

研究資料 (Research record)

森林生態系内で採取した試料中の ^{137}Cs 放射能の効率的な測定方法の検討： ゲルマニウム半導体検出器で使用する測定容器の選択とその測定誤差について

大橋 伸太^{1)*}、赤間 亮夫²⁾、池田 重人³⁾、星野 大介⁴⁾

要旨

森林生態系内で採取した試料の放射性セシウム (^{137}Cs) の放射能測定効率化に資することを目的とし、粉碎した試料を同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせで測定する通常の方法と比較して、試料を粉碎せずにマリネリ容器に疎な状態で充填して測定した場合、ならびに少量の試料をウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせで測定した場合に、どの程度の誤差が生じるのかを調べた。また、ウェル型 Ge 検出器での測定については、試料による γ 線の自己吸収の補正方法が確立されていないため、簡易に行える適当な自己吸収補正方法についても検討した。上記のマリネリ容器および #737 容器のどちらにおいても、U-8 容器での測定と比較して、系統誤差は見られなかった。偶然誤差の増加は、前者で 7% 未満、後者で 6% 未満だと考えられた。ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせの測定では、自己吸収補正を同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせの測定と同様に行うと得られる値がやや小さくなる傾向があり、自己吸収補正の設定で密度を標準線源の値にするか、自己吸収補正を行わない方が妥当な値が得られた。試料の量よりも容量が小さい測定容器を用いて試料の一部を測定すると、粉碎した試料であっても誤差が大きくなる傾向が見られたため、試料の量に応じて測定容器を選択することが、測定の効率化と誤差の低減の双方にとって重要であることがわかった。

キーワード：同軸型 Ge 検出器、ウェル型 Ge 検出器、マリネリ容器、U-8 容器、#737 容器

1. はじめに

東京電力福島第一原子力発電所事故によって森林生態系内にもたらされた放射性セシウム (^{137}Cs) は、物理学的半減期が 30 年ということに加え、系外への流出は僅かであるため (Shinomiya et al. 2014)、かなりの長期にわたり森林生態系内に残存することになる。そのため、 ^{137}Cs 汚染地域において森林・林産物等の利用による放射線被ばくを適切に管理するには、今後も森林生態系における ^{137}Cs の放射能分布を長期的にモニタリングする必要がある。一方、時間の経過とともに研究リソースは限られてくる上、 ^{137}Cs の放射能は放射性壊変によって低下して測定が長時間化するため、モニタリングの継続は容易なことではなく、放射能測定の効率化はかねてより重要な課題となっている。また、多様な構成要素が不均一に分布する森林生態系でのモニタリングでは、必然的に測定試料の点数が多くなるため、放射能測定の効率化は特に重要である。

環境試料中の ^{137}Cs の放射能測定には、一般的にゲルマニウム半導体検出器 (以下、Ge 検出器) やヨウ化ナトリウム半導体検出器 (以下、NaI 検出器) が用いられる。オー

トサンプラーを搭載した NaI 検出器は多数の試料を測定する上で有用であるが、Ge 検出器に比べて ^{137}Cs の放射能測定の精度が劣ることや、測定できる試料の量が少ない (20 mL 程度) ことなどから、使用できる場面が限定される。様々な種類・量・放射能レベルの試料を柔軟にかつ高精度に測定するため、森林総合研究所では主に Ge 検出器を用いて ^{137}Cs の放射能測定を行っている。Ge 検出器には、検出器の形状によって同軸型やウェル型等のタイプがあるが、通常は同軸型が用いられる。Ge 検出器による測定に関する原理・原則・用語・手順等の詳細については、「放射能測定法シリーズ No.7 ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー」(原子力規制委員会 2020) を参照されたい。

試料中の放射能は、試料から放出される γ 線の数を Ge 検出器でカウント (計数) することで求める。その計数誤差はカウント数 n の平方根 \sqrt{n} (ポアソン分布) に従うため、相対誤差 $1/\sqrt{n}$ はカウント数が多いほど小さくなる。このため、測定の精度を上げるためにはより多くのカウント数を得る必要があり、試料の量 (重量) を増やすか、測定時間を長くすることになる。この他にも、試料から

原稿受付：令和 2 年 11 月 20 日 原稿受理：令和 3 年 2 月 25 日

1) 森林総合研究所 木材加工・特性研究領域

2) 元森林総合研究所 震災復興・放射性物質研究拠点

3) 森林総合研究所 震災復興・放射性物質研究拠点

4) 森林総合研究所 森林植生研究領域

* 森林総合研究所 木材加工・特性研究領域 〒305-8687 茨城県つくば市松の里 1

放出された γ 線が検出器に到達する確率（幾何学的効率；試料と検出器の距離、試料容器・検出器の形状、試料の充填高等に依存する）や、試料自身が γ 線を吸収する（以下、自己吸収）確率（試料の密度や試料容器の形状等に依存する）によっても計数効率は変わってくる。したがって、Ge 検出器で試料中の放射能を効率的に測定するには、試料の量や放射能濃度に応じて適切なサイズ・形状の測定容器を選択する必要がある（原子力規制委員会 2020）。同軸型 Ge 検出器で一般的に用いられる測定容器としては、マリネリ容器（Ge 検出器のセンサー部を覆う形状、容量 0.7 L もしくは 2 L）と U-8 容器（円筒形、充填高 50 mm で容量約 90 mL）の主に 2 種類がある（Photo 1a, c）。いずれの容器においても、試料は粉碎等で均質化し、偏りのないよう容器に充填するのが原則である（文部科学省 1982, 原子力規制委員会 2020）。 γ 線の計数効率（試料から放出された γ 線が検出器でカウントされる確率 [counts per γ ray]; 以下、ピーク効率）は、容器の形状や試料の充填高によって異なり、さらに Ge 検出器のモデルによっても異なるが、森林総合研究所での例を Table 1 に示す。形状が比較的単純な U-8 容器は、試料の充填高に応じたピーク効率の補正が可能であるため、試料の量が 90 mL（試料充填高 50 mm）未満であっても問題なく使用することができる。一方、形状が特殊なマリネリ容器は、試料を定量（標準線源と同量）まで充填して使用することが前提であるため、量が容器の容量に満たない試料を充填するためには、分析対象の放射性核種を含まない物質（分析対象が ^{137}Cs の場合は硫酸ナトリウム等）を混合してかさ増しする必要がある。

Ge 検出器による放射能の測定効率（本研究資料では試料から放出される γ 線の計数率 [counts per second] と同じ意味で用いる）を最大化させることだけを考えるのであれば、測定容器ごとのピーク効率と試料充填量から最適

