

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 5 月 30 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2012～2013

課題番号：24686106

研究課題名(和文)化学分離を必要としない迅速な放射性ストロンチウムの絶対測定法の研究

研究課題名(英文) Absolute radioactivity measurement of radioactive strontium without chemical treatment

研究代表者

海野 泰裕 (UNNO, YASUHIRO)

独立行政法人産業技術総合研究所・計測標準研究部門・研究員

研究者番号：90462837

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 11,800,000円、(間接経費) 3,540,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原子力発電所事故の後、ニーズが高いSr/Y-90放射能測定について、化学分離を用いずに、従来よりも測定作業を短縮し、一般的な作業員が実施できる新たな測定手法を開発した。実証実験を実施し、測定結果と既知量との比較により、この測定手法が実際に適用できることを明らかにした。この測定手法の実用化に向けて、実証実験の結果から、測定器に改善が求められる技術要素を抽出し、検討を実施した。その結果、計数効率が向上したベータ線検出器を開発した。また、新たな測定器を設計するため、崩壊核データに沿ったベータ線とガンマ線を同時に放出するシミュレーション技術を開発した。

研究成果の概要(英文)：A new measurement method for Sr/Y-90 radioactivity was developed. Sr/Y-90 was one of the concerned radionuclide for radiation protection after Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. The method can be applied for rapid measurement by general personnel without chemical treatment. An experimental result for demonstration verified validity of the method by comparison with a known value. For practical application, technical issues which should be resolved were pointed out from the experiment. A beta ray detector which had a higher counting efficiency than the validity experiment was proposed. Furthermore, a simulation which treated simultaneous beta and gamma ray emission along with nuclear data was built to design a next measurement instrument.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力計測 放射線計測 放射能測定 放射性ストロンチウム 放射性セシウム ベータ線検出器 ガンマ線検出器 シミュレーション

1. 研究開始当初の背景

(1) 福島第一原子力発電所事故により、大量の放射性物質が放出され、広域にわたる放射能の測定が必要となった。事故による放射性物質の放出量の評価と広域モニタリングの結果から、測定対象核種は Cs-134 (半減期 2.065 年) と Cs-137 (30.04 年) であると考えられている。しかし、核分裂による生成割合と半減期の観点から Sr/Y-90 (半減期 28.74 年、Sr-90 を親核種として Y-90 と放射平衡状態) も関心対象となり、放射線防護において重要な核種である。実際に、福島第一原子力発電所の汚染水や、過去に事故が発生したチェルノブイリ原子力発電所の近辺では Sr/Y-90 が多く検出されている。

(2) Sr/Y-90 はガンマ線を放出しない純ベータ核種である。ベータ線測定では混在している他の核種と区別して放射能を決定することが難しいため、主に化学分離が用いられている。この化学分離には、化学分析操作の専門的知識と技術が必要である。また、Y-90 のスカベンジングの後に、再び放射平衡に達するまで待機する時間が 2 週間かかり、測定全体にかかる時間が長い。一方で、一般作業員でも測定を実施でき、測定結果が迅速に得られる新たな測定手法が求められている。

(3) 本研究の研究代表者は、Sr/Y-90 放射能を測定する新たな測定手法として、全ベータ線放出率からガンマ線放出核種のベータ線放出率を差し引く手法を考案した。この方法では、全ベータ線放出率を $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法の応用により絶対測定する。ガンマ線放出核種のベータ線放出率をガンマ線スペクトロメトリにより測定する。

(4) 本研究で開発に取り組む Sr/Y-90 放射能測定手法においては、化学分離の過程は存在せず、測定にかかる時間が飛躍的に短縮され、Sr/Y-90 放射能測定がより容易になる可能性がある。

2. 研究の目的

(1) 化学分離を用いずに、Cs-134、Cs-137 と混在した試料中の Sr/Y-90 放射能を測定する手法を開発することを目的とする。

(2) 本手法の開発において、原理を実証するための実験を実施し、既知値との比較により実験結果を検証する。

(3) 実証実験のための装置を構成する。装置の中で、検出器と測定回路を設計し、実際に組上げて測定する。

(4) 実試料測定への実用化を念頭に置いて、測定器の最適化に向けた検討を実施する。

3. 研究の方法

(1) 本研究の測定手法が、原理上成立するだけでなく、実際の測定に適用できることを実証するための実験を実施した。実証実験では、既知量の放射能を含んだ試料を用意し、測定結果がその既知量を再現することを示した。

