

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 13 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25287045

研究課題名(和文) 原発事故によるストロンチウム-90汚染検出用 ー 弁別型ベータ線検出器の開発

研究課題名(英文) Development of a beta-gamma discrimination type plastic beta-ray spectrometer

研究代表者

織原 彦之丞 (Orihara, Hikonojo)

東北大学・サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター・名誉教授

研究者番号：00004432

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 14,400,000円

研究成果の概要(和文)：東日本大震災に付随する福島第一原子力発電所事故に伴う放射能による環境汚染を検査するための測定系の開発がなされた。特に半減期が28.8年と長く、またβ線を伴わずγ線のみによる放射能が問題となる⁹⁰Srによる環境汚染の検査は重要視されている。放射線に対する社会的不安を払拭するためには、数時間で結果がわかり、100Bq/kg以下の極微小の放射能濃度まで測ることが要求され、このため、2個の放射線検出器を同時に働かせてβ線とγ線を区別しβ線だけを測定しそのスペクトルをとる可搬型の装置を開発し極低バックグラウンド測定を行い、数時間の測定で数十Bq/kgの精度で食材などの放射能測定に成功した。

研究成果の概要(英文)：Development of β-ray detection device has been desired for inspecting the environmental pollution by the radioactive nuclides emitted as the results of the accident of the first nuclear power plant of Fukushima occurred along with the great earthquake which covered over East Japan. Especially, detection of β-decay dominant ⁹⁰Sr nucleus which has half-life of 28.78 years is important. To dispel the social fear of radiation, it is required for the detection-system to measure radioactivity of the object in a time as short as a few hours with a accuracy of less than 100Bq/kg. β-ray spectrometer, consisting of two pieces of plastic scintillator forming a counter-telescope, has been developed. A portable-type β-ray spectrometer has been developed and fabricated. By the aids of coincidence measurements with two plastic scintillators, background-free counting is available for detection of low-level emission of the β-rays as low as 10 Bq/kg requiring several hours operation.

研究分野：原子核(実験)

キーワード：ベータ崩壊 - 分別型 線分光器 プラスチックシンチレーター 放射性セシウム-134 放射性セシウム-137 放射性ストロンチウム-90 永年平衡放射性崩壊 食品放射能検査

1. 研究開始当初の背景

(1) 2011年3月11日の東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故によって¹³⁴Cs(セシウム-134,半減期:2.0648年)、¹³⁷Cs(セシウム-137,半減期:30.07年)並びに⁹⁰Sr(ストロンチウム-90,半減期:28.78年)による未曾有の環境汚染が引き起こされました。これら放射性核種による被曝が健康に与える影響を考えると、セシウムによるものは全身ですが、⁹⁰Srによる影響は、骨に集中する事で特に懸念されています。環境汚染放射能の検出は、現状ではγ線(ガンマ線)を計測して行われて、放射性核種¹³⁷Csは娘核¹³⁷Ba(バリウム-137)にベータマイナス崩壊し¹³⁷Baにおいて1本に集中した661.66-keVのエネルギーを持つγ線を放出します。また¹³⁴Cs核は同じく娘核¹³⁴Ba(バリウム-134)核において604.723-、795.864-並びに569.331-keVの比較的強い3本のγ線を出して遷移をします。しかし、同じくベータマイナス崩壊核の⁹⁰Srにおいては娘核⁹⁰Y(イットリウム-90)においてもその先の⁹⁰Zr(ジルコニウム-90)核においても、強度の十分なγ線が放出される遷移が存在しません。従って、⁹⁰Srの放射能汚染検査にはγ線(ベータ線)計測が不可欠と言うこととなります。社会的要請として国が我々の食材に求めている放射能濃度の規制値は0.1 kBq/kgという、我々を取り巻く環境の自然放射能の1/10より少ないレベルの放射能濃度です。従って、現在開発を目指しているγ線検出システムには極微量の放射線の検出が可能である事が強く要求されます。精度の高い放射線計測のためには、放射線の中でも特にγ線のバックグラウンドの除去が重要であります。このためγ線の測定においては、γ線とβ線の物質との相互作用の違いを利用してγ線とβ線の弁別を行いγ線のバックグラウンドを取り除くのが得策です。