な測定容器を判断することができる。例えば、充填する試料の密度が同じならば、Table 1 の右端列の数値（試料容積 \times ピーク効率）が大きい組み合わせほど測定効率が良く、測定時間は短くて済む。しかし、試料を測定容器に充填するための前処理にかかる手間等も含めた効率を考えると、最適と言える測定容器が変わってくる場合がある。例えば、試料の量が 90 mL 以上 700 mL 未満の場合、試料を硫酸ナトリウム等でかさ増しして 0.7-L マリネリ容器で測定すべきか、あるいは試料の一部を U-8 容器で測定すべきか、判断が難しい。ピーク効率は 0.7-L マリネリ容器と U-8 容器（試料充填高 50 mm 時）ではほぼ同じであるため、試料の量が 90 mL 以上あるならば、試料を硫酸ナトリウム等でかさ増しして 0.7-L マリネリ容器に充填する方が測定効率は良い。しかし、硫酸ナトリウム等の混合によるかさ増しは、手間がかかることに加え、測定後に試料を元素分析等の他の分析に再利用しにくくなるというデメリットがある。そこで、試料を粉碎せずに大まかに切り分け、マリネリ容器内に偏りがなく疎な状態で充填するという簡易な方法が有効ではないかと考えられる。この方法は、試料を粉碎して U-8 容器で測定するよりも前処理の手間が少なく、測定効率も良いというメリットがある。しかし、容器内の試料の配置の偏りや試料中の ^{137}Cs 放射能の分布の不均一性に起因する誤差が大きくなると考えられるため（原子力規制委員会 2020）、その誤差を把握した上で採用する必要がある。なお、非粉碎試料をマリネリ容器内に密に充填できる場合については、通常の粉碎試料の測定と比較し、系統誤差は発生せず、偶然誤差の増加は 6% 未満であることを確認している（Appendix Fig. 1）。

試料の量が 90 mL 以下の場合には、一般的に U-8 容器が用いられる。しかし、試料の量がさらに少ない（目安として約 20 mL 未満）の場合は、ウェル型 Ge 検出器とそ

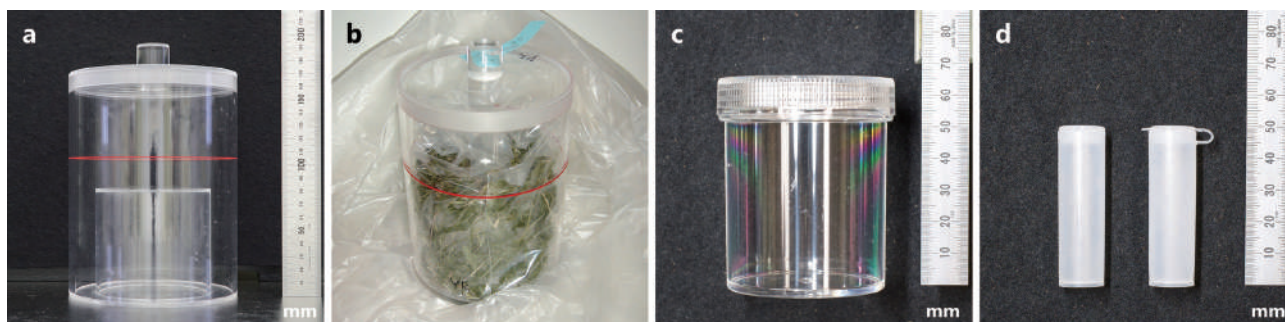


Photo 1. 森林総合研究所において Ge 検出器での放射能測定に使用している容器

Containers used for radioactivity measurement with Ge detector in FFPRI

(a) 0.7-L マリネリ容器（赤線までで 0.7 L）、(b) 0.7-L マリネリ容器にササの葉を粉碎せずに疎な状態で充填した状態、(c) U-8 容器、(d) #737 容器（左：蓋のヒンジおよびツメを取り除いた状態、右：元の状態）。

(a) 0.7-L Marinelli container (0.7 L up to the red line), (b) 0.7-L Marinelli container filled sparsely with unpowdered dwarf bamboo leaves, (c) U-8 container, and (d) #737 container (left, hinge and protrusion of lid were removed; right, original form).

れに合わせた容器を用いる方が測定効率が良い。これは、井戸型のセンサー部に測定容器を嵌め込むウェル型 Ge 検出器では、 γ 線検出の幾何学的効率が高いためである。森林総合研究所では、井戸型センサー部内側の直径が 15.5 mm、深さが 40 mm のウェル型 Ge 検出器 (ORTEC 社, GWL-120-15) と #737 容器 (円筒形、試料充填高 40 mm で容量 5 mL; Photo 1d) を使用しており、同軸型 Ge 検出器 (ORTEC 社, GEM40) と U-8 容器 (試料充填高 5 mm 時) を使用するよりもピーク効率は約 3 倍高い (Table 1) (なお、#737 容器は蓋のヒンジとツメを取り除く [Photo 1d の左] と井戸型のセンサー部に更に 5 mm ほど押し込むことができ、ピーク効率が上がるため、通常はヒンジとツメを取り除いて測定の方が良い)。そして、U-8 容器と同じ容量の試料を #737 容器に充填してウェル型 Ge 検出器で測定した場合の測定効率 (試料容積×ピーク効率) は、U-8 容器の充填高 5 mm 未満のピーク効率をピーク効率曲線 (ピーク効率の逆数と充填高の関係を表す曲線; 原子力規制委員会 2020) から求めて比較すると、同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせよりも 2.9–3.3 倍高い。しかし、ウェル型 Ge 検出器を用いた放射能測定では、 γ 線の自己吸収特性が十分明らかになっていないという点に注意が必要である (金井 1993, 金井・齋藤 2011)。自己吸収の影響は、測定する試料の材質・密度・高さが標準線源と同じ場合は問題とならないが、森林生態系での調

査のように様々な材質・密度の試料を対象とする場合は無視できない可能性がある。ウェル型 Ge 検出器でも自己吸収の影響が大きいと考えられる比較的低エネルギーの γ 線 (< 200 keV) については補正法が検討されているが (Appleby et al. 1992)、¹³⁷Cs の測定で対象とする 662 keV のような比較的高いエネルギーの γ 線については自己吸収の影響は小さいと考えられるためか (Díaz-Asencio et al. 2020)、自己吸収の影響を調べた例はほとんどない。しかし、ウェル型 Ge 検出器でも高エネルギー γ 線の自己吸収が無視できない可能性があることが指摘されているため (金井・齋藤 2011)、実際に森林生態系から採取した様々な材質・密度の試料を対象として ¹³⁷Cs の測定における自己吸収の影響を確認しておくことが望ましい。同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせの測定については自己吸収の補正法が確立されており、森林総合研究所では γ 線核種分析ソフトウェア Gamma Station (SEIKO EG&G 社) 上で、U-8 容器に充填した試料の材質・かさ密度・高さに応じた自己吸収補正を行っている。現状では、ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせの測定についても同様の自己吸収補正法を適用することになるため、その妥当性を確認した上で使用する必要がある。

本研究資料では、森林生態系内で採取した試料中の ¹³⁷Cs の放射能測定の効率化に資することを目的とし、通常の同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせでの ¹³⁷Cs

Table 1. 森林総合研究所における同軸型およびウェル型 Ge 検出器の測定容器ごとのピーク効率 (662 keV)
Peak efficiency (662 keV) of coaxial and well Ge detectors for each measurement container in FFPRI

