

博士学位論文  
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

- Methodology for absolute radioactivity measurements of mixed radionuclide  
samples by beta and gamma ray coincidence detection with large solid angle -

海野 泰裕 \*1  
(うんの やすひろ)

総合研究大学院大学  
高エネルギー加速器科学研究科  
加速器科学専攻  
博士課程\*2

2013年12月10日

\*1 独立行政法人 産業技術総合研究所 計測標準研究部門 量子放射科 放射能中性子標準研究室

\*2 学籍番号：20111202

# 目次

第 1 章	序論	1
1.1	緒言	1
1.2	本研究の背景	2
1.3	本研究の目的	4
1.4	本論文の構成	5
第 2 章	放射能測定手法の検討	6
2.1	$4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法のこれまでの研究と現状の課題	6
2.2	Cs-134 と Cs-137 の混在試料中の Sr/Y-90 放射能測定法	13
2.3	測定可能な Sr/Y-90 放射能の Cs-134 と Cs-137 放射能に対する下限混在比	22
2.4	ベータ線検出器の選択	22
2.5	ガンマ線検出器の選択	23
2.6	本章のまとめ	23
第 3 章	実証実験	25
3.1	測定装置	25
3.2	測定結果	36
3.3	考察	42
3.4	本章のまとめ	46
第 4 章	ベータ線検出器の検討	47
4.1	緒言	47
4.2	光電子増倍管までの導光路による違い	48
4.3	光電子増倍管 1 本と反射材を使用した場合との違い	55
4.4	プラスチックシンチレータのサイズによる違い	57
4.5	考察	65
4.6	本章のまとめ	68
第 5 章	効率外挿曲線のシミュレーション	69
5.1	緒言	69

5.2	線源プログラムの詳細 . . . . .	70
5.3	線源プログラムの妥当性の検証 . . . . .	72
5.4	$4\pi\beta - \gamma$ 同時計数装置への適用 . . . . .	77
5.5	考察 . . . . .	79
5.6	本章のまとめ . . . . .	94
第 6 章	核種混在試料中純ベータ核種測定装置	95
6.1	緒言 . . . . .	95
6.2	測定機器 . . . . .	96
6.3	測定結果 . . . . .	102
6.4	考察 . . . . .	107
6.5	本章のまとめ . . . . .	109
第 7 章	結語	110
参考文献		113

# 表目次

2.1	放射能の標準測定に関する主な参考文献、書籍、Proceedings の一覧 . . . . .	7
2.2	リストモード測定における出力結果の例 . . . . .	21
3.1	実証実験用に用意された試料の一覧 . . . . .	27
3.2	使用した測定回路モジュール一覧 . . . . .	31
3.3	実証実験において測定された Sr/Y-90 放射能に対する不確かさ評価の一覧 . . . . .	43
4.1	エネルギー校正に使用した各核種のエネルギー点の一覧 . . . . .	51
4.2	候補とした光電子増倍管の一覧（カタログより） . . . . .	58
5.1	線源プログラムの結果と参照値のガンマ線放出割合の比較 . . . . .	72
5.2	計数効率の実測値と計算値の比較 . . . . .	76
5.3	ガンマ線ウィンドウ幅と計数効率の変化 . . . . .	93
6.1	スルーホール型ガンマ線検出器でのガンマ線計数効率の実験値と計算値の比較 . . . . .	98
6.2	用意された試料の一覧 . . . . .	101
6.3	測定された Sr/Y-90 放射能に対する不確かさ評価の一覧 . . . . .	107

# 目次

2.1	計量トレーサビリティ制度による一次標準と測定器のつながりを表す模式図 . . . . .	10
2.2	産業技術総合研究所に設置されている $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数装置 . . . . .	10
2.3	VYNS 膜上に滴下された測定対象となる水溶液試料 . . . . .	11
2.4	比例計数管にセットされた測定試料 . . . . .	11
2.5	破れてしまった VYNS 膜 . . . . .	11
2.6	典型的な $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数装置の測定回路 . . . . .	12
2.7	ベータ線計数効率と P-Value の関係 . . . . .	14
2.8	Cs-134 の崩壊形式 [1] . . . . .	18
2.9	Cs-137 の崩壊形式 [1] . . . . .	18
2.10	Sr/Y-90 の崩壊形式 [1] . . . . .	19
2.11	K-40 の崩壊形式 [1] . . . . .	21
3.1	実証実験用測定器の概要図 (左) と断面図 (右) . . . . .	26
3.2	プラスチックシンチレータ上で封じられた試料 (試料容器を兼ねる) . . . . .	27
3.3	反射剤を塗布されライトガイドに挿入されたプラスチックシンチレータ試料 . . . . .	27
3.4	実証実験用測定器の写真 (左: 装置全体、右: 遮蔽用鉛ブロックを積んだ状態) . . . . .	28
3.5	実証実験で用いたアナログ電気信号測定回路のブロック図 . . . . .	30
3.6	実証実験におけるデータ分析フロー (括弧内の数字は測定結果を表す。) . . . . .	33
3.7	Cs-134 試料の測定で得られたベータ線 (y 軸) - ガンマ線 (x 軸) 波高 2 次元分布 . . . . .	34
3.8	Cs-134 試料の測定で得られた 2 つのガンマ線検出器の波高 2 次元分布 . . . . .	34
3.9	Cs-134 試料の測定で得られたベータ線 (y 軸) - 時間波高 (x 軸) 2 次元分布 (横軸が、2 つのベータ線検出器からの信号の時間差 (片側遅延) を表し、縦軸は波高を表す。) . . . . .	35
3.10	ベータ線低波高領域のシグナル成分とノイズ成分の分離 (実線: 全波高分布、点線: シグナル成分のみ) . . . . .	35
3.11	Cs-134+Cs-137 試料のガンマ線波高分布 (白色部: 生の波高分布、赤色斜線部: ベータ線検出と同時計数成分) . . . . .	37

3.12	Cs-134+Cs-137+Sr/Y-90 試料のベータ線波高分布（白色部：生の波高分布、薄灰色部：ガンマ線検出と非同時成分、濃灰色部：規格化された Sr/Y-90 単体試料の波高分布、斜線部：規格化された Cs-134 単体試料の波高分布）	38
3.13	Sample(a) 中の Cs-134 放射能評価のための外挿曲線	39
3.14	Sample(b) 中の Cs-134 と Cs-137 からの全ベータ線放出率評価のための外挿曲線	40
3.15	Sample(c) 中の Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 からの全ベータ線放出率評価のための外挿曲線	41
3.16	実証実験と過去文献の効率外挿図の比較（上：本研究の実証実験より、下：2004 年の河田氏論文より引用）	45
4.1	対向式プラスチックシンチレーション検出器の配置図	49
4.2	対向式プラスチックシンチレーション検出器の配置写真	49
4.3	ベータ線検出器検討用のアナログ電気信号回路のブロック図（薄灰色部分は不使用）	50
4.4	対向式プラスチックシンチレーション検出器により取得したベータ線波高分布（核種別）	52
4.5	1 崩壊あたりの各核種の電子放出率に対する計数効率	53
4.6	対となるベータ線検出器により取得された 2 次元波高分布（左：Cd-109、右：Cs-137）	54
4.7	反射剤塗布プラスチックシンチレーション検出器による測定器配置図	55
4.8	対向式プラスチックシンチレーション検出器により取得されたベータ線波高分布	56
4.9	反射材塗布プラスチックシンチレーション検出器により取得されたベータ線波高分布	56
4.10	PMMA 中の電子の飛程	58
4.11	光電子増倍管 R9880U-210 に対応した凹凸型プラスチックシンチレータの図面	59
4.12	R9880U-210 とプラスチックシンチレータ（上：光電面にプラスチックシンチレータが乗った状態、下：遮光済みで測定準備完了の状態）	60
4.13	直径 8 mm のプラスチックシンチレータでの蛍光を R9880U-210 で取得した波高分布（Cd-109、ゲイン 10 倍）	62
4.14	直径 8 mm のプラスチックシンチレータでの蛍光を R9880U-210 で取得した波高分布（Cs-137）	62
4.15	直径 8 mm のプラスチックシンチレータでの蛍光を R9880U-210 で取得した波高分布（Cs-134、ゲイン 10 倍）	63
4.16	直径 8 mm のプラスチックシンチレータでの蛍光を R9880U-210 で取得した波高分布（Cs-134、ゲイン 100 倍）	63
4.17	Cs-134 に対する R9880U-210 測定での計数効率（横軸 ch はゲイン 100 倍）	64
4.18	試料付近の空気層による透過率低下の模式図	66

5.1	ベータ線、ガンマ線放出計算プログラムのブロック図と EGS5 輸送計算に必要なファイルの一覧 . . . . .	71
5.2	線源プログラムによる結果と参照値のベータ線放出エネルギースペクトルの比較 . . . . .	73
5.3	U8 容器タイプの標準ガンマ体積線源 . . . . .	75
5.4	標準ガンマ体積線源を用いた高純度ゲルマニウム半導体検出器の計数効率評価のための測定配置図 . . . . .	75
5.5	高純度ゲルマニウム半導体検出器の計数効率の実験値と計算値の比較 . . . . .	76
5.6	実証実験用測定器に対する計算により模擬された効率外挿曲線 . . . . .	78
5.7	効率外挿曲線への影響を評価するために仮定したベータ線計数効率の変化 . . . . .	80
5.8	ベータ線計数効率の変化による効率外挿曲線の変化 (黄色四角で示した数字は、仮定された計数効率の 10 keV での値) . . . . .	81
5.9	効率外挿曲線へのベータ線波高分解能の影響 (ゲート:605 keV) . . . . .	82
5.10	効率外挿曲線へのベータ線波高分解能の影響 (ゲート:605-802 keV) . . . . .	83
5.11	効率外挿曲線へのベータ線波高分解能の影響 (ゲート:796-802 keV) . . . . .	83
5.12	効率外挿曲線への影響を評価するために変化させたガンマ線検出器 (NaI(Tl) 結晶) の位置 . . . . .	84
5.13	効率外挿曲線へのガンマ線検出器位置の影響 (ゲート : 605 keV) . . . . .	85
5.14	効率外挿曲線へのガンマ線検出器位置の影響 (ゲート : 605-802 keV) . . . . .	85
5.15	効率外挿曲線へのガンマ線検出器位置の影響 (ゲート : 796-802 keV) . . . . .	86
5.16	効率外挿曲線へのガンマ線波高分解能の影響 (ゲート:605 keV) . . . . .	87
5.17	効率外挿曲線へのガンマ線波高分解能の影響 (ゲート:605-802 keV) . . . . .	88
5.18	効率外挿曲線へのガンマ線波高分解能の影響 (ゲート:796-802 keV) . . . . .	88
5.19	効率外挿曲線へのガンマ線計数ウィンドウ幅の影響 (ゲート:605 keV) . . . . .	89
5.20	効率外挿曲線へのガンマ線計数ウィンドウ幅の影響 (ゲート:605-802 keV) . . . . .	90
5.21	効率外挿曲線へのガンマ線計数ウィンドウ幅の影響 (ゲート:796-802 keV) . . . . .	90
5.22	実証実験で実測した効率外挿曲線 (比較のため規格化) . . . . .	92
6.1	スルーホール型ガンマ線検出器の模式図 . . . . .	97
6.2	スルーホール型 NaI(Tl) シンチレーション検出器の写真 . . . . .	98
6.3	スルーホール型ガンマ線検出器の貫通孔に R9880U-210 が挿入される様子 . . . . .	99
6.4	スルーホール型ガンマ線検出器のサイズ . . . . .	99
6.5	鉛遮蔽体の中に全体が入れられたスルーホール型ガンマ線検出器の様子 . . . . .	100
6.6	スルーホール型ガンマ線検出器で取得されたガンマ線波高分布 (Cs-134+Cs-137 試料) . . . . .	102
6.7	波高分解能劣化の原因を探るためにガンマ線波高分布を取得した線源位置 . . . . .	103
6.8	各位置でのスルーホール型ガンマ線検出器の波高分布 (Cs-137、Center:ホール内の中心位置) . . . . .	103

6.9	Sample(d) 中の Cs-134 放射能評価のための外挿曲線 . . . . .	104
6.10	Sample(e) 中の Cs-134 と Cs-137 からの全ベータ線放出率評価のための外挿曲線 .	105
6.11	Sample(f) 中の Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 からの全ベータ線放出率評価のための 外挿曲線 . . . . .	106



# 第1章

## 序論

### 1.1 緒言

放射能は、単位時間あたりの放射性同位元素の崩壊率を表す量であり、国際放射線単位測定委員会 (ICRU:International Commission on Radiological Units) においてベクレル [Bq] と定義されている [2]。

放射性同位元素の崩壊により、アルファ線、ベータ線、ガンマ線などの放射線が放出される。核種に応じて、放出される放射線の種類、放出率、エネルギーは別々である。それらは、崩壊形式を用いて説明され、データベースとして公開されている [1, 3–10]。ここでは、ベータ線とガンマ線の放出を同時に伴う崩壊を  $\beta$ - $\gamma$  核種と呼び、ガンマ線の放出を伴わずにベータ線の放出のみを伴う崩壊を起こす核種は純ベータ核種と呼ぶ。

放射能を測定する機器で使用されている検出器は、主にガス検出器、半導体検出器、シンチレーション検出器に分類される。その他に、飛跡検出器やチェレンコフ検出器が用いられる場合もある [11]。これらの検出器の出力は、放射線との相互作用による物理現象を増倍して得られる計数値や電流である。この出力はそれだけでは単に相対的な指標であり、目的とする放射能を知るためには、測定器の計数効率や感度を校正する必要がある。

校正には、実際の測定条件（性状、幾何条件など）にあわせて、既知の放射能と不確かさを付せられた線源を用いる。例えば、加圧型電離箱にはアンプル線源、液体シンチレーションカウンタにはバイアル線源、ガンマ線スペクトロメトリ装置には点線源や体積線源（U8、マリネリ）が用いられる。これらの校正用線源により校正された放射能測定器を正しく使った場合の測定値と不確かさは、互いに等価であると言える。

校正用線源の数値の源を辿っていくと、最終的には、他の校正に依らず絶対的に決定される放射能が与えられる標準器が存在する。放射能の絶対測定装置の一つが  $4\pi\beta$ - $\gamma$  同時測定装置であり、世界各国で現在用いられている放射能の標準器である。

この  $4\pi\beta$ - $\gamma$  同時測定装置では、 $\beta$ - $\gamma$  核種から放出されるベータ線とガンマ線の計数率に加え、ベータ線・ガンマ線同時計数率から、測定器の計数効率に依存せずに放射能の真値を決定する。真値をより小さな不確かさで決定するための技術が、現在でも追求されている。これには、ベータ線

検出器、ガンマ線検出器、そして、その信号を処理する装置を含む  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定装置の改良が含まれる。

試料中に含まれる放射能を測定する手法の一つにガンマ線スペクトロメトリがある。

この手法では、放射性同位元素から放出されるガンマ線を高純度ゲルマニウム半導体検出器、NaI(Tl) シンチレーション検出器、CsI(Tl) シンチレーション検出器などで検出する。これらの検出器で、取得される波高分布の中に現れる光電ピークの計数率を得る。核種ごとのガンマ線放出エネルギーに対応した光電ピークの計数率を、校正された計数効率で除して放射能を求める。

ガンマ線スペクトロメトリにおいて測定される核種は、Cs-134 や Cs-137 などのガンマ線を放出する核種に限られ、Sr/Y-90 などの純ベータ核種は測定できない。

純ベータ核種から放出されるベータ線は比例計数管や液体シンチレーションカウンタで測定される。ベータ線のエネルギースペクトルは連続分布であり、取得される波高分布にしきい値を設定し、そのしきい値以上の計数率を得る。その計数率を校正された計数効率で除して放射能が求められる。ベータ線測定の場合、計数効率の校正は実際の測定試料の性状を考慮する必要がある。比例計数管の場合は線源効率と有効立体角、液体シンチレーションカウンタの場合は化学クエンチ効果が計数効率に影響する。

核種が混在した試料中の純ベータ核種を測定する場合は、前述のベータ線測定の前に、核種ごとの化学的特性の違いを利用した分離作業を実施する。これは、前述のベータ線計数率だけでは他の核種と区別できないからである。化学分離は、酸、塩基などの試薬を用いて、沈殿、溶媒抽出などの操作を組合わせた作業であり、分析対象核種ごとに操作手順が異なる。

## 1.2 本研究の背景

### 1.2.1 福島第一原子力発電所事故後の対応における放射能測定の現状

東日本大震災で発生した津波が原因となり、福島第一原子力発電所で事故が発生し、大量の放射性物質が空気中、海水中に放出された [12, 13]。広域調査により、福島県を中心とした汚染の状況が明らかになった [14–16]。また、現在も事故が起きた現場では、高度に汚染された状況下で深刻なダメージを受けた原子炉の廃炉作業が続けられている [17]。