(2) 国が我々の食材に求めている放射能濃度はγ線計測が可能な¹³⁴Csと¹³⁷Csについてだけで、γ線しか放出しない⁹⁰Srの放射能測定は困難であるとして、全セシウムの一定の割合を⁹⁰Srなどの放射能濃度とすることとしています。社会の不安はこの様な曖昧なことで払拭されるとは考えられません。特に学校給食の食材に関しては、事故後6年目に入った今でも宮城県で学校給食を多くの児童が拒否している現状があります。本研究の代表者も開発当初の平成24年2月に始まった文部科学省の「学校給食モニタリング事業」のために宮城県に協力していましたが、学校給食の食材のγ線検査の必要性を痛切に感じました。平成24年2月当時、東北工業大学の協力をえて宮城県の学校関係の農産物、学校給

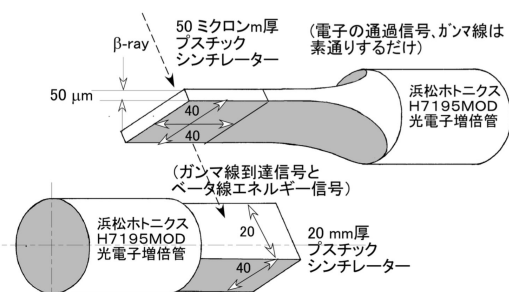
食々材のγ線測定を行っていた結果から判断してストロンチウムの放射能濃度も、国の規制値以下であろうという判断はできました。しかし、直接のγ線測定によって食材の安全が確保されないことをもって学校給食禁止の仮処分の訴え等が提出される事態も考えられ、“安全”を“安心”にまで高める為には、核物理学のノウハウをもって、社会の要望に応じてγ線を測る方策を早急に立てるべきと、考えました。幸い平成17年5月「核施設の廃棄物のクリアランスレベル計測」のために東北工業大学で製作したバラック建てのγ線検出器があり、この装置を東北大学サイクロトロン・RIセンターに設置して宮城県の給食の食材のγ線検出による検査を必要に応じて行う緊急の体制を整え、一方で、本格的な装置の開発を目指しJSPSに本報告書に係る研究を申請しました。

2. 研究の目的

研究代表者自身M9の東日本大震災に被災し、引き続き福島第一原子力発電所の事故を目の当たりにしました。核エネルギーの解放という人類の歴史の中で輝く事業の一端を担ってきた核物理学の研究に携わってきたもの一人として、未曾有の災害と云えるセシウム、ストロンチウムによる放射能汚染による社会不安の払拭と健康被害の軽減化のために、核物理学研究者にその役割を果たすべく期待されている低雑音、高感度、可搬型のγ線弁別型ストロンチウム汚染検査用γ線検出器の開発を行う事を目的としました。

3. 研究の方法

(1) 第1図に組み合わせ式の放射線検出器の概念図を示します。先に放射線が通過する検出器は、NE-102Aプラスチックシンチレータを材料とする厚さ50μm、面積40x40mm平方の、荷電粒子が光を出して通過信号を発生する検出器です。2番目の検出器は、面積が同じで厚さが2cmでγ線もβ線も全エネルギーに対応する光を発生する全エネルギー測定用の検出器です。



第1図 - 弁別型検出器

高エネルギーの光であるγ線は50μmの第

1の検出器は素通りし、第2の20 mmの検出器だけでエネルギーに見合う量の光を発生します。一方、高速の荷電粒子である線は、第1の検出器でも少量のエネルギーを失い、光を発生させ信号を出し、20 mmの検出器と合わせ2カ所で光を発生させます。 - 弁別は、第1の検出器の信号がつくるゲート“門番”信号によって行います。第2の検出器が光ってつくる信号が、第1の検出器が光ったときだけ開門するゲートを通する回路構成にしており、線を除いて線の時だけエネルギー解析をしてメモリーに蓄えます。難しいところは、透過力の弱い電子が第1の検出器の本体と入口・出口 遮光膜、それに第2の検出器の入口 遮光膜、合計4回も数十μmの膜やプラスチックを通過しなければならず、技術的な難しさはここにあります。後述の計測結果で述べるように本研究が成功裏に終わったのは、線の損失を最小限にして、かつ外部からの光の漏れ込みを無くした線検出器の製作技術の賜でした。

