

令和元年6月6日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(C)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16K06966

研究課題名（和文）環境モニタリングスペクトロメータ用線量率・空气中放射性物質濃度同時評価法の開発

研究課題名（英文）Method for simultaneous determination of ambient dose equivalent rate and activity concentration in air for environmental radiation monitoring

研究代表者

古渡 意彦（kowatari, munehiko）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 放射線管理部・主査

研究者番号：80391283

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,300,000円

研究成果の概要（和文）：本研究事業では、環境放射線モニタリング用シンチレーション検出器を用いた、空气中放射性物質濃度及び空間線量率の同時評価手法を開発した。その結果、従来のモニタリングポストで観測できなかった放射性希ガスによるブルームについて、バックグラウンド線量率の20%までの上昇分のイベントについて、同定・定量可能であることが示された。さらに、地表面に沈着した量と放射性ブルームとして移動している放射性物質の量を適切に分離するための手法について検討し、地表面に沈着した核種及び天然バックグラウンド核種からの線によるシンチレーション検出器でのイベントを再現する手法を開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

福島第一原子力発電所事故直後に発生した放射性希ガスの分布の正確な測定ができなかったが、本研究事業で開発した手法を用いることにより、原子力事故ごく初期に生じるイベントを適切に検知できるようになる。得られた測定結果を用いることにより、原子力事故時のソースターム推定をより精度よく行うことができるほか、測定により、住宅密集地、山林、耕作地等への放射性希ガス及び放射性ヨウ素の移行・沈着の挙動、という、微視的でローカルな拡散の挙動を適切にとらえることができる。原子力防災の観点から、本手法の導入により、公衆被ばくを過小評価せず、実測に基づいた避難指示等を適切に出せることが期待される。

研究成果の概要（英文）：A method to simultaneously determine ambient dose equivalent rate and radioactivity concentration in air by using a newly developed scintillation spectrometer was investigated. The performance of the proposed method was verified by a series of measurements, conducted according to the procedure of inter-comparison by EURADOS. Results show that the proposed method is suitable for environmental monitoring purposes. The activity concentration in air was determined in the laboratory by using a point-like sealed ^{133}Ba source. The photon fluence rate was obtained from the pulse height distribution by using the unfolding method, and the activity concentration in air for radioisotopes of interest, mainly ^{133}Xe , was estimated from the obtained photon fluence rate by applying the conversion coefficient evaluated via a Monte Carlo calculation. The results additionally show that the method presented in this study is reliable and suitable for the environmental radiation measurement.

研究分野：環境放射線

キーワード：放射線防護 環境放射線 モニタリング CeBr3検出器

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

本研究着手時点での学術的背景として、福島原子力事故時の放射性核種のモニタリングに関する課題が挙げられる。今次福島第一原子力発電所の事故において、放射性セシウム及び放射性ヨウ素が環境中に大量に放出され、北半球を中心に広い範囲に拡散した。放射性物質の拡散の挙動は、巨視的には WSPEEDI 等、精力的に開発されたコードにより、広域に対し高精度な予測が可能である。その一方で、住宅密集地、山林、耕作地等への放射性セシウム及び放射性ヨウ素の移行・沈着の挙動、という、微視的でローカルな挙動の予測は現時点でも困難である。

この点を補うのが、線量計を用いた測定を行うモニタリングであるが、福島原子力事故時において、定点観測用のモニタリングポストに設置された線量計（スペクトロメータ）からの波高分布データは有効活用されなかった。非常用電源供給及び通信回線の確保以外にも、高線量率下では放射性物質の通過時に NaI(Tl)検出器では正当な波高分布が取得できないため、スペクトル解析できず、結果として線量率も核種情報も得られなかった。さらに、波高分布から線量率、核種弁別及び放射能濃度定量をリアルタイムで同時に行う手法は、現状でも未整備である。