事故発生の直後の 2011 年 3 月 15 日未明に、茨城県つくば市付近でも  $1 \mu\text{Sv h}^{-1}$  を越えて空間線量率が上昇した [18, 19]。本研究の筆者は、地面に降下した放射性降下物を拭取って採取した試料のガンマ線スペクトロメトリから、主な核種は核分裂生成物である放射性ヨウ素等であることを明らかにした [20]。同年 4 月下旬以降には短半減期核種が減衰し、その後の空間線量率を支配する核種が Cs-134 (半減期 2.0644 年 [10])、Cs-137 (半減期 30.05 年 [6]) であることが次第に明らかになっていった。

しかし、核分裂により多く生成される核種から純物質の沸点・融点が低い核種を選別する観点やチェルノブイリ原発事故の経験 [21] から、Sr/Y-90 (Sr-90 は Y-90 と平衡状態、半減期 28.80 年 [6]) についても広い範囲での汚染が懸念された。実際には、河川水中の Sr/Y-90 は  $0.1 \text{ Bq kg}^{-1}$

以下という低い濃度であることが化学分析により明らかにされた [15]。

一方で、事故直後 1 ヶ月以内の測定結果の報告から、食品などへの放射性物質の混入・移行が明らかになった。経口摂取による内部被ばくは、低い濃度でも長期にわたる影響が懸念される。そのため、厚生労働省は食品衛生法に基づき、流通食品に対して基準値を定めた [22]。いずれも、Cs-134 と Cs-137 の放射能濃度合算値に対して設定されている。前述のように低いと報告されている Sr/Y-90 の Cs-134、Cs-137 に対する混在比を安全側に仮定し、実際の測定対象からは除かれているが、Sr/Y-90 を測定することが望まれている。

事故を起こした原子炉は深刻なダメージを受けながら冷温停止状態に至った。それまでの過程に使用した水や地下から流入する水は汚染された状態であり、膨大な量が貯蔵されている [23]。この汚染された水などの放射性物質を外部へ漏出することを防ぎながら、原子炉を安定した状態に維持しつつ処理を進めていく必要がある。公開されている測定結果において、汚染水に含まれる主要な核種は Sr/Y-90 であると報告されている。したがって、Sr/Y-90 はモニタリング対象とすべき重要な核種である。この福島第一原子力発電所事故対応のように、測定すべき試料が多い場合には、迅速に測定結果を得られることが重要になる。

### 1.2.2 従来の核種混在試料中 Sr/Y-90 測定法の課題

Sr/Y-90 が、Cs-134 と Cs-137 との混在状態にある場合、ベータ線スペクトル測定のみでは、三核種由来のベータ線による連続した波高が重畳し、個別の放射能を測定することは難しい。そのため、Sr/Y-90 を分離して定量する必要があり、測定前の試料調製作業に化学分析が利用される。

Cs-134 と Cs-137 との混在状態にある場合に Sr/Y-90 を化学分析する手法は、文部科学省がまとめた放射能測定法シリーズ No.2 [24] に示されている。この手法では、イオン交換法、発煙硝酸法、シュウ酸塩法により、Sr/Y-90 を Cs-134 と Cs-137 を化学的に分離でき、灰化处理、濃縮処理により多様な性状の試料を、低い濃度まで測定対象としている。

しかし、これらの手法では、化学分離により Sr-90 と Y-90 の平衡が一旦途切れ、再び平衡に至るまでに 2 週間以上の静置する時間が必要で、測定時間は最低でも 2 週間が必要である。そもそも、この分析マニュアルは長期にわたり採取された放射性降下物試料などを分析する場合を想定しており、所要時間の他にも、分析にかかる使用試薬、器具装置はその目的に対して設定されている。

放射能測定法シリーズ No.23 [25] にある手法や、フィルター [26] による分析でも、試料やイオン交換膜の化学処理における操作に専門的な知識が必要である。

前述した福島第一原子力発電所事故後の測定のニーズに、この既存の測定法を適用した場合を考えると、以下の点が指摘される。

1. 測定できる下限量は、Cs-134 と Cs-137 の放射能に対して 0.1 % 以下であり、十分である。
2. 化学分析に必要とされる技能レベルが高く、ガンマ線スペクトロメトリのように一般的に実施することは難しい。
3. 化学分析にかけられる測定時間の短縮が求められている。

4. 装置の小型・簡略化により、実施できる環境を一般化することが望ましい。
5. 化学分析とベータ線測定に関わる不確かさ、または、不確かさの算出法が明らかにされていない。

上述の 2~5 は、既存の手法に改善が求められている点である。

### 1.2.3 放射能計量標準における純ベータ核種測定の課題

放射能の標準器である  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定装置では、 $\beta\text{-}\gamma$  核種だけでなく純ベータ核種の放射能も絶対測定により決定できる。

純ベータ核種測定の場合、 $\beta\text{-}\gamma$  核種に純ベータ核種を混合して核種混在試料を作成する。 $\beta\text{-}\gamma$  核種のベータ線計数効率  $100\%$  になる条件では、純ベータ核種に対してベータ線計数効率が  $100\%$  になると考えられることを利用して、純ベータ核種の放射能を絶対測定する。これは、効率トレーサ法と呼ばれ、2 章で詳細を述べる。

この効率トレーサ法は各国の計量標準機関で利用されている。Cs-137 の放射能の絶対測定にも利用されており、各国間の測定結果は良く一致している [27]。

しかし、これまでに、この効率トレーサ法をモニタリングを目的とした一般環境試料中の純ベータ核種に適用した例はなく、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 が混在した試料の測定を検討した例もない。

効率トレーサ法は絶対測定であるために、既存の Sr/Y-90 放射能測定法では測定不確かさの主因の一つになる計数効率の校正による不確かさによる影響はない。また、試料中での自己吸収を考慮した線源効率の不確かさにも影響されない。この点は、効率トレーサ法を用いた場合の利点である。

## 1.3 本研究の目的

本研究では、新たに核種混在試料中の純ベータ核種の放射能を測定する手法を確立することを目的とし、大立体角を有するベータ線検出器とガンマ線検出器を組み合わせた装置を開発する。この測定手法と装置により、実際に核種混在試料中の純ベータ核種の放射能を測定できることを明示する。

この目的に対して、次の項目が必要であると考えた。

#### 1. 測定原理の考案

効率トレーサ法の適用を拡大し、ガンマ線スペクトロメトリと合わせて純ベータ核種の放射能を測定する方法を組み立てる。

#### 2. 測定装置・測定手順の整備

原理に基づき測定するために、備えられるべき装置とそれを使用する手順を整える。

#### 3. 測定結果の評価

装置からの出力を解析し、測定される Sr/Y-90 放射能とその不確かさを評価する。

本研究での測定対象は、福島第一原子力発電所事故での放出核種を念頭に、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 の混在試料とする。

## 1.4 本論文の構成

第1章では、本研究の背景を示し、本研究で取組む測定法に関する背景について述べ、本研究の目的を示した。

第2章では、本研究の測定法の原理を記述する。既存の測定法である  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法とガンマ線スペクトロメトリを組み合わせ、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 核種混在試料の放射能測定に応用した手法を示す。

第3章では、本測定法の原理を実証するための実験について述べる。実験のために用意された装置を示し、測定結果と不確かさについて示す。この結果から、本測定法に用いられる装置への課題を抽出する。

第4章では、ベータ線検出器について検討を行う。ベータ線検出器として選定されたプラスチックシンチレーション検出器について、計数効率の改善を目的として、蛍光発生から信号取得までの過程について、実験的に検討する。

第5章では、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法における効率外挿曲線を模擬するためのシミュレーションについて述べる。このシミュレーションのために開発する放射性核種の崩壊に沿ったベータ線・ガンマ線同時放出モンテカルロ計算プログラムの内容を示す。計算プログラムが正しく動作することを検証する。このシミュレーションにより、効率外挿曲線を変化させるパラメータについて検討を行う。

第6章では、本測定法のための測定装置を作製し、その測定結果を評価する。この本測定法で測定できる Sr/Y-90 放射能測定について述べる。

第7章では、本論文全体を総括し、結論と今後への展望を述べる。

## 第 2 章

# 放射能測定手法の検討

第 1 章では、本研究で大立体角のベータ線、ガンマ線検出器を用いた装置を開発し、核種混在試料中の純ベータ核種を測定する手法を確立することを目的として述べた。

本章では、下記について述べ、Cs-134 と Cs-137 の混在試料中の Sr/Y-90 を例に挙げて、核種混在試料中のベータ核種の放射能を測定する原理を示す。

- $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法のこれまでの研究と現状の課題
- 本研究で確立する Cs-134 と Cs-137 が混在した試料中の Sr/Y-90 放射能を測定する方法
- 使用するベータ線検出器とガンマ線検出器の選択

### 2.1 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法のこれまでの研究と現状の課題

大立体角でベータ線とガンマ線を測定することにより、校正によらず放射能を絶対的に決定できる測定法の一つが  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法である。表 2.1 に  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法を含む放射能の計量標準に関する研究の参考文献の一覧を示す。これらの中に、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法に関する研究が数多く含まれ、現在に至るまでの国際的な議論の動向を知ることができる。

#### $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法に関するこれまでの研究

本研究で用いる  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法の過去の研究と現在の課題について述べる。

検出器の計数効率に依存せずに放射能を絶対測定する手法は J.V. Dunworth により初めて示された [28]。その後、現在の  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法で用いられる効率外挿法が、1959 年 P.J. Campion により示され [29]、それ以来、各国の計量標準機関で用いられるようになった。翌年には、複雑な崩壊形式を持つ  $\beta\text{-}\gamma$  核種への適用の可能性が示され、純ベータ核種への効率トレーサ法へ拡張されている [53]。

我が国においても、1965 年に河田により  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法における計数統計の影響について考察されている [54]。

1973 年には A.P. Baerg により、この効率外挿法について具体的な手法が系統的に示され [55]、

表 2.1 放射能の標準測定に関する主な参考文献、書籍、Proceedings の一覧

	著者、雑誌、学会名	Ref.
1940	J.V. Dunworth	[28]
1959	P.J. Champion	[29]
1963	ICRU report 10c	[30]
1966	W.B. Mann	[31]
1967	IAEA Symposium on Standardization of Radionuclide	[32]
1968	ICRU report 11	[33]
1971	ICRU report 19	[34]
1972	Y. Kawada	[35]
1973	1st International summer school on radionuclide metrology	[36]
1978	NCRP report 58	[37]
1980	ICRU report 33	[38]
1981	放射能標準体・標準線源とその使用法	[39]
1983	ICRM 9th meeting	[40]
1983	電総研彙報-放射線特集	[41]
1994	ICRM'93	[42]
1994	ICRU report 52	[43]
1998	ICRM'97	[44]
2000	ICRM'99	[45]
2002	ICRM'01	[46]
2004	ICRM'03	[47]
2006	ICRM'05	[48]
2007	Metrologia-Special issue on radionuclide metrology	[49]
2008	ICRM'07	[50]
2010	ICRM'09	[51]
2012	ICRM'11	[52]

外挿による不確かさについて議論されている。効率外挿曲線に対して、宮原が計算した計数効率から最適な外挿曲線の形状について考察を加え [56]、効率外挿に用いる近似曲線についてベータ線計数効率が高い場合は線形近似を利用し、低い場合はできるだけ低次の多項式近似を利用することを提唱している。しかし、効率外挿曲線については、1994 年 ICRU による放射能測定のための計数法に関するレポート [43] の後も、C. Bobin によりレビューされ [57]、現在も議論に決着は付いていない。

この C. Bobin によるレビューでは、それまでに示された  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置におけるベータ線検出器の種類についても述べている。大きく分けて、比例計数管方式とシンチレーション方式に分

けられる。

比例計数管方式は、ガスフロー式と加圧式に分類される。従来よりの  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置のベータ線検出器では、ガスフロー式比例計数管の容器内に試料を内包する方式が多く用いられている。加圧型比例計数管では、低エネルギー領域の検出イベント情報を波高で得られるようになり、効率外挿曲線を測定回路のしきい値の変化により得ることができる [58]。

一方のシンチレーション方式では、より多い量の試料を保持できる液体シンチレーションカウンタを用いた装置が見られ、我が国の電子技術総合研究所（電総研、産業技術総合研究所の前身）においても由良により開発された [59]。そして、本研究で採用するプラスチックシンチレーション検出器の適用については、河田により提案された [60]。

$4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置に関する研究は、信号取得系統にも及んでいる。従来はアナログ電子回路で計数した結果だけを取得していた。それに代わり、リストモードで動作する ADC を用いて信号を取得し、ソフトウェア解析で計数する方式を採用した装置も見られる [61]。

これらの  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法に関する研究は、世界共通の SI 単位に直結する放射能の一次標準 (Primary standard) を、真値に近づけ、その不確かさをより小さくできる測定に向けた課題を克服していくことを目指している。

#### 日本国内の放射能計量標準

$4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法は、日本国内の放射能の計量標準においても一次標準として用いられている。ここで、その利用の現状と課題を述べる。

(独) 産業技術総合研究所（産総研）では国の計量標準となる一次標準を維持している。校正事業者の維持している二次標準を通じて、一般の測定器の校正への計量標準の利用を支えている（図 2.1）。JCSS (Japan Calibration Service System、計量法に基づく計量トレーサビリティ制度) における校正事業者は、(独) 製品評価技術基盤機構により登録されている [62]。放射能分野では、(公社) 日本アイソトープ協会、(公財) 日本分析センターが登録事業者であり、校正用の標準線源がユーザーに頒布されている [63]。

一方で、産総研は他国の計量標準機関との国際比較に参加し、自らの測定値が国際的に等価であり、不確かさが十分に小さいことを公示している [64]。

産総研にある放射能の一次標準は複数の標準器による群（特定標準器群）で構成され、多様な核種に対応している。一次標準の特定標準器群には、高い安定性を持つ加圧型電離箱 [65, 66]、ガンマ線スペクトロメトリにより幅広い核種に対応できる高純度ゲルマニウム半導体検出器、純ベータ核種などを対象とする液体シンチレーションカウンタなどが含まれている。これらの測定器は、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定装置による絶対測定で放射能濃度が与えられた標準溶液により校正される。

図 2.2 に現在の産総研で使用されている  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定装置の写真を示す。この装置の詳細については、河田により示されている [35, 67]。

装置全体は、幅 80 cm、高さ 111 cm、奥行 56 cm で厚さ 6 cm 以上はある鉛遮蔽体で周囲を囲まれている。ベータ線検出器は直方体形状のガスフロー式比例計数管であり、上下に 2 台の円柱型直径 3 インチ高さ 3 インチの NaI(Tl) シンチレーション検出器（Oken 製、12B12）をガンマ線検



出器として配置している。

測定試料は、薄膜の VYNS [68] 上に滴下した (図 2.3) 後に、乾燥させ比例計数管の中央に配置する。試料から上下に放出されるベータ線による電離現象を上下それぞれの比例計数管で捉える (図 2.4)。この VYNS 膜はベータ線の吸収を最小とするために極めて薄く、丁寧に扱わなければ簡単に破れてしまう (図 2.5)。薄膜線源の作成法については Pate らによる論文 [68] の他に、NCRP Report 58 にも記されている [37]。

この VYNS 膜の取扱には操作に習熟した技術者が細心の注意を払う必要があり、より安定した測定作業に向けて改善が望まれる。この場合のベータ線検出器には、より高い計数効率を持ち、堅牢性が高いことが求められる。

この  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定装置を使用した実際の作業は次の通りである。

まず、VYNS 膜を真鍮ワッシャー上に作製する。この真鍮ワッシャーのサイズが比例計数管の試料装填部のサイズと一致する。VYNS 膜はその両面を金で蒸着する。これは、絶縁体である VYNS 膜により、比例計数管内の電場の乱れが起きることを防ぐためである。VYNS 膜上に放射性水溶液 10-20 mg 程度を滴下乾燥させる。この滴下された水溶液には、乾燥後の試料が均一に分布し散逸することを防ぐための媒体として播種剤 (Ludox、SM30) を約 8000 倍に希釈した溶液も加える [69]。以上で、試料調整作業は完了し、比例計数管内の試料装填部にセットし、PR ガスなどの電離有感ガスをゆっくりとフローした状態で測定を実施する。

この比例計数管と NaI(Tl) シンチレーション検出器からの信号を処理するための測定回路の典型例を図 2.6 に示す。この回路で、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定法を成立させるために、ベータ線計数率、ガンマ線計数率、両者の同時計数率を測定する。

