

熱量測定による放射能標準の高度化に関する調査研究

海野 泰裕*

(平成19年12月18日受理)

A survey on calorimetric measurement for development of advanced radioactivity standards

Yasuhiro UNNO

1. はじめに

「計測のトレーサビリティ」は、国際計量基本用語集及びJIS Z 8103「計測用語」において、「不確かさが全て表記された、切れ目のない比較の連鎖を通じて、通常は国家標準又は国際標準である決められた標準に関連づけられ得る測定結果又は標準の性質」であると定義されている^{1),2)}。産業技術総合研究所（産総研）計量標準総合センター（National Metrology Institute of Japan: NMIJ）では、放射能の国家標準が維持されており、計量法校正事業者登録制度（Japan Calibration Service System: JCSS）に基づき社会の様々な分野で使用されている放射能の計量器に対してトレーサビリティを確保する体制が整えられている³⁾⁻⁶⁾。アイソトープ等流通統計⁷⁾で報告されているように、放射性同位元素は国内で広く利用されている。工業分野では、非破壊検査、材料加工や原子力利用における放射線管理技術などのために用いられている。農業分野では、ジャガイモなどの発芽防止や害虫駆除などのために用いられている。医療分野では、陽電子断層撮影法による診断やがん治療などのために用いられている。それら放射性同位元素の利用に対して、NMIJ放射能標準グループは放射能標準を供給している。NMIJ放射能標準グループは、国際度量衡局（International Bureau of Weights and Measures: BIPM）の校正・測定能力（Calibration and Measurement Capabilities: CMCs）一覧表に、執筆時点において73核種195項目を登録しており⁸⁾、また、国際相互比較に積極的に参加している⁹⁾。国際度量衡委員会放射線諮問委員会第2部会（Consultative Committee for Ionizing Radiation section II: CCRI (II)）では、国際放射能参照システム（International Reference System: SIR）などにより国際比較が行われている¹⁰⁾。

* 計測標準研究部門 量子放射科

NMIJ放射能標準グループは、標準供給業務や国際比較と共に、社会の放射性同位元素の利用を安全・安心に支えることを目的として、既存の標準を高度化するため、もしくは、新たな標準を確立するための研究開発を行っている。その主題の一つが、既存の標準の不確かさを小さくすることである。現在までに引き続き今後も、放射性同位元素の利用は、特に医学分野において拡大していくものと考えられる。したがって、利用者の増加に伴い、放射性同位元素利用の安全・安心性の確保や利用効果の向上のために、不確かさの小さい放射能標準を確立することが、より一層に求められている。

NMIJ放射能標準グループでは、国家標準を供給するための特定標準器として $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時測定装置などを保持しているが、現在も、世界各国で様々な放射線検出器の研究開発が進められている。近年、極低温放射線検出器の開発が進み、飛躍的な成果が報告されている。本調査研究では、現在のNMIJ放射能標準の現状を報告するとともに、今後の放射能標準の高度化に寄与する候補として有力な測定方法を熱量測定法の観点から調査する。

2. NMIJ放射能標準の現状

現在我が国における放射能標準のトレーサビリティ体制を図1に示す。NMIJ放射能標準グループは放射能国家標準を維持・供給している。JCSS登録事業者である社団法人日本アイソトープ協会は特定二次標準器を保持しており、ユーザーに対してJCSS校正を行っている。また、NMIJ放射能標準グループは、他国の放射能標準との国際比較により国家間の計量サービスの同等性を担保するための活動を行っている⁸⁾。

NMIJ放射能標準グループの活動は、図1に示したように $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時測定装置を中心とした特定標準器群による放射能測定を基に行われている。 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時測定装置で