線量計測上の観点からは、事故時において ^{133}Xe からの住民の外部被ばくの寄与は無視できないことが指摘されている。さらに、全面改正された原子力災害対策指針においても、「緊急時モニタリングで得られた測定結果により」避難指示等を出すことになっており、現状の体制では ^{133}Xe の外部被ばく線量への寄与を十分に加味できず、事故時の住民の被ばく線量を過小評価することにつながり、放射線防護上看過できない。加えて、原子力防災の観点でも避難指示等の判断に直結する情報の不正確さをもたらし、被ばく線量の過小評価は、重大な「かし」となり得る。

現在、定点観測用のモニタリングポストで取得された波高分布データから、遡及的に線量率、核種弁別、放射能濃度定量を同時に行う研究が精力的に進められており、事故時に地表面に沈着した放射能濃度が正当に評価されている。一方、この手法は既存の NaI(Tl)検出器の測定結果を利用しており、(1) ^{133}Xe が放出する 81 keV の線の測定が困難、(2) 分解能が良くないため、複雑な評価が必要、及び(3) 高線量率下ではピークの判別が困難、という課題は改善されていない。

2. 研究の目的

本研究では、環境放射線モニタリング用シンチレーション検出器を用いた、空气中放射性物質濃度及び空間線量率の同時評価手法を開発する。特に、原子力事故時に放出される核種のうち、リアルタイムで放射性ブルーム中の ^{133}Xe 濃度を測定する手法については、放出量が多いにも関わらず、半減期も短く、測定手法も限られており、内部被ばく線量への寄与がほとんどないため、検討されてこなかった。上記核種の環境中の挙動を測定により明らかとすれば、特にローカルな環境への希ガス核種の移行に関する知見が得られ、その地点での ^{133}Xe からの外部被ばく線量への寄与を正当に評価できる。事故時に原子力施設周辺で観測された空气中 ^{133}Xe 濃度は、同時に、原子力事故時のソースタームの精度向上に資することが期待される。

3. 研究の方法

研究期間内で、以下の検討すべき課題をクリアして、目標を達成する。

- (1) リアルタイムモニタリングに適した検出器の選定
- (2) 精度の良い線量率評価手法の開発
- (3) 空气中放射性物質濃度の評価手法の開発

(1) のリアルタイムモニタリングに適した検出器について、直線応答性、線量率上限値・下限値、等の検出器の基本性能に対して特性試験を実施し、入手性及び運用性の高さも考慮して、総合的な性能評価を行う。

(2) の線量率評価手法について、その場の線量率は既存のモニタリングポストでも重要な情報として提示されており、事故時において最も有用な情報である。本研究で検討する検出器に対しても、波高分布から線量率が求められるよう、従来型モニタリングポスト及びサーベイメータに採用されている G(E)関数法に加え、波高分布から光子スペクトルを求め、線量率を評価する手法も整備する。

(3) について、従来型モニタリングポストは、その場の線量率の時系列情報を観測するために用いられ、モニタリングポストからの波高分布等を用い、空气中放射性物質濃度を取得する方法は検討されていない。また、近年の研究でも、地表面に沈着した人工放射性物質からの線を観測して沈着量を推定することを前提とし、空气中放射性物質濃度のリアルタイムモニタリングはこれまで重視されてこなかった。本研究では、 ^{131}I 及び ^{133}Xe を中心に空气中放射性物質の同定及び定量を、核種の同定から始め、次いで定量することを目指す。

4. 研究成果

本研究事業三か年を通じ、以下について実施した。

- (1) 次世代の環境モニタリング用検出器に必要とされる、従来型の NaI(Tl)と比較して高エネルギー分解能で、高速に応答し、 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$ と比較して自己照射によるバックグラウンドが低

い、CeBr₃及びSrI₂(Eu)シンチレーション検出器(いずれも直径1インチ×長さ1インチ円筒形シンチレーション結晶サイズの検出器)を入手し、波高分布のエネルギー分解能の測定に加え、スペクトル取得の上限及び下限線量率を測定で実施した。