ベータ線検出器である比例計数管からの信号は、前置増幅器、波形整形増幅器で十分に大きな波高の信号に増幅され、より低いエネルギーのベータ線まで計数されるように配慮する。増幅されたベータ線信号は、シングルチャンネルアナライザで読み取られ、適切な遅延時間で上下の比例計数管での計数を足し合わせる。ガンマ線検出器である NaI(Tl) シンチレーション検出器からの信号は合算され、足し合わされた信号として波高分布を得る。その波高分布に対して、目的とするガンマ線波高ゲートに相当する信号はシングルチャンネルアナライザで読み取られる。そして、ベータ線信号とガンマ線信号の同時計数を計数する。

この回路では、後述される測定回路のように、オフラインでベータ線計数効率を変化させることができず、測定結果を解析する処理能力が低い。また、得られる情報量が少ないために、測定に問題があった場合に、対応が遅れる。

測定結果の解析により、測定試料上に用意された放射能は、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法で絶対的に決定され、滴下した溶液の重量から、もとの放射性溶液の放射能濃度が導出される。この放射能濃度から、前述の特定標準器群内の機器が校正される。

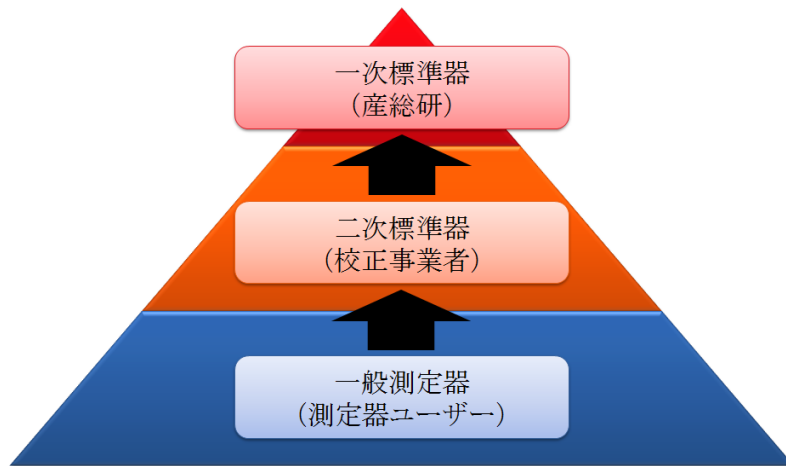


図 2.1 計量トレーサビリティ制度による一次標準と測定器のつながりを表す模式図



図 2.2 産業技術総合研究所に設置されている  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置

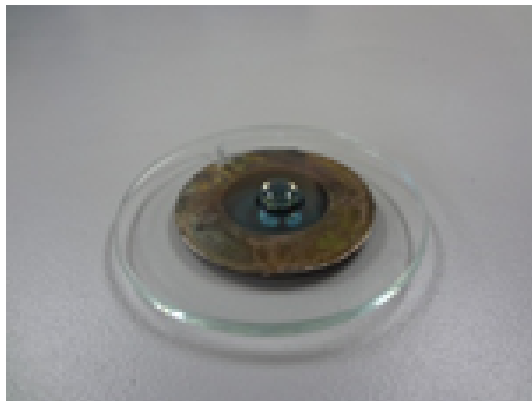


図 2.3 VYNS 膜上に滴下された測定対象となる水溶液試料

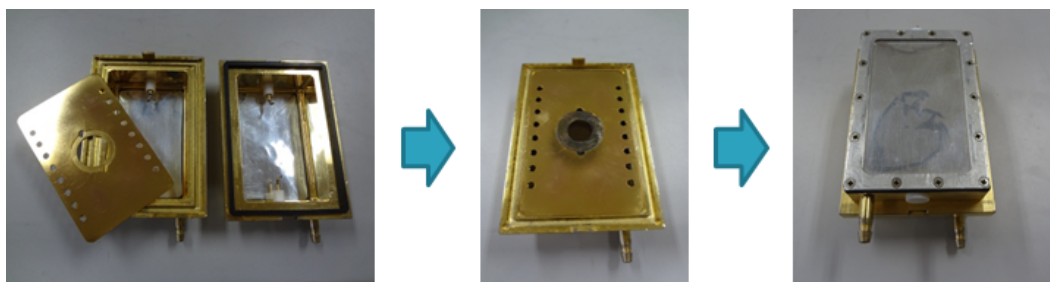


図 2.4 比例計数管にセットされた測定試料

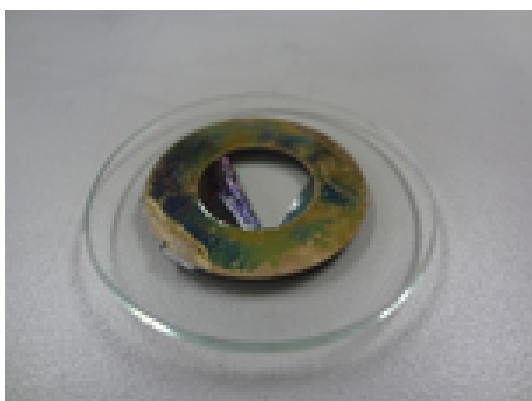


図 2.5 破れてしまった VYNS 膜

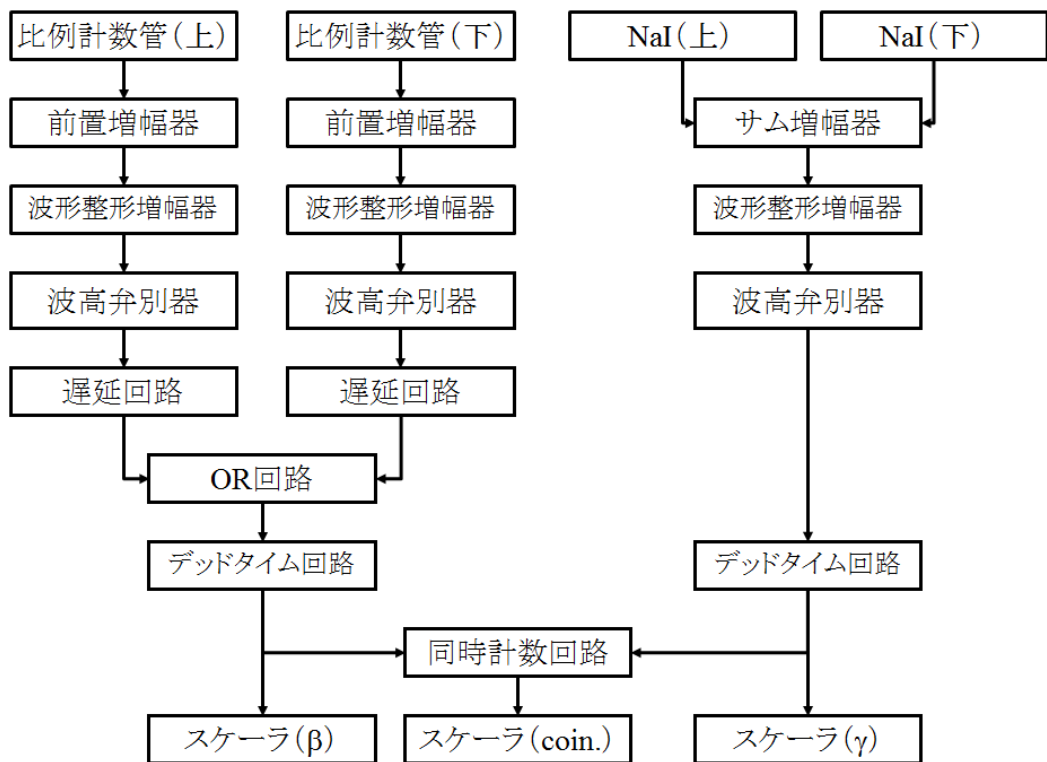


図 2.6 典型的な  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置の測定回路

## 2.2 Cs-134 と Cs-137 の混在試料中の Sr/Y-90 放射能測定法

本論文により提案する Sr/Y-90 放射能測定法では、測定対象となる試料に対して大立体角のベータ線検出器とガンマ線検出器を用いる。これらの検出器におけるベータ線計数率、ガンマ線計数率、ベータ・ガンマ線同時計数率から、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定法により試料からの全ベータ線放出率を絶対測定する。一方、同じ装置に含まれているガンマ線検出器を用いたガンマ線スペクトロメトリにより Cs-134 と Cs-137 の放射能を測定し、ベータ線放出率を求める。この全ベータ線放出率から Cs-134 と Cs-137 のベータ線放出率を差し引くことにより、Sr/Y-90 の放射能を測定する。

この手法により、化学分離を用いずに混在試料中の Sr/Y-90 放射能を測定することが可能になる。これまでに  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定法で使用されていた効率トレーサ法を 3 核種混在試料に適用を拡大し、ガンマ線スペクトロメトリと組合せることにより Sr/Y-90 の放射能測定を可能にする。測定される全ベータ線放出率は絶対測定に基づいており、自己吸収の違いなどにより変化する試料の線源効率には依存しない。

### 2.2.1 $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法による全ベータ線放出率の絶対測定

ここでは、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法により核種混在試料からの全ベータ線放出率が絶対測定されることを示す。

はじめに、ベータ崩壊のブランチが 1 つの単純な  $\beta\text{-}\gamma$  核種のみが含まれる試料を想定する。この場合、 $\beta\text{-}\gamma$  核種に対してベータ線検出器とガンマ線検出器の計数率  $\rho_\beta$ 、 $\rho_\gamma$  と、両方の検出器の同時計数率  $\rho_{Coin}$  から放射能  $A$  を測定できる。

$$A = \frac{\rho_\beta \rho_\gamma}{\rho_{Coin}} = \frac{A \varepsilon_\beta \times A \varepsilon_\gamma}{A \varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma} \quad (2.1)$$

式 2.1 において、 $\varepsilon_\beta$ 、 $\varepsilon_\gamma$  はベータ線検出器とガンマ線検出器の計数効率を表している。結果として計数効率は分母分子で約分され、放射能  $A$  は計数効率に依存せずに測定できることを表している。実際のベータ線検出器では、ベータ線検出以外にわずかながらガンマ線と内部転換電子を計数する。式 2.2 では、それを考慮している。

$$\rho_\beta = A \left[ \varepsilon_\beta + (1 - \varepsilon_\beta) \times \left( \frac{\varepsilon_{\beta\gamma} + \alpha \varepsilon_{ce}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (2.2)$$

$$\rho_\gamma = A \frac{\varepsilon_\gamma}{1 + \alpha} \quad (2.3)$$

$$\rho_{Coin} = A \left[ \frac{\varepsilon_\beta \varepsilon_\gamma}{1 + \alpha} + (1 - \varepsilon_\beta) \times \varepsilon_c \right] \quad (2.4)$$

$\varepsilon_{\beta\gamma}$ 、 $\varepsilon_{ce}$  はベータ線検出器でのガンマ線計数効率と内部転換電子計数効率、 $\varepsilon_c$  はベータ線検出器とガンマ線検出器でガンマ線を同時計数する計数効率、 $\alpha$  は全内部転換係数を表す。式 2.2 の第

2項がガンマ線と内部転換電子のベータ線検出器での計数率を表す。式 2.4 における第 2 項は、ガンマ線波高分布においてコンプトン成分として現れるため、ガンマ線計数を光電ピーク領域に設定することにより、その影響を抑えられる。式 2.2~2.4 から、放射能  $A$  と計数率  $\rho_\beta$ 、 $\rho_\gamma$ 、 $\rho_{Coin}$  の関係は次のように表される。

$$\frac{\rho_\beta \rho_\gamma}{\rho_{Coin}} = A \left[ 1 + \frac{(1 - \varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} \times \left( \frac{\varepsilon_\beta \gamma + \alpha \varepsilon_{ce}}{1 + \alpha} \right) \right] \quad (2.5)$$

$$\frac{\rho_{Coin}}{\rho_\gamma} = \varepsilon_\beta \quad (2.6)$$

式 2.5 の第 2 項は、図 2.7 に示すように試料  $\varepsilon_\beta \rightarrow 1$  で、 $\frac{(1 - \varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} \rightarrow 0$  となりベータ線検出器のガンマ線計数率と内部転換電子計数率が補正され、真の放射能が求められる。実際の測定では、同時計数率とガンマ線計数率の比から求められる  $\varepsilon_\beta$  を変化させ  $\frac{(1 - \varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta} \rightarrow 0$  に外挿する方法を用いる。 $\varepsilon_\beta$  を変化させる具体的な方法には、試料周りに薄膜を被せる方法や、ベータ線計数のしきい値を上げていき  $\varepsilon_\beta$  を少しずつ削る方法などがある。これを効率外挿法と呼ぶ。また、 $\frac{(1 - \varepsilon_\beta)}{\varepsilon_\beta}$  を、ここでは P-Value と呼ぶ。

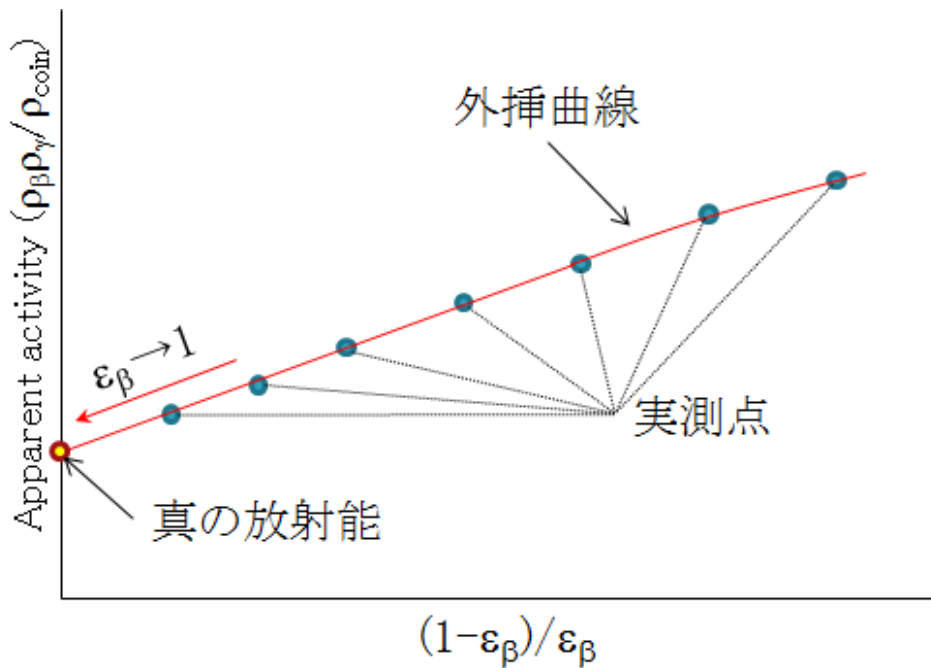


図 2.7 ベータ線計数効率と P-Value の関係

複雑な崩壊形式を持つ核種における  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法

次に、Cs-134 のように、複数のベータ崩壊の分岐を持つ核種が含まれる試料を想定する。この場合の計数率は次のように表される。

$$\rho_\beta = A \sum_i p_i \left[ (\varepsilon_\beta)_i + \{1 - (\varepsilon_\beta)_i\} \times \left\{ \frac{(\varepsilon_{\beta\gamma})_i + (\alpha\varepsilon_{ce})_i}{1 + \alpha_i} \right\} \right] \quad (2.7)$$

$$\rho_\gamma = A \frac{(\varepsilon_\gamma)_k}{1 + \alpha_k} \quad (2.8)$$

$$\rho_{Coin} = A \left[ \frac{(\varepsilon_\beta)_k \times (\varepsilon_\gamma)_k}{1 + \alpha_k} + \{1 - (\varepsilon_\beta)_k\} \times (\varepsilon_c) \right] \quad (2.9)$$

式 2.7~2.9 における添字  $i$  は、 $i$  番目の分岐とそれに続く  $\gamma$  線を放出する遷移を表す。ガンマ線計数領域を設定した遷移とそれに先行するベータ崩壊の分岐については添字  $k$  を付した。 $p$  はベータ崩壊の分岐比を表す。式 2.9 における第 2 項も、ガンマ線計数を光電ピーク領域に設定することにより、その影響を抑えられる。式 2.7~2.9 から、次式が得られる。

$$\frac{\rho_\beta \rho_\gamma}{\rho_{Coin}} = A \left[ \sum_i \frac{p_i (\varepsilon_\beta)_i}{(\varepsilon_\beta)_k} + \frac{\{1 - (\varepsilon_\beta)_k\}}{(\varepsilon_\beta)_k} \times \sum_i \left[ \frac{p_i \{1 - (\varepsilon_\beta)_i\}}{\{1 - (\varepsilon_\beta)_k\}} \times \frac{(\varepsilon_{\beta\gamma})_i + (\alpha\varepsilon_{ce})_i}{1 + \alpha_i} \right] \right] \quad (2.10)$$

$$\frac{\rho_{Coin}}{\rho_\gamma} = (\varepsilon_\beta)_k \quad (2.11)$$

式 2.10 において、 $(\varepsilon_\beta)_k \rightarrow 1$  のとき、 $(\varepsilon_\beta)_i \rightarrow 1$  となり、下式のように単純化される。

$$\frac{\rho_\beta \rho_\gamma}{\rho_{Coin}} \rightarrow A \quad (2.12)$$

ここで、 $\sum_i p_i = 1$  である。また、式 2.10 について、下記のような形式に書き換えることができる。

高いベータ線計数効率の領域では、下式 2.13 の  $(\varepsilon_\beta)_i - (\varepsilon_\beta)_k$  が  $1 - (\varepsilon_\beta)_k$  に対してほぼ比例関係であると考えられる。

$$\frac{(\varepsilon_\beta)_i}{(\varepsilon_\beta)_k} = 1 + \frac{(\varepsilon_\beta)_i - (\varepsilon_\beta)_k}{(\varepsilon_\beta)_k} \approx 1 + \frac{\{1 - (\varepsilon_\beta)_k\} \times c}{(\varepsilon_\beta)_k} \quad (2.13)$$