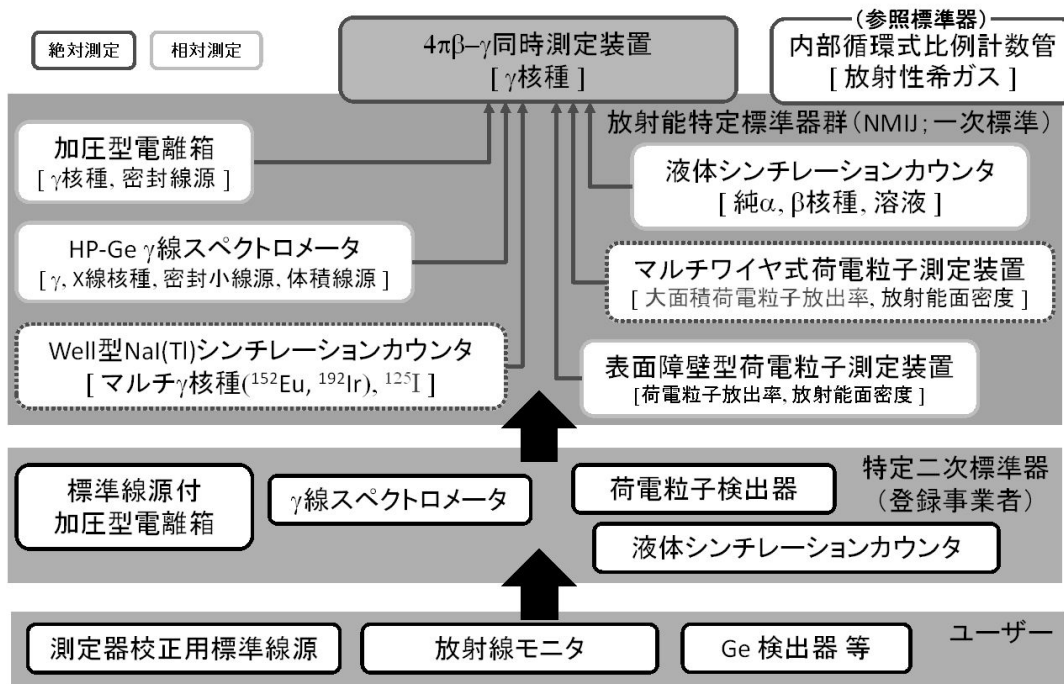


図1 産総研における放射能標準の供給体制

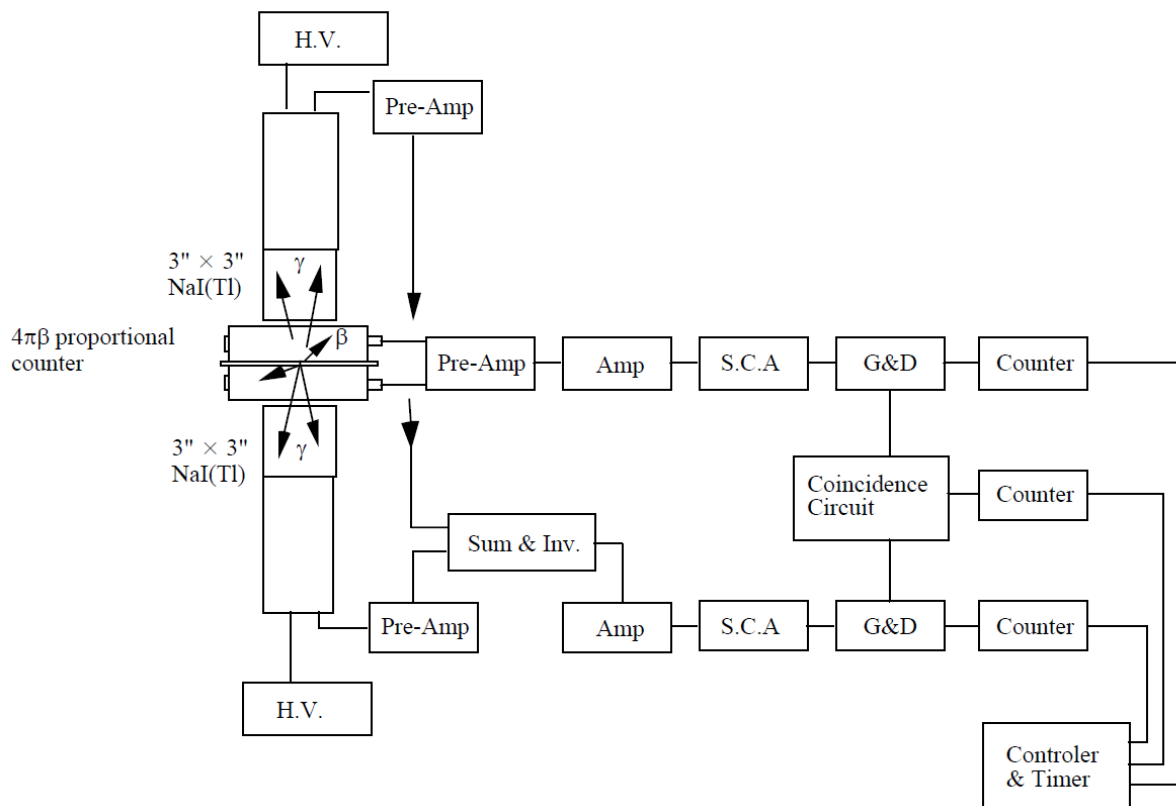


図2 4πβ-γ同時測定装置の測定回路概図

は放射線源の放射能を絶対測定することが可能であり、この装置によって測定された線源により、加圧型電離箱、ゲルマニウム検出器などを校正する。このような方法により、様々な種類や強度の放射能標準が供給されている。以下、それらの各測定装置について概説する。

2.1 4πβ-γ 同時測定装置

4πβ-γ 同時測定装置を用いると、β線・γ線を同時に放出する核種について標準線源によらない放射能を絶対測定できる。4πβ-γ 同時測定装置は線源を内包したガスフロー比例計数管とその比例計数管を上下から挟むようにして設置されているNaI(Tl)シンチレーション検出器で構成されており、β線は比例計数管により、γ線はNaI(Tl)シンチレーション検出器で測定される。図2に4πβ-γ 同時測定装置の測定回路図を示す。この回路により、β線計数 ρ_β 、γ線計数 ρ_γ 、さらにβ-γ同時計数 $\rho_{\beta\gamma}$ を測定する。これらの計数は不感時間、および偶発同時計数の効果について補正される必要がある。放射能Aはβ線を1個放出すると同時にγ線を1個放出する場合において、以下の式のようになる。

$$A = \frac{\rho_\beta \rho_\gamma}{\rho_{\beta\gamma}} \text{ [Bq]} \quad (1)$$

実際には、比例計数管で転換電子やそれに続くオージェ電子または特性X線、さらにγ線が検出される。特に、この効果を考慮して式(1)を補正する必要がある。β線計数 ρ_β は以下の式(2)により表わされる^{12), 13)}。

$$\rho_\beta = A \varepsilon_\beta + A(1 - \varepsilon_\beta) \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \quad (2)$$

