

氏 名 海野 泰裕

学位(専攻分野) 博士(工学)

学位記番号 総研大甲第 1668 号

学位授与の日付 平成26年3月20日

学位授与の要件 高エネルギー加速器科学研究科 加速器科学専攻
学位規則第6条第1項該当

学位論文題目 大立体角ベータ・ガンマ同時検出法に基づく核種混在試料の
放射能絶対測定法の開発

論文審査委員 主 査 教授 榊本 和義
教授 佐々木 慎一
教授 波戸 芳仁
准教授 佐波 俊哉
助教 荻原 雅之
特別教授 馬場 護 J-PARC センター
元教授 河田 燕 成蹊大学

論文内容の要旨
Summary of thesis contents

2011年3月11日の東京電力福島第一原子力発電所での事故以降、放射能測定が広く行われるようになった。この測定では主にCs-134、Cs-137を対象にした γ 線スペクトロメトリにより行われているが、セシウム以外の関心核種であり、純 β 核種であるSr/Y-90は測定できていない。Sr/Y-90の放射能測定を行うためには、操作に専門的知識が必要とされる化学分離が不可欠であり、定量のためには放射平衡に至る時間も必要である。

$4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法は、国の計量標準として使用されている放射能絶対測定法であり、効率トレーサ法を用いることにより純 β 核種に対しても適用されている。本研究では、この $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法を応用し、Cs-134、Cs-137とSr/Y-90の混在試料のような、 γ 核種と混在した純 β 核種の放射能を、化学分離を行わずに測定する方法を考案した。

本研究では、大立体角の β 線・ γ 線検出器を組み合わせた検出器を開発した。これらの検出器における β 線計数率、 γ 線計数率、 $\beta-\gamma$ 同時計数率から、 $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法を用いて、全 β 線放出率を絶対測定する。同時に、 γ 線計数率からCs-134とCs-137の放射能を測定し、全 β 線計数率への寄与を求める。全 β 線放出率からCs-134とCs-137の寄与分を差し引くことにより、Sr/Y-90の放射能を求めることができる。この測定法では、全 β 線放出率を絶対値として測定するため、試料による自己吸収の違いは試料の線源効率には依存しないという特徴がある。

本研究では、核種混在試料中の純 β 核種を測定する手法を確立することを目的とする。研究は以下の手順で進めた。

- (1) 本研究により提案する $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数法と γ 線スペクトロメトリを組み合わせた手法について、測定原理を実証する。
- (2) 測定精度や感度の達成に不可欠な測定装置の条件を検討し、より不確かさが小さい測定を行うことができる測定装置を開発する。
- (3) (2)で開発した測定装置で測定したSr/Y-90放射能の不確かさを評価する。この手法により測定可能なSr/Y-90放射能のCs-134とCs-137の放射能の合計に対する下限混在比を明らかにする。

最初に、一般的な検出器を組み合わせて β 線・ γ 線検出器を構成し、本測定法によりSr/Y-90放射能が測定できることを示す。その測定結果の不確かさを分析し、本測定法に適した装置設計への課題を抽出した。

本研究では、 β 線検出器にプラスチックシンチレーション検出器を用いることを選択した。これは、直接プラスチックシンチレータで試料を挟むことが出来、高い β 線計数効率を達成できること、 β 線検出器の γ 線感度が低くできること、 β 線検出器が試料容器を兼ねられること、を意図している。このプラスチックシンチレータをライトガイドにはめ込み、光電子増倍管までシンチレーション光を導いた。シンチレーション光は2本の対となる光電子増倍管で検出することにより、光電子増倍管のセルフノイズを低減して低エネルギー β 線を検出できるように配慮した。

γ 線検出器としてはNaI(Tl)シンチレーション検出器(3" x 3")を用い、治具によりプラスチックシンチレータの上下に配することで、 γ 線計数効率も高くなるようにした。このように、2種の検出器で高い計数効率を保ちながら、 $4\pi\beta-\gamma$ 同時計数装置を構成でき

(別紙様式 2)
(Separate Form 2)

た。

3 核種混在試料 (Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 比は 2:3:5、全 β 線放出率 98.0 s^{-1}) を用い

て測定した結果、Sr/Y-90 放射能は 53.6 Bq であった。この値は、既知量よりも 3.1% 大きい。評価された不確かさは 5.2% (包含係数 $k=1$) であり、不確かさの範囲内で一致した。本手法により、核種混在試料中の Sr/Y-90 の放射能を測定できることが確認できた。また、Sr/Y-90 放射能の下限混在比は、Cs-134 と Cs-137 の β 線放出率の和に対して 7.3% であった。