これにより、式 2.10 の第 1 項は、次のように表される。

$$\sum_i \frac{p_i (\varepsilon_\beta)_i}{(\varepsilon_\beta)_k} = \sum_i \left[ p_i \times \left[ 1 + \frac{\{1 - (\varepsilon_\beta)_k\}}{(\varepsilon_\beta)_k} \times c \right] \right] = 1 + \frac{\{1 - (\varepsilon_\beta)_k\}}{(\varepsilon_\beta)_k} \times \sum_i p_i c \quad (2.14)$$

式 2.14 の  $\sum_i p_{ic}$  を  $C$  とすると、式 2.10 は、次のようにも表される。

$$\frac{\rho_{\beta\rho\gamma}}{\rho_{Coin}} = A \left[ 1 + \frac{\{1 - (\varepsilon_{\beta})_k\}}{(\varepsilon_{\beta})_k} \times \left[ \sum_i \left[ \frac{p_i \{1 - (\varepsilon_{\beta})_i\}}{\{1 - (\varepsilon_{\beta})_k\}} \times \frac{(\varepsilon_{\beta\gamma})_i + (\alpha\varepsilon_{ce})_i}{1 + \alpha_i} \right] + C \right] \right] \quad (2.15)$$

### 三核種混在試料における $4\pi\beta\text{-}\gamma$ 同時計数法

次に、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 が混在した状態を考える。Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 のベータ線、ガンマ線の主な放出を伴う崩壊形式を図 2.8、図 2.9、図 2.10 に示す。

この場合、ベータ線検出器とガンマ線検出器の計数率  $\rho_{\beta}^{mix}$ 、 $\rho_{\gamma}^{mix}$  と、両方の検出器の同時計数率  $\rho_{Coin}^{mix}$  は次のように表される。

$$\begin{aligned} \rho_{\beta}^{mix} = & A_{134} \left[ \sum_i p_i^{134} \left[ (\varepsilon_{\beta}^{134})_i + \{1 - (\varepsilon_{\beta}^{134})_i\} \times \left\{ \frac{(\varepsilon_{\beta\gamma}^{134})_i + (\alpha_{134}\varepsilon_{ce}^{134})_i}{1 + (\alpha_{134})_i} \right\} \right] \right] \\ & + A_{137} \left[ \varepsilon_{\beta}^{137} + p_1^{137} \times \left( \frac{\varepsilon_{\beta\gamma}^{137} + \alpha_{137}\varepsilon_{ce}^{137}}{1 + \alpha_{137}} \right) \right] + A_{Sr}\varepsilon_{\beta}^{Sr} \end{aligned} \quad (2.16)$$

$$\rho_{\gamma}^{mix} = A_{134} \frac{(\varepsilon_{\gamma}^{134})_k}{1 + (\alpha_{134})_k} + A_{137} \times p_1^{137} \times \frac{\varepsilon_{\gamma}^{137}}{1 + \alpha_{137}} \quad (2.17)$$

$$\rho_{Coin}^{mix} = A_{134} \left[ \frac{(\varepsilon_{\beta}^{134})_k \times (\varepsilon_{\gamma}^{134})_k}{1 + (\alpha_{134})_k} + (1 - \varepsilon_{\beta}^{134}) \times \varepsilon_c^{134} \right] \quad (2.18)$$

式 2.16~2.18 における添字 134 は Cs-134 由来、137 は Cs-137 由来、Sr は Sr/Y-90 由来の変数を意味する。Sr/Y-90 の放射能  $A_{Sr}$  は、永続平衡の関係にある Sr-90 と Y-90 の合算値を表す。 $p_1^{137}$  は Cs-137 から Ba-137m への崩壊分岐比を表す。

式 2.16 の  $\rho_{\beta}^{mix}$  は、核種混在状態での全ベータ線計数率を表す。Cs-134 由来はベータ線計数率に加え、ガンマ線と内部転換電子の計数率がある。Cs-137 由来も同様であるが、第 2 項に  $(1 - \varepsilon_{\beta})$  がかかっていない。これは、Cs-134 由来は「ベータ線を計数せず」かつ「ガンマ線および内部転換電子を計数する」場合のみが影響されるのに対して、Cs-137 由来はベータ線の計数によらず単純にガンマ線および内部転換電子の計数が加えられることを意味する。これは、図 2.9 の崩壊形式の中で、Cs-137 のガンマ線、内部転換電子が長い半減期 (2.5 分) を持つ Ba-137m からのガンマ崩壊に由来しており、Cs-137 からのベータ線放出と Ba-137m からのガンマ線放出は別々のタイミングで放出されるためである。Sr/Y-90 由来は、純ベータ核種であるためベータ線による計数のみである。

式 2.17 は、核種混在状態での全ガンマ線計数率における、Cs-134 と Cs-137 由来の計数率を表す。Cs-137 由来のガンマ線は 662 keV のみであり、それ以上のエネルギー領域のガンマ線計数率だけを考慮すれば第 2 項は完全に無視される。



式 2.18 は、核種混在状態での全同時計数率を表すが、式 2.4 からは変化しない。これは、Cs-137 由来のガンマ線はベータ線とは同時に放出されず、Sr/Y-90 からはガンマ線が放出されないためである。式 2.4 の場合と同様に、式 2.18 の第 2 項は、主なガンマ線計数を光電ピーク領域に設定することにより、さらに、その影響を抑えられる。

以上より、下式 2.19 が得られる。

$$\begin{aligned} & \frac{\rho_{\beta}^{mix} \rho_{\gamma}^{mix}}{\rho_{Coin}^{mix}} \\ &= A_{134} \left[ \sum_i \frac{p_i^{134} (\varepsilon_{\beta}^{134})_i}{(\varepsilon_{\beta}^{134})_k} + \frac{\{1 - (\varepsilon_{\beta}^{134})_k\}}{(\varepsilon_{\beta}^{134})_k} \times \sum_i \left[ \frac{p_i^{134} \{1 - (\varepsilon_{\beta}^{134})_i\}}{\{1 - (\varepsilon_{\beta}^{134})_k\}} \times \frac{(\varepsilon_{\beta\gamma}^{134})_i + (\alpha_{134} \varepsilon_{ce}^{134})_i}{1 + (\alpha_{134})_i} \right] \right] \\ &+ A_{137} \left[ \frac{\varepsilon_{\beta}^{137}}{\varepsilon_{\beta}^{134}} + \frac{1}{\varepsilon_{\beta}^{134}} \times p_1^{137} \times \left( \frac{\varepsilon_{\beta\gamma}^{137} + \alpha_{137} \varepsilon_{ce}^{137}}{1 + \alpha_{137}} \right) \right] + A_{Sr} \frac{\varepsilon_{\beta}^{Sr}}{\varepsilon_{\beta}^{134}} \end{aligned} \quad (2.19)$$

式 2.19 において、Cs-134 のベータ線計数効率が 1 に効率が外挿されるとき ( $(\varepsilon_{\beta}^{134})_k \rightarrow 1$ )、Cs-134 の各ベータ崩壊の分岐に対する計数効率や Cs-137 と Sr/Y-90 のベータ線計数効率も 1 に外挿される ( $(\varepsilon_{\beta}^{134})_i \rightarrow 1$ 、 $\varepsilon_{\beta}^{137} \rightarrow 1$ 、 $\varepsilon_{\beta}^{Sr} \rightarrow 1$ )\*<sup>1</sup>。この場合、式 2.19 は、下式 2.20 のように単純化される。

$$\frac{\rho_{\beta}^{mix} \rho_{\gamma}^{mix}}{\rho_{Coin}^{mix}} \rightarrow A_{134} + A_{137} \left[ 1 + p_1^{137} \times \left( \frac{\varepsilon_{\beta\gamma}^{137} + \alpha_{137} \varepsilon_{ce}^{137}}{1 + \alpha_{137}} \right) \right] + A_{Sr} \quad (2.20)$$

式 2.20 の Cs-137 由来の内部転換電子の放出割合  $\alpha_{137}$  は 0.1102 [6] である。その内部転換電子は 600 keV 以上の十分に高いエネルギーを持つため、計数効率  $\varepsilon_{ce}^{137}$  は 1 に限りなく近い。ベータ線検出器でのガンマ線計数率  $\varepsilon_{\beta\gamma}^{137}$  は、できるだけ小さくなるように配慮する。

\*<sup>1</sup> この場合のように、Cs-134 の計数効率の変化を用いて、Cs-137 と Sr/Y-90 の計数効率を 100 % の点に外挿する手法は、効率トレーサ法と呼ばれる。これは、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 に共通してベータ線放出エネルギースペクトルが連続であり、ベータ線検出器のベータ線計数効率が外挿領域で極点を持たないことにより、適用可能である。

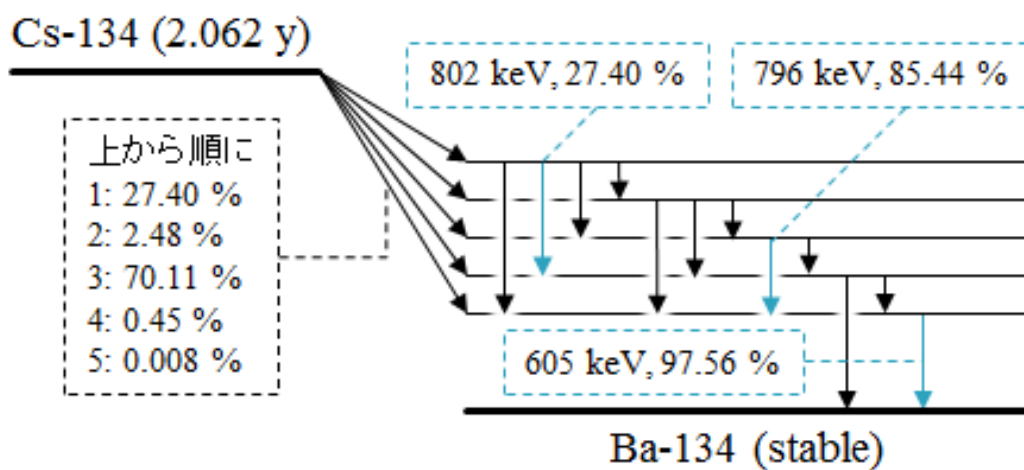


図 2.8 Cs-134 の崩壊形式 [1]

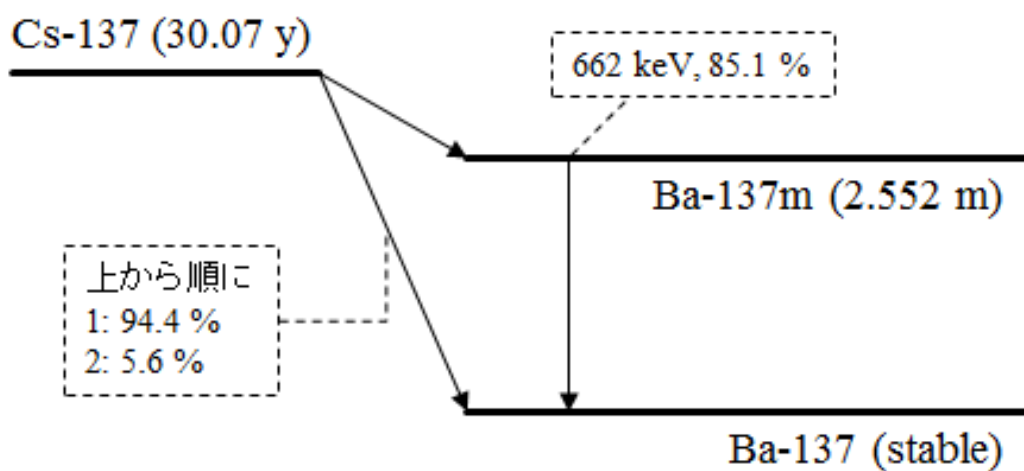


図 2.9 Cs-137 の崩壊形式 [1]

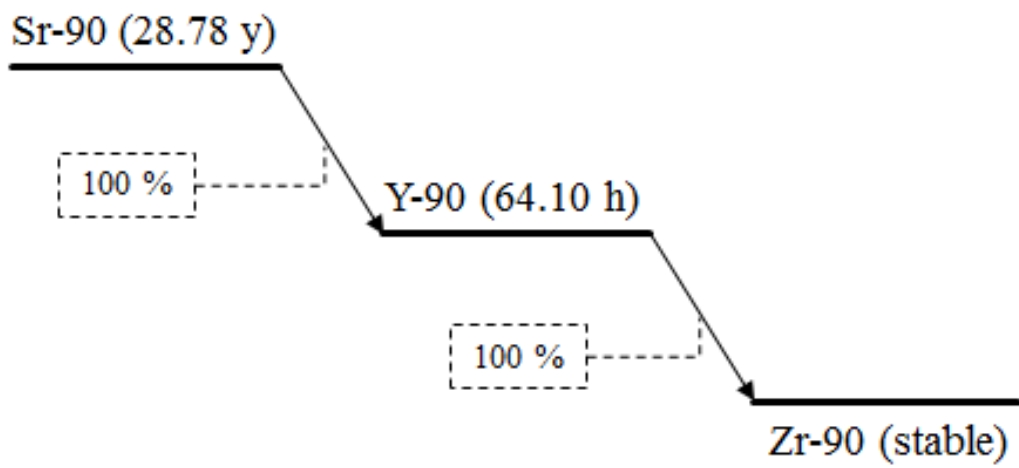


図 2.10 Sr/Y-90 の崩壊形式 [1]

## 2.2.2 Cs-134 と Cs-137 放射能の測定

### Cs-134 と Cs-137 の分離

核種混在試料中の Sr/Y-90 放射能を、式 2.20 で測定される全ベータ線放出率からの差し引きで測定するために、Cs-134 と Cs-137 放射能は個々に測定される必要がある。

ガンマ線を放出する核種は、光電ピークの計数率から放射能を測定できる。この光電ピーク計数率の取得のために高いエネルギー分解能を持つ高純度ゲルマニウム半導体検出器がよく用いられる。

しかし、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置で用いられるガンマ線検出器は、ベータ線検出器との計数統計のバランスを取るために、大立体角での高い計数効率が求められるため、必ずしも高純度ゲルマニウム半導体検出器の利用が最適ではない。それに代わり、立上がり・立下がり時定数が早く、高い発光効率と大きな実効原子番号と密度であり、高い計数効率を持つ NaI(Tl) シンチレーション検出器がよく用いられる。

しかし、NaI(Tl) シンチレーション検出器の典型的な波高分解能は、Cs-137 の 662 keV 光電ピークで半値幅 7 % 程度であり、Cs-134 との混在状態では 605 keV が互いに妨害ピークとなる。これに対して、従来より関数フィッティングによる弁別 [70] など、波高分布上でのフィッティングによる弁別は検討されてきた。

本研究では、Cs-134 と Cs-137 のガンマ線波高分布を、ベータ線検出と同時に計数であるかどうかの条件に基づき分離を行う。これは、図 2.8、図 2.9 の崩壊形式に示したように、Cs-134 はベータ線放出と同時にガンマ線放出が起きるのに対して、Cs-137 は同時にガンマ線放出を行わないためである。

### リストモード測定とオフライン解析

本研究では、ガンマ線波高分布をベータ線波高分布と取得したタイミングを対応付けられたリストモードで測定することにより、Cs-134 と Cs-137 を分離する。

表 2.2 に、リストモード測定による出力結果の例を示す。記録される波高情報は、同じ時間の間隔（通常、数マイクロ秒から 20 マイクロ秒程度）の間に入力された波高値である。出力結果の中でベータ線の波高値が記録されている結果だけを取り出せば、Cs-137 由来のガンマ線波高値は取り除かれ、Cs-134 のみのガンマ線波高分布が得られる。ただし、ベータ線を計数できていない割合で、Cs-134 の波高分布も減少してしまう。

この波高値の処理は、実際の測定の後、オフラインで実行できる。 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置でのベータ線検出器とガンマ線検出器の出力波高値をリストモードで取得すれば、オフライン解析で Cs-134 と Cs-137 を分離測定できる。