ここで、 ε_β は検出確率、 α は内部転換係数、 ε_{ce} は内部転換電子とそれに続くオージェ電子・特性X線を比例計数管で検出する確率、 $\varepsilon_{\beta\gamma}$ はγ線を比例計数管で検出する確率である。式(2)により式(1)は以下の式(3)のように表わされる。

$$\frac{\rho_\beta \rho_\gamma}{\rho_{\beta\gamma}} = A \left\{ 1 + \frac{1 - \varepsilon_\beta}{\varepsilon_\beta} \left(\frac{\alpha \varepsilon_{ce} + \varepsilon_{\beta\gamma}}{1 + \alpha} \right) \right\} \quad (3)$$

この式(3)に基づいた効率外挿法と呼ばれる方法は、β線の検出効率を変化させることにより、 $\rho_\beta \rho_\gamma / \rho_{\beta\gamma}$ と $(1 - \varepsilon_\beta) / \varepsilon_\beta$ の値の組み合わせを実験値より複数得て、 $(1 - \varepsilon_\beta) / \varepsilon_\beta \rightarrow 0$ に外挿することにより放射能Aを求める方法である。この外挿法による不確かさが放射能測定の全体の不確かさの主因となっている。

なお、この測定装置ではα線・γ線を同時に放出する

核種、γ線を放出する軌道電子捕獲核種についても同様に放射能絶対測定を行うことができる。

2.2 液体シンチレーションカウンタ

液体シンチレーションカウンタはγ線放出を伴わない純β核種などの測定に有用である。線源は液体シンチレータ溶液と混合される。崩壊により放出された荷電粒子が、シンチレーション発光を起こし、この光を光電子増倍管で増倍することにより、電荷パルスを収集する。このような測定方法は、特に他の検出器では入射窓を通りにくい低エネルギーβ線を放出する³H、¹⁴Cなどの放射能測定に有用である。

2.3 加圧型電離箱

加圧型電離箱は全体が円柱型であり、その芯部分に線源を挿入するための井戸があり中心付近まで穴が続いている。これにより、線源を電離箱の中心に据えられるようになっている。芯部分の周りには入射したγ線によって電離されるためのガスを封入する。この放射線検出器では、ガス中で発生したイオンを高電圧により収集し、流れる微小電流を測定する。加圧型電離箱は極めて安定性が高く、さらに5桁を超える(数十 kBq - 数百 MBq)広いダイナミックレンジの測定が可能であるという長所を持つ¹⁴⁾。

2.4 ウェル型NaI(Tl)シンチレーションカウンタ

¹²⁵Iからは軌道電子捕獲過程に伴う特性X線(27.5 keVと31.0 keV)が放出され、それに続いて励起状態にある¹²⁵Teからは35.5 keVのγ線が放出されるか、あるいはγ線が放出されない代わりに内部転換電子が放出されると共に特性X線が放出される。この¹²⁵Iのような核種は、ウェル型NaI(Tl)シンチレーション検出器による測定で得られる¹²⁵Iの波高スペクトルから、¹²⁵Iの放射能絶対測定を行うサムピーク法で測定が行われる。軌道電子捕獲に伴うK-X線の放出確率を P_1 、35.5 keV γ線の放出確率と内部転換電子放出に伴うK-X線の放出確率の和を P_2 、2つの光子を同時に検出して得られたピーク(サムピーク)の計数率を N_c 、片方のみを検出して得られたピーク(シングルピーク)の計数率を N_s とすると、線源の放射能Aは次の式(4)により求められる。

$$A = \frac{P_1 \cdot P_2}{(P_1 + P_2)^2} \cdot \frac{(N_s + 2N_c)^2}{N_c} \quad (4)$$

この方法の校正範囲上限は0.2 MBq程度である。近年、前立腺がんに対する治療用¹²⁵I密封小線源の利用が広まっ

ている。その放射能は小線源1個当たり10 MBq程度であり、サムピーク法の適用範囲を超えている。治療用 ^{125}I 密封小線源については、現在NMIJ放射能標準グループが保持している特定標準器によって標準を供給することは困難であり、線量標準を確立するための研究が行われている¹⁵⁾。

2.5 高純度ゲルマニウム γ 線スペクトル測定装置

高純度ゲルマニウム γ 線スペクトル測定装置を動作させるにあたり、まず、p-n型のダイオード構造を持つゲルマニウム半導体に逆バイアスをかける。それにより生じる空乏層に、 γ 線が入射して発生する電子正孔対が収集される。収集された信号を基に、測定回路によりエネルギーに比例した電気信号が得られ、 γ 線のスペクトル測定を行うことができる。この測定装置は661.7 keVで0.15%程度の高いエネルギー分解能を持つ³⁾ために、複数の核種を同時に測定できる。また、 γ 線を放出する微量不純物の同定を行うこともできる。

2.6 荷電粒子測定装置

荷電粒子の測定は、マルチワイヤー式 2π ガスフロー比例計数管とSi表面障壁型検出器によって行われている。これらの測定装置は、ハンドフットクロスモニタ、 β 線サーベイメータのような表面汚染測定装置などの校正用面線源の測定に用いられる。

マルチワイヤー式 2π 比例計数管では、主に10 cm \times 10 cmの面線源を測定するために用いられている。この比例計数管では、面線源から 2π 方向に放出される α 線及び β 線の表面放出率を絶対測定できる。放出された α 線及び β 線がガスを電離して、それに続いて高電圧をかけた電極付近で電子なだれが起きて信号として収集され測定が行われる。

Si表面障壁型検出器は室温で動作し、そのエネルギー分解能が高い。この測定装置はマルチワイヤー式 2π 比例計数管よりも面積が小さい線源からの表面放出率を測定する際に用いられている。

