定機関から報告された放射能値およびその不確かさは、あらかじめ評価された参照値およびその不確かさと比較して妥当なものであった。

これにより、わが国の放射能測定における不確かさ算出手法の候補としての本手法の有効性を示すと共に、放射能定量ソフトウェアの不確かさ算出に関する設計指針を示すことができた。

第 5 章：結論と今後の展望

本章では、本研究のまとめと今後の展望について述べている。第 2 章で得られた手法により、検出効率の決定を行い、5~10%程度の相対拡張不確かさ(k = 2)の範囲で放射能標準を用いて得られる検出効率と一致する結果が得られた。とりわけ放射能決定が高精度に求められる試料に対しては、第 3 章で示した手法を用いて放射能標準が有する不確かさと同程度の不確かさ(3~5%, k = 2)で自己吸収を含めた効率が決定できることが示された。さらに、実際の測定機関を対象に第 4 章で示した手法をもとに相互比較試験および技能試験を実施した結果、測定機関から妥当な結果が報告された。

本研究の結果、わが国の放射能測定における信頼性に関して従来から課題とされていた自己吸収補正方法を公定法と親和性の高い手法で実現すると共に、信頼性を示す上で極めて重要な不確かさ算出法を具体的に確立した。

本研究は HPGe 検出器を対象に行われ、その成果は放射能決定過程における信頼性確保のために寄与することができた。その半面、NaI(Tl)シンチレーション検出器をはじめとする、簡易型の放射能測定装置では放射能決定過程が様々であり、正確な自己吸収補正の実施および不確かさの算出がなされていない事例も認められる。今後、本研究の成果をこれらの簡易的な放射能測定に適用することで、自己吸収の効果を加味した正確な効率決定および妥当な不確かさの導出が見込まれ、簡易的な放射能測定に対しても高度な信頼性確保が期待できる。