(2) 開発中のこの装置に要求される事の一つに、実験室の中だけでは無く他の事務室や野外でも、原子力発電所事故による⁹⁰Srを含む¹³⁴Csや¹³⁷Csの放射能汚染や食品の放射化濃度が測定出来るようにという事がありました。このため、第2図に示す写真にあるような縦横50 cm高さ20 cmのスーツケース大のケースに携帯用PC以外は全て収納可能となるようにしました。ケースの外張りは厚さ3 mmのアルミニウムであり、線のバックグラウンドに対する遮蔽体の役割も担っています。可搬型で全体の重量は約13 kgで、電源は100 V、70 Wの交流電力を必要とするだけです。



第2図 線検出システム一式

4. 研究成果

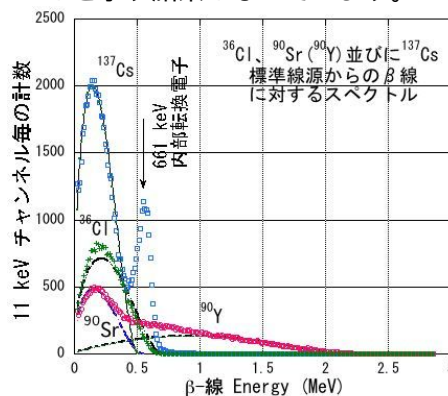
開発されたシステムの性能は、線がきちんと弁別されて0.1 kBq/kg以下の極低レベル放射能の測定が可能になっているかどうか、更にシステム全体がコンパクトに製作されていて、可搬型で実験室外でも可能かどうか、食材の放射能汚染検査に即戦力になっているかどうか見てみます。

(1) 装置の性能試験は校正用の標準線源、

⁹⁰Sr(⁹⁰Y) [Q-値: 0.546 MeV(2.2801 MeV)]、¹³⁷Cs (Q-値: 0.51397 MeV)の線並びに単色 $E_0 = 0.621$ MeVの内部転換電子、更に³⁶Cl (Q-値: 0.7086) 線源からの線を使ってなされました。第3図に現装置で測定したこれら線源から放出される線のエネルギースペクトルが図示されています。¹³⁷Csの崩壊に伴う¹³⁷Baにおける内部転換電子の孤立ピークもはっきり観測されています。³⁶Clも⁹⁰Srと同様に崩壊のみの核種ですが、³⁶Clは、後述の線サーベイメーター(TCS-319H)の検出効率の校正に使われている核種です。3体崩壊となる崩壊において、運動エネルギーが E_k と $E_k + dE_k$ の間にある電子の状態の数は、

$$\frac{dn}{dE_k} = \frac{dw_e dw_\nu}{(2\pi\hbar)^6} \cdot (Q_0 - E_k)^2 \sqrt{E_k^2 + 2m_e c^2 E_k (E_k + m_e c^2)} dE_k \quad (1)$$

とあらわされ、放出電子線のエネルギー依存性はこの式によって決められます。ここに Q_0 は崩壊のQ-値です。第3図は3個の線源毎に電子線のエネルギースペクトルを測定し3個のデータを重ねて表現したものです。崩壊のエネルギーは各崩壊のQ-値毎に単一の値ですが、崩壊(この場合はベータマイナス崩壊)では電子の他にニュートリノも放出され、ニュートリノのエネルギーは測られていないので電子のスペクトルは連続で幅の広いピークを形成します。図に見られるように、実験と(1)式に基づく理論の比較は十分に満足のものです。特に0.5 MeV以下の~0.1 MeV領域の低エネルギー領域においても測定値が計算値に良く一致し、先に述べた遮光膜並びにゲート用の50 μmの第1の検出器によっても線の数とエネルギーの損失が重大で無いことを示す結果となっています。



第3図 線スペクトルの実験-計算値比較

(2) さてここで、昨今の社会的要請である¹³⁴Cs並びに¹³⁷Csで汚染された環境や食物の中での⁹⁰Srによる放射能汚染をどのようにして見分けてゆくべきかを検討してみましょう。このため第3図は、各線放出核種の線に対する検出系の応答関数を示した結果であると見なします。測定された線スペクトルは、⁹⁰Sr並びに¹³⁷Csの2つの標準線源に対する応