検出器の基本性能評価について、研究代表者のグループで運用中の日本原子力研究開発機構(JAEA)放射線標準施設棟(FRS)で運用中の線校正場での線量率応答試験に加え、周辺線量当量率10 nSv h⁻¹での校正試験が可能な、ドイツ連邦物理工学研究所(PTB)放射線防護計測グループが運用する極低線量率線校正場へ入手した検出器を運搬して特性試験を行う。

検出器の波高分布からの線量率導出のため、本研究ではG(E)関数法及びスペクトルアンフォールディング法の2種類の手法を用いた。G(E)関数法では、モンテカルロ計算コードEGS4を用いた計算シミュレーションで得られた各検出器の応答関数から、検出器で得られた波高分布を直接線量率の単位に変換する演算子であるG(E)関数を各検出器に対して作成して、測定で得られた波高分布に適応する。スペクトルアンフォールディング法では、波高分布から線スペクトルを取得するスペクトルアンフォールディング法のための各検出器の応答関数を、モンテカルロ計算コードMCNPを用いて導出する。

研究事業初年度に入手した1インチ円筒形CeBr₃及びSrI₂(Eu)シンチレーション検出器について、シンチレーション検出器からの波高分布から、1cm線量当量率及び空気カーマ率へ変換するための応答関数をEGS4及びMCNPを用いて計算し、線量評価手法を整備した。本研究事業で採用した線量評価手法の妥当性について、ドイツ連邦物理工学研究所(PTB)放射線防護線量計測グループの運用する極低線量率線校正場において、各検出器のエネルギー応答特性及び線量当量率応答特性を評価した。一連の実験及び評価の結果、研究代表者が用いたG(E)関数法及び新規に導入したスペクトルアンフォールディング法で得られた線量当量率及び空気カーマ率は、²⁴¹Am線(60 keV)放射線場での線量率測定を除き、基準値と比較して10%以内で一致した。特に、CeBr₃検出器では下表1に示す通りG(E)関数法による結果が良好であった。上記の結果より、測定により得られた検出器からの波高分布から正確な線スペクトルが取得可能であることが示された。

表1 1インチ円筒形CeBr₃シンチレーション検出器のエネルギー応答特性

線種, E (keV)	²⁴¹ Am,	⁵⁷ Co,	¹³⁷ Cs,	²²⁶ Ra,	⁶⁰ Co,
	59.6	122	662	744	1250
基準線量当量率 (A) (nSv h ⁻¹)	135 ± 3	15.8 ± 0.2	105 ± 1	283 ± 3	75.1 ± 0.6
G(E)関数による線量 当量率 (B) (nSv h ⁻¹)	140 ± 2	17.4 ± 1.4	105 ± 1	285 ± 4	79.8 ± 0.4
比率 (B)/(A)	1.039	1.10	0.993	1.008	1.06

1インチ円筒形CeBr₃及びSrI₂(Eu)シンチレーション検出器の線量率応答特性について、同様に極低線量率線校正場において実施した。その結果、¹³⁷Cs線に対して、10 nSv h⁻¹から100 nSv h⁻¹の線量当量率で、直線応答することが確認できた。また、2インチサイズではあるが、CeBr₃シンチレーション検出器について線量当量率の上限値について評価を行い、¹³⁷Cs線に対して約100 μSv h⁻¹まで適切な線量当量率を与えることを確認した。さらに、極低線量率環境でのバックグラウンド計測から、CeBr₃及びSrI₂(Eu)シンチレーション検出器について、それぞれ6.1及び5.3 nSv h⁻¹の、自己照射等によるバックグラウンド線量率があることを明らかとした。CeBr₃検出器については、結晶製造時に混入する²²⁷Acによる自己汚染が知られているが、文献値通りの結果が得られている。

