

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 29 年 5 月 29 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2014～2016

課題番号：26709074

研究課題名(和文)純ベータ核種の高感度オンサイト絶対測定器の開発

研究課題名(英文)On-site radioactivity measurement instrument for pure beta emitter

研究代表者

海野 泰裕(Unno, Yasuhiro)

国立研究開発法人産業技術総合研究所・分析計測標準研究部門・主任研究員

研究者番号：90462837

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 17,100,000円

研究成果の概要(和文)：本課題では、水溶液試料供試量が大きい低濃度の場合に対応して、放射性ストロンチウムを迅速に測定できる装置の開発を目的とした。ベータ線検出器として、小型光電子増倍管を利用したプラスチックシンチレーション検出器を作製して評価した。このベータ線検出器と組み合わせて用いるガンマ線検出器として、スルーホール型NaI(Tl)シンチレーション検出器を作製した。実際に、この2つの検出器を組み合わせた場合の測定精度と検出限界を、実測結果に基づき評価し、明らかにした。また、今回の検出器のように放射性同位元素の崩壊により生じるベータ線とガンマ線に対する検出器の応答評価に用いるための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 measurement instrument for immediate response to affairs in which people have concern for spread of contamination by pure-beta emitter such as Sr/Y-90 was developed, especially in case of low-level radioactivity concentration. As a component of the instrument, a small-size plastic scintillation detector for beta ray counting was used in evaluation. Coupled with the beta ray detector, a through-hole type NaI(Tl) scintillation detector was manufactured. Measurement accuracy, precision and minimum detectable activity were estimated in measurement for actual results using a mock source. A simulation technique was built up to estimate efficiency of these detectors for counting beta and gamma ray from radioisotopes.

研究分野：総合工学・原子力学

キーワード：放射能測定 放射性ストロンチウム 放射性セシウム 純ベータ核種 シンチレータ 光電子増倍管
不確かさ 検出限界

1. 研究開始当初の背景

(1) 例として 2011 年 3 月に起きた福島第一原子力発電所事故 (以降、1F 事故) 後の状況を挙げれば明らかなように、意図せずに放射能の漏出が起きた場合、密封されていない状態の放射能による汚染状況の数量、核種範囲を迅速に把握することが重要かつ不可欠である。そして、実際には、測定対象中に複数の核種が混在する場合がある。高エネルギー分解能のガンマ線スペクトロメーターによれば、ガンマ線放出核種の核種と数量を測定できる。しかし、純ベータ核種の測定には、試料を採取した後に化学分離による前処理が必要であり、時間と手間がかかる。

(2) 1F 事故の場合、放射性セシウムと共に放射性ストロンチウムの放出が懸念された。純ベータ核種である放射性ストロンチウムは化学処理に加え、放射性イットリウムと放射平衡に達するまで 2 週間程度かかり、測定者にとって望まれるスピードや頻度での測定はできなかった。また、現在の広範囲にわたるモニタリングや事故サイトの廃炉作業においても、放射性ストロンチウムを迅速に測定する技術が求められている。

(3) この問題に対して、応募者は自らが考案した測定手法による「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」(H24 年度～H25 年度、科研費課題番号: 24686106) を実施した。この研究課題において、測定原理の実証に成功した。一方で、実用に向けては測定できる放射能濃度に課題があることがわかった。本課題を実施する前の水溶液試料の供試量は 20mg 程度であり、濃度に換算して 0.1 cps / 100% / 20 mg = 5000 Bq/L を下回る低い放射能濃度の測定は困難であった。実際の測定では排水基準 (Sr/Y-90 は 30Bq/L、Cs-137 は 90Bq/L) 以下を求められ、2 桁以上の乖離があった。

2. 研究の目的

(1) 本応募では、水溶液供試量が多く、計数効率が高い (本手法由来の測定精度を高く保つため) ベータ線検出器と、それに対応したガンマ線検出器との組合せにより純ベータ核種を含む核種別放射能測定器を開発することが求められた。

(2) 上記、測定装置を設計するために、製作前に感度を見積もることができるシミュレーションを欠かすことができず、既存のモンテカルロコードを放射性同位元素の崩壊とそれを捉える検出器の応答評価に適用する必要がある。また、測定装置を構成する検出器による計数効率と波高分解能を明らかにすることは、測定装置の適用可能性を示すために必要不可欠だった。