3. 放射能の熱量測定

NMIJ放射能グループにおいては、放射能から放出される放射線を、前節で示したような方法により測定している。それらの測定原理を大別すると、放射線によるガス電離現象を利用する方法、電子正孔対発生現象を利用する方法、発光現象を利用する方法に分類される。現状の放射能標準を世界的に見ても、最も不確かさの小さい値

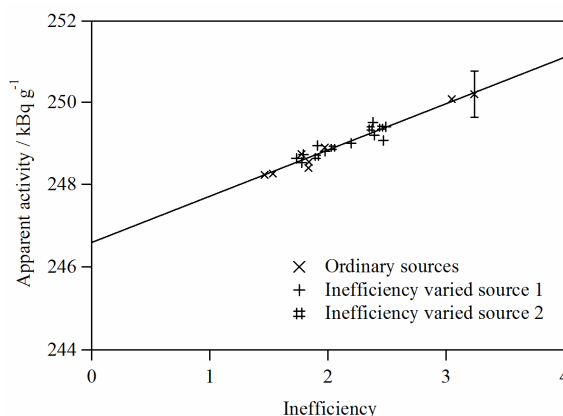


図3 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時測定装置で ^{54}Mn の放射能を測定した結果

で0.1% ($k=2$)以下を得ることは難しい。熱量測定法によればより小さい不確かさで測定できる可能性がある。

前述の $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時測定装置で ^{54}Mn を測定した結果の例を図3に示す。図3では、横軸に β 線の検出効率に関する値 $(1-\epsilon_\beta)/\epsilon_\beta$ 、縦軸に放射能を示している。外挿効率法により、この図の切片から放射能絶対値を求めている。特に、この例のように軌道電子捕獲過程に伴いオーージェ電子や特性X線を放出する核種の場合、自己吸収の割合が大きいために検出効率が非常に低く、効率外挿による不確かさが放射能測定全体の不確かさの主因となっている。ところで、その自己吸収により検出されないエネルギーの大半は熱エネルギーへと変換されていると考えられる。したがって、その熱エネルギーを検出することが検出効率の飛躍的な向上をもたらし、現状よりも小さい不確かさでの放射能測定を実現できる可能性がある。

どのような崩壊過程由来であっても、各種放射線はエネルギーを放出する現象であり、熱量に換算できる。発生熱量率 $Q[W]$ は以下の式(5)であらわされる。

$$Q[W] = E[J] \times A[Bq] \quad (5)$$

ここで、 $E[J]$ は1崩壊当たりに放出するエネルギー、 $A[Bq]$ は放射能である。表1に、放射能がそれぞれ1 GBq、1 kBqであると仮定して、核種ごとの発生熱量率を算出した一覧を示す¹⁶⁾。これらの熱量を、100%に近い効率で測ることが放射能標準の不確かさの低減につながる。

歴史的には、放射能を熱量で測った例は古く、約1世紀前の1903年にP. Curieらがラジウムとその崩壊生成物からの放射線を熱量測定した例まで遡る¹⁷⁾。これは、1896年に自然放射能をHenri Becquerelが発見した¹⁸⁾数年後のことである。それ以来、放射能の熱量測定は長い歴史を経て現在に至っている。従来から続けられてきた熱量率測定における現状で最小な熱量率測定例は数 μW (10^{-6} W)

表1 主な核種について発生熱量率一覧表¹⁶⁾

核種	エネルギー[MeV]	発生熱量率 [$\mu\text{W GBq}^{-1}$] or [pW kBq^{-1}]
純 β 核種		
^3H	0.0568	0.910
^{14}C	0.04944	3.565
^{32}P	0.6955	111.4
^{90}Sr	0.196	31.4
軌道電子捕獲核種		
^{55}Fe	≈ 0.006	1.

程度が数%の不確かさで測定された例がある。これとは別に、極低温技術を用いてaJ (10^{-18} J) オーダー程度の熱量の違いに相当する熱パルスの大きさの差を見分けられる革新的な技術が研究されている。以下に、それらに関する近年の主な研究成果例について述べる。

3.1 発生熱量率計測

3.1.1 由良らによる報告¹⁹⁾

現在のNMJ放射能標準グループの前身にあたる、工業技術院電気試験所標準器部放射能研究室にて、試験的に熱量測定の研究が行われた。この研究では、核種は ^3H であり、その放射能が約3 Ci (111 GBqに相当)である量を絶対測定することを目的とした。

測定装置は、大別するとTwin Differential Calorimeterと呼ばれるタイプに分類される装置である。その測定体系の構造を以下概説する。恒温槽の中に熱量計を入れる。熱量計の中に同形、同質、同大の銅の熱吸収体を2つ吊るし、一方には放射線源を、他方には測定可能な可変熱源をセットする。双方の熱吸収体の温度上昇が周囲に対して等しくなるように可変熱源を変化させ、つりあったときの熱量を測定することによって、放射線源からの熱量を測定する。2つの熱吸収体の温度差を計測するために、 $0.3\text{ mm}\phi$ クロメル-コンスタンタン熱電対25対が用いられた。この装置では、熱量計部における周囲の温度変動を $\pm 5.0\text{ mK}$ に抑える必要があった。そのために、熱量計部の周りを 10^{-3} mmHg 程度の真空にして、空気対流の影響が抑えられた。さらにその周囲は、油・水の二重恒温槽で囲まれた。

実際の測定では、計測中における熱電対感度変化の影響を小さく抑えるために、放射線源を入れた熱吸収体にも可変抵抗をつけ、2つの可変抵抗の値の組み合わせを変えた21点の結果から、最小2乗法により放射線源からの熱量を測定した。