以上の基本性能の評価に基づき、本研究事業ではリアルタイムモニタリングに適した検出器として、1インチ円筒形CeBr₃シンチレーション検出器を用い、以降の線量当量率及び空気中放射性物質濃度の同時評価手法の開発を進めた。この理由として、本研究事業で行った評価に加え、(1) SrI₂(Eu)と比較して応答速度が速く、小さい結晶サイズでは評価可能な線量当量率の上限値が高いことが期待できる、(2) EU諸国でもシンチレーション検出器で得られた波高分布から線量当量率を推定する手法を採用した環境モニタリングシステムの整備が進められていること、(3) 比較的安価で安定的に調達可能であること、及び(4) 結晶製造技術の進展により、混入する²²⁷Acによる自己汚染がほとんどないCeBr₃シンチレーション結晶の販売が始まっていること、である。

(2) 精度の良い線量率評価手法の開発について、上述の通り検出器の波高分布からの線量率

導出のため、本研究では G(E)関数法及び スペクトルアンフォールディング法の 2 種類の手法を用いた。G(E)関数法では、モンテカルロ計算コード EGS4 を用いた計算シミュレーションで得られた各検出器の応答関数から、検出器で得られた波高分布を直接線量率の単位に変換する演算子である G(E)関数を各検出器に対して作成して、測定で得られた波高分布に適用する。

スペクトルアンフォールディング法では、波高分布から 線スペクトルを取得するスペクトルアンフォールディング法のための各検出器の応答関数を、モンテカルロ計算コード MCNP を用いて導出する。

リアルタイムモニタリングは現在行われている通り屋外で実施される。そこで、(1)で示した放射線場以外に環境中においても妥当な線量当量率を与えるか検証した。妥当な線量率評価が可能であることを検証した 1 インチ円筒形 CeBr₃ 検出器について、PTB 放射線防護線量計測グループにおいて整備済みの平坦な広場に放射性プルームを模擬する密封微量線源を自動照射する装置 (plume simulator) による放射線場で、核種の変化及び線量率経時変化に係る試験を実施した。下表 2 に示す通り、(b)スペクトルアンフォールディング法を用いた線量当量率の評価結果は、¹³⁷Cs、⁶⁰Co 及び ²²⁶Ra について、いずれも基準値に対し 4%以内で一致した。また、本研究事業で開発した手法を用いることで、屋外の一般環境でのバックグラウンドレベルである 0.1 μSv h⁻¹ と同程度の、人工放射性同位元素による線量当量率の上昇分を検知・定量できることを実証した。

表 2 放射性プルーム模擬装置による模擬プルームからの線量当量率の評価

核種	基準線量当量率 (nSv h ⁻¹) (A)	評価された線量当量率 (nSv h ⁻¹) (B)	ずれ(%) ((B)-(A))/(A)
²²⁶ Ra	400.5 ± 5.8	386 ± 15	-3.62
¹³⁷ Cs	259.6 ± 4.8	264 ± 3	1.69
¹³⁷ Cs	68.2 ± 1.4	67.0 ± 0.6	-1.70
¹³⁷ Cs	143.9 ± 2.7	146 ± 2	1.47
⁶⁰ Co	251.6 ± 6.0	264 ± 3	0.22

同時に、屋外の一般環境 (0.1 μSv h⁻¹ 以下) における環境 線計測を通じ、開発した手法の線量率測定に関し実証試験を行う。

(3) 空气中放射性物質濃度の評価手法の開発では、(1)及び(2)で開発・検証されたスペクトルアンフォールディング法を採用し、1 インチ円筒形 CeBr₃ シンチレーション検出器で得られた波高分布から 線スペクトルを取得する。得られた 線スペクトルにより、検出した 線イベントから予測できる放射性物質の同定、及び観測された 線フルエンスがすべて放射性プルーム中の放射性物質からの 線に由来すると仮定し、空气中放射能濃度を導出した。

本研究事業では、規制対象外線源を用いて放射性プルームを模擬して検証を進めた。測定対象として ¹³³Xe 及び ¹³¹I からの 線を想定した線量率・放射能濃度評価を行う際には、放出される 線エネルギーが近い ¹³³Ba 標準線源を使用することが有用である。