(3) 本課題では、2 桁以上の感度乖離を解消

するため、2g 以上の水溶液試料供試量で、放射性ストロンチウムを迅速に測定できる装置の開発を目的とした。本開発が、オンサイトでの迅速な測定を可能にする測定装置の実現につながることを目指した。特に、この装置は、1F 事故のように放射能汚染が発生した場合に、被ばく防護や復旧対応を進める有効な手段となり得るため、強く必要とされている。

3. 研究の方法

(1) 本研究では、ベータ線測定の手法を最適化することを最初に考えた。条件として、計数効率が高いこと、試料供試量が多いこと (目標は 2g)、ガンマ線検出器との組み合わせで小型であること、を考えた。なお、既存技術の中で、低エネルギーのベータ線でもロスなく透過できるほど薄い薄膜材料 (例えば VVNS 膜) を比例計数管の中に包含する手法のように、オンサイトでの実施が実質的には不可能である手法は除外した。

(2) 上記のベータ検出器に対応し、装置全体を小型化したガンマ線検出器の開発を進めた。後述の通り、実際のベータ線検出器は、光電子増倍管のノイズを低減する目的で、2本の対向した光電子増倍管のペアで受光できる構造であり、この構造を実現しつつ、最大のガンマ線立体角を得られる配置を考えた。また、ガンマ線検出器の波高分解能は核種を弁別する能力を持ち、計数を十分に得て統計上のばらつきを小さくした測定を実現するために、採用する検出器の種類を考えた。特に、本研究課題中においても、新規材料の開発が進められている向きシンチレータの採用を検討した。

(3) 上記のベータ線検出器とガンマ線検出器の実測による評価に加え、装置を組み合わせる際に期待できる制度を評価するためのモンテカルロコードを用いたシミュレーション技術の開発を進めた。

4. 研究成果

(1) ベータ線検出器における、試料充填方法と、それに応じたベータ線検出手法を開発する。現状では、プラスチックシンチレータの上に水溶液を滴下乾燥した後に別のプラスチックシンチレータで挟む、液体シンチレータに水溶液試料を滴下混合する、といういずれかの試料充填手法に限定され、いずれも光電子増倍管と光学接続して蛍光発生現象を捉える手法である。の液体シンチレータであれば目標量である 2g を許容することは確認できた。ただし、オンサイトで使用するためには、容易に保管管理し、持ち運びできることも考慮し、のプラスチックシンチレータを選択した。プラスチックシンチレータは、組み合わせる光電子増倍管の光電面にサイズと形状を合わせて加工し

た。なお、受光素子として近年開発がすすめられた半導体検出器（例えば、浜松ホトニクス社製の MPPC）の適用も検討したが、現状では、低エネルギーベータ線による信号を得るために、十分な大きさを持った信号を得られなかった。

(2) 光電子増倍管としては、前述の3章(1)で示した ~ の条件を考慮し、いずれも浜松ホトニクス社製の (i) R9880U-210、(ii) R9880U-110、(iii) H3164-10、(iv) H12690-00-01、(v) R11265U-200、(vi) H3178-51 を検討の対象として考えた。(i)と(ii)は、入射窓材料の量子効率の違いを利用して広い範囲の蛍光発生量に対応して評価するために両方を用いた。いずれも、そのサイズは指頭レベルでありながら、高いゲインと波高リニアリティに特長がある。(iii)はボールペン程度のサイズであり、光電子増倍管の中で最も細いモデルであり、(iv)がそれに続く。(v)は30mm角型で(i)と同じ入射窓材料であり、(i)と(ii)よりも高い波高リニアリティを持つ。(vi)は、他の測定に対する参照対象として用いた。