検出器タイプ Detector type	容器 Container	試料充填高 Sample height (mm)	試料容積 (a) Sample volume (mL)	ピーク効率 (b) Peak efficiency (counts/ γ)	a × b
同軸型 Coaxial	2-L Marinelli	-	2000	0.013	26.75
同軸型 Coaxial	0.7-L Marinelli	-	700	0.020	13.96
同軸型 Coaxial	U-8	50	90	0.019	1.74
		30	54	0.025	1.35
		20	36	0.029	1.05
		10	18	0.035	0.63
		5	9	0.040	0.36
ウェル型 Well	#737	40	5	0.120	0.60
		30	3.8	0.133	0.50
		20	2.5	0.144	0.36
		10	1.3	0.145	0.18
		5	0.6	0.145	0.09
ウェル型 Well	#737 (with hinge)	40	5	0.095	0.48
		30	3.8	0.113	0.42
		20	2.5	0.123	0.31
		10	1.3	0.133	0.17
		5	0.6	0.137	0.09

同軸型 Ge 検出器 : ORTEC 社 GEM40-P4-76、ウェル型 Ge 検出器 : ORTEC 社 GWL-120-15
 Coaxial Ge detector, GEM40-P4-76, ORTEC; well Ge detector, GWL-120-15, ORTEC

の放射能測定（試料粉碎）と比較して、1) マリネリ容器（試料非粉碎・疎充填）での測定、ならびに 2) ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせでの測定で、どの程度の系統誤差および偶然誤差が生じるのか検討した。また、ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせの測定については、簡易に行える適当な自己吸収補正方法についても検討した。

2. 方法

2.1 U-8 容器（試料粉碎）とマリネリ容器（試料非粉碎・疎充填）の比較

試料として福島県または茨城県で採取したクマイザサ (*Sasa senanensis*) およびスズタケ (*Sasamorpha borealis*) (以下、ササ) の枝・葉・稈を用いた。試料をだまかに切断して 75℃で 48 時間以上乾燥させた後、0.7-L マリネリ容器内（スギヤマゲン社, 容器: MAX-Y07, パウチ: MAX-07H）にできる限り偏りがないように封入した (Photo 1b)。試料の乾燥重量を量った後、同軸型 Ge 検出器 (ORTEC 社, GEM40) を用いた γ 線スペクトロメトリによって試料中の ^{137}Cs の放射能を決定した (マリネリ容器のピーク効率校正には標準線源 MX033MR [日本アイソトープ協会, アルミナマトリックス, 密度 1.0] を使用した)。マリネリ容器での測定後、マリネリ容器から試料を取り出してカッティングミル (ホーライ社, UPC-140, 6-mm メッシュ篩装着) で粉碎し、U-8 容器 (馬野化学容器社, No. 3-20; Photo 1c) に充填した。なお、マリネリ容器で測定した試料の全量を U-8 容器に充填できたものが 10 点、全ては充填できずに一部を充填したものが 71 点あった。そして再度 75℃で 48 時間以上乾燥させて試料の乾燥重量を量った後、再び同軸型 Ge 検出器を用いて試料中の ^{137}Cs 放射能を求めた (U-8 容器のピーク効率校正には標準線源 MX033U8PP [日本アイソトープ協会, アルミナマトリックス, 密度 1.0, 充填高 5・10・20・30・50 mm] を使用した)。測定時間はマリネリ容器と U-8 容器のいずれについても、計数誤差 5% 以下 (ただし、少量かつ低放射能濃度の試料については 10% 以下) となるよう 30 分–24 時間の範囲で設定した。

U-8 容器 (試料粉碎) で測定した ^{137}Cs 放射能濃度と比較し、マリネリ容器 (試料非粉碎・疎充填) で測定した ^{137}Cs 放射能濃度にどの程度の誤差が生じるかを評価するため、下記の式を用いて平均絶対誤差率 (mean absolute percentage error; 以下、MAPE) を算出した。

$$MAPE = \frac{100}{n} \sum_{k=1}^n \left| \frac{\text{マリネリ容器使用時の測定値}_k - \text{U-8 容器使用時の測定値}_k}{\text{U-8 容器使用時の測定値}_k} \right|$$

2.2 U-8 容器 (同軸型 Ge 検出器) と #737 容器 (ウェル型 Ge 検出器) の比較

森林生態系の様々な材質・密度の試料を対象とするため、福島県または茨城県の森林で採取した樹皮 (スギ [*Cryptomeria japonica*] またはコナラ [*Quercus serrata*], n

= 9)、材 (スギ、アカマツ [*Pinus densiflora*] またはクリ [*Castanea crenata*], n = 5)、リター (スギ林, n = 6)、鉍質土壌 (スギ林, n = 7) および水生生物 (フタスジモンカゲロウ [*Ephemera japonica*] またはサワガニ [*Geothelphusa dehaani*], n = 2) を試料として用いた。試料はいずれも風乾させた後、樹皮・材・リターはミキサー (テスコム社, TM836) で 5–10 分かけて粉碎し、鉍質土壌は 2 mm メッシュの篩に掛け、U-8 容器 (馬野化学容器社, No. 3-20) に充填した。水生生物は少量であったため、U-8 容器に入れた後に棒で押し潰し、測定に供した。試料を 75℃で 48 時間以上乾燥させて試料の乾燥重量を量った後、同軸型 Ge 検出器 (ORTEC 社, GEM40) を用いて試料中の ^{137}Cs 放射能を求めた。U-8 容器での測定後、試料を #737 容器 (Kartell 社; Photo 1d) に移し、試料を 75℃で 48 時間以上乾燥させて試料の乾燥重量を量った後、ウェル型 Ge 検出器 (ORTEC 社, GWL-120-15) を用いて ^{137}Cs 放射能を求めた (#737 容器のピーク効率校正には標準線源 EG-ML [Eckert & Ziegler Isotope Products 社, エポキシマトリックス, 密度 1.0, 充填高 5・10・20・30・40 mm] を使用した)。この際、U-8 容器で測定した試料の全量を #737 容器に移せたものが 3 点、全量は移せず一部を移したものが 26 点あった。この 26 点については、U-8 容器と #737 容器の間で試料が全量一致しているデータを得るため、#737 容器での測定後に試料全量を U-8 容器に移し、同軸型 Ge 検出器を用いて再度 ^{137}Cs 放射能の測定を行った。測定時間は U-8 容器と #737 容器のいずれについても、計数誤差 5% 以下 (ただし、少量かつ低放射能濃度の試料については 10% 以下) となるよう 15 分–24 時間の範囲で設定した。

ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせの測定については、 ^{137}Cs の放射能を求める際の自己吸収補正の妥当性を検討するため、 γ 線核種分析ソフトウェア Gamma Station (SEIKO EG&G 社, バージョン 2.12.23) を用いて、以下の 5 通りの方法で ^{137}Cs の放射能を求めた。I) 自己吸収補正を同軸型 Ge 検出器と U-8 容器を組み合わせた測定と同様に行う (γ 線核種分析ソフトウェア上で、材質を実際の材質に最も近いもの [灰化物・土壌] にし、密度は各試料の実際の値に設定する)、II) 自己吸収補正を行うが、材質を標準線源と同じものに設定する (材質: エポキシ, 密度: 実際の値)、III) 自己吸収補正を行うが、密度を標準線源と同じ値に設定する (材質: 灰化物・土壌, 密度: 1.0)、IV) 自己吸収補正を行うが、材質および密度を標準線源と同じに設定する (材質: エポキシ, 密度: 1.0)、V) 自己吸収補正を行わない (自己吸収を考慮せずに作成したピーク効率校正式を使用する)。ここで、設定 IV は標準線源と全く同じ条件で自己吸収補正を行うため、理論上は設定 V と同じ結果となるはずである。なお、この自己吸収補正設定間の比較では、U-8 容器内の試料の全量を #737 容器で測定した結果のみを使用した。