そこで、1 インチ円筒形 CeBr₃ シンチレーション検出器を用い、放射性プルーム中放射能濃度導出のための測定を行い、得られた波高分布より 線フルエンス率を求めた。空气中放射能濃度の評価は、評価された光子フルエンス率から計算シミュレーションで得られた換算係数を乗じて導出した。本研究事業で得られた換算係数については、平山ら [1] の求めた換算係数と比較し、適応前に妥当性を確認した。その結果、測定で評価された 線フルエンス率が全て放射性プルーム中の放射性物質からの 線と仮定した場合において、空气中放射能濃度の予測が可能であることが確認された。

本研究事業で開発した手法により、¹³³Xe が放出する 線に対し、線量当量率で約 10 nSv h⁻¹ の上昇分 ((4.59 ± 0.13) × 10⁻⁴ Bq cm⁻³ の空气中放射能濃度) まで検知・定量可能である。これは、平常時のバックグラウンド線量率の約 20%に相当する。現在モニタリングポストで使用されている NaI (TI) 検出器では同定できない核種に対し、十分に低い線量当量率から定量可能であることを示している。

さらに、空气中放射性物質濃度定量の高精度化を目標とし、

天然放射性核種からのイベントを事前に考慮する (⁴⁰K, ²⁰⁸Tl, ²²⁸Ac, ²¹⁴Bi 及び ²¹⁴Pb)

バックグラウンドとして地表面に沈着する放射性物質の影響

に注目して、地表面に沈着した量と放射性プルームとして移動している放射性物質の量を適切に分離可能か挑戦した。

CeBr₃ 検出器を用い、鉛でコリメートした検出器の開口部を下向きに配置した場合の、地表面における沈着量の評価が可能かどうか、コンクリート表面に沈着した事故由来の放射性セシウムの表面汚染密度評価を行った。評価の結果、鉛コリメータ付 CeBr₃ 検出器とスペクトルアンフォールディング法を組み合わせる手法により、地表面に沈着した放射性セシウム表面汚染密度が評価可能であることを確認した。

天然放射性核種からの線によるイベントの推定とそれらの波高分布からの除去について検討を進め、天然放射性核種からの線に対する検出器応答を計算シミュレーションにより推定し、CeBr₃ 検出器のバックグラウンドスペクトルを再現した。計算シミュレーションで推定したバックグラウンド成分由来の波高分布は、PTB 環境放射線標準場における測定結果と比較し、よく一致していることを確認した。

以上のことから、鉛コリメータ付検出器で定量した、地表面に沈着した放射性核種及び天然放射性核種からのイベントを再現することが可能となり、測定で得られた波高分布よりそれらを差し引き、放射性プルームに起因する波高分布のみを抽出できるようになった。この技術により、空气中放射能濃度を精度よく決定できる。

計算シミュレーションにより、同一核種からの線でも、プルームまたは地表面由来からの線により、散乱線成分に違いがあることを明らかとした。特に、低エネルギー成分(100 keV 付近)で形状が大きく異なっており、¹³³Xe の適切な定量のためには、地表面に沈着する核種の同定・定量に基づく検出器の波高分布の推定を行って、影響を適切に除去することで、より信頼性の高い放射性プルーム中の空气中放射能濃度が求まることが分かった。