なお、この方式に依れば、天然放射性同位元素である K-40 由来の 1461 keV 光電ピークと Cs-134 由来の 1401 keV 光電（サム）ピークも分離できる。図 2.11 に K-40 の主な崩壊形式を示す。K-40 由来の 1461 keV ガンマ線の中で、バックグラウンドに存在する外部からの成分は、ベータ

表 2.2 リストモード測定における出力結果の例

Trigger	Pulse height ( $\beta$ )	Pulse height ( $\gamma$ )	
#1	409	605	(Cs-134)
#2	0	662	(Cs-137)
#3	74	796	(Cs-134)
⋮	⋮	⋮	

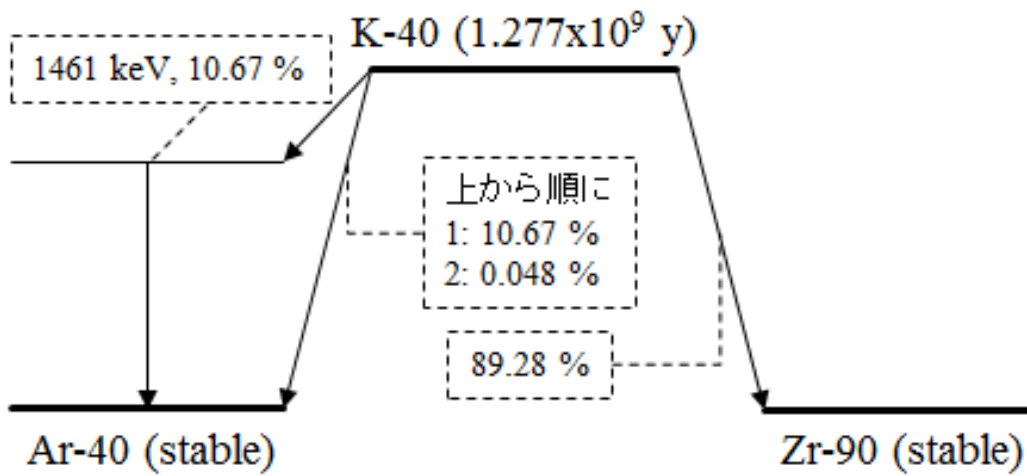


図 2.11 K-40 の崩壊形式 [1]

タ線検出との同時検出条件によりガンマ線波高分布から除かれる。試料中に K-40 が含まれる場合も、1461 keV ガンマ線はベータ線検出との同時検出条件により、ガンマ線波高分布から除かれる。これは、1461 keV ガンマ線は、軌道電子捕獲の後に放出され、軌道電子捕獲に伴い放出されるオージェ電子はエネルギーが極めて低く、ベータ線検出器で計数されないためである。

## 2.3 測定可能な Sr/Y-90 放射能の Cs-134 と Cs-137 放射能に対する 下限混在比

本測定法による測定可能な Sr/Y-90 放射能の下限量は、混在している Cs-134 と Cs-137 放射能の測定不確かさに依存する。

Gilmore [71] による定義の棄却限界（得られる正味計数値が意味を持つレベル）におけるバックグラウンド計数率の変動を、ここでは Cs-134 と Cs-137 の測定不確かさと代用する。

$$L_C = \sqrt{2}k_C\sigma \quad (2.21)$$

$\sigma$  は Cs-134 と Cs-137 の不確かさの合成とし、 $k_C$  はここでは両側信頼度が 95.45% となる 2.00 とする。式 2.21 により計算される棄却限界は、Cs-134 と Cs-137 の合計のベータ線放出率に対して与えられる。

試料中の Cs-134 と Cs-137 の放射能が低い場合、ガンマ線スペクトロメトリの不確かさが大きくなり、同じ測定時間での計数統計による不確かさも増加する。また、天然放射性核種である K-40 が試料に含まれる場合は、K-40 の測定不確かさも、Cs-134、Cs-137 と同じように影響する。

## 2.4 ベータ線検出器の選択

2.1 節で述べたように、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置のベータ線検出器には、比例計数管、液体シンチレーションカウンタ、プラスチックシンチレーション検出器が用いられる。

本研究で検討する測定法には、実施対象が広いことが望まれ、ベータ線検出器には堅牢性が求められる。そのため、VYNS 膜のような薄膜線源を用いることはできない。また、液体シンチレーションカウンタは試料性状によりクエンチ効果が影響する可能性がある。また、使用状況によっては引火性が問題になることも考えられる。そこで、本研究ではプラスチックシンチレーション検出器をベータ線検出器として選択する。

プラスチックシンチレーション検出器の場合の試料は、プラスチックシンチレータの上で調製し、もう 1 枚のプラスチックシンチレータを被せて試料を封じる。この作業には特別な技能を必要としないにも係わらず、自己吸収を最小にしながら  $4\pi$  方向に高い感度を持つ。そして、試料を封じたプラスチックシンチレータは試料容器としての役割を果たす。

このプラスチックシンチレーション検出器を  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置に用いた測定は河田により行われている [60]。

河田による研究では、ベータ線検出器とガンマ線検出器の組み合わせた装置で、ガンマ線計数効率を最大にするために、ベータ線検出器にプラスチックシンチレーション検出器、ガンマ線検出器に  $5'' \times 5''$  に直径 30 mm の孔を開けた井戸型 NaI (Tl) シンチレーション検出器を用いた。プラスチックシンチレータを NaI (Tl) シンチレーション検出器の井戸底部に配置し、井戸開口部にプラ

プラスチックシンチレーション検出器の光電子増倍管を配置した。

この河田により示されたプラスチックシンチレーション検出器を用いた  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置については、測定される放射能の不確かさを最小化するための検討が行われていない。特にプラスチックシンチレーション検出器でのベータ線計数効率を最大にするための検討は行われていない。核種混在試料中の純ベータ核種の測定も試みられてはいない。

## 2.5 ガンマ線検出器の選択

高い計数効率で測定できる無機シンチレーション検出器は  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置のガンマ線検出器に適しており、現在では主に NaI(Tl) シンチレーション検出器が用いられている。しかし、今後は別のシンチレータが用いられる可能性がある。

Knoll による著書 [72] における無機シンチレーション検出器一覧では、NaI(Tl) と同様な CsI(Tl) のようなアルカリハライドの他にも、SrI<sub>2</sub>(Eu) も高い発光量 [73] として掲載されている。その他にも、CeBr<sub>3</sub> [74, 75] や Ce:GAGG [76] も優れた波高分解能が報告されている。LaBr<sub>3</sub>(Ce) も高い発光量が報告されている [77, 78] が、シンチレータ自体に含まれる放射性物質による自己発光がバックグラウンドに影響することが懸念される。このように、シンチレーション検出器は現在も精力的に新規開発が続けられている。

シンチレータの密度、実効原子番号、発光量は、シンチレーション検出器で取得されるガンマ線波高分布を決める重要な情報になる。立上がり・立下がり時間は、ベータ線検出器との同時計数のために十分に早いことが求められる。また、潮解性が低く、堅牢性などの機械的特性が優れていれば、設計の自由度を高められる。さらに、光電変換素子として光電子増倍管に変わり半導体検出器が用いられるようになれば、装置全体を飛躍的に小さくできる。

このような状況であるが、本研究では、従来通り NaI(Tl) シンチレーション検出器を用いることとし、今後のシンチレータ開発の動向により新規材料の採用を検討することとする。

## 2.6 本章のまとめ

本章では、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置のこれまでの研究を述べた。現在でも不確かさ低減に向けた課題に対して研究が続けられており、効率外挿曲線について現在も議論に決着が付いていないことを述べた。現在の日本国内の標準器である  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置の内容を示した。

$4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置でもある大立体角のベータ線検出器とガンマ線検出器を用い、本論文で提案する核種混在試料中の純ベータ核種の放射能測定法について、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 を例として述べた。効率トレーサ法の拡張により絶対測定される全ベータ線放出率から、ガンマ線スペクトロメトリにより測定される  $\beta\text{-}\gamma$  核種のベータ線放出率を差し引くことにより、純ベータ核種の放射能を求められることを示した。

本測定法により測定可能な Sr/Y-90 放射能を Cs-134 と Cs-137 放射能に対する混在比の下限量として評価することについて述べた。

本研究の装置に用いられるベータ線検出器はプラスチックシンチレーション検出器、ガンマ線検出器は NaI(Tl) シンチレーション検出器とした。



## 第3章

# 実証実験

第2章では、 $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置を用いて Cs-134、Cs-137 と混在状態にある Sr/Y-90 の放射能を測定する手法を示した。

本章では、下記について述べ、本測定法で実際に Sr/Y-90 放射能を測定できることを実証し、装置に求められる課題を抽出するために実施した実験について述べる。

- 使用する測定装置
- 測定の実施と結果の考察

### 3.1 測定装置

図 3.1 に測定器の概要を示す。本実験においては、ベータ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。水溶液試料をプラスチックシンチレータ上に直接滴下した後に乾燥させ、もう1枚のプラスチックシンチレータで挟み封じ、この封じられたプラスチックシンチレータ自体を試料容器として扱う(図 3.2)。プラスチックシンチレータによる蛍光を捉える光電子増倍管は2本で対に配置するように工夫した。これにより、1つの蛍光を2つの光電子増倍管で同時に捉えたイベントをベータ線として計数することで、低エネルギーベータ線波高領域でのノイズとの切り分け、光電子増倍管自身の自己ノイズによるバックグラウンド計数への影響を低減することを狙った。これは、特に高い計数効率が求められる  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置のベータ線検出器では有効である。

一方、ガンマ線検出器には NaI(Tl) シンチレーション検出器を用いる。

本実験の前に予備実験を実施したところ、単純に2インチサイズの光電子増倍管へプラスチックシンチレータを接着したベータ線検出器の横にガンマ線検出器を置いただけでは、ガンマ線計数効率が確保されないことが判明した。そのため、ガンマ線検出器の配置に工夫が必要であることがわかった。

図 3.1 に示した測定装置では、対となるプラスチックシンチレータ用光電子増倍管をベータ線検出器に採用しながら、十分なガンマ線計数効率を得られるガンマ線検出器の配置を実現している。

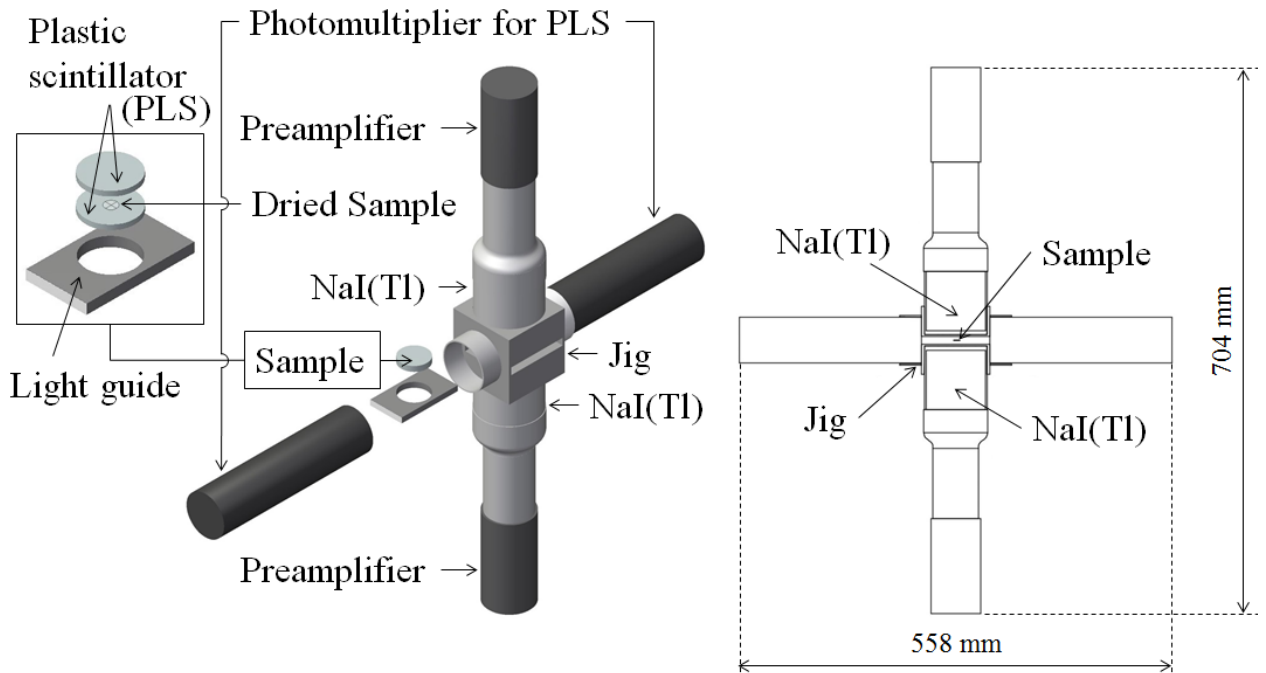


図 3.1 実証実験用測定器の概要図（左）と断面図（右）

### 3.1.1 測定試料の準備

測定用の放射性水溶液試料は、直径 40mm で厚さ 4mm のプラスチックシンチレータ円板 (ELJEN Technology、EJ-212) の中央部分に滴下した。表 3.1 に作製した試料の一覧を示す。Cs-134 と Cs-137 の比は、福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質の比に近くなるようにした。Cs-134、Cs-137 の合算値と Sr/Y-90 の比はほぼ 1:1 である。U-235 の核分裂生成物の比で Cs-137 と Sr-90 の比はほぼ 1:1 であることを参考にした。

ここで使用された放射性溶液の放射能濃度は、Cs-134 ( $1.575 \times 10^2 \text{ kBq g}^{-1}$ 、相対拡張不確かさ  $u=0.9\%$ 、包含係数  $k=2$ ) と Cs-137 ( $4.198 \times 10^2 \text{ kBq g}^{-1}$ 、相対拡張不確かさ  $u=1.2\%$ 、包含係数  $k=2$ ) は加圧型電離箱 (Centronic、IG11N20)、Sr/Y-90 ( $4.054 \times 10^2 \text{ kBq g}^{-1}$ 、相対拡張不確かさ  $u=1.4\%$ 、包含係数  $k=2$ ) は液体シンチレーションカウンター (PerkinElmer、Tri-Carb liquid scintillation counter 3110TR) で測定された。いずれの測定装置も産総研の特定標準器群の中の一つである。

この原液を希釈し、滴下する作業は BIPM Monographie-1 [79] にある工程に沿って実施した。原液は同じ濃度のキャリア溶液 (Cs-134 と Cs-137 は 0.1N (規定度) -HCl 中 0.05 mg/g の CsCl 溶液、Sr/Y-90 は 0.1N-HCl 中 0.05 mg/g の SrCl<sub>2</sub> と 0.05 mg/g の YCl<sub>3</sub> 溶液) により 100 倍程度に希釈した。滴下する溶液の質量は、蒸散防止に配慮し先が細く加工されたポリエチレン製ピクノメータ中の溶液質量の滴下前と後での質量変化をマスコンパレータ (Mettler Toledo、AT21)

表 3.1 実証実験用に用意された試料の一覧

核種	Sample(a)		Sample(b)		Sample(c)	
	(Bq)	(mg)	(Bq)	(mg)	(Bq)	(mg)
Cs-134	77.1	36.4	23.8	11.2	16.5	7.82
Cs-137	...	...	31.0	12.2	27.0	10.6
Sr/Y-90	...	...	...	...	52.0	11.8