同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせで測定した ^{137}Cs 放射能濃度とウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み

合わせて測定した ¹³⁷Cs 放射能濃度の間にどの程度の違いがあるかは、前述（「2.1. U-8 容器（試料粉碎）とマリネリ容器（試料非粉碎・疎充填）の比較」）と同様に、U-8 容器使用時の測定値を基準とした平均絶対誤差率（MAPE）を算出することで評価した。

3. 結果・考察

3.1 U-8 容器（試料粉碎）とマリネリ容器（試料非粉碎・疎充填）の比較

ササ試料中の ¹³⁷Cs 放射能濃度は、試料を粉碎して U-8 容器で測定した場合と試料を粉碎せずにマリネリ容器に疎な状態で充填して測定した場合の間で 1 : 1 の関係を示した (Fig. 1)。ササの部位間 (枝、葉および稈) でこの関係に大きな違いは見られなかった。また、¹³⁷Cs 放射能濃度比 (マリネリ容器使用時の測定値 / U-8 容器使用時の測定値) は、 1.02 ± 0.11 (平均値 ± 標準偏差) であったことから、試料を粉碎せずにマリネリ容器に疎な状態で充填して放射能を測定しても、目立った系統誤差は発生しないと考えられる。

MAPE は、マリネリ容器内の試料を全て U-8 容器で再測定した場合 (Fig. 1a) が 7%、マリネリ容器内の試料の一部を U-8 容器で再測定した場合 (Fig. 1b) が 9% であった。これは、試料を粉碎せずにマリネリ容器に疎な状態

で充填して測定した場合、試料を粉碎して U-8 容器で測定した場合に比べ、¹³⁷Cs 放射能濃度に平均で 7-9% 程度の誤差が生じたことを表している。しかし、実際には U-8 容器で測定した ¹³⁷Cs 放射能とマリネリ容器で測定した ¹³⁷Cs 放射能のどちらにも測定誤差がある (少なくとも γ 線の計数誤差がある) ため、それらの誤差を考慮して MAPE の結果を解釈する必要がある。ここでの γ 線の計数誤差は、U-8 容器を用いた測定では平均約 6%、マリネリ容器を用いた測定では平均約 7% であった。統計解析ソフトウェア R (R Development Core Team, バージョン 4.0.2) の `mnorm` 関数を使用し、U-8 容器使用時の測定値として相対標準偏差 6% の正規分布に従う乱数、マリネリ容器使用時の測定値として相対標準偏差 X の正規分布に従う乱数をそれぞれ 10,000 個生成し、MAPE のシミュレーションを行った。その結果、MAPE が 7% となるのは X が約 7% のとき、MAPE が 9% となるのは X が約 10% のときであることがわかった。前述のように、ここではマリネリ容器を用いた測定での γ 線の計数誤差は平均約 7% であったため、マリネリ容器内の試料を全て U-8 容器で再測定した場合は MAPE が 7% (X が約 7%) であったという結果は、 γ 線の計数誤差以外の測定誤差はほとんど生じなかった (γ 線の計数誤差に比べて非常に小さかった) と解釈できる。したがって、マリネリ容器内の

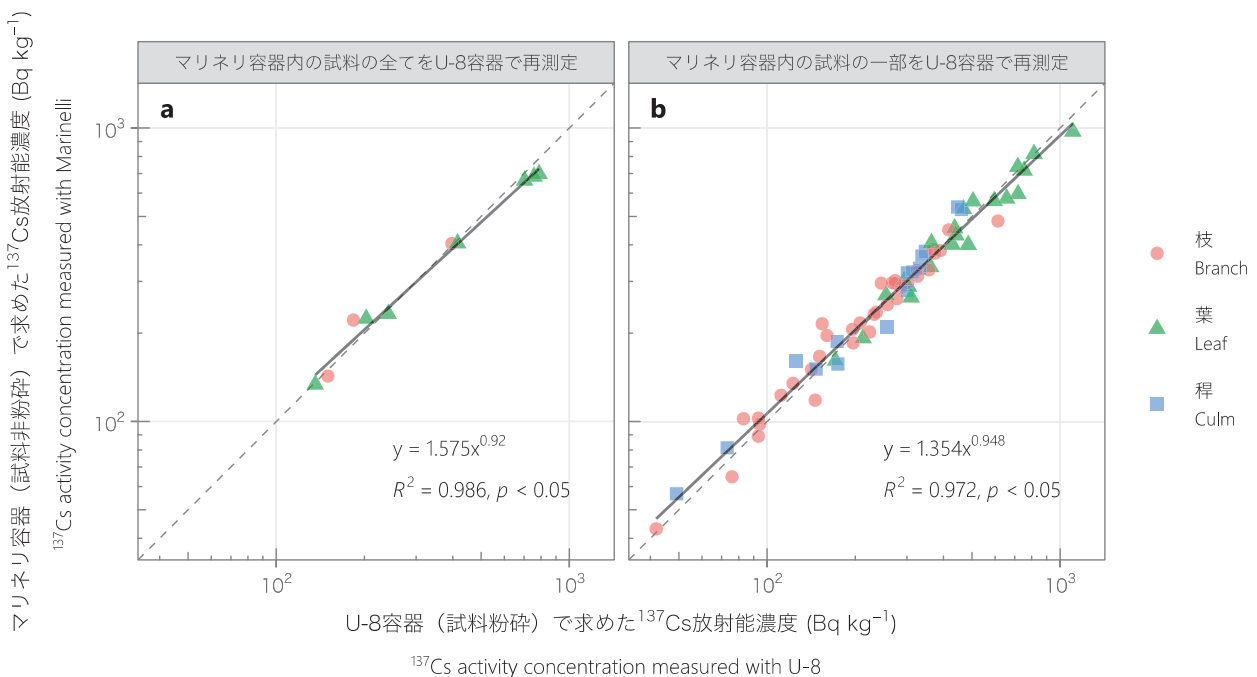


Fig. 1. 植物試料 (ササ) 中の ¹³⁷Cs 放射能濃度を試料を粉碎して U-8 容器で求めた場合と試料を粉碎せずマリネリ容器に疎な状態で充填して求めた場合の比較

Comparison of ¹³⁷Cs activity concentration in plant samples (dwarf bamboo) determined by packing powdered samples into U-8 containers and unpowdered samples sparsely into Marinelli containers

(a) マリネリ容器内の試料を粉碎し、全量を U-8 容器で再測定、(b) マリネリ容器内の試料を粉碎し、一部を U-8 容器で再測定。

(a) Whole sample in Marinelli container was remeasured with U-8 container, (b) partial sample in Marinelli container was remeasured with U-8 container.