不確かさの要因を分析したところ、全 β 線放出率を決める効率外挿による不確かさが主な要因であることがわかった。この不確かさを低減するには、 β 線計数効率の改善と γ 線検出器の配置の検討が重要であることが明らかとなった。また、バックグラウンド計数率の変動による不確かさも課題となることから、装置を小型化して遮へいを強化することとした。

β 線計数効率の改善のために、シンチレーション光の集光効率、プラスチックシンチレータのサイズ、等の違いによる計数効率の変化を、波高分解能や測定下限エネルギーと共に調べた。その結果、プラスチックシンチレータを小型化し、さらに、光電子増倍管を量子効率とゲインが高い R9880U-210 に変更することにより、Cs-134 放射能に対して、 91% という計数効率を得ることができた。

次に、 γ 線検出器による効率外挿の不確かさへの影響を検討するために、崩壊形式に沿って β 線、 γ 線の同時放出を模擬するプログラムを開発した。このプログラムと光子、電子の輸送を計算する EGS5 コードと組み合わせ、任意の体系への付与エネルギーを計算できる。このプログラムにより γ 線検出器と β 線検出器の 1 崩壊ごとの検出器に沈着するエネルギーを計算し、効率外挿曲線を模擬した。模擬した結果から、 β 線検出器の計数効率と波高分解能、 γ 線検出器の配置、波高分解能、計数領域のウィンドウ幅の変化により、効率外挿曲線が変化する様子について検証した。この検証の結果から、効率外挿による不確かさを低減するためには β 線計数効率が優先されることが分かった。

以上の検討により測定装置を改良し、R9880U-210 を用いた β 線検出器とスルーホール型 NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いた核種混在試料中の純 β 核種を測定する装置を設計、製作した。3" x 3"の円柱状結晶に、1"の貫通孔を開けたスルーホール型 NaI(Tl)シンチレーション検出器で、実証実験の場合と同程度の γ 線計数効率が得られた。3 核種混

在試料 (Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 比は 3:5:2、全 β 線放出率 237.6 s^{-1}) に対する測定で、

Sr/Y-90 放射能に対する不確かさは 10.1% ($k=1$)、Cs-134 と Cs-137 の β 線放出率の和に対する測定できる下限混在比は 4.3% ($k=1$) であった。Sr/Y-90 放射能の相対不確かさは、実証実験よりも Sr/Y-90 の混在比が低いため、大きくなったように表示されるが、仮に同じ比の Sr/Y-90 放射能であれば 2.0% であり、実証実験の 5.2% から低減された。下限混在比も 7.3% から大幅に低減された。この結果は、実証実験の課題に対する検討に

(別紙様式 2)
(Separate Form 2)

より、改善が得られたことを示している。

以上により、核種混在試料中の純 β 核種を測定する方法を確立した。この測定法に期待される測定能力として、不確かさと下限混在比を明らかにした。本測定法は、**Sr/Y-90** 以外の純 β 核種が混在した試料にも適用できる可能と考えられる。また、不確かさが低減されれば国の計量標準を改善できると期待できる。

博士論文の審査結果の要旨

Summary of the results of the doctoral thesis screening

海野氏の研究は、放射能の絶対測定に係わるものであり、2011年の福島原子力発電所事故に伴う放射能汚染の発生がきっかけとなって進められたものである。現在、放射能分析では放射性のセシウムとストロンチウムの定量に関心が持たれている。これまで、放射性セシウム共存状況での放射性ストロンチウムの測定では、化学分離手法によって個々の核種を分けることが不可欠とされている。これに対し、海野氏は機器的にしかも正確な濃度決定を行うための検出法の検討を行い、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時検出法を採用することで、(1) γ 線測定によるCs-134とCs-137の分離測定、(2) $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法による絶対測定、(3) 全放射能から放射性セシウム分の差し引きによるSr/Y-90の放射能測定を一度の測定で行える測定システムを考案した。

考案した測定システムの有効性を確認し、実機の開発にとって必要な条件を把握するため、3インチNaI(Tl)検出器2台を対向させ、間に直径40mm ϕ のプラスチックシンチレータを挟み込んで、それらの検出器からの信号をリストモードで収集する機能を備えた装置を組み上げた。この装置により、測定結果の精度とこれに与える不確かさの要因を低減するうえで必要な条件を検討した。純 β 核種を含む放射能の定量では計数効率を変化させて効率100%での真値を求める効率外挿法を用いている。不確かさ評価の結果、主要な誤差は効率外挿法の適用にあることを明らかにした。そこで、効率外挿の範囲を減らすために、 β 線計数効率を高めるための実験的検討を行い、プラスチックシンチレータを小型化して光電子増倍管に直接接続する形状により、計数効率を改善した。そして効率外挿の条件を詳細に調べるために、電磁カスケードモンテカルロコードEGS5コードに放射壊変を核データに基づき記述する線源プログラムを組み合わせ、 $\beta\text{-}\gamma$ 同時計数装置の出力を模擬するプログラムを開発した。このプログラムにより β 線の吸収や検出器の位置関係により変化する効率外挿曲線が再現でき、これまで実測のみでは正確に求めることが困難だった不確かさの改善に必要な条件を系統的に明らかにすることができた。また、もう一つの誤差要因であったバックグラウンド計数について、装置を小型化して全体を遮蔽することとした。