答関数と ^{134}Cs に対する(1)式で計算した3個の応答関数に、各々の核種の放射能濃度を掛けて和を取った重み付き合計をもって測定線スペクトルが評価されるとします。

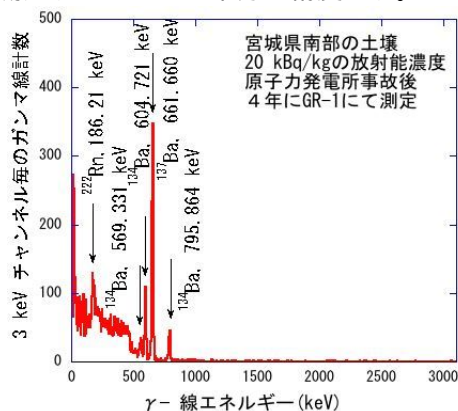
以後土壌や農産物、海産物の放射能検査をするときには、後に述べる線の計測によって ^{134}Cs 並びに ^{137}Cs の放射能の濃度を測定して応答関数に掛ける重みの係数を求めます。次いで本 - 弁別型線検出系で計測し、得られた線スペクトルを3個の応答関数でフィットし、フィットの際に未知数としていた ^{90}Sr の係数を求め、 ^{90}Sr の放射能汚染濃度を求めることとします。

続いて、 ^{90}Sr の崩壊に引き続く ^{90}Y の崩壊エネルギーが大であることと、この2つの崩壊の間に永続平衡が成り立ち、原子炉停止後15日程度で両者の放射能が等しくなるという2つの事柄を使って、より簡便に ^{90}Sr の放射能汚染濃度を求める方法を考察します。第3図にある(1)式で計算した0.00から2.28 MeVに広がる ^{90}Y の崩壊量は~1MeVを境に2分されます。従って、第3図にあるように測定値にフィットし、スペクトルの1.00~2.28 MeVの範囲の計数値の和を求め、この値を2倍すれば、0.00から2.28 MeVに広がる ^{90}Y の全崩壊量となります。更に永続平衡の関係から、スペクトルの1.00~2.28 MeVの範囲の計数値の和の2倍は0.5 MeV以下に広がる ^{90}Sr のピークの計数値の合計にも等しく、また、前の値を4倍すれば ^{90}Sr の標準線源から求めた応答関数の全計数にひとしくなり、先に述べた応答関数の重み付き合計から求めた ^{90}Sr の放射能汚染濃度との比較検討が可能となります。以上2つの求めかたのうち前者の方法は、放射能濃度の小さい場合にも適用され、後者の方は放射能濃度が大きく短時間に結果を出さなければならない場合に役立つものと考えられます。

(3) 原発事故による放射能汚染に対する社会の懸念に応えるという観点から、放射能汚染を Bq/kg という絶対値で示す事が求められます。本研究におきましては後述のように、本研究に於ける測定結果と、次に述べる $^{134,137}\text{Cs}$ 汚染における線の絶対値測定との比較、 ^{137}Cs 並びに ^{90}Sr の標準線源を使用した測定で決定された本研究の線検出システムによる放射能濃度、更に、JIS Z 4329-2004(放射線表面汚染サーベイメータ)に準じた試験法による校正証明のある()線用50ラギッドシンチレーションサーベイメータ model TCS-319H(日立アロカメディカル社製)による測定値との比較を行うこととします。

(4) 観測した線スペクトルから ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 更に目的とするストロンチウム-90(^{90}Y)の各

成分を導き出すために必要となる ^{134}Cs と ^{137}Cs の放射能濃度を求めるための線の計測は、検出器として 1 cm^3 の CdZnTe 結晶を使用した高性能線検出システムの Kromek GR1-Spectro によって行われました。第4図は、宮城県南部で大震災後 ^{134}Cs の半減期に当たる2年経過した2013年5月に採取された土壌サンプルの線スペクトルです。エネルギー分解能は2.5%であり、主たる遷移である ^{137}Ba における661.660-keVと、 ^{134}Ba における604.721-並びに794.604-keV線を分離して測定するためには十分な精度です。