(2) 本研究で開発する測定手法の原理が $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法を応用することから、試料から放出されるベータ線とガンマ線の双方に対して高い計数効率を持つように、実証実験用に用いる検出器は大きな立体角を持つように配置した。検出器からの信号から、ベータ線とガンマ線波高分布を取得した。両者の同時計数成分をオフラインで処理するため、リストデータとして波高分布を取得した。特に、ベータ線測定については、低い波高成分をより多く収集し、計数効率の向上を図った。

(3) 取得した波高分布を、 $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法とガンマ線スペクトロメトリに基づいて解析した。

(4) $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法では、全ベータ線放出率を決定するために、複数のガンマ線計数領域に対して、ガンマ線計数率と同時計数率を評価する。同時計数率は、ベータ線波高分布の低い側から徐々にしきい値を上げ、変化していくベータ線計数率と同時計数率を対応付けて評価した。3つの計数率は、いずれも不感時間と分解時間が真の計数率に対して与える影響を補正した。

(5) ベータ線計数率 (ρ_β)、ガンマ線計数率 (ρ_γ)、同時計数率 (ρ_{coin}) から下式の関係により、見かけ上の全ベータ線放出率 (N') を決定した。

$$N' = (\rho_\beta \times \rho_\gamma) / \rho_{coin}$$

ガンマ線計数率と同時計数率から評価されるベータ線計数率の関数に対する、見かけ上の全ベータ線放出率の変化を、ベータ線波高しきい値を変化させて観測し、ベータ線計数率が 100% になる点を外挿し、真の全ベータ線放出率を決定した。この際、Cs-137 由来の 662 keV ガンマ線計数率が影響しない計数領域で処理した。

(6) ガンマ線スペクトロメトリでは、Cs-134 と Cs-137 のベータ線放出率を、光電ピークの計数率と計数効率から決定した。本研究で用いるガンマ線スペクトロメータは NaI(Tl) シンチレーション検出器であり、Cs-134 由来の 605 keV 光電ピークと Cs-137 由来の 662 keV 光電ピークが波高分布上で重なり合う。ベータ線との同時計数成分は Cs-134 由来しか含まれないことを利用して、Cs-134 と Cs-137 のそれぞれの計数率を分離して求めた。

(7) 実証実験の測定結果に対する不確かさ

の評価から、測定器の最適化に向けて検証が必要な技術要素を2点抽出した。

(8) 技術要素の一つとして、ベータ線計数効率の向上に取り組んだ。そのため、ベータ線検出特性を調べる実験を実施した。

(9) もう一つの技術要素として、ベータ線とガンマ線を同時に放出するシミュレーションの開発を実施した。

4. 研究成果

(1) 図1に示すように、実証実験用の装置を、汎用性の高いプラスチックシンチレーション検出器によるベータ線検出器と NaI(Tl)シンチレーション検出器によるガンマ線検出器で構成した。試料は2枚のプラスチックシンチレータの間に挟んだ。

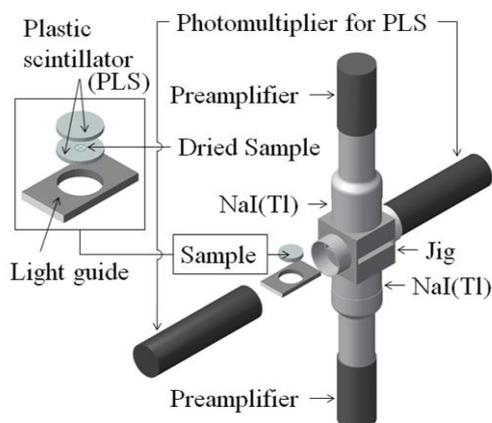


図1：実証実験用測定器

(2) ベータ線波高分布(図2)とガンマ線波高分布(図3)を取得した。図2の点線部で示すように、2つのベータ線用光電子増倍管からの同時信号のみを計数として扱うことにより、ベータ線の低波高分布まで取得することを実現した。また、図3に示すように、オフライン処理により、ベータ線と同時に検出される成分であるCs-134の波高分布はCs-137から分離された。

(3) 測定結果の解析により、Cs-134とCs-137と混在した状態にある試料中のSr/Y-90放射能は53.6 Bq(既知量52.0 Bq)と評価された。これにより、本測定手法が実際に成立することを実証できた。

(4) 測定されたSr/Y-90放射能の不確かさの評価を実施した。全体の相対拡張不確かさは5.2%(包含係数 $k=2$)と評価された。また個別要素を分析すると、測定不確かさを小さく抑えるために、ベータ線計数効率を向上させることが重要であることが示された。また、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法により全ベータ線放出率の決定においてガンマ線検出器の配置の