試料の配置の不均一性や試料内の ^{137}Cs 放射能濃度の不均一性は、 γ 線の計数誤差が 7% 程度の測定においては無視できる程度であると考えられる。ただし、非粉碎試料をマリネリ容器内に密に充填した場合 (Appendix Fig. 1) に約 6% の偶然誤差の増加が見られたため、その程度の誤差は生じる可能性があることを想定しておいた方がよいだろう。一方、マリネリ容器内の試料の一部を U-8 容器で再測定した場合は MAPE が 9% (X が約 10%) であったが、これは γ 線の計数誤差以外の偶然誤差が 7% (誤差伝播の法則を用いて推計; $\sqrt{10^2 - 7^2}$) ほど加わったことを示唆している。後述する「3.2 U-8 容器 (同軸型 Ge 検出器) と #737 容器 (ウェル型 Ge 検出器) の比較」においても、容器内の試料の一部を他の容器に移し替えて再測定した場合に同様に誤差が大きかったことから、この誤差は非粉碎試料をマリネリ容器で測定したことによって生じたというよりは、多量にある試料の一部しか U-8 容器で測定しなかったことによって生じた可能性が高いと考えられる。

以上をまとめると、植物試料を粉碎せずにマリネリ容器内に偏りのないよう疎な状態で充填して ^{137}Cs 放射能濃度を測定する簡易な方法は、試料を粉碎して U-8 容器で ^{137}Cs 放射能濃度を測定した場合と比較して目立った系統誤差は発生せず、偶然誤差の増加は 7% 未満だと考えられる。したがって、計数誤差 7% 程度の測定を行う場合や、繰り返し測定の平均から個体や林分の代表値を得る場合には問題なく採用できる方法だと言える。ただし、例えば 1 回の測定で個体の代表値をできる限り高精度に得たいような場合は、試料を粉碎して試料の量に応じて複数の U-8 容器に充填し、それらの測定値の平均をとることが望ましいだろう。

3.2 U-8 容器 (同軸型 Ge 検出器) と #737 容器 (ウェル型 Ge 検出器) の比較

3.2.1 #737 容器 (ウェル型 Ge 検出器) での測定における自己吸収補正の設定の影響

ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせの測定では、自己吸収補正の設定の違いによって得られた ^{137}Cs 放射能値はやや異なり、同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせでの測定値に対する比の平均は設定 I・II で 0.96、設定 III・IV・V で 1.00–1.01 であった (Fig. 2)。設定 I・II では密度に各試料の実際の値を使用し、設定 III・IV では標準線源の値 (1.0) を使用していることから、自己吸収補正に試料の実際の密度を使用すると、得られる測定値がやや小さくなることがわかった。しかし、設定 I・II では ^{137}Cs 放射能濃度比 (#737 容器使用時 / U-8 容器使用時) と試料の密度との間に有意な相関は見られなかったため (Fig. 3a [設定 II の結果は省略])、標準線源の密度 (1.0) よりも密度が低い試料ほど得られる測定値が小さくなるという明確な傾向は確認できなかった。一方、 ^{137}Cs 放射能濃度比 (#737 容器使用時 / U-8 容器使用時) と試

料の充填高との間には有意な負の相関が見られ、試料の充填高が高い場合に濃度比の 1.0 からの乖離が大きかった (Fig. 4a [設定 II の結果は省略])。したがって、設定 I・II で得られた測定値がやや小さかったのは、試料の充填高が高い場合の自己吸収補正が過小となっていることが主な原因だと考えられる。一方、設定 III・IV・V で得られた ^{137}Cs 放射能濃度比 (#737 容器使用時 / U-8 容器使用時) は、平均 1.00–1.01 で、かつ試料の密度および試料の充填高との間に有意な相関がなかった (Figs. 3b and 4b [設定 IV・V の結果は省略]) ため、良好な結果だと言える。これらのことから、ウェル型 Ge 検出器と #737 容器を組み合わせた測定における自己吸収補正の密度の設定は、「実際の試料の密度」ではなく「標準線源の密度」とすることが妥当であることが経験則として明らかになった。これは 662 keV のような比較的高いエネルギーの γ 線に

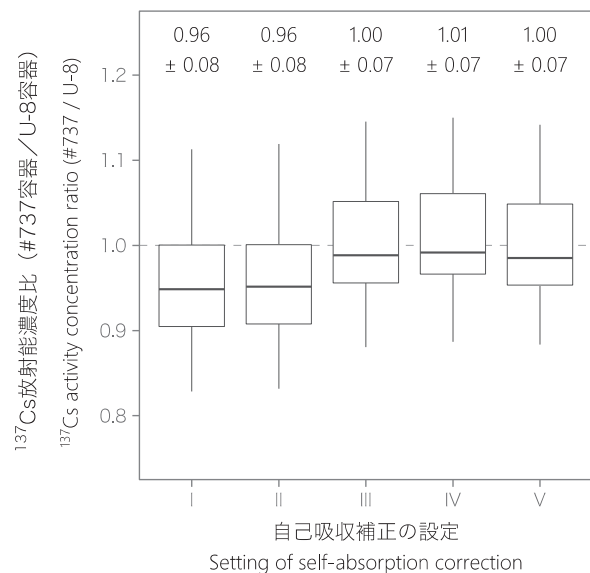


Fig. 2. #737 容器 (ウェル型 Ge 検出器) での測定における自己吸収補正の設定と得られた ^{137}Cs 放射能濃度 (U-8 容器 [同軸型 Ge 検出器] 使用時に対する比) の関係

Relationship between settings of self-absorption correction for measurements using #737 container (well Ge detector) and ^{137}Cs activity concentration ratio (#737 container [well Ge detector]/U-8 container [coaxial Ge detector])

I) 材質: 灰化物・土壌、密度: 実際の試料の値、II) 材質: エポキシ、密度: 実際の値、III) 材質: 灰化物・土壌、密度: 1.0、IV) 材質: エポキシ、密度: 1.0、V) 自己吸収補正なし。図の上部の数値は ^{137}Cs 放射能濃度比の平均値および標準偏差を示す。

I) Material: ash/soil, density: actual sample, II) material: epoxy, density: actual sample, III) material: ash/soil, density: 1.0, IV) material: epoxy, density: 1.0, and V) no correction (assuming the same self-absorption as reference material [material: epoxy, density: 1.0]). Values in upper part of figure show means and standard deviations of ^{137}Cs activity concentration ratios.