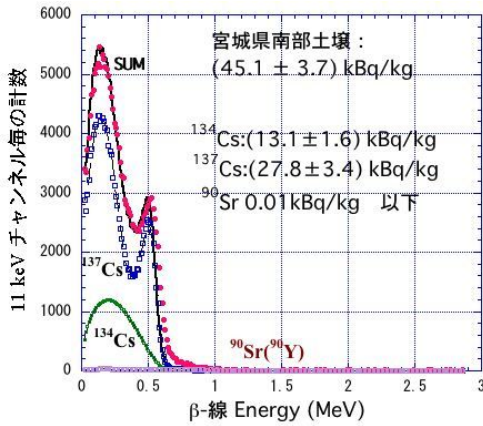


第4図 GR1-Spectro による線スペクトル

崩壊並びに遷移の分岐比等核データは文献を参照しています。検出系の検出効率は、 ^{134}Cs の校正済み標準線源の放射能を使い決定しました。604.7230 keV-線の計数から立体角込みの検出効率を $(7.99 \pm 0.04) \times 10^{-3}$ としました。先に述べたように、線スペクトルから $^{134,137}\text{Cs}$ の線強度を求め、これら2核種の放射能濃度として、線スペクトルにフィットすべき応答関数の積分値とし、観測した線スペクトルからこれらの分を差し引き、残りをストロンチウムの応答関数に当てはめて、ストロンチウムの放射能濃度を算出する訳ですが、このため、崩壊の絶対測定は非常に重要な課程です。

(5) ここで、線検出器で数えられる cps(1秒毎の計数)を Bq(原子核の1秒毎の崩壊数)に関連づける“検出効率”についてのべます。

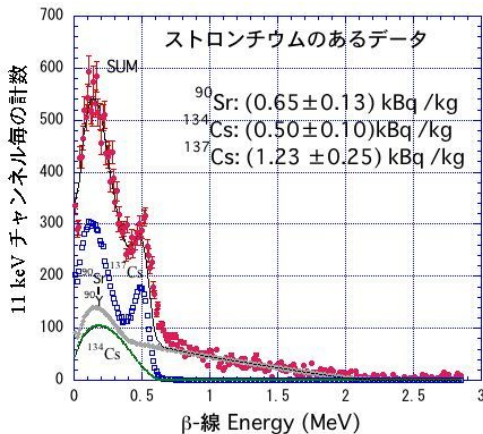
線の場合は、一個の粒子の放出が一個の原子核の崩壊に対応します。このためには、Bqが権威のある機関で校正されている校正済みの“標準線源”を使います。本研究においては、公益社団法人日本アイソトープ協会の ^{36}Cl 、 ^{137}Cs 、並びに ^{90}Sr (^{90}Y)の線を使って、線源を検出器に密着し点線源を仮定して立体角を2として、 ^{36}Cl と ^{137}Cs の線に対し立体角込みで検出効率を0.070と決め、 ^{90}Sr (^{90}Y)に対しは0.106としました。TCS-319Hについては、それぞれ0.43(^{137}Cs)と0.53(^{90}Sr (^{90}Y))にしています。



第5図 土壌データに対する¹³⁴Cs並びに¹³⁷Cs線スペクトルの和による再構成

(6) 第5図は、45.1 kBq/kgの放射能濃度を持つ土壌のデータを先に述べた重み付きの⁹⁰Sr(⁹⁰Y)、¹³⁴、¹³⁷Csの3個の応答関数で表わした結果です。線の測定結果から¹³⁴Csと¹³⁷Csの値がそれぞれ、前に述べた線の検出効率 7.99×10^{-3} を使い、13.1と27.8 kBq/kgとされ、第5図の青色の¹³⁷Cs、緑色の¹³⁴Csの各チャンネル毎の計数からなる応答関数全体にわたる積分値並びに宮城県南部土壌の放射能密度45.1 kBq/kgはベータ線検出器の検出効率0.070から算出されたものであり、第5図の結果の示すところは、2個の検出効率の合理性をも示しています。⁹⁰Srの成分は殆ど無く、図にあるように¹³⁴Csと¹³⁷Csの線スペクトルの和で再構成されています。

現状で適当な濃度を持つ汚染水などのサンプルを入手することは容易ではありません。このため、土壌の測定データに、⁹⁰Sr標準線源のデータを混合し、このデータを⁹⁰Srで汚染したサンプルの測定データとして解析し、得られた結果について議論することとします。