放射線源の熱量測定結果は $109.8 \pm 0.8\ \mu\text{W}$ (標準偏差)であった。これは、比放射能に換算すると $1.468 \times 10^{11}\text{ dps/gr}$

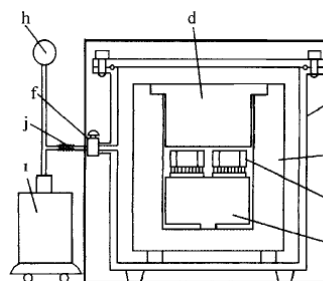
($2.265 \times 10^{12}\text{ Bq g}^{-1}$) $\pm 4\%$ である。この測定した放射能を希釈して液体シンチレーションカウンタで測定し、NBS (National Bureau of Standards, 現在の米国国立標準技術研究所の前身) 標準試料で校正した値と比較を行った。その結果、NBS標準試料で校正した値は $1.450 \times 10^{11}\text{ dps/gr} \pm 2.2\%$ (標準偏差)、マイクロカロリメータによる測定値は $1.451 \times 10^{11}\text{ dps/gr} \pm 0.7\%$ (標準偏差)であり極めて良い一致を示した。

この研究の成果として、測定にかかる時間が長時間であることは改良すべき点としつつも、 ^3H の放射能を熱量測定法によって測定できることが実証された。

3.1.2 源河らによる報告²⁰⁾⁻²⁴⁾

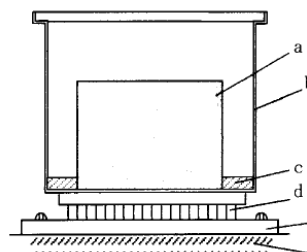
1982年より日本原子力研究所 (現在は日本原子力研究機構, Japan Atomic Energy Agency; JAEA) では、市販の双子型伝導熱量計を用いて放射能測定が行われた。図4に測定装置の構造図を示す。その測定装置では、ヒートシンクに放射性試料を挿入したセルと非放射性試料を挿入したダミーセルを並べ、双方から得られる電気信号の差分を計測して、放射能からの熱量を測定する方法が用いられている。熱量検出体にはサーモモジュールが用い

(a) 装置全体図



[a: 熱量計部, b: ヒートシンク, c: ブロック, d: プラグ, e: 真空チェンバー, f: パルプ, g: 恒温槽, h: 真空計, i: ロータリーポンプ, j: チューブ]

(b) 熱量計部拡大図



[a: 試料, b: 試料ホルダー, c: 液状パラフィン, d: サーモモジュール, e: モジュール基盤, f: ヒートシンク]

図4 真空式双子型伝導熱量計の構造図²¹⁾

られている。以下、原著に示されている測定結果を示す。

2003年の岩本らの報告²²⁾によると、筆者らは室温変動の影響によるベースラインドリフトを抑制するために、それ以前に開発されていた装置を改良して、熱量計を真空中に格納した。¹⁴Cの450 MBq程度（発熱量率では約3.5 μWに相当）の放射能を測定した結果、3サンプルの標準偏差は±1.58 % (1σ) であった。

また、1996年の源河らにより、医療用¹⁹²Ir小線源の放射能を絶対測定した結果が報告されている²³⁾。536 MBqの放射能を測定した結果、計測ごとのばらつきによる不確かさが±1.0 % (3σ)、全体の不確かさが±3.1 %であった。さらに、¹⁵³Gdについても1.5 GBq±2.9 %という測定結果が1992年に報告されている²⁴⁾。

3.1.3 R. Colleらによる報告²⁵⁾

米国の国立標準技術研究所（National Institute of Standards and Technology; NIST）で2001年から用いている熱量計はJAEAで用いているものと同タイプである。発熱量率を測定する原理を図5に示す。ヒートシンクの温度変動や電気ノイズの低減を意図して、放射性試料由来の信号 V_S と非放射性試料由来の信号 V_R の差が計測される。そして、あらかじめ正確に求められている校正定数 K から、発熱量率 P が以下の式(6)により求められる。

$$P = K \cdot (V_S - V_R) \quad (6)$$

この装置により放射能が測定された結果が既に報告されている。

ステンレスカプセルに入った⁹⁰Sr-⁹⁰Y血管内放射線治療用小線源と³²P angioplasty-balloon-catheter 用線源の測定が行われた。これらの線源は、電離箱を用いて不確かさが0.5 %から0.8 %である値が付けられる。この値とカロリメータによる測定結果は、それぞれ1.5 %、0.5 %以内で一致した。さらに、新タイプの⁹⁰Sr-⁹⁰Y小線源については、1.6 %の不確かさを持った値が測定され、液体シンチレーションカウンタの結果と1.1 %の違いを示した。主な不確かさ項目として、測定の再現性、吸収されないエネルギーの補正など10項目が挙げられている。

また、¹⁰³Pdの熱量率測定と液体シンチレーションカウンタによる測定が行われた。熱量率の測定結果は、液体シンチレーションカウンタの測定結果と数%の違いを示した。この原因についてR. Colleは、¹⁰³Pdの崩壊データの中で、特に光子放出割合に問題があるのではないかと指摘している。