(3) ベータ線検出器の評価を目的とした測定では、プラスチックシンチレータに、放射性物質を封入し、放射性物質から放出されるベータ線、内部転換電子またはガンマ線、オージェ電子またはX線による蛍光発生現象を光電子増倍管で捉えた。いずれの光電子増倍管においても、2本を互いに対向させ、ノイズ抑制した条件に統一した。測定結果は、計数効率と波高分解能の視点で比較した。特にCs-134を測定した結果において、計数効率の点で、R9880U-210が最も高かった（放射能に対するベータ線計数効率は89%）。これだけの計数効率を得られれば、全ベータ線放出率の決定における不確かさを、実測上で必要とされる精度に対して、十分に小さくできる。一方で、Cs-137による内部転換電子ピークの測定や、さらに高いエネルギーの電子の測定において、波高リニアリティが十分ではないことも確認された。このR9880U-210による測定では、入射窓直径に合わせてプラスチックシンチレータの外径を8mmとしたが、単純な円板状では乾燥時に水溶液を保持することが難しい点を、凹型に溝を作ることで解決した。そのサイズが1.5mm厚で0.5mm深さにおいて、水溶液供試量は100mgまでは対応できることを確認できているが、目標とする2gを保持できるまで溝を深くすることも原理的には可能であるが、乾燥に時間がかかりすぎてしまう（100mgをデシケータ内で自然乾燥させて半日程度）。乾燥時間の短縮を図る上ではシンチレータの面積を拡げることが有効であり、仮に20mm角に広げ、同じ1.5mm厚で0.5mm深さの場合、水溶液1gを滴下することができ、その自然乾燥に1日かかった。この面積のプラスチックシンチレ

ータを用いれば、深さをわずかに増すことで2gの水溶液試料を受けられる。また、いずれのサイズのプラスチックシンチレータにおいても、赤外ランプを用いることにより、乾燥を早められる。例えば、半日程度かかる100mgの自然乾燥を、15分程度に抑えることができることを確認しており、20mm角上の2g水溶液を乾燥させるために必要な時間は、実用に許容できる範囲に抑えることができると見込まれる。以上の検討のように、必要な水溶液供試量に応じてプラスチックシンチレータのサイズを決定し、乾燥方法についても自然乾燥に加えて、赤外ランプ等を用いた加熱乾燥も選択肢として挙げれば、目標とする2g供試量のベータ線検出器をプラスチックシンチレーション検出器で達成できる見込みを得られた。なお、20mm角のプラスチックシンチレータに入射窓サイズが対応するR11265U-200では、Cs-134放射能に対するベータ線計数効率は85%で、R9880U-210を下回っており、測定精度の点においては、R9880U-210の方が高いと期待された。

(4) 上記ベータ線検出器の検討の結果、R9880U-210またはR11265U-200を用いたプラスチックシンチレーション検出器が候補として選定された。このベータ線検出器に対応したガンマ線検出器については、材質としては無機シンチレータを選択し、その配置については、3章(2)に示した視点で考えた。

(5) 近年、無機シンチレータ高い波高分解能を達成できる候補材料として開発成果が報告されているが、LaBr₃(Ce)、CeBr₃は自己放射能によるバックグラウンド計数が低濃度の放射能を測定する上で障害となり、GAGG(Ce)は高い波高分解能を達成することを確認できたが、放射能測定に用いるために必要な大きな体積の結晶を利用する段階にはまだ至っておらず、現段階では従来の無機シンチレータ材質の中から、感度、波高分解能、減衰時間の点を重視して、NaI(Tl)とCsI(Tl)を選択した。[A]R9880U-210の場合、直径と厚さが3インチのNaI(Tl)シンチレータの側面を貫通する穴をあけた形状（ここでは、スルーホール型と呼ぶ）を採用し、貫通孔の直径をR9880U-210の外径に合わせることで、原理上、最大の立体角を確保した。[B]R11265U-200の場合、円柱状のCsI(Tl)シンチレータの外径5インチを大きくして大きな立体角を確保しつつ、半導体検出器を受光素子として採用することで、測定装置全体の小型化を達成した。

(6) 実測において、測定精度と検出限界を評価するために、高い精度を期待できる組合せとしてR9880U-210を用いた場合の測定装置における検出器の配置を図1に、計数を取得するために使用した電気信号処理回路

を図 2 に示す。電気信号処理回路は、ベータ線計数効率を最大にとるために電気信号を最大限に増幅し、その結果をオフラインで詳細に解析できるように、ピークホールド型 ADC を搭載し、リストモードで波高値を記録できる仁木工芸製 A3400 を採用した。取得したデータは ASCII 形式で保存され、CERN より無償で提供されている解析ツール ROOT を使用して解析した。この測定装置を実際に用いた測定のデモンストレーションとして、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 を 76.3、108.7、42.4Bq (互いの比が約 3:5:2) で混合された試料を対象として測定したところ、