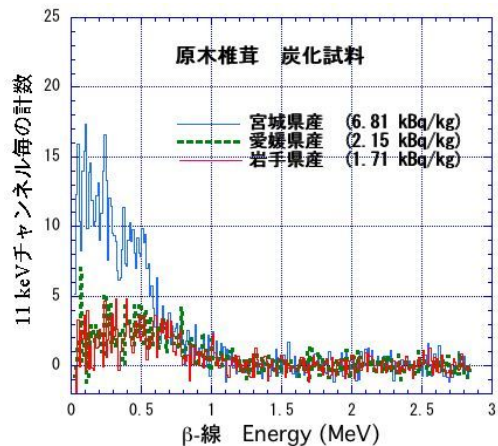


第6図 ストロンチウムデータの再構築

第6図に~1 MeV近傍に計数のある⁹⁰Sr汚染のある特徴的な線のエネルギースペクトラムが応答関数の重ね合わせによって解析された結果とともに示されています。線の測定結果から¹³⁴Csと¹³⁷Csの値がそれぞれ、0.500と

1.23 kBq/kgとされ、⁹⁰Sr(⁹⁰Y)の放射能濃度がサーチされました。その結果⁹⁰Sr(⁹⁰Y)の応答関数の積分値が0.59 kBq/kgの時、最適であるとされました。更に4.(2)で永続平衡に関連して述べた、スペクトルの1.00~2.28 MeVの計数の合計を2倍することから⁹⁰Y(⁹⁰Srに同じ)の崩壊量を算出してみると、0.56 kBq/kgとなります。因みにここで加えたストロンチウムの放射能密度は0.56 kBq/kgであり、この3個の放射能密度の一致は極めて満足のものです。

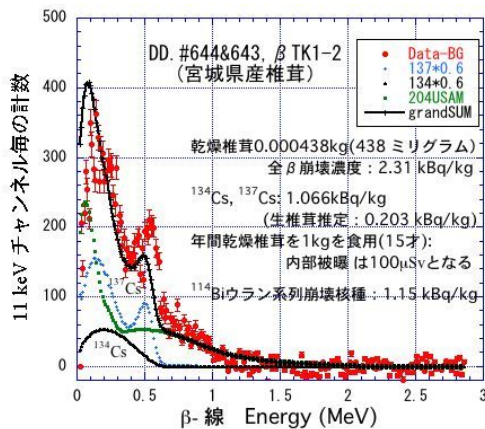
(7) 食材などの測定例について、宮城県では県内各市町村住民からの放射能測定依頼を「県内市町村持ち込み測定」として受け付け食材を始め焼却灰など、震災以後平成24年から3万件近くの放射能検査を行ってきましたが、今般開発した測定器の性能試験の一環として、現在宮城県で放射能の濃度規定値を超えて発売禁止となっている原木椎茸と、暖房・炊飯などの燃料として使われた薪の焼却灰の測定結果を紹介します。第7図は、愛媛県産、岩手県産ならびに宮城県村田町産原木椎茸からの線の測定結果を比較したものです。愛媛、岩手両県で生産された原木乾燥椎茸と、宮城県産の原木椎茸に対する測定結果は明らかに異なります。緑色破線と赤色破線の愛媛県と岩手県の線の数の2倍以上



第7図 原木椎茸産地別比較

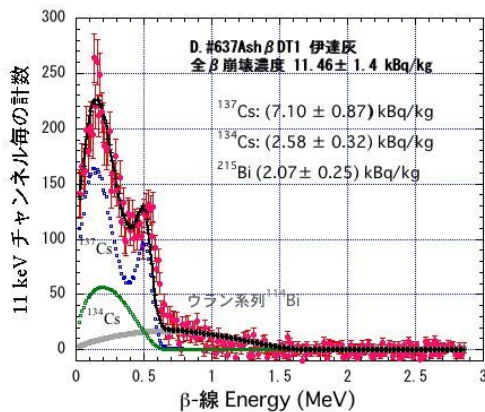
の計数が宮城県産の原木椎茸にあります。下に示す第8図に見られるとおり、セシウム-134とセシウム-137由来の線は半分で、半減期が2.06年のセシウム-134はいずれ消滅し宮城県産原木椎茸の放射能濃度も規制値以下になることでしょう。全崩壊放射能濃度2.31 kBq/kgの半分近くの1.15 kBq/kgがウラン系列の6カ所の崩壊によるものとされます。