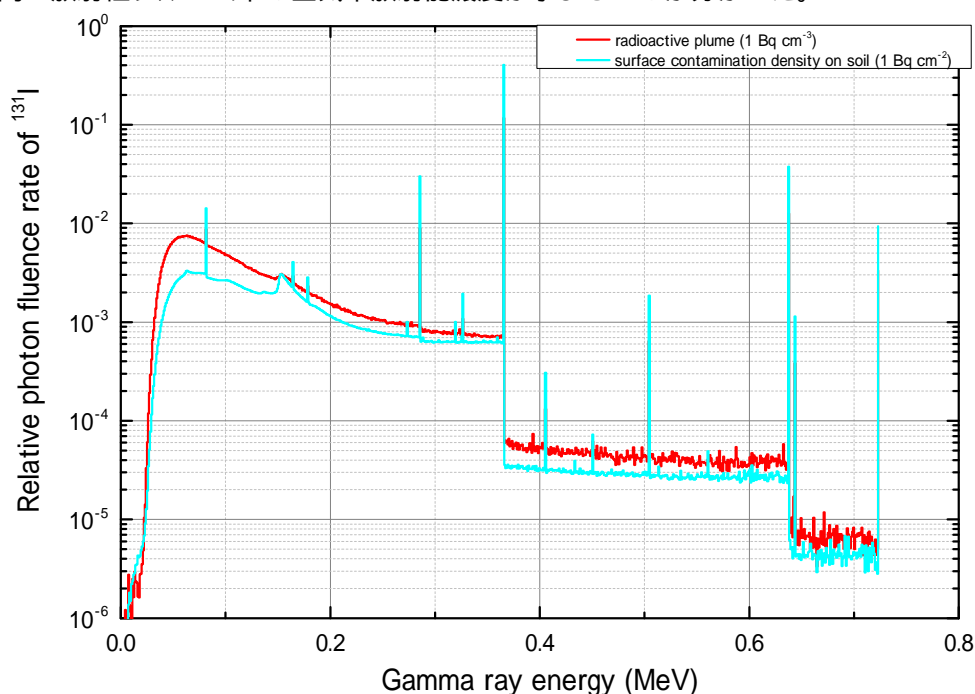


図 地表面 1 m 位置での放射性ヨウ素からの線フルエンス率(相対値)。(赤)放射性プルーム中に均一に¹³¹I が分布した場合。(青)¹³¹I が地表面に沈着した場合。

参考文献

[1] 平山英夫, 松村宏, 波戸芳仁, 佐波俊哉, 「LaBr₃ シンチレーション検出器の波高分布測定値と egs5 によるプルーム中放射性核種の検出器応答を用いたプルーム中放射性核種濃度の推定」日本原子力学会和文論文誌, Vol.12, No.4, p.304-310(2013), doi:10.3327/taesj.J13.008.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 2 件)

1. Development of a simultaneous evaluation method of radioactivity in soil and dose rate using CeBr₃ and SrI₂(Eu) scintillation detectors for environmental monitoring **Munehiko Kowatari**, Yoshihiko Tanimura, Patrick Kessler, Stefan Neumaier and Annette Roettger

Progress in Nuclear Science and Technology. 査読有. Volume 6 (2019) pp. 81-85.

DOI: 10.15669/pnst.6.81

2. Preliminary Study on Determination of Surface Contamination Density on Soil in Heavily Contaminated Areas Using a CeBr₃ Scintillation Detector Coupled with Lead Shielding **Munehiko KOWATARI**, and Yoshihiko TANIMURA

JPS Conf. Proc.24, 査読有. 011037 (2019). DOI: 10.7566/JPSCP.24.011037

〔学会発表〕(計 2 件)

1 .Preliminary Study on Determination of Surface Contamination Density on Soil in Heavily Contaminated Areas Using a CeBr₃ Scintillation Detector Coupled with Lead Shielding
Munehiko KOWATARI, and Yoshihiko TANIMURA

The Second International Symposium on Radiation Detectors and Their Uses (ISR2018), 2018年

2 .Development of a simultaneous evaluation method of radioactivity in soil and dose rate using CeBr₃ and SrI₂(Eu) scintillation detectors for environmental monitoring
Munehiko Kowatari, Yoshihiko Tanimura, Patrick Kessler, Stefan Neumaier and Annette Roettger

The Ninth International Symposium On Radiation Safety and Detection Technology (ISORD-9), 2017年

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

出願年:

国内外の別:

取得状況(計 0 件)

名称:

発明者:

権利者:

種類:

番号:

取得年:

国内外の別:

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名:

ローマ字氏名:

所属研究機関名:

部局名:

職名:

研究者番号(8桁):

(2)研究協力者

研究協力者氏名:

ローマ字氏名:

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。