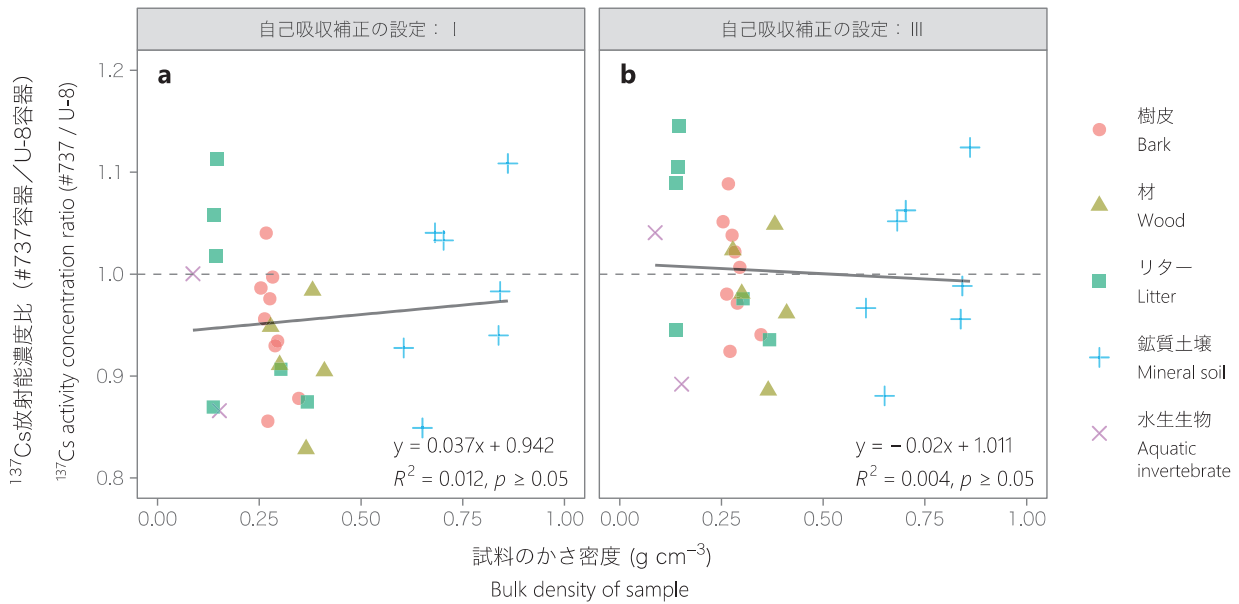


Fig. 3. 試料のかさ密度と ¹³⁷Cs 放射能濃度比 (#737 容器 [ウェル型 Ge 検出器] で求めた値 / U-8 容器 [同軸型 Ge 検出器] で求めた値) の関係

Relationship between bulk density of sample and ¹³⁷Cs activity concentration ratio (#737 container [well Ge detector]/U-8 container [coaxial Ge detector])

(a) 自己吸収補正の設定を I (材質: 灰化物・土壌, 密度: 実際の値) とした場合、(b) 自己吸収補正の設定を III (材質: 灰化物・土壌, 密度: 標準線源の値 [1.0]) とした場合。

Self-absorption was corrected using (a) sample bulk density or (b) reference material density (1.0).

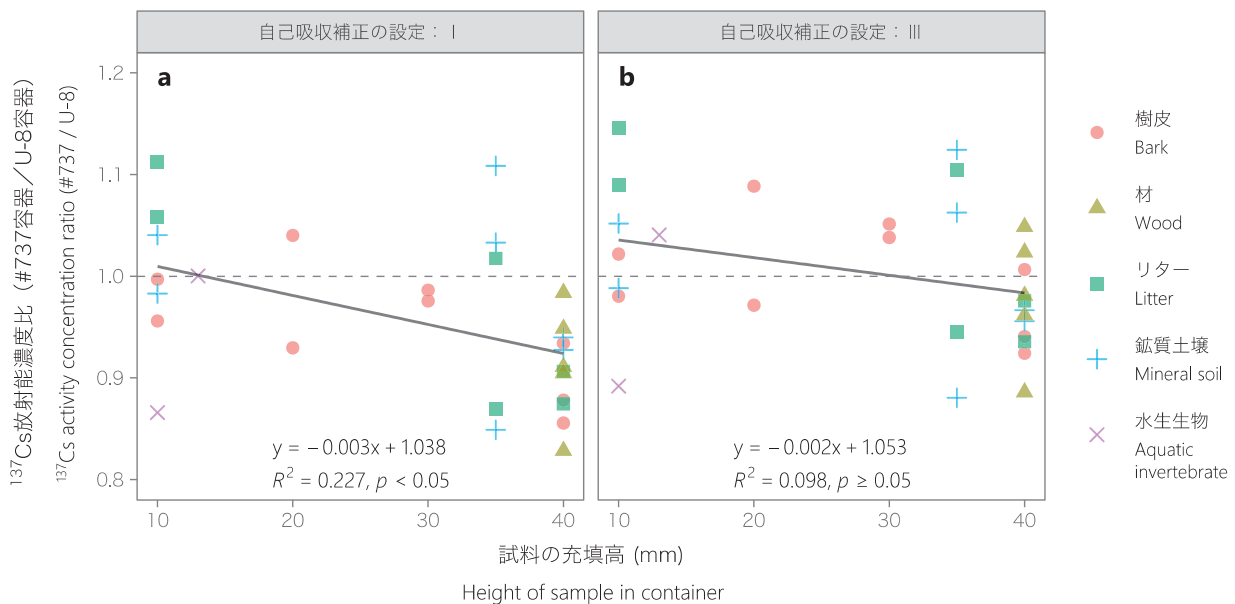


Fig. 4. #737 容器中の試料の充填高と ¹³⁷Cs 放射能濃度比 (#737 容器 [ウェル型 Ge 検出器] で求めた値 / U-8 容器 [同軸型 Ge 検出器] で求めた値) の関係

Relationship between sample height in #737 container and ¹³⁷Cs activity concentration ratio (#737 container [well Ge detector]/U-8 container [coaxial Ge detector])

(a) 自己吸収補正の設定を I (材質: 灰化物・土壌, 密度: 実際の値) とした場合、(b) 自己吸収補正の設定を III (材質: 灰化物・土壌, 密度: 標準線源の値 [1.0]) とした場合。

Self-absorption was corrected using (a) sample bulk density or (b) reference material density (1.0).

については試料の密度の違いによる自己吸収の違いは無視できる程度であるとする報告 (Díaz-Asencio et al. 2020) と一致する結果である。

設定Ⅰ－Ⅱ間ならびに設定Ⅲ－Ⅳ間では、材質を「灰化物・土壌 (実際の材質に最も近いもの)」とするか「エポキシ (標準線源の材質)」とするかの違いがあったが、得られた測定値はほぼ同じであった。これは、自己吸収補正に使用される質量減弱係数 (cm^2/g) が、662 keV では灰化物・土壌 (0.076) とエポキシ (0.084) の間で約 10% 異なる (SEIKO EG&G 2017) もの、試料の密度が 1.0 以下で充填高が 40 mm 以下の場合、算出される自己吸収補正係数には 1% 以下の差しかなかったためである。したがって、このような条件における ^{137}Cs の測定では、材質の設定は「灰化物・土壌」と「エポキシ」のどちらでも問題ないと言えるだろう。

設定ⅣとⅤでは、得られる結果は理論上同じはずであり、実際にほぼ同じ結果が得られることを確認することができた。両者間で結果が全く同じではなかったのは、設定Ⅴでは自己吸収を考慮しないピーク効率校正式を別途作成する必要があり、ピーク効率校正式の近似が全く同じにはならなかったためである。設定ⅣとⅤのどちらを使用しても問題ないと言えるが、ピーク効率校正式の当てはまりが良い方を採用する方が良いと思われる (今

回は、自己吸収を考慮してピーク効率校正式を作成した方 [設定Ⅳ] が当てはまりが良かった)。

以上より、ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせの測定における自己吸収補正の設定は、同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせの測定と同じ (設定Ⅰ) にするのは適当ではなく、Ⅲ・Ⅳ・Ⅴのいずれかにするのが適当である (Ⅲ・Ⅳ・Ⅴのどれを用いても問題ない) ことがわかった。次節では、設定Ⅲを用いて得られた結果を示す。