(8) 次に、持ち込み測定でも10 kBq/kg以上の放射能濃度での焼却灰の測定結果を示します。環境省は事故直後の2012年当初から



第8図 宮城県産原木椎茸からの線

ホームページで見解を出してきました。第9図の結果に当てはめると、薪ストーブに対し11.46 kBq/kgに0.00073 mSv 毎 kBq/kg を掛けて8.37 マイクロ Sv 毎年、薪風呂に対し11.46 kBq/kgに0.00063 mSv 毎 kBq/kg を掛けて7.22 マイクロ Sv 毎年となります。放射能濃度と、被曝量との関係には一定のシナリオに沿って内部被曝としての計算がなされているものと考えられますが、シナリオ無しに一律に規制値を決めている食材とは大きな隔たりがあります。本研究に於いては乾燥椎茸や焼却灰の放射能検査に、測定試料が1グラム以下で済むため、大変に好評でした。また、事故直後には橋の欄干の埃に200 kBq/kg以上の濃度の汚染があり、現場での測定が可能で非常に役立つこともありました。



第9図 薪焼却灰の放射能

(9)検出システムの誤差、バックラウンド、検出効率等について、放射線計測は本来的に確率的なものであり、統計誤差は計測数、或いは時定数によって計算可能ですが、システムが本来的に持っている不確定さである系統誤差は、可能な限り小さくすることと、同一条件下における多数回の計測によって見当をつけることとします。第6, 8, 9図でデータについている縦棒は統計的な誤差です。本研究において大きなウェイトを占めるのは、第1に被測定試料自身による電子の吸収を避け

ながら Bq/kg 単位で放射化濃度を出すため、全重量が 0.1 グラム〔1 平方センチメートル当たり 7 ミリグラム〕程度にしてあるサンプルの重量を正確に測ること、第2にデータ毎に測定データから差し引いて最終的なデータとするバックグラウンドの環境変化にキチンと対応すること、などです。40 kBq/kg 程度の環境試料(土壌)から作成した6種類の重さの試料の重量と線計測の直線性を確認しました。更に、系統誤差の見当をつけるため、放射能濃度 40kBq/kg の試料を9回測定し、 39 ± 2.4 (標準偏差) kBq/kg の結果を得、続いて6例: 4.81 ± 0.88 (標準偏差) kBq/kg、6例: 2.64 ± 0.46 (標準偏差) kBq/kg の結果を得ています。

(10)以上をまとめ、**弁別型線検出器の開発研究が成功裡に終了し、東日本大震災に伴う福島第1原子力発電所事故による極微量環境汚染を含む⁹⁰Sr が関わる放射能汚染の定量的解析に役立つ装置が完成しました。学校給食モニタリング事業を通し、宮城県のベータ線検出も含めた放射線汚染に対する学校給食食材の安全確保がなされてきました。**

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1 件)

織原彦之丞、私の R I 歴書〔放射線、つくて測り、知り使う〕、Isotope News、査読有、No 722、2016 年 6 月号、pp. 42-46

〔学会発表〕(計 2 件)

織原彦之丞、酒見泰寛、原発事故による⁹⁰Sr 汚染検査用β- 弁別型線スペクトロメーターの開発、日本放射線管理学会 第 14 回学術大会〔筑波大学、2015. 12. 2-4〕講演予稿集 p.39
<http://www.jrsm.jp/>

織原彦之丞、酒見泰寛、β- 弁別型線スペクトロメーターの開発、日本物理学会 第 71 回年次大会〔東北学院大学、2016. 3. 19-21〕講演予稿集 p.379
<http://jps2016s.gakkai-web.net/>

6. 研究組織

(1)研究代表者

織原彦之丞 (ORIHARA Hikonojo)

東北大学・サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター・名誉教授

研究者番号: 00004432

(2)研究分担者

酒見泰寛 (SAKEMI Yasuhiro)

東北大学・サイクロトロン・ラジオアイソトープセンター・教授

研究者番号: 90251602