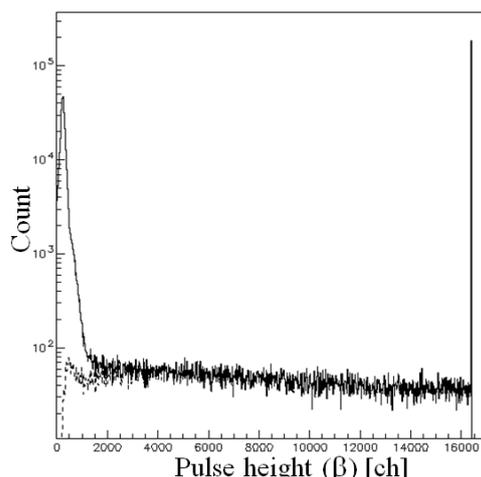


図2：ベータ線波高分布

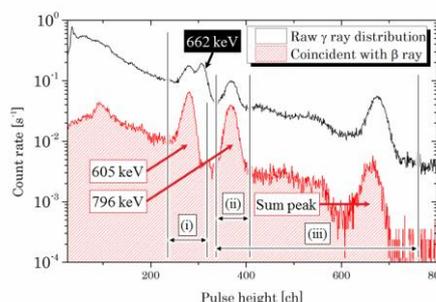


図3：ガンマ線波高分布

違いがどのように影響するのか、明らかにしておくことが必要であることも示された。

(5) ベータ線計数効率について、実証実験用測定器ではCs-134放射能に対して75%程度であり、これを90%近くまで向上させるため、測定手法を検討した。プラスチックシンチレータと光電子増倍管の組合せを組み替えた。プラスチックシンチレータ内の蛍光を実証実験よりも大きな立体角で受光する配置に変更した。また、光電子増倍管を1つに減らして反射材を施し光電子増倍管1つあたりの受光量を増やすように変更した。このいずれも大幅な計数効率の向上は得られなかった。そこで、光電子増倍管を小型でノイズが低く、かつ、感度が高いタイプ(R9880U-210)に変更した。それに対応し、プラスチックシンチレータのサイズも小さく変更した。その結果、計数効率は91%まで向上することが明らかになった。

(6) $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法におけるガンマ線検出器の配置について、シミュレーションを用いて検討を実施した。シミュレーションでは、放射性同位元素の崩壊の通りにベータ線とガンマ線を放出する線源を模擬した。これは、電子・光子輸送を模擬するEGS5コードの実行プログラム内に、線源プログラムを組

み込んで実現した。図4に示すように、線源プログラムでは、ベータ線とガンマ線の放出や輸送を一回の実行を通して実施し、得られるデータはそれぞれ対応している。そのため、本研究の目的に対しては、ベータ線検出器とガンマ線検出器の応答をリストデータとして得られるようになった。

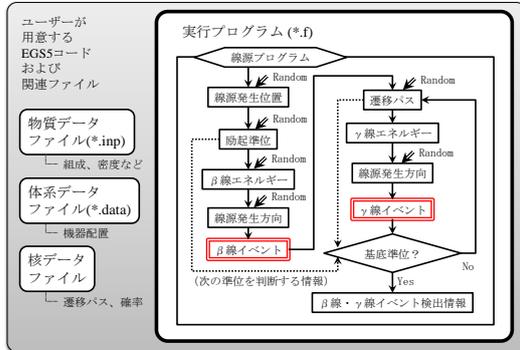


図4：シミュレーションに用いたプログラムのブロック図と付属ファイルの一覧

(7) 図5にシミュレーションを用いた $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法により Cs-134 放射能の絶対値を決定する外挿法を適用した結果を示す。図5では、ベータ線計数効率 ϵ_β が1に近づくと横軸は0に近づき、縦軸に各ベータ線計数効率において評価される見かけ上の放射能（あるいはベータ線放出率）が真の値に近づいていく。複数の曲線は、互いにガンマ線の計数関心領域が異なる。このシミュレーション結果に対して、ベータ線計数効率やガンマ線波高分解能を考慮すると、前述の実証実験用測定器での曲線を再現できることが確かめられた。また、ガンマ線検出器の位置により、曲線の形状が大きく変化することが示された。ただし、放射能決定においてはベータ線計数効率が高いという条件を満たす方の優先度が高いことまで明らかにされた。このシミュレーションにより、ガンマ線計数効率だけでなく、放射能決定の関数まで評価できるようになった。