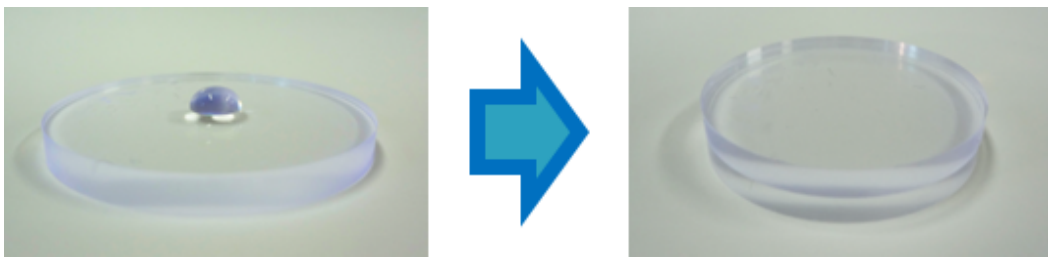


図 3.2 プラスチックシンチレータ上で封じられた試料（試料容器を兼ねる）

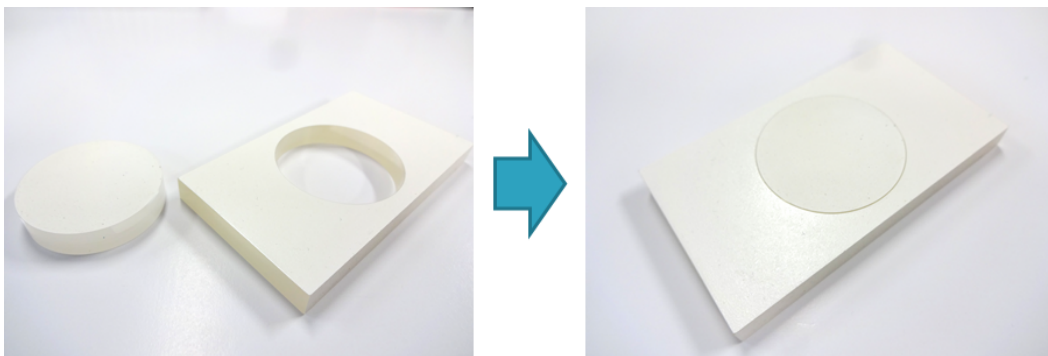


図 3.3 反射剤を塗布されライトガイドに挿入されたプラスチックシンチレータ試料

で測定した。河田による試料調製法の検討 [69] を参考にし、滴下した溶液には、8000 倍希釈の播種剤（Ludox、SM30）を添加した。

滴下作業の後、半日以上乾燥雰囲気でのシケータ内で放置して完全に乾かした後、もう 1 枚同じサイズのプラスチックシンチレータを上からゆっくりと被せることにより、試料を密封した。上下のプラスチックシンチレータは、試料が滴下された中心部分を避けたエッジに近い部分に光学グリス（GE 東芝シリコーン、Oken6262A）を塗布した。このプラスチックシンチレータ試料は、幅 50 mm、高さ 8 mm、奥行 88 mm の直方体形状のライトガイドの中心部分に直径  $40 \pm 0.1$  mm で開けられた貫通孔部に、接続部分に光学グリスを塗布した状態で挿入した。このプラスチックシンチレータ試料とライトガイドの光電子増倍管への導光部を除く外周全体は、白色反射材（ELJEN Technology、EJ-510）を塗布した（図 3.3）。

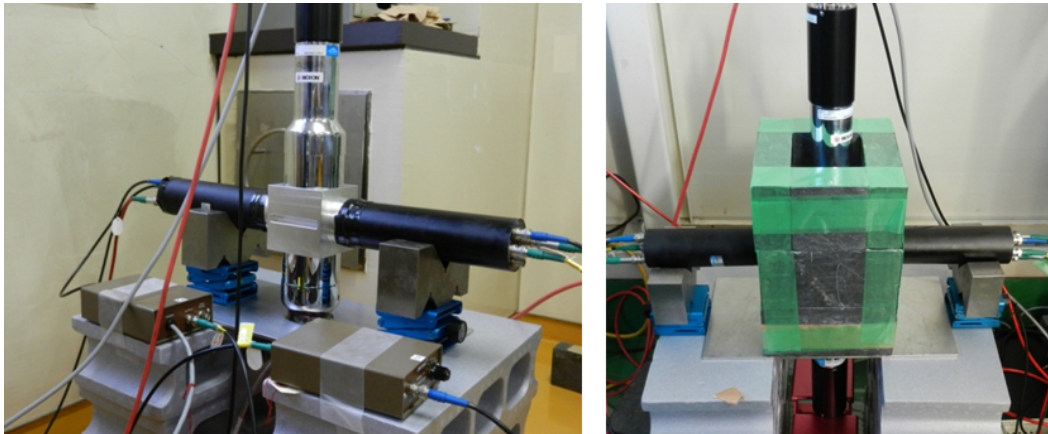


図 3.4 実証実験用測定器の写真（左：装置全体、右：遮蔽用鉛ブロックを積んだ状態）

### 3.1.2 測定装置の組上げ

図 3.1 に示したように、測定器はプラスチックシンチレーション検出器と NaI(Tl) シンチレーション検出器が互いに直交する配置で組上げた。図 3.4 に実際の測定器の写真を示す。

測定装置全体は、アルミ製の治具により固定した。プラスチックシンチレータはアルミ治具に開けられた貫通孔内部にセットした。プラスチックシンチレータからの導光用のライトガイドの両端は、それぞれ光学グリスを塗布して光電子増倍管（浜松ホトニクス、H3177-50）へ接続した。光電子増倍管をアルミ治具へ固定する挿入口部分に黒色テープ（住友スリーエム、Scotch®Super 33+TM）を巻き、外光が光電子増倍管に入ることを防いだ。

2本の NaI(Tl) シンチレーション検出器（Saint-Gobain、3M3/3）は直径 3 インチ、厚さ 3 インチの円柱形のものを用了。NaI(Tl) シンチレーション検出器をベータ線用光電子増倍管に対して直角に立てて固定するアルミ治具には、検出器をできるだけ試料に近づけられるように、1 mm 厚の底部だけを残して差し込み用の孔を掘った。試料から NaI(Tl) シンチレータ結晶の表面までの最短距離は 7 mm で、その間の構造材はアルミ治具に加えて検出器ハウジング材と反射材である。NaI(Tl) シンチレーション検出器は 14 ピンソケットタイプのプリアンプ回路（クリアパルス、5626）に接続した。

この測定器全体はケーブルコネクタを除いて、高さ 704 mm、横幅 558 mm となった。検出器は、実験室床の上に置かれた支持体により支えた。NaI(Tl) シンチレーション検出器の水平方向には厚さ 50 mm の鉛ブロックを置き、外部からの放射線を遮へいした。

### 3.1.3 データ取得のためのアナログ電気信号測定回路

図 3.5 に、本実験のデータ取得のために用いるアナログ電気信号測定回路のブロック図を示す。NIM (Nuclear Instrument Modules) 規格と CAMAC (Computer Automated Measurement and Control) 規格のモジュール (表 3.2) で構成されたこの測定回路は、検出器からの信号波高をリストモードで取得するように設計した。

ベータ線検出器には -2.5 kV、ガンマ線検出器には +800 V を印加した。

検出器からの信号は、前置増幅器と波形整形増幅器で加工されピークホールドタイプ ADC で処理した。

検出器からの信号はデータ取得トリガ信号としても利用した。ADC へのゲート信号は図中「G.G.1500(a)」のゲートジェネレータから入力される。ADC での変換時間とデータ転送時間中の入力を遮断するために、「Disc305」には Veto 信号を入力した。「CC/NET」へ「G.G.1500(b)」からトリガ信号が入力されると、ADC のデータが PC へ転送される。「G.G.1500(c)」からの出力と「CC/NET」からの Busy 出力により「FI/FO102(b)」で Veto 信号が作られる。「Coin103」は 2 つのベータ線検出器の両方から入力があった場合にのみゲートを開けるための回路である。「FI/FO102(a)」では、ベータ線検出器と 2 つのガンマ線検出器からの入力のいずれかがあった場合にゲートを ON にするための回路である。

「TAC2043」では 2 つのベータ線検出器からのスレッシュホールドタイミングの時間差を波高として出力する。「TAC2043」からの波高ピーク成分だけを取り出せば、2 つのベータ線検出器の両方から入力があった場合のみのベータ線波高分布だけを取り出せる。

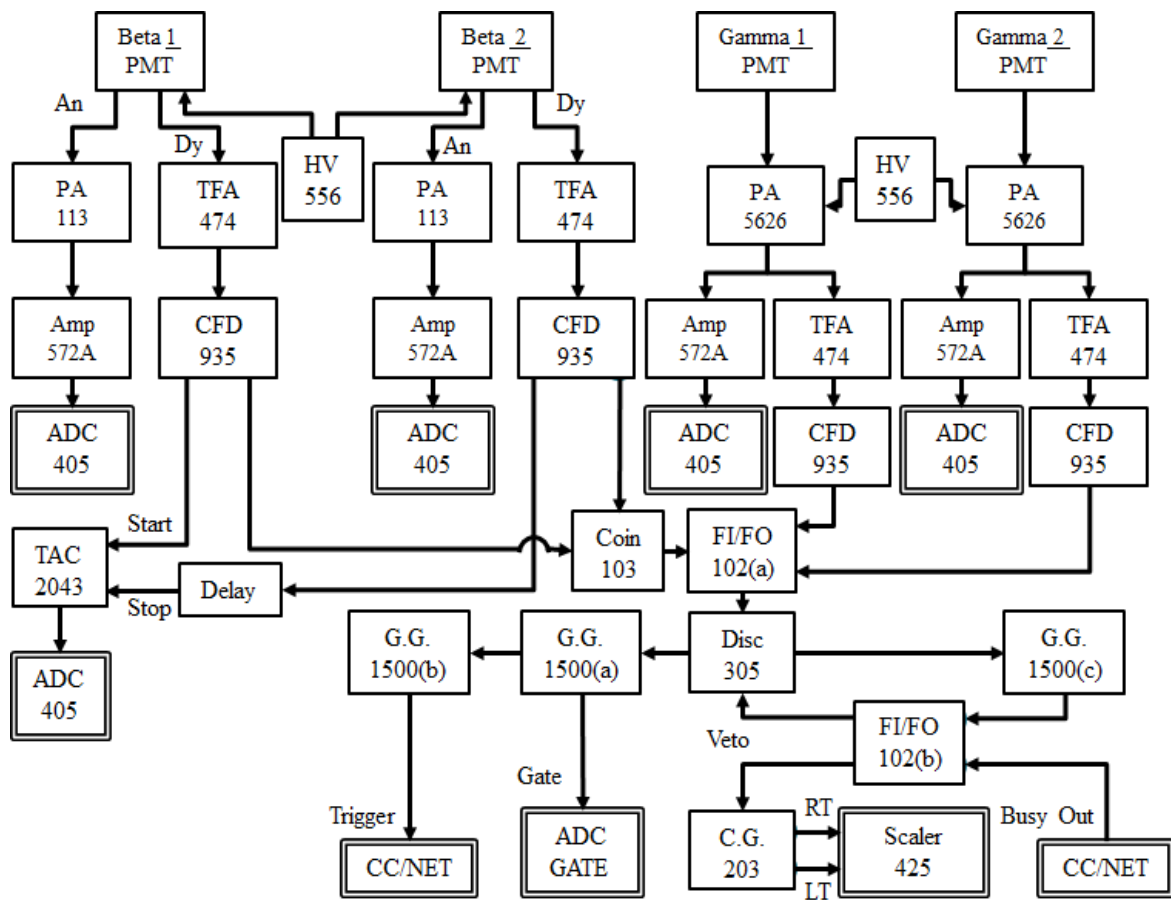


図 3.5 実証実験で用いたアナログ電気信号測定回路のブロック図

表 3.2 使用した測定回路モジュール一覧

表記	名称	メーカー	型番
PA113	前置増幅器	ORTEC	113
Amp572A	波形整形増幅器	ORTEC	572A
TFA474	タイミング用整形増幅器	ORTEC	474
CFD935	4ch コンスタントフラクシオンディスクリミネータ	ORTEC	935
TAC2043	時間-波高変換器	Canberra	2043
Coin103	ロジック AND (コインシデンス) 回路	Technoland	N-TM103
FI/FO102	ロジック OR 回路	Technoland	N-TM102
Disc203	ディスクリミネータ	Technoland	N-TM305
CG203	クロックジェネレータ	Technoland	N-TM203
G.G.1500	ゲートジェネレータ	Kaizu Works	KN1500
ADC405	アナログ-デジタル変換器	Technoland	C-TM405
Scaler425	ビジュアル計数器	Technoland	N-OR425
CC/NET	ネットワーククレートコントローラ	Toyo	-

### 3.1.4 データの解析

図 3.6 に、測定試料のデータ分析フローのブロック図を示す。Cs-134、Cs-137 と混在状態にある Sr/Y-90 の放射能は、全ベータ線放出率 ( $A_{Entire}$ ) から Cs-134( $A_{134}$ ) と Cs-137( $A_{137}$ ) の寄与分を差し引くことにより測定される。

$$A_{Sr} = A_{Entire} - A_{134} - A_{137} \left[ 1 + p_1^{137} \times \left( \frac{\varepsilon_{\beta\gamma}^{137} + \alpha_{137}\varepsilon_{ce}^{137}}{1 + \alpha_{137}} \right) \right] \quad (3.1)$$

式 3.1 の  $A_{134}$  と  $A_{137}$  は NaI(Tl) シンチレーション検出器によるガンマ線スペクトロメトリにより求められる。

Cs-134 由来の 796 keV 光電ピークの計数効率は、Sample(a) (Cs-134 のみ) に対する  $4\pi\beta-\gamma$  同時計数法による絶対測定から与えられる。Cs-137 由来の 662 keV 光電ピークの計数効率は、Sample(b) (Cs-134、Cs-137 混合) に対する測定で得られる 662 keV 光電ピークと Cs-134 由来の 605 keV 光電ピークの合計から、605 keV 光電ピーク分を差し引いて求める。ガンマ線波高分布における Cs-134 と Cs-137 の分布は、ベータ線崩壊後に即発して起きる Cs-134 のガンマ崩壊成分だけを取り出すことにより分離される。

$A_{Entire}$  は Sample(c) (Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 混合) に対する効率トレーサ法により求められる。これから上記の効率を用いて求めた  $A_{134}$  と  $A_{137}$  を差し引き、 $A_{Sr}$  を導出する。

取得されたデータは欧州原子核研究機構 (CERN) より公開提供されている PAW (Physics Analysis Workstation) [80] を使って解析した。取得されたリストデータに条件をかけて計数を出力した。

図 3.7 に Sample(a) (Cs-134 のみ) の測定におけるベータ線波高 (y 軸) とガンマ線波高 (x 軸) の 2 次元分布を示す。ここでのベータ線波高は 2 つのベータ線検出器での波高を足し合わせて平均化し、ガンマ線波高は 2 つのガンマ線検出器での波高を単純に足し合わせている。特にガンマ線波高の光電ピーク領域 (605 keV ピークは 4500ch 付近、796 keV ピークは 6000ch 付近) でベータ線波高が連続分布で同時計数されていることが確認できた。

図 3.8 には 2 つのガンマ線検出器の波高 2 次元分布を示す。双方の 605 keV ピークと 796 keV ピークが重なる領域で集中して計数されている。これは 2 つの NaI(Tl) シンチレーション検出器でそれぞれに 605 keV 光電ピークと 796 keV 光電ピークが計数されたことを意味しており、これが加算されるとサムコインシデンス効果が現れる。

図 3.9 にベータ線波高 (y 軸) と時間波高変換器 (x 軸) の波高 2 次元分布を示す。2 つのベータ線検出器で同時に計数される場合のスレッシュホールドタイミングは、10ns 以下の範囲内に収められていることが確認できた。この時間波高変換器の波高ピーク部分だけをベータ線計数率として取り出した。

これにより、図 3.10 のように低波高領域でシグナル成分をノイズ成分から切り分けられた。図 3.10 のベータ線波高分布は、低波高領域の様子を鮮明にするために、他の図よりもゲインを 10 倍



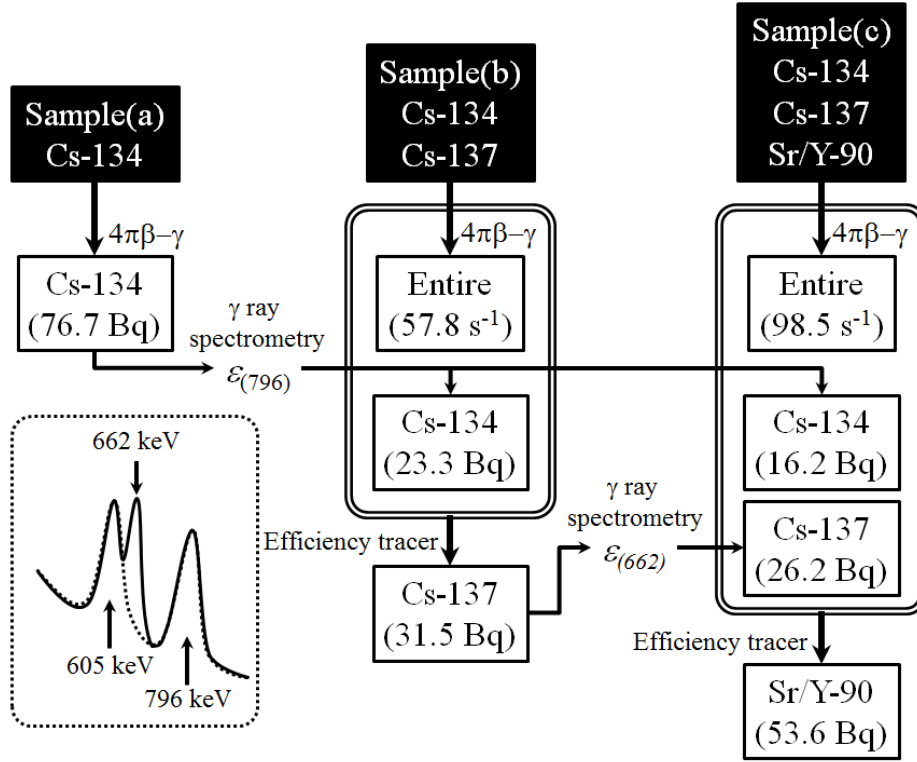


図 3.6 実証実験におけるデータ分析フロー（括弧内の数字は測定結果を表す。）

にした表示である。

本実験では、効率外挿法のためにベータ線波高しきい値を変化させる方法を選択した。

効率外挿のための見かけ上のベータ線計数効率  $\varepsilon_{\beta}^{App}$  と放射能（全ベータ線放出率） $A^{App}$  をそれぞれ式 3.2 と式 3.3 により求め、しきい値を変化させたとき  $\varepsilon_{\beta}^{App}$  と  $A^{App}$  の変化をプロットし、 $\varepsilon_{\beta}^{App} \rightarrow 1$  の時の  $A^{App} \rightarrow A$ （真の放射能）を求める効率外挿法を適用した。この解析により、ガンマ線正味計数率  $N_{\gamma}$  と、スレッシュホールドを変えながらベータ線正味計数率  $N_{\beta}$  とベータ線-ガンマ線同時正味計数率  $N_{coin}$  を取得した。この解析作業はリストモードで取得された波高情報をオフラインで処理した。