3.2.2 #737 容器 (ウェル型 Ge 検出器) での測定の誤差の評価

ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせで測定した試料中の ^{137}Cs 放射能濃度 (自己吸収補正の設定はⅢを使用) は、試料の種類によらず、同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせで測定したものと 1 : 1 の関係を示した (Fig. 5)。また、前述のように ^{137}Cs 放射能濃度比 (#737 容器使用時 / U-8 容器使用時) が 1.00 ± 0.07 であった (Fig. 2 参照) ことから、ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせで測定しても、系統誤差は生じないことがわかった。

MAPE は、U-8 容器内の試料の全量を #737 容器で測定した場合 (Fig. 5a) が 6%、U-8 容器内の試料の一部を #737 容器で測定した場合 (Fig. 5b) が 16% であった。こ

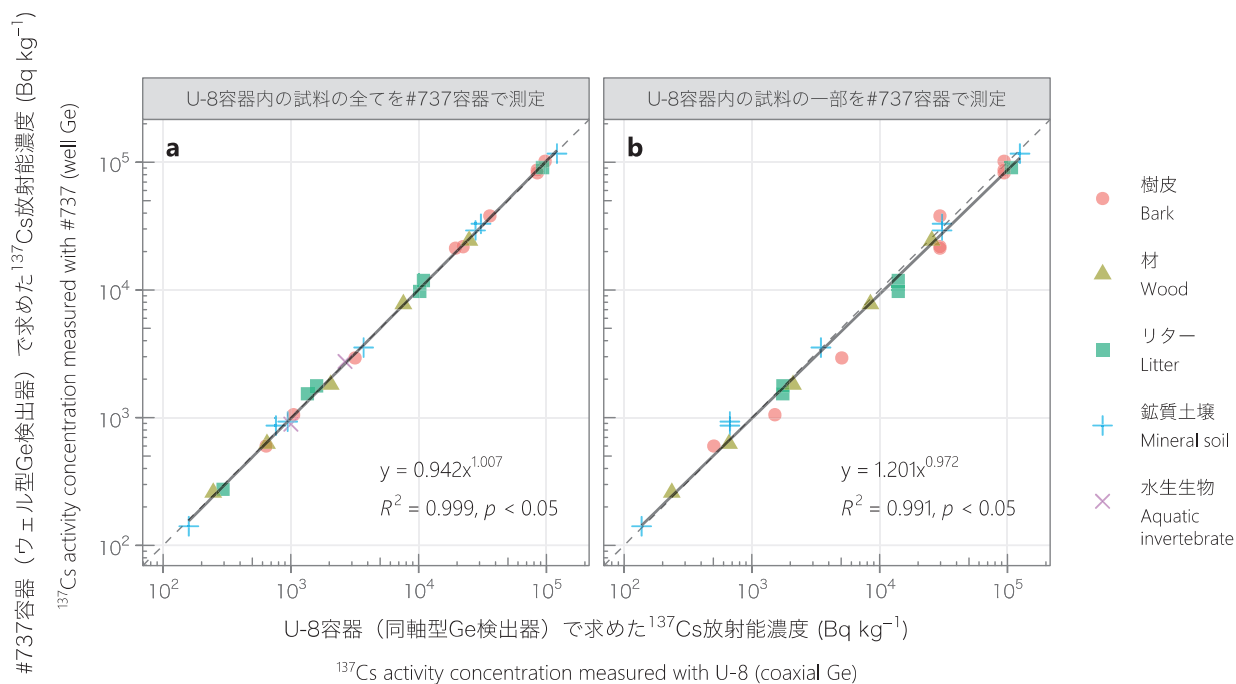


Fig. 5. 森林生態系内で採取した試料中の ^{137}Cs 放射能濃度を同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせで求めた場合とウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせで求めた場合の比較

Comparison of ^{137}Cs activity concentration in samples determined using U-8 container (coaxial Ge detector) and #737 container (well Ge detector)

(a) U-8 容器内の試料の全量を #737 容器で測定、(b) U-8 容器内の試料の一部を #737 容器で測定。ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせの測定における自己吸収補正は、設定Ⅲ (材質: 灰化物・土壌, 密度: 1.0) で行った。
(a) Whole sample in U-8 container was measured with #737 container, and (b) partial sample in U-8 container was measured with #737 container. Setting “III” was used for self-absorption correction of measurements using the #737 container.

これらの MAPE の値を前述の「U-8 容器 (試料粉碎) とマリネリ容器 (試料非粉碎) の比較」と同様に解釈すると (ここでの γ 線の計数誤差は、U-8 容器使用時が平均約 4%、#737 容器使用時が平均約 2% であった)、#737 容器 (ウェル型 Ge 検出器) で測定することによって生じた不確実性 (偶然誤差) は、U-8 容器内の試料の全量を #737 容器で測定した場合が約 6%、U-8 容器内の試料の一部を #737 容器で測定した場合が約 20% だったと推計される。ただし、U-8 容器で 5 mL 以下 (充填高約 3 mm 以下) の少量試料を測定する場合にもピーク効率校正の外挿によって多少の不確実性が生じている可能性があるため、ここで推計された不確実性 (6% および 20%) はやや過大評価だと考えられる。

したがって、#737 容器 (ウェル型 Ge 検出器) を用いた測定は、U-8 容器 (同軸型 Ge 検出器) を用いた場合と比較し、系統誤差はなく、偶然誤差は 6% 未満と考えられることから、測定誤差 5% 程度の放射能測定においては、問題なく採用できると言えるだろう。なお、本研究資料では #737 容器で様々な量の試料を測定することを想定し、充填高によるピーク効率補正を行っているが、不確実性をさらに抑えたい場合は試料の充填高を標準線源と同じ高さに揃え、充填高によるピーク効率補正を行わないようにする方が良いだろう。

本結果においても 1 つ注目すべき点は、U-8 容器内の試料の一部を #737 容器で測定した場合に、不確実性が約 20% と高かったことである。これは、粉碎もしくは篩がけした試料であっても、試料中の ^{137}Cs 分布は完全には均一になっておらず、試料の一部のみを測定に供すると誤差が大きくなる場合があることを意味している (今回の試料の中では、この誤差は樹皮で最も大きく、次いでリター・鉱質土壌で大きかった)。したがって、固形の試料で #737 容器の容量 (5 mL) よりも量が多くある場合は、試料中の ^{137}Cs 分布の不均一性に起因する測定誤差を低減するという点では、U-8 容器を採用すべきだと言える。一方、測定効率 (前述のように「試料容積 \times ピーク効率」という意味) という点では、森林総合研究所の測定環境における U-8 容器の充填高 1 mm 毎のピーク効率をピーク効率曲線から求めて比較すると、U-8 容器での充填高が 10 mm (約 18 mL) 未満の場合、ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせを採用した方が効率が良い。しかし、ウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせで測定することによる効率の向上は、U-8 容器での充填高が約 5–10 mm (約 9–18 mL) の範囲では 2 倍未満であり、その恩恵は比較的小さい。したがって、双方の点を勘案すると、試料の量に応じて「U-8 容器での充填高が 5 mm (約 9 mL) 未満の場合はウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせ、5 mm 以上の場合は同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせ」を採用することにより、測定の誤差低減と効率化の両方を期待できると考えられる。ただし、