さらには、低エネルギーX線を放出する軌道電子捕獲核種⁵⁵Fe (30 GBq)の放射能測定が行われ、不確かさ0.39 %

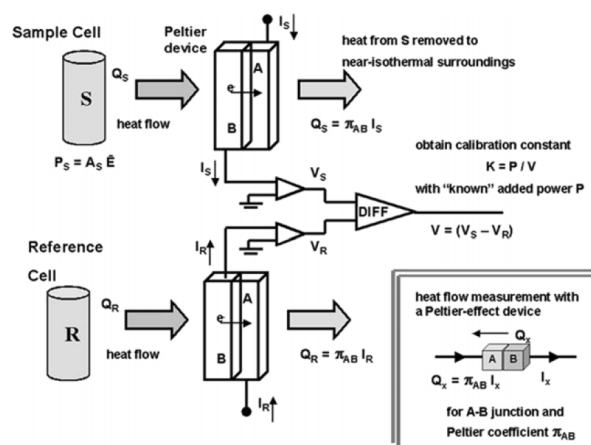


図5 NISTにおける等温マイクロカロリメータの測定原理²⁵⁾

であるとされている。

3.1.4 放射能の発生熱量率測定に関するまとめ

以上のように、放射能の発熱量率を測定する方法は現在も研究が進められている。現状では、μWオーダーの発熱量率を持つ放射能の測定が行われている。この測定法の一般的な特長として、カプセルなどに封じられた線源の放射能を直接に測定できることがあげられる。この測定方法は、原理上、放射能を導出するために崩壊核データに依存することは避けることができないが、現在のNMIJ放射能標準では対応されていない非常に強い線源を絶対測定するためには有用である。

3.2 単一入射放射線ごとの熱量パルス計測

近年、極低温放射線検出器の研究開発が盛んに行われている。それらが、従来のチャンピオンであった半導体検出器よりも高いエネルギー分解能を持つことが報告されている。それらが放射能標準のための測定器として用いられる可能性を検討する。

3.2.1 金属磁気カロリメータ^{26), 27)}

M. Loidlらは、金属磁気カロリメータ (Metallic Magnetic Calorimeter: MMC) を用いて、⁵⁵Feから放出される放射線を測定した。M. Loidlらは、環境調査、核廃棄物処理、地質年代学といった領域で、低エネルギー放射線を放出する核種、または長い半減期をもつ核種の放射能標準へのニーズを受けて開発を続けている。それらの放射能を従来の方法により測定しても、自己吸収の割合が多く、検出効率が非常に小さい。放射能を測定した結果はそれらの補正の影響により、不確かさが比較的大きくなる。

新たに開発した検出器は100 %に近い検出効率を持つ

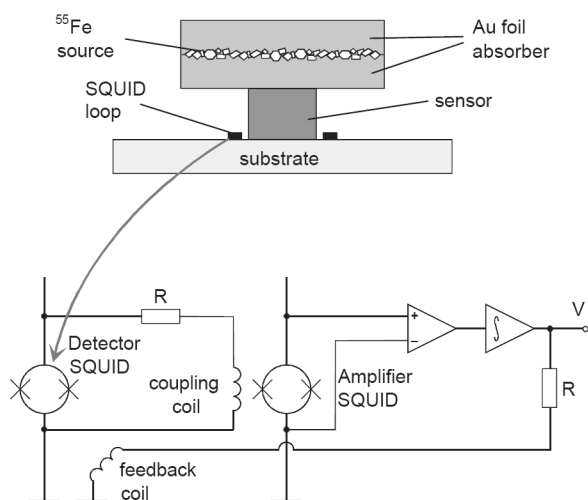


図6 M. Loidlらが開発したMMC放射能測定装置²⁷⁾

ために、これらの放射能をかつてない小さな不確かさで測定できる可能性がある。M. Loidlらは、この検出素子を用いて、5.89 keVのX線を6 eVのエネルギー分解能で測定したことを既に報告している²⁸⁾。

図6に開発された検出器の概略図を示す。検出器は、線源を挟んだ金ホイル吸収体が磁気センサに超音波溶接されて構成されている。これにより、線源から放出される全方向(4π方向)の放射線をとらえられる。⁵⁵Fe線源を挟んだ吸収体の大きさは~50 μm×100 μm×20 μm、センサの大きさは50 μmφ×25 μmであり非常に小さい。センサ(Au:Er)は金に3価のエルビウム陽イオンが900 ppm(質量比)注入されて作成された。この素子は弱い磁場下において、温度変化により強度が大きく変化する磁気モーメントを発生する。放射線が入射してエネルギーを付与すると、金吸収体の温度が上昇し、即座にセンサにエネルギーが伝達して温度が上昇する。そして、検出素子の磁気モーメントが変化する現象を利用して放射線を検知できる。この現象を、SQUIDアンプによって信号として得ることにより放射能測定を行うことができる。このセンサは、25 mKから50 mKまで冷却すると、温度が上昇するまでにかかる時間は1 μs以下である。その後、再びベース温度に落ち着くまでには数msかかる。

⁵⁵FeはK殻由来の6.539 keVのX線、またはオージェ電子を放出するが、図7に示すとおりM殻由来のピークまで測定され2桁近いエネルギー領域に感度を持つ。図7に示されたスペクトルデータでは、全部で11480カウントが0.4 s⁻¹で測定された。つまり、測定に約8時間かかっている。2006年の報告では、信号の減衰時間が20 msから1 ms以下にまで縮小されるように改良されている。