以上の検討結果をもとに、 β 線の検出には、8mm ϕ 、厚さ1mmの円盤状のプラスチックシンチレータを2枚使用し試料を挟み込んだもの、 γ 線の検出には円筒状の3インチNaI(Tl)シンチレーション検出器の側面に内径20mmの貫通孔をあけたものをそれぞれ用い、スルーホール型の大立体角 $\beta\text{-}\gamma$ 同時計数装置を開発した。検出器全体を小型化し、鉛遮蔽体に入れることにより、バックグラウンド計数を当初の1/20に低下させた。この装置により、Cs-134に対する β 線計数効率を93%に向上させることができ、外挿の不確かさを1%以下に抑えることができた。この結果、放射性セシウムに対して4.3%程度共存する放射線ストロンチウムを測定できることが示された。

審査では、非常に詳細な不確かさ評価に基づいた装置設計の丁寧さ、さらには測定するのが厄介で複雑な β 線検出効率校正のために、EGS5コードに放射壊変プログラムを組み込んだ方法を利用した研究の進め方などが、この分野ではこれまで例がないことから、高く評価された。論文の内容は、放射線検出器の基礎から応用までを一つ一つ丁寧に積み重ねた構成となっており、その新規性と独創性においても、博士学位論文として十分に評価で

(Separate Form 3)

きるものである。審査では、委員から放射性核種、測定技術、計算手法など放射化学、放射線物理に関わる様々な質問が出され、海野氏は的確に答えていたことから、この分野における知識、能力も十分であると判断できた。以上により、本審査委員会委員は全員一致で合格と判断した。

(Separate Form 3)

チヤナギの光合成生産と栄養分の移動に与える影響を調査している。その結果、*R. polaris*に感染したヤナギ葉において、*R. polaris*の子実体に覆われた範囲の光合成活性は無くなるが、それ以外の範囲の活性は健全葉と同等であることが明らかとなった。この結果に基づいてモデル計算を行ったところ、*R. polaris*が感染した葉は、健全葉と比較して、着葉期間を通して約9%の純生産量の損失があることが推定された。また、*R. polaris*に感染することで落葉の際にヤナギから失われる窒素・炭素量は、健全葉と比較して窒素で約7倍、炭素で約4倍であることが明らかとなった。

総合考察では、以上の結果を受けて、北極ツンドラ生態系におけるキョクチヤナギに寄生する*R. polaris*の適応性について考察されている。北極域の環境は、生育期間の短さと少ない降水量という2つの大きな制約を*R. polaris*に与えていた。そして、*R. polaris*は雪解け前から子実体成熟と速い子実体形成を行うことで、無雪期間および宿主のフェノロジーが短い環境下でも一年で生活史を完結させることを可能にしていた。また、本菌の子実体成熟と孢子散布には液体の水が必要であったが、降雨の少ない北極環境下では、降雨からの水分供給のみではそれらの生育段階が達成できず、次世代を残せないと考えられた。そのため、本菌の生育には、降雨以外の水分の供給、具体的には雪解け水の利用が必要であり、雪解け水が安定的に供給される場所で毎年繰り返し生育していると考えられた。同じヤナギ個体に毎年繰り返し発生することは、宿主植物に対して大きな負担を与えてしまいかねないが、*R. polaris*は宿主植物に与える負の影響を小さく抑えることで、この発生様式を可能にしていると考えた。

本論文では、スピッツベルゲン島に生育する*Rhytisma*属菌の分類学的位置を明らかにするとともに、詳細な生態学的特徴を解明しており、極めて重要な研究であると言える。特に、本菌がツンドラ生態系において、その環境や宿主植物に対応している状況が克明に解明されており、植物寄生菌研究においては大きなブレイクスルーを果たしていると評価された。

北極域は近年、気候変動が顕著であることから世界的に注目されている。しかしながら、生態系において重要な役割を担う植物寄生菌の研究はほとんど行われていない。北極生態系の多様性評価や保全に向けて、そこに生育する植物寄生菌についてさらなる研究が必要であるが、本研究は極めて貴重で価値あるものと考えられた。

なお、本研究のうち、1) 同定の部分の内容は国際英文学術誌(Mycol Progress)に投稿され、すでに出版されている。

以上のことから、本論文は極域科学専攻の学位論文に値するものと認められた。