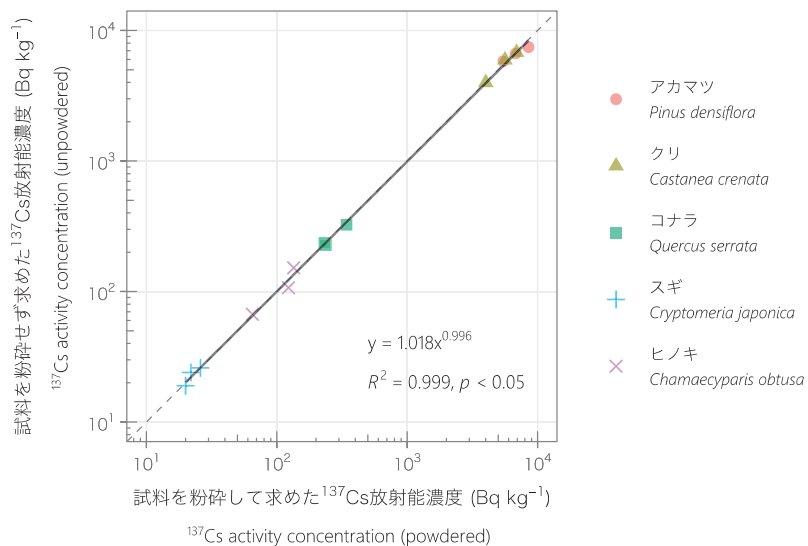
試料中の ^{137}Cs 分布の不均一性が高いと懸念される場合は、できる限り試料の全量を測定できる容器の選択、つまり「U-8 容器での充填高が 3 mm (約 5 mL) 未満の場合はウェル型 Ge 検出器と #737 容器の組み合わせ、3 mm 以上の場合は同軸型 Ge 検出器と U-8 容器の組み合わせ」を選択するのが望ましいだろう。

謝辞

本研究では、篠宮佳樹氏にリター・鉱質土壌の試料を、吉村真由美氏に水生生物の試料をご提供いただいた。また、倉本恵生氏・齋藤智之氏にはササ試料の採取にご協力いただいた。放射能測定は、高野勉氏・三浦覚氏をはじめとする森林総合研究所震災復興・放射性物質研究拠点の皆様のご協力のもと実施した。ここに心より御礼申し上げます。

引用文献

- Appleby, P. G., Richardson, N. and Nolan, P. J. (1992) Self-absorption corrections for well-type germanium detectors. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, 71, 228–233.
- Díaz-Asencio, M., Sanchez-Cabeza, J., Ruiz-Fernández, A. C., Corcho-Alvarado, J. A. and Pérez-Bernal, L. H. (2020) Calibration and use of well-type germanium detectors for low-level gamma-ray spectrometry of sediments using a semi-empirical method. *Journal of Environmental Radioactivity*, 225, 106385.
- 原子力規制委員会 (2020) ゲルマニウム半導体検出器による γ 線スペクトロメトリー (放射能測定法シリーズ No. 7). 日本分析センター, 314pp.
- 金井 豊 (1993) 微量環境試料測定用井戸型 Ge 検出器の効率特性. *Radioisotopes*, 42, 169–172.
- 金井 豊・齋藤 文紀 (2011) 環境ガンマ放射線測定用井戸型ゲルマニウム検出器の特性と原発事故によるバックグラウンド汚染—地質調査総合センターに設置されたシステムを例に—. *地質調査研究報告*, 62, 357–369.
- 文部科学省 (1982) ゲルマニウム半導体検出器等を用いる機器分析のための試料の前処理法 (放射能測定法シリーズ No. 13). 日本分析センター, 25pp.
- SEIKO EG&G (2017) ガンマ線分析 詳細仕様説明書 (Rev. 3.00). 54pp.
- Shinomiya, Y., Tamai, K., Kobayashi, M., Ohnuki, Y., Shimizu, T., Iida, S., Nobuhiro, T., Sawano, S., Tsuboyama, Y. and Hiruta, T. (2014). Radioactive cesium discharge in stream water from a small watershed in forested headwaters during a typhoon flood event. *Soil Science and Plant Nutrition*, 60, 765–771.



Appendix Fig. 1. 植物試料（樹皮）中の¹³⁷Cs放射能濃度を試料を粉砕して求めた場合と試料を粉砕せずに求めた場合の比較

Comparison of ¹³⁷Cs activity concentration in plant samples (tree bark) determined before and after the powdering of samples

樹皮試料を軸方向 5 cm、円周方向 2 cm 程度に切断して 2.0-L マリネリ容器に密に充填し、同軸型 Ge 検出器を用いて放射能濃度を求めた。その後、容器から試料を取り出してカッピングミルで粉砕し、再度 2.0-L マリネリ容器で放射能濃度を求めた。Bark samples were cut to about 5 cm in axial direction and 2 cm in circumferential direction, and then packed densely into 2.0-L Marinelli containers. After determining radioactivity concentration using coaxial Ge detector, sample in container was powdered with cutting mill, and radioactivity concentration was determined again in the same way.

Examination of efficient measurement methods of ^{137}Cs activity in samples from a forest ecosystem: selection of measurement containers for a Ge detector and their measurement errors

Shinta OHASHI^{1)*}, Akio AKAMA²⁾, Shigeto IKEDA²⁾ and Daisuke HOSHINO³⁾

Abstract

To efficiently measure the radioactivity of radiocesium (^{137}Cs) in samples from a forest ecosystem, we examined whether the following two measuring methods are acceptable by comparing them to a normal method that uses an U-8 container and a coaxial Ge detector for a powdered sample: 1) filling a Marinelli container sparsely with an unpowdered sample and 2) using a #737 container and a well Ge detector. The ^{137}Cs activity determined by both methods showed no systematic errors. Additional random errors caused by the former method were estimated to be less than 7% and those caused by the latter method less than 6%. The measurements using a #737 container (well Ge) tended to produce smaller values when self-absorption of the gamma rays was corrected in the same way as for the U-8 container (coaxial Ge) but showed reasonable values when the self-absorption was corrected using the bulk density of a reference material or when the self-absorption was not corrected. In addition, we found that measuring only a part of the sample with a smaller-volume container than the sample volume itself resulted in relatively large errors even though the samples were powdered. Thus, it is important to select a measurement container matching the sample volume to achieve measurements that are efficient and have small errors.

Key words : Coaxial Ge detector, well Ge detector, Marinelli container, U-8 container, #737 container

Received 20 November 2020, Accepted 25 February 2021

1) Department of Wood Properties and Processing, Forestry and Forest Products Research Institute (FFPRI)

2) Center for Forest Restoration and Radioecology, FFPRI

3) Department of Forest Vegetation, FFPRI

* Department of Wood Properties and Processing, FFPRI, 1 Matsunosato, Tsukuba, Ibaraki, 305-8687 JAPAN; E-mail: shinta.res@gmail.com