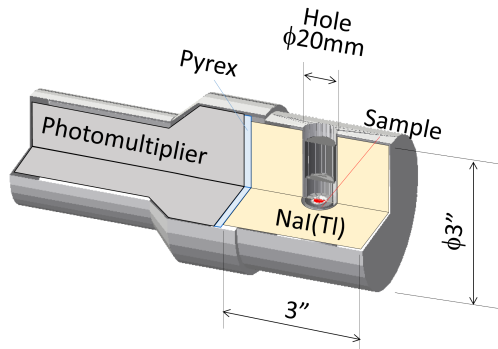


図 1 : 測定装置の検出器構成イメージ

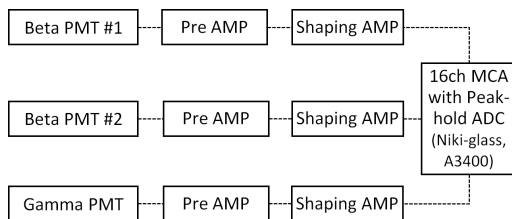


図 2 : 評価用 NIM モジュール測定回路

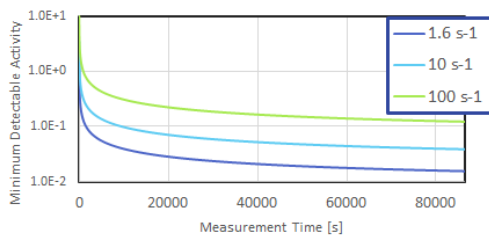


図 3 : 算出された検出限界

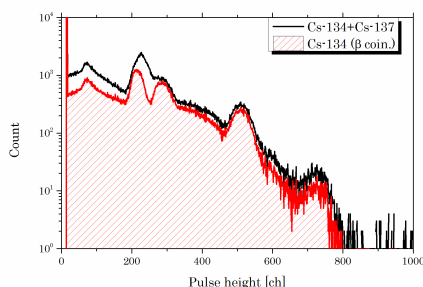


図 4 : スルーホール型 NaI(Tl)シンチレーション検出器により得られたガンマ線波高分布

Sr/Y-90 は 42.5Bq (標準不確かさ 4.35Bq) が測定値として得られ、既知値と比較して高い精度で一致することが確認された。実用上求められる精度に対して、この精度は十分であると考えられる。測定精度を表す不確かさは、測定原理上、Sr/Y-90 以外の核種の存在割合に依存する。この測定装置におけるバックグラウンド計数率と計数効率から算出された検出限界を表すグラフを図 3 に示す。ベータ線検出器での計数率がバックグラウンドのみの 1.6cps、Sr/Y-90 以外の核種による計数が加わった 10、100cps の場合を合わせて表示した。

(7) なお、このスルーホール型 NaI(Tl)シンチレーション検出器では、図 4 に示すようにガンマ線波高分解能が通常の円柱型に比べて劣化していることが確認された(典型的には、Cs-137 の 662keV における半値幅で 6%程度が 17%程度まで劣化)。これは、シンチレータ結晶の中央に蛍光の集光を障害する貫通孔が存在することにより、光電子増倍管から遠い側と近い側で就航効率が異なることによることが明らかにされている。スルーホール型結晶の両端に光電子増倍管を光学接続することで、現状の波高分解能が改善される。

(8) 本課題の測定手法では、4 - 同時計数法における外挿によって全ベータ線放出率が求められている。この外挿による不確かさは、測定精度における不確かさを大きくする原因の一つであり、測定結果にバイアスをかけうるため、外挿に用いる関数を真の値に近くなるように選択することが重要である。ベータ線計数効率が 100%になる点が外挿して決定される絶対値に等しくなるが、実測ではベータ線計数効率に限界があるため、実測値をプロットして得られる外挿曲線を真の値に近づけて関数を決定することに限界がある。そこで、本課題ではシミュレーションにより、外挿曲線を再現する技術を開発した。高エネルギー加速器研究機構より提供されている EGS5 コードの粒子発生部分で、放射性同位元素の崩壊により放出されるベータ線・ガンマ線を発生するようにプログラムを組み、コードを実行して得られる検出器領域での付与エネルギーに検出器の波高分解能を反映し、実測の計数状態を再現した。このシミュレーションにより、ベータ線計数効率が外挿距離に寄与し、ガンマ線検出器の配置が外挿曲線の傾きや形状には寄与することが明らかになった。この結果は、従来の経験的な外挿曲線の議論に沿う結果でありながら、理論面から外挿曲線を再現できた点で成果があった。