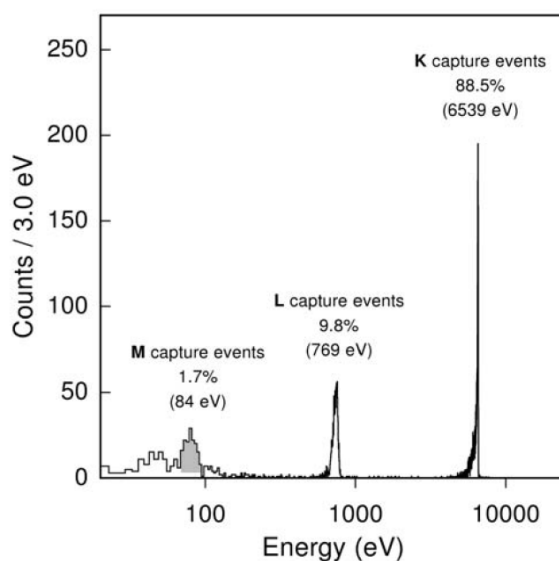


図7 M. Loidlらにより測定された⁵⁵Fe由来のスペクトル²⁷⁾

この報告のように、⁵⁵Fe から放出される低エネルギーβ線をほぼ100%近い検出効率と高いエネルギー分解能でスペクトル測定することに成功した例は、現状では他に見当たらない。放射能標準のための測定を行うためには、計数率を向上させることが大きな課題となるが、今後、放射能標準の高度化につながる可能性がある。

3.2.2 超伝導転移端検出器

NISTのJ. N. Ullomらは超伝導転移端検出器(Transition Edge Sensor: TES)を用いた測定結果を報告している²⁹⁾。このセンサは、入射した放射線が吸収体にエネルギーを落とすことにより超伝導転移点付近で温度変化が起きるように冷却される。入射放射線ごとに温度変化が起きて電気抵抗が超伝導状態から常伝導状態へと急激に遷移する現象をSQUIDアンプを用いて捉えることにより測定が行われている。J. N. Ullomらは、この測定器を用いて、5.9 keVのX線を2.4 eVのエネルギー分解能で測定した結果を報告している³⁰⁾。

J. N. Ullomらは、硬X線(軟γ線)がエネルギーを付与するに足りるように吸収体のサイズを大きくして、図8に示すようにPuとその崩壊生成物から放出されるγ線の測定を行った。この図から、既存のゲルマニウム検出器よりもエネルギー分解能が非常に高いことが確認できる。しかしながら、このTES素子1個は、検出面積が非常に小さい。また、再冷却が完了するまでに約1 msかかることから、計数率が100 Hzまでと非常に低い。そこで、J. N. UllomらはTESをアレイ化することに取り組んでいる。

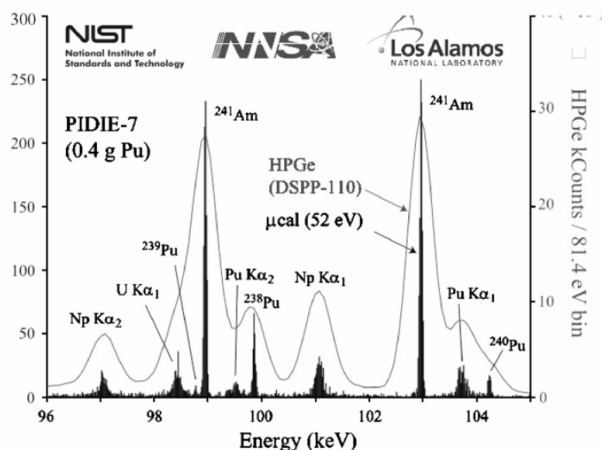


図8 J. N. Ullomらにより計測されたPu崩壊生成物由来のγ線スペクトル²⁹⁾

現在、国内においてもTESの研究が盛んに行われている。東京大学の高橋らが開発したIr/Au-TES³¹⁾の応答時間定数は34 μsecであり、他のマイクロカロリメータよりも非常に小さい。TESを放射能測定のために用いた例は見当たらないが、アレイ化等の工夫を施すことにより他のマイクロカロリメータよりも高い計数率で測定できる可能性がある。

3.2.3 単一入射放射線ごとの熱量パルス計測に関するまとめ

これらの極低温検出器の特長は、その測定のエネルギ分解能が非常に高いことである。それにより、従来は不可能であったエネルギーの近い特性X線やγ線などを放出する核種が混在する場合でも、それぞれを確認することやその割合を測定できる。その上さらに、100%に近い検出効率であれば、4πβ-γ同時計数法と組み合わせることにより、現在よりも小さい不確かさで放射能標準を確立できる可能性がある。

上述のMMCやTESの他にも、超伝導トンネル接合 (Super-conducting Tunnel Junction: STJ) や誘電体カロリメータ (Dielectric Micro-calorimeter)³²⁾など他の極低温放射線検出器の開発が現在も続けられている。今後も極低温放射線検出器は発展を続けていくと考えられる。この極低温放射線検出器の放射能絶対測定への応用は重要な課題の一つとして考えられる。放射能標準を確立するための測定器としては、供給すべき強度の放射能を測定できること、測定するために必要な時間が実用レベルであることが必要である。

4. 結論

現在、NMIJ放射能標準グループは、4πβ-γ同時測定装置を中心とした装置群により放射能標準を供給している。JCSS制度に基づき、その放射能標準は各ユーザーに供給されている。本調査研究では、その現在産総研が供給している放射能標準よりも、強い放射能を持つ線源を測定できる発熱量率測定法について調査を行った。また他方で、現在の放射能標準の不確かさを小さくできる可能性のある測定器として極低温放射線検出器の調査を行った。その結果、極低温放射線検出器は、現有の4πβ-γ同時測定装置よりも大幅な不確かさの低減につながる可能性を持ち、放射能標準全体の不確かさの低減にまで波及効果が得られる可能性があることが示された。放射能標準のための特定標準器として確立されるためには、主に高計数率化などの課題を克服する必要があるが、その精度の高い測定は、現在では測定できない微小な放射能・放射線の強度の違いが識別される可能性をもたらす。これにより、様々な分野の放射能・放射線の各ユーザーに対して、より高度な利用、より安心・安全な利用できる環境が整えられると考えられる。