それぞれの計数率を同時計数する分解時間  $\tau_r$ （20  $\mu$ s、ゲート開放時間）と不感時間  $\tau_d$ （240  $\mu$ s、Veto On 時間）で補正した。この式は、ベータ線、ガンマ線のみマヒ型モデル計数と ICRU Report 52 [43] にある Campion [29] の同時計数補正式に基づいている。

$$\varepsilon_{\beta}^{App} = \frac{\rho_{\beta\gamma}}{\rho_{\gamma}} = \frac{(1 - N_{\gamma}\tau_d)}{N_{\gamma}} \frac{(N_{coin} - 2\tau_r N_{\beta}N_{\gamma})}{(1 - N_{\beta}\tau_d - N_{\gamma}\tau_d)(1 - N_{\beta}\tau_d - N_{\gamma}\tau_d + N_{coin}\tau_d)} \quad (3.2)$$

$$A^{App} = \frac{\rho_{\beta\rho_{\gamma}}}{\rho_{\beta\gamma}} = \frac{N_{\beta}}{(1 - N_{\beta}\tau_d)} \frac{N_{\gamma}}{(1 - N_{\gamma}\tau_d)} \frac{(1 - N_{\beta}\tau_d - N_{\gamma}\tau_d)(1 - N_{\beta}\tau_d - N_{\gamma}\tau_d + N_{coin}\tau_d)}{(N_{coin} - 2\tau_r N_{\beta}N_{\gamma})} \quad (3.3)$$

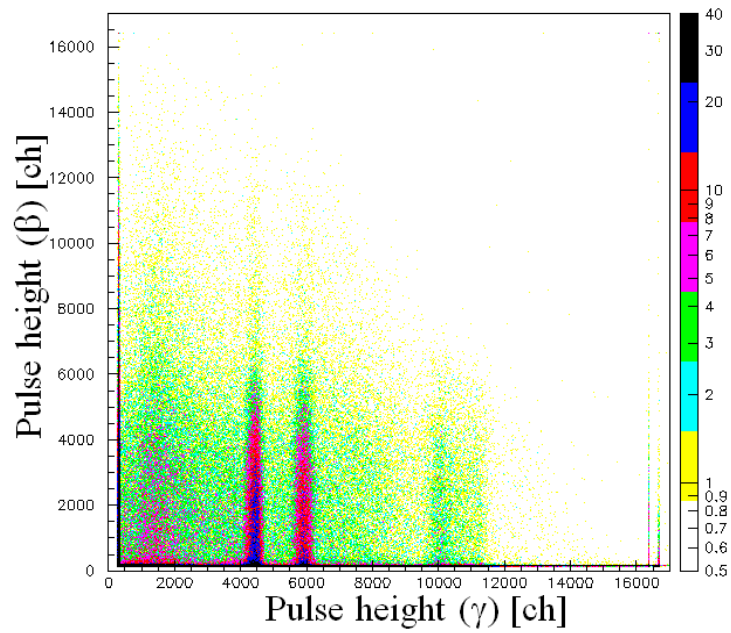


図 3.7 Cs-134 試料の測定で得られたベータ線 (y 軸) -ガンマ線 (x 軸) 波高 2 次元分布

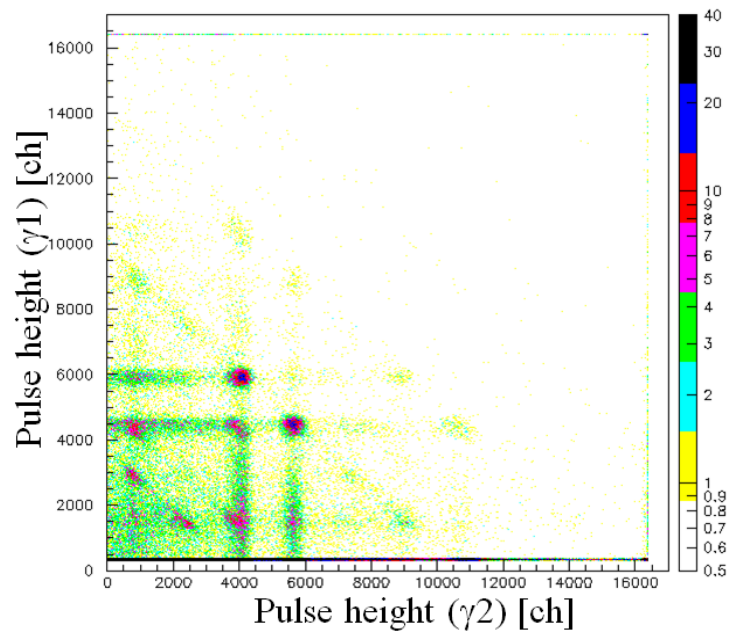


図 3.8 Cs-134 試料の測定で得られた 2 つのガンマ線検出器の波高 2 次元分布

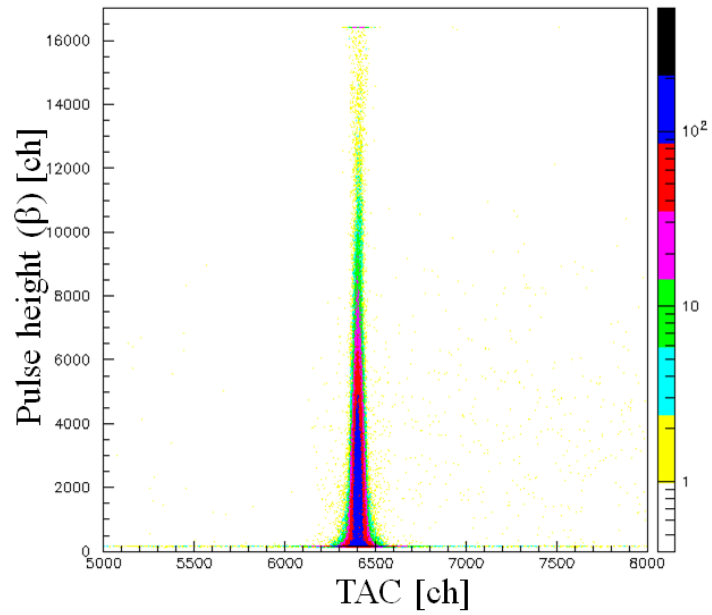


図 3.9 Cs-134 試料の測定で得られたベータ線 (y 軸)-時間波高 (x 軸)2 次元分布 (横軸が、2 つのベータ線検出器からの信号の時間差 (片側遅延) を表し、縦軸は波高を表す。)

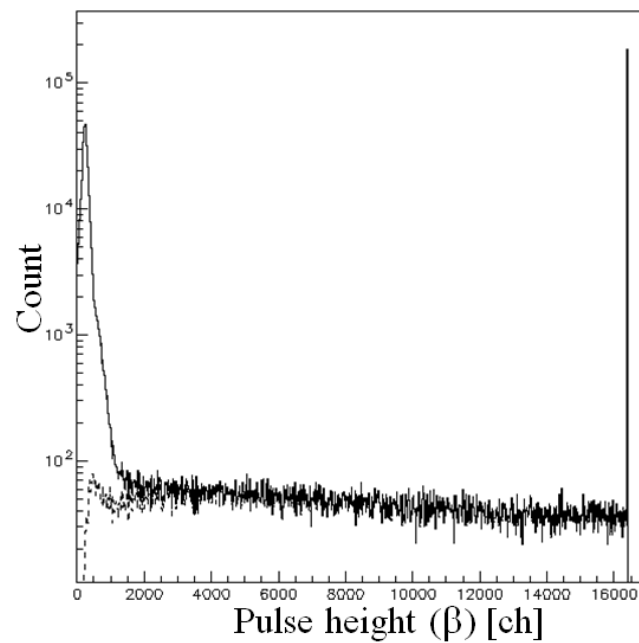


図 3.10 ベータ線低波高領域のシグナル成分とノイズ成分の分離 (実線: 全波高分布、点線: シグナル成分のみ)

## 3.2 測定結果

### 3.2.1 ガンマ線波高分布

図 3.11 に Cs-134 と Cs-137 の混在試料の測定により得られたガンマ線波高分布を示す。入力されたガンマ線波高分布 (Raw  $\gamma$  ray distribution) は白色部で示している。一方、赤斜線部分の波高分布は、入力されたガンマ線波高分布の中でベータ線と同時に計数したという条件を掛けて取り出したイベントのガンマ線波高分布 (Coincident with  $\beta$  ray) である。

生の波高分布では、Cs-134 由来の 605 keV 光電ピークと Cs-137 由来の 662 keV 光電ピークが重なり合っている。Cs-134 由来の 596 keV や 802 keV の光電ピークは主要な放出比の光電ピーク (605 keV、796 keV) 内に含まれている。ベータ線検出と同時に計数した成分だけを取り出した分布では、662 keV の光電ピークは消えている。これは、662 keV のガンマ線放出は比較的長い半減期 (2.5 分) の励起状態にある Ba-137m のガンマ崩壊に由来し、Cs-137 のベータ崩壊と非同期であるからである。

図 3.11 のベータ線検出同時波高分布に見える Cs-134 光電サムピーク領域は、生の波高分布よりも低エネルギー側へシフトしているように見える。これは、生の波高分布に含まれる K-40 由来の 1461 keV 光電ピークが、ベータ線検出同時波高分布では除かれているからである。

図 3.6 に示したように、後述のガンマ線スペクトロメトリによる Cs-134 と Cs-137 の測定では、ガンマ線波高分布の 796 keV 光電ピークの計数率から Cs-134 放射能を求め、662 keV 光電ピークの計数率から Cs-137 放射能を求めた。662 keV 光電ピークの計数率は、重なっている Cs-134 の 605 keV 光電ピークの計数率を差し引いて求めた。Cs-134 の 605 keV 光電ピークの計数率は、796 keV 光電ピークの計数率から求めた。この際、796 keV 光電ピークのベータ線同時計数条件の有無による計数率の比により、ベータ線同時計数条件の 605 keV 光電ピーク計数率を条件無しの計数率に換算した。

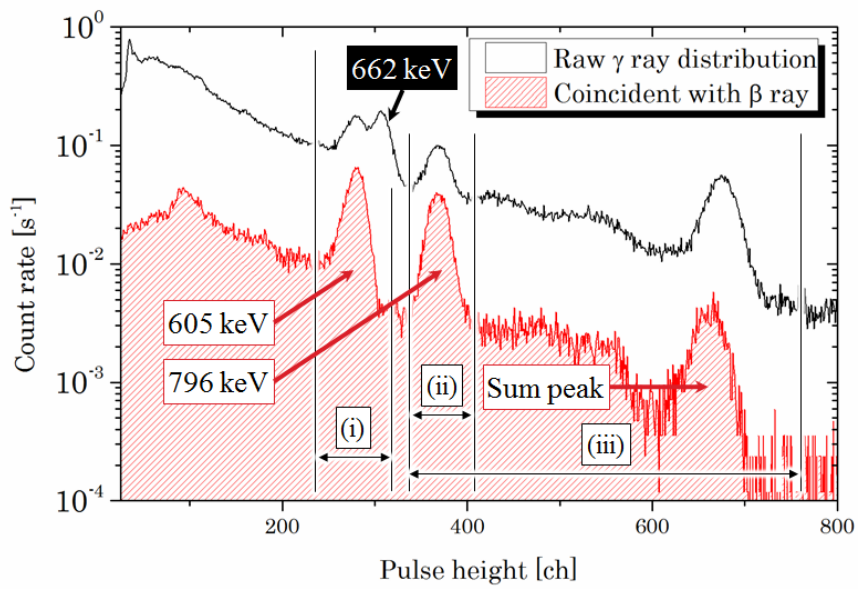


図 3.11 Cs-134+Cs-137 試料のガンマ線波高分布 (白色部: 生の波高分布、赤色斜線部: ベータ線検出と同時計数成分)

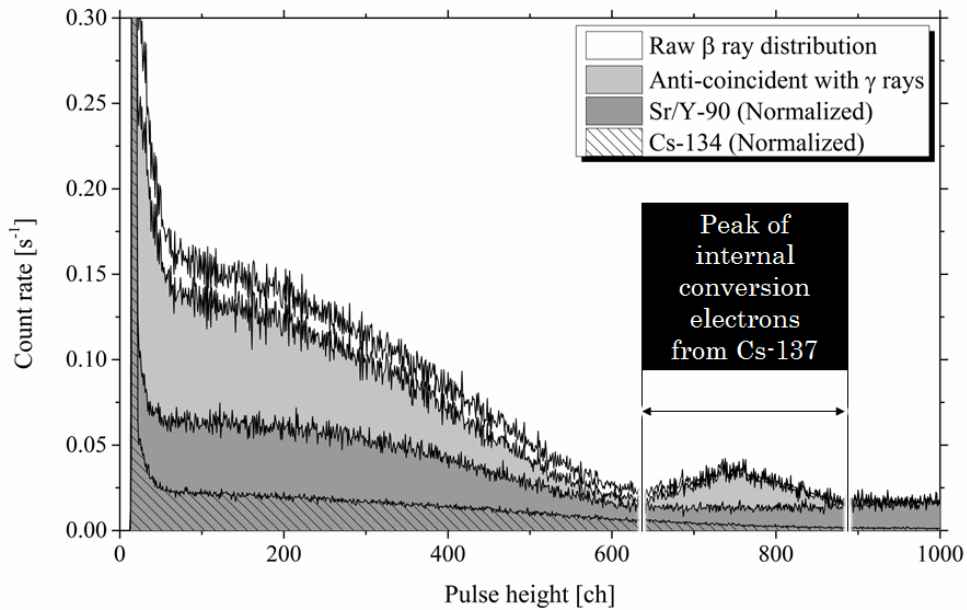


図 3.12 Cs-134+Cs-137+Sr/Y-90 試料のベータ線波高分布（白色部：生の波高分布、薄灰色部：ガンマ線検出と非同時成分、濃灰色部：規格化された Sr/Y-90 単体試料の波高分布、斜線部：規格化された Cs-134 単体試料の波高分布）

### 3.2.2 ベータ線波高分布

図 3.12 に Cs-134 と Cs-137 と Sr/Y-90 の混在試料の測定により得られたベータ線波高分布を示す。放出されるベータ線エネルギー分布に沿って連続的な波高分布であった。その中で、Cs-137 由来の内部転換電子ピーク（630 keV 程度）が観測された。白色部は生のベータ線波高分布を示し、薄灰色部はガンマ線との同時計数ではないという条件をかけて取り出したイベントのベータ線波高分布である。Cs-134 と Sr/Y-90 の単体試料を測定して得た波高分布を、それぞれ含まれている放射能に合わせて規格化し斜線部と濃灰色部で示している。

白色部と薄灰色部の差分が斜線部分とほぼ重なり、イベント抽出条件で除かれた成分であることが確認できる。内部転換電子ピークよりも高い発光領域側の成分は、630 keV 以上の高いエネルギーのベータ線に起因する。試料に含まれる核種の中では、Y-90（最大ベータ線エネルギー 2.3 MeV）のみがこの 630 keV 以上領域の波高成分の由来であることが、薄灰色部と濃灰色部の重なりから確認できる。ベータ線波高分布が、検出されるベータ線のエネルギー情報を含んでいることが示された。