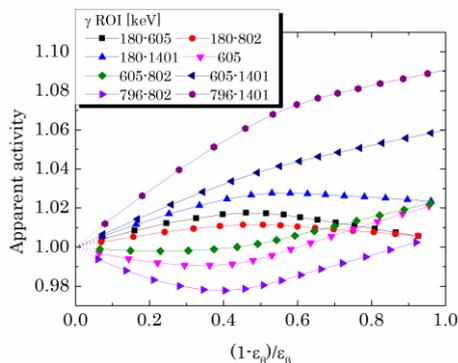


図5： $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法における Cs-134 放射能決定の模擬結果

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 5 件)

- ① 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、柚木 彰、Radioactivity measurement of Sr/Y-90 mixed with Cs-134 and Cs-137 using large solid angle detectors without chemical separation、Journal of Nuclear Science and Technology、査読有、51 巻、2014、376-384
DOI: 10.1080/00223131.2013.872584
- ② 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、柚木 彰、Monte Carlo simulation of large solid angle beta and gamma ray detectors for absolute radioactivity measurements、RADIATION DETECTORS AND THEIR USES、Proceedings of the 27th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses in KEK、査読有、2014、100-110
<http://www-lib.kek.jp/tiff/2013/1325/1325009.pdf>
- ③ 海野 泰裕、柚木 彰、佐藤 泰、桧野 良穂、Estimation of immediate fallout after Fukushima NPP Accident with HPGe detector using EGS5 code、Applied Radiation and Isotopes、査読有、81 巻、2013、348-352
DOI: 10.1016/j.apradiso.2013.03.013
- ④ 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、黒澤 忠弘 Application and validation of EGS5 code to estimate detection efficiencies of multi-cascade nuclides、Proceedings of the 19th EGS Users' Meeting in Japan、査読無、2012、10-15
<http://www-lib.kek.jp/tiff/2012/1225/1225007.pdf>
- ⑤ 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、柚木 彰、Application of beta coincidence to nuclide determination of radioactive samples contaminated by Fukushima accident、Progress in nuclear science and technology、査読有、2014、in press

〔学会発表〕(計 8 件)

- ① 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、柚木 彰、Beta ray coincidence in radioactivity measurement of mixed radionuclide samples、American Nuclear Society Winter Meeting 2013、2013 年 11 月 13 日、米国ワシントン DC
- ② 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、柚木 彰、大立体角ベータ・ガンマ同時検出法による放射能絶対測定におけるモンテカルロ計算の適用、研究会「放射線検出器とその応用」(第 27 回)、2013 年 2 月 5 日、茨城県つくば市
- ③ 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、プラスチックシンチレータに

よるベータ線検出を利用した放射能測定法の開発、日本原子力学会 2012 年秋の大会、2012 年 9 月 19 日、広島県東広島市

- ④ 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、ベータ核種放射能絶対測定のためのプラスチックシンチレータ応答試験、第 73 回応用物理学会学術講演会、2012 年 9 月 12 日、愛媛県松山市
- ⑤ 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、Application of beta coincidence to nuclide determination of radioactive samples contaminated by Fukushima accident、12th International Conference on Radiation Shielding、2012 年 9 月 2 日、奈良県奈良市
- ⑥ 海野 泰裕、佐波 俊哉、萩原 雅之、佐々木 慎一、黒澤 忠弘、EGS5 コードによるマルチカスケード崩壊核種の検出効率の算出、第 19 回「EGS 研究会」、2012 年 8 月 2 日、茨城県つくば市
- ⑦ 海野 泰裕、柚木 彰、佐藤 泰、桧野 良穂、産総研つくばセンターにおける放射性降下物の核種分析と定量測定、第 49 回アイソトープ・放射線研究発表会、2012 年 7 月 9 日、東京都文京区
- ⑧ 海野 泰裕、柚木 彰、佐藤 泰、スミア法を用いた放射性降下物の測定、日本原子力学会北関東支部大会、2012 年 4 月 20 日、茨城県東海村

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

- 出願状況 (計 1 件)

名称：大立体角ガンマ線・ベータ線同時検出装置

発明者：海野 泰裕、佐々木 慎一、佐波 俊哉、萩原 雅之

権利者：同上

種類：特許

番号：特願 2013-197916 号

出願年月日：2013 年 9 月 25 日

国内外の別：国内

- 取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

無し

6. 研究組織

(1) 研究代表者

海野 泰裕 (UNNO, Yasuhiro)

独立行政法人産業技術総合研究所・計測標準研究部門・研究員

研究者番号：9 0 4 6 2 8 3 7