謝辞

本調査研究をまとめるにあたり、計測標準研究部門 檜野 良穂 副部門長、量子放射科 放射能中性子標準研究室 柚木 彰 室長、佐藤 泰 研究員、日本アイソトープ協会 山田 崇裕氏から貴重な御教授を頂きました。ここに深く御礼を申し上げます。

参考文献

- 1) 飯塚幸三: 国際計量基本用語集, 日本規格協会 (1996).
- 2) 日本規格協会: JIS Z 8103 計測用語 (2000).
- 3) 佐藤泰: 放射能標準と遠隔校正技術に関する調査研究, 産総研計量標準報告, 2-1 (2003) 141-145.
- 4) 山田崇裕: 放射能標準のトレーサビリティ, 放射線, 33-1 (2007) 11-17.
- 5) 檜野良穂: 放射線・放射能標準のトレーサビリティ, RADIOISOTOPE, 53 (2004) 107-113.
- 6) 檜野良穂: 放射線標準, RADIOISOTOPE, 54 (2005) 395-405.
- 7) 社団法人日本アイソトープ協会: アイソトープ等流通統計2006.

- 8) BIPM: Calibration and Measurement Capabilities of National Metrology Institutes,
<http://kcdb.bipm.org/appendixC/default.asp>
- 9) BIPM: Key and supplementary comparisons,
http://kcdb.bipm.org/AppendixB/KCDB_ApB_search.asp
- 10) BIPM: International Reference System,
<http://www.bipm.org/en/scientific/ionizing/radionuclides/sir/>
- 11) P. J. Campion: The Standardization of Radioisotopes by the Beta-Gamma Coincidence Method Using High Efficiency Detector, *Int. J. Appl. Rad. Isotopes*, 4 (1959) 232-248.
- 12) 佐藤泰: 放射能絶対測定と国際比較, *放射線*, 33-1 (2007) 3-10.
- 13) "Particle Counting in Radioactivity Measurements", ICRU report 52 (1994).
- 14) 檜野良穂 et. al.: 加圧型電離箱による γ 線核種放射能二次標準の確立, *電子技術総合研究所彙報*, 62-9 (1998) 399-405.
- 15) 柚木彰: 医療用 ^{125}I 密封小線源の線量及び放射能標準に関する調査研究, *産総研計量標準報告*, 4-3 (2006) 201-210.
- 16) LNHB: BNM-LNHB/CEA-Table de Radionuclides,
http://www.nucleide.org/DDEP_WG/DDEPdata.htm
- 17) マダム ピエール キュリー: 放射能 (下), 白水社 (1943) 372-373.
- 18) マダム ピエール キュリー: 放射能 (上), 白水社 (1942) 139-140.
- 19) 由良治, 木村美和子: マイクロカロリメータによるトリチウムの放射能絶対測定, *応用物理*, 33-5 (1964) 342-346.
- 20) T. Genka et.al: A calorimeter for the measurement of the activity of tritium and other pure beta emitters, *Appl. Rad. Isot.*, *Int. J. Rad. Inst.* A38-10 (1987) 845-850.
- 21) 源河次雄 et.al.: 放射能測定用双子型伝導微小熱量計, *RADIOISOTOPE*, 37 (1988) 155-158.
- 22) 岩本清吉, 萩原清市, 源河次雄: 放射能測定を目的とした真空式双子型伝導熱量計の開発, *熱測定*, 30-3 (2003) 106-110.
- 23) T. Genka et.al.: Radioactivity standards for ^{192}Ir brachytherapy sources, *Nucl. Inst. Meth. A*, 309 (1996) 709-712.
- 24) T. Genka et.al.: Radioactivity measurements of ^{153}Gd pellet sources by calorimetric methods, *Nucl. Inst. Meth. A*, 312 (1992) 193-197.
- 25) R. Colle: Classical radionuclidic calorimetry, *Metrologia*, 44 (2007) S118-S126.
- 26) M. Loidl et. al.: Nuclear and atomic data determination with metallic magnetic calorimeters, *Nucl. Inst. Meth. A*, 559 (2006) 769-771.
- 27) M. Loidl et. al.: Feasibility study of absolute activity measurement with metallic magnetic microcalorimeters, *Nucl. Inst. Meth. A*, 520 (2004) 73-75.
- 28) M. Loidl et. al.: High-energy resolution X-ray, gamma and electron spectroscopy with cryogenic detectors, *App. Rad. Isot.*, 60 (2004) 363-368.
- 29) J. N. Ullom et. al.: Multiplexed microcalorimeter arrays for precision measurements from microwave to gamma-ray wavelengths, *Nucl. Inst. Meth. A*, 579 (2007) 161-164.
- 30) J. N. Ullom et. al.: Optimized transition-edge x-ray microcalorimeter with 2.4 eV energy resolution at 5.9 keV, *App. Phys. Lett.*, 87 (2005) 194103-1-3.
- 31) 中澤正治, 高橋浩之: Ir 超伝導転移端センサを用いたマイクロカロリメータ, *放射線*, 33-2 (2007) 83-91.
- 32) T. Ariyoshi et. al.: Development of Dielectric Microcalorimeter, *J. Nucl. Sci. Tec.*, 43-6 (2006) 611-616.