(9) 本課題の実施期間中に、高い放射能濃度の放射性ストロンチウムを含む水溶液試料(例えば、1F 事故により発生した汚染水)

を迅速に測定する方法を簡便に実施したいという要望を受け、本課題で当初から取り組んでいる手法よりも精度は劣るものの、簡便に測定を実施できる方法を考案し、模擬試料にて測定できることを実証した。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 4 件)

海野泰裕、古川理央、柚木彰、Simulation of a well-type HPGe detector for samples both in the hole and on top of the endcap、Applied Radiation and Isotopes、査読有、印刷中、DOI:

10.1016/j.apradiso.2017.02.011

海野泰裕、佐波俊哉、佐々木慎一、萩原雅之、柚木彰、Optimization of Sr/Y-90 measurement instrument for contaminated mixture sample without chemical separation、The proceedings of the 14th International Congress of the International Radiation

Protection Association、査読無、印刷中

海野泰裕、佐波俊哉、佐々木慎一、萩原雅之、柚木彰、Simulation technique for extrapolation curves in 4 - coincidence counting method using EGS5 code、Applied Radiation and Isotopes、109巻、2016年、363-368、DOI:

10.1016/j.apradiso.2015.12.014

平山英夫、近藤健次郎、海野泰裕、松村宏、岩瀬広、柚木彰、佐々木慎一、水中⁹⁰Sr放射能濃度の⁹⁰Y線測定による迅速簡便測定法、日本原子力学会和文論文誌、14巻3号、2015年、141-150、DOI:

10.3327/taesj.J14.048

〔学会発表〕(計 7 件)

海野泰裕、佐波俊哉、佐々木慎一、萩原雅之、柚木彰、Measurement for Sr/Y-90 mixed with Cs-137 and Cs-134 by a combination of beta and gamma ray

detectors、The 62nd Annual

Radiobioassay and Radiochemical

Measurements Conference、米国ハワイ州

ホノルル市、2017/02/09

海野泰裕、古川理央、柚木彰、Simulation of well type HPGe detector for samples both in the hole and on top of the endcap、7th International conference on radionuclide metrology、Low-level

radioactivity measurement techniques、米国ワシントン州シアトル市、2016/09/26

海野泰裕、佐波俊哉、佐々木慎一、萩原雅之、柚木彰、Optimization of Sr/Y-90 measurement instrument for contaminated mixture sample without chemical separation、International Congress of the International

Radiation Protection Association、南アフリカ共和国西ケープ州ケープタウン市、2016/05/09

海野泰裕、佐波俊哉、佐々木慎一、萩原雅之、柚木彰、EGS5コードを用いた4 - 同時計数法の効率外挿曲線のシミュレーション、日本原子力学会2016年春の年会、宮城県仙台市、2016/03/26

海野泰裕、佐波俊哉、佐々木慎一、萩原雅之、柚木彰、Simulated simultaneous beta-gamma ray emission of 4 - coincidence counting using EGS5 code、20th International Conference on Radionuclide Metrology and its

Applications、オーストリア共和国ウィーン市、2015/06/08

平山秀夫、近藤健次郎、松村宏、岩瀬広、佐々木慎一、海野泰裕、柚木彰、飛程の違いを利用したY-90の線測定によるSr-90濃度の迅速簡便測定法、日本原子力学会、2015年春の年会、茨城、日立、

2015/03/20

海野泰裕、佐波俊哉、佐々木慎一、萩原
雅之、柚木彰、A Compact Detector for
Sr/Y-90 Radioactivity Measurements
with a Through Hole NaI(Tl)
Scintillator、IEEE Nuclear Science
Symposium and Medical Imaging
Conference、米国ワシントン州シアトル
市、2014/11/10

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 1 件)

名称：放射性物質の線源効率測定装置
発明者：海野泰裕、古川理央、柚木彰
権利者：同上
種類：特許
番号：特願 2016-03607
出願年月日：2016年2月26日
国内外の別：国内

取得状況(計 0 件)

〔その他〕

なし。

6. 研究組織

(1) 研究代表者

海野 泰裕 (Unno, Yasuhiro)
国立研究開発法人産業技術総合研究所・計
量標準総合センター・分析計測標準研究部
門・主任研究員
研究者番号：90462837