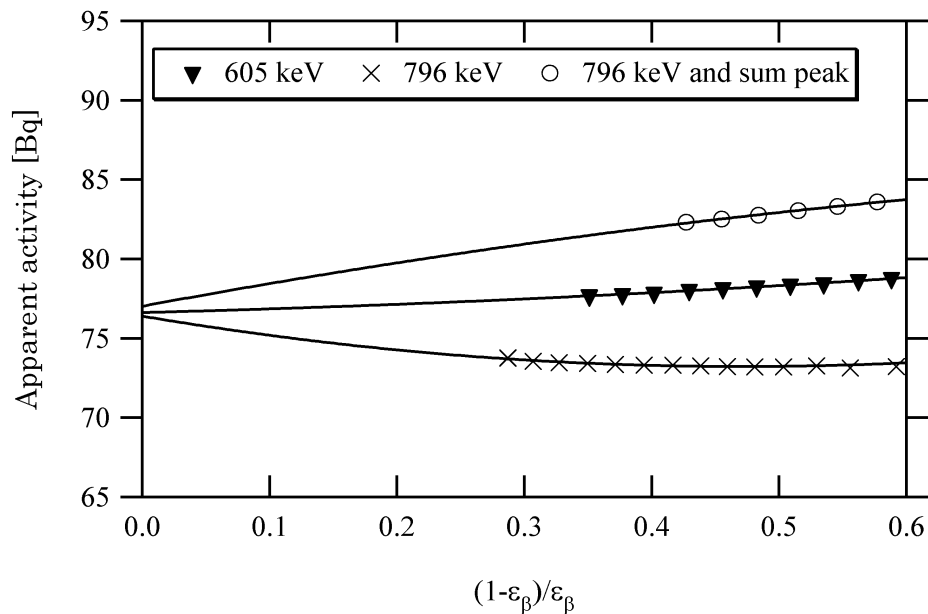


図 3.13 Sample(a) 中の Cs-134 放射能評価のための外挿曲線

### 3.2.3 Cs-134 のみ試料の放射能測定

Sample(a) 測定を、ライブタイム 3883 秒かけて実行した。図 3.13 に見かけ上の放射能とベータ線計数効率の関数 (P-Value 関数と呼ぶ) のプロットを示す。見かけ上の全ベータ線放出率とベータ線計数効率は、式 3.3 と式 3.2 で求められる数値である。プロットの間隔は、図 3.10 のベータ線波高分布の 1000 ch から 1000 ch きざみでしきいチャンネルを上げ、計数効率を操作した。ガンマ線計数領域は図 3.11 の (i)、(ii)、(iii) に対応する 605 keV 光電ピーク、796 keV 光電ピーク、796 keV 光電ピークからサムピークまでの 3 種類で設定した。

この図で、P-Value 関数を横軸に取り、計数効率が 1 となる y 軸の切片となる点を真値として定める。二次多項式近似の外挿により Cs-134 放射能を決定した。効率外挿法への多項式の適用は過去の経験的知見と解析的考察に基づく [55, 56]。複数のガンマ線計数領域を設定し、それぞれの外挿曲線が同じ点に収束することを確認した。また、これらの結果は後述の外挿による不確かさの算出のために利用した。

試料に含まれる放射能は、3 曲線の外挿の相加平均により 76.7 Bq と評価された。この値は、既知量より 0.5 % 小さいが、外挿による不確かさ 1.0 % ( $k=1$ ) の範囲内で一致している。この数値から、NaI(Tl) シンチレーション検出器の 796 keV 光電ピークの計数効率は 11.6 % と求められた。この効率により混在試料中の Cs-134 の放射能 (ベータ線放出率) をガンマ線スペクトロメトリを用いて定量する。

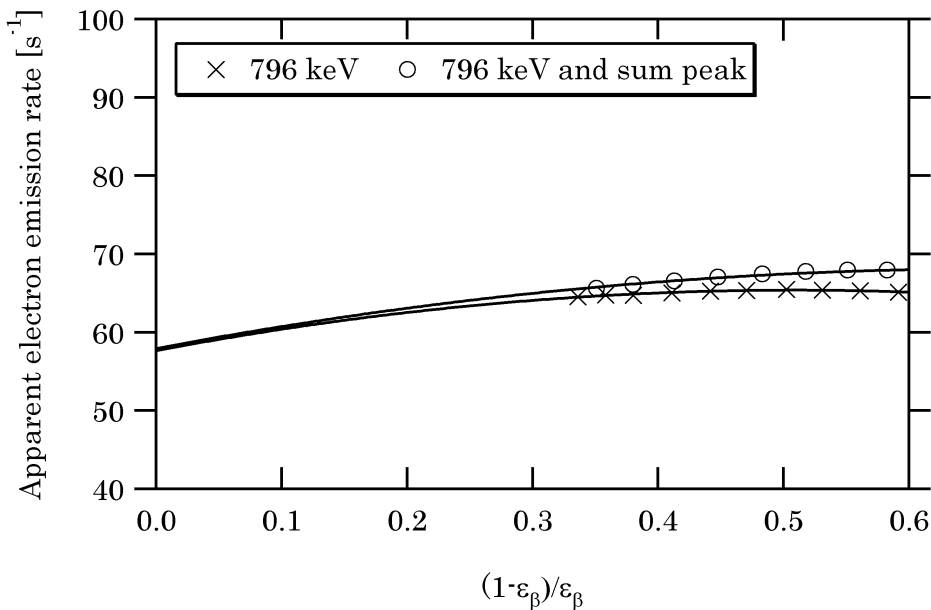


図 3.14 Sample(b) 中の Cs-134 と Cs-137 からの全ベータ線放出率評価のための外挿曲線

### 3.2.4 Cs-134+Cs-137 試料の放射能測定

Sample(b) 測定を、ライブタイム 3453 秒かけて実行した。図 3.14 に Sample(b) からの見かけ上の全ベータ線放出率とベータ線計数効率関数のプロットを示す。図 3.11 に示したように、Cs-134 と Cs-137 が混在した試料では、605 keV 光電ピークと 662 keV 光電ピークは重なる。2.2.2 節で示した式 2.17 で、662 keV 光電ピークの計数率は除いて考えたことに沿って、605 keV 光電ピークを計数領域とした外挿曲線は除いた。外挿曲線は二次多項式によるフィッティングにより求められた。その結果、効率トレーサ法により、Sample(b) の全ベータ線放出率を  $57.8 \text{ s}^{-1}$  と評価した。この数値は、既知量からは 0.2 % 大きい、外挿の不確かさ 2.1 % ( $k=1$ ) 以内で一致した。

Sample(b) の測定におけるガンマ線 796 keV 光電ピークの計数率は  $2.71 \text{ s}^{-1}$  であった。ここから、Cs-134 放射能は 23.3 Bq と評価した。これは、既知量よりも 1.5 % 小さかった。全ベータ線放出率から Cs-134 由来のベータ線放出率を差し引くことにより、Cs-137 の全ベータ線放出率は内部転換電子を含めて  $34.5 \text{ s}^{-1}$  (31.5 Bq) と評価した。これは、既知量よりも 1.9 % 大きい。この Cs-137 放射能より、NaI(Tl) シンチレーション検出器の 662 keV 光電ピークの計数効率は 31.2 % と求められた。



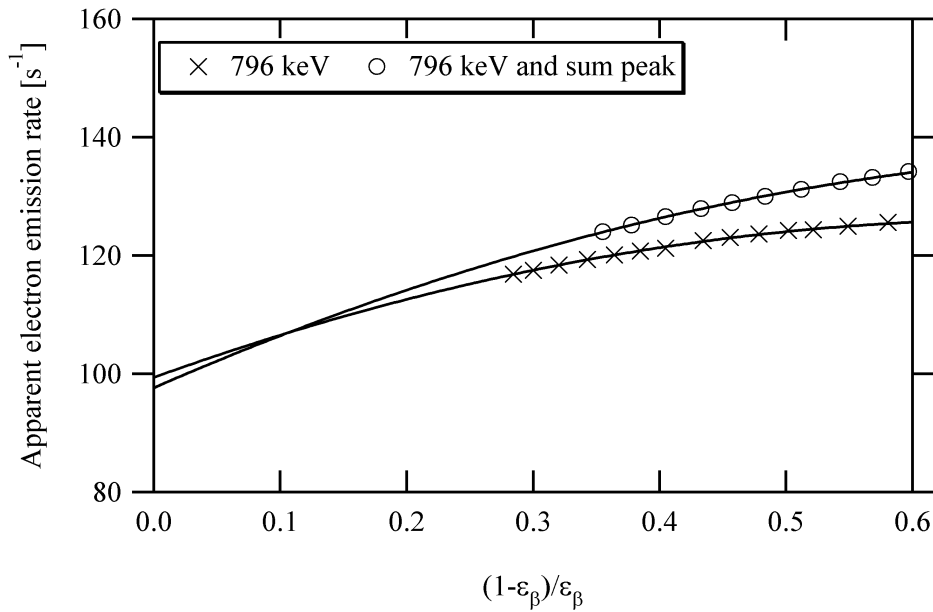


図 3.15 Sample(c) 中の Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 からの全ベータ線放出率評価のための外挿曲線

### 3.2.5 Cs-134+Cs-137+Sr/Y-90 試料の放射能測定

Sample(c) 測定を、ライブタイム 4379 秒かけて実行した。図 3.15 に Sample(c) からの見かけ上の全ベータ線放出率とベータ線計数効率関数のプロットを示す。外挿曲線は二次多項式によるフィッティングにより求められた。その結果、効率トレーサ法により、Sample(b) の全ベータ線放出率を  $98.5 \text{ s}^{-1}$  と評価した。この数値は、既知量からは 0.5 % 大きく、外挿の不確かさ 1.3 % ( $k=1$ ) 以内で一致した。

Sample(a)、Sample(b) の測定により計数効率を与えられたガンマ線スペクトロメトリにより、Cs-134 と Cs-137 放射能は、それぞれ 16.2 Bq と 26.2 Bq と評価した。いずれも、既知量よりも 1.8 %、2.9 % 小さい。この Cs-134 と Cs-137 によるベータ線放出率を全ベータ線放出率から差し引くことにより、Sr/Y-90 放射能は 53.6 Bq と評価した。これは既知量よりも 3.1 % 大きい。

### 3.3 考察

#### 3.3.1 Cs-134 と Cs-137 と混在した試料中の Sr/Y-90 放射能測定の不確かさ

表 3.3 に Cs-134 と Cs-137 が混在した試料中の Sr/Y-90 放射能測定の不確かさの一覧を示す。式 3.1 の要素ごとに分けて示した。全ベータ線放出率、Cs-134、Cs-137 に対する不確かさがそれぞれ 2.7 %、1.4 %、2.6 % であり、この合成は計数率で  $2.78 \text{ s}^{-1}$ 、Sr/Y-90 の放射能(全ベータ線放出率)に対する相対値で 5.2 % ( $k=1$ ) であった。測定不確かさ全体の中で、支配的要因となっているのが計数統計、 $4\pi\beta - \gamma$  同時計数法における効率外挿、バックグラウンド、ガンマ線スペクトロメトリである。

効率外挿による不確かさは、残差から求められる近似曲線の分散と複数の効率曲線間での違いを考慮した。全ベータ線放出率、Cs-134、Cs-137 の効率外挿による不確かさは、Cs-134+Cs-137+Sr/Y-90 混合試料、Cs-134 のみ試料、Cs-134+Cs-137 混合試料の測定での外挿による不確かさを順に計上した。ガンマ線スペクトロメトリの不確かさでは、ガンマ線波高分布の計数領域の揺らぎを考慮した。バックグラウンドは、本測定の前と後でのバックグラウンド計数率の変化を考慮した。試料設置再現性の不確かさは、同じ試料を同様の手順で測定を繰り返して評価した。これは、主にプラスチックシンチレータから光電子増倍管までの光学グリスとライトガイドの光学接続の再現性を評価している。試料位置による不確かさは、試料間での位置の違いによるガンマ線検出器の計数効率の違いをモンテカルロシミュレーションを使って評価した。分解時間と不感時間はデータ取得回路の設定の揺らぎを考慮した。

2.2.1 節の式 2.20 で表したように、プラスチックシンチレーション検出器での全ベータ線計数率に、Cs-137 由来の 662 keV ガンマ線による成分が含まれる。これは、Cs-137 放射能の決定に影響する。しかし、Sr/Y-90 放射能の決定においては、この成分を含めて差し引きにおいて打ち消されるため、影響しない。

以上のように、Sr/Y-90 放射能に対しては、 $A_{Entire}$ 、 $A_{134}$ 、 $A_{137}$  の不確かさが全て寄与する。個々のベータ線放出率の不確かさによる伝搬を合計し、Sr/Y-90 放射能の不確かさを 5.2 % ( $k=1$ ) と評価した。この不確かさは、Cs-134、Cs-137 に対する Sr/Y-90 の混在比により変化する。また、Cs-134 と Cs-137 の放射能が小さくなるとガンマ線スペクトロメトリとバックグラウンドによる不確かさが大きくなる。計数統計は、試料に含まれる放射能と測定時間に依存する。

表 3.3 実証実験において測定された Sr/Y-90 放射能に対する不確かさ評価の一覧

No.	Component	$A_{Sr}$	$A_{Entire}$		$A_{134}$		$A_{137}$	
			$u$ % ( $k=1$ )		$u$ % ( $k=1$ )		$u$ % ( $k=1$ )	
1	計数統計		1.39		0.79		0.88	
2	効率外挿		1.34		1.02		2.13	
3	ガンマ線スペクトロメトリ		-		0.42		1.10	
4	バックグラウンド		1.51		-		-	
5	試料設置再現性		0.90	2.33	-	1.10	-	2.40
6	試料位置		0.57		-		-	
7	測定時間		0.01		-		-	
8	分解時間		0.21		-		-	
9	不感時間		0.40		-		-	
10	核データ		-		-		0.17	
Total % ( $k=1$ )		5.2	2.7		1.4		2.6	
ベータ線放出率 ( $s^{-1}$ )		53.6	98.5		16.2		29.5	
Total $s^{-1}$ ( $k=1$ )		2.78	2.67		0.22		0.75	

### 3.3.2 測定できる Sr/Y-90 放射能の Cs-134 と Cs-137 放射能に対する下限混在比

測定できる Sr/Y-90 放射能の Cs-134 と Cs-137 に対する測定下限比としての棄却限界（得られる正味計数値が意味を持つレベル）を 2.3 節の式 2.21 で算出する。

$\sigma$  は Cs-134 と Cs-137 の不確かさの合成とし、 $k_C$  はここでは両側信頼度が 95.45% となる 2.00 とする。式により計算される棄却限界は  $3.34 \text{ s}^{-1}$  であり、Cs-134 と Cs-137 の合計のベータ線放出率に対しては 7.3 % であった。

### 3.3.3 実証実験による成果

実証実験で開発された測定法により、Cs-134 と Cs-137 の混在試料中の Sr/Y-90 放射能を測定した。その結果は、既知値よりも 3.1 % 大きかった。この測定された放射能に対する不確かさは 5.2 % ( $k=1$ ) と評価された。測定された Sr/Y-90 放射能と既知値との差異は、測定の不確かさの範囲内であり、一致したと言える。この結果から、本測定法が Cs-134 と Cs-137 の混在試料中の Sr/Y-90 放射能を測定できることが実証されたと言える。

この不確かさ要因分析により装置に依存する主な不確かさ要因が、効率外挿、バックグラウンド、ガンマ線スペクトロメトリであることが判明した。これらを低減することが、本測定法に用いる装置に対する課題である。

効率外挿による不確かさは、効率外挿曲線と測定点の間の残差と複数の効率外挿曲線の互いの差異を考慮している。どちらの要素も、ベータ線計数効率が高くなり、最大計数効率での見かけ上の放射能が真の放射能に近づくと、不確かさが小さくなる。

実証実験の場合の効率外挿図（Cs-134 のみ）と河田 [60] により求められた効率外挿図を図 3.16 で比較する。実証実験で得られた効率外挿図の方が河田の場合よりも、y 軸から離れたところまでしかプロットが届いていないことが明示されている（横軸の値が 0.2 のところに緑色の点線）。実証実験の場合のベータ線計数効率 75 % 程度に対して、河田の場合は 85 % 程度にまで達していると見られる。

したがって、実証実験の場合よりも外挿の不確かさが小さい装置を実現するためには、ベータ線計数効率の向上を図る必要がある。本章で用いた測定器では、プラスチックシンチレーション検出器での蛍光を捉える光電子増倍管の立体角が小さく、ライトガイドによる導光は蛍光発生量を減弱している可能性がある。特に低エネルギーベータ線による低波高領域における弱い蛍光が十分に計数されておらず、全体の計数効率が低い原因である可能性がある。

また、実証実験の場合と河田の場合では、ガンマ線検出器が異なる。ガンマ線検出器の違いによる外挿の不確かさへの影響についても検討する必要がある。

バックグラウンドによる不確かさは、実証実験での遮蔽が不十分であったために計数率が高く、その変動が放射能測定の不確かさに影響した。光電子増倍管や前置増幅回路を設置した空間は遮蔽することができなかった。実証実験の測定装置の遮へいを重厚にするためには、装置全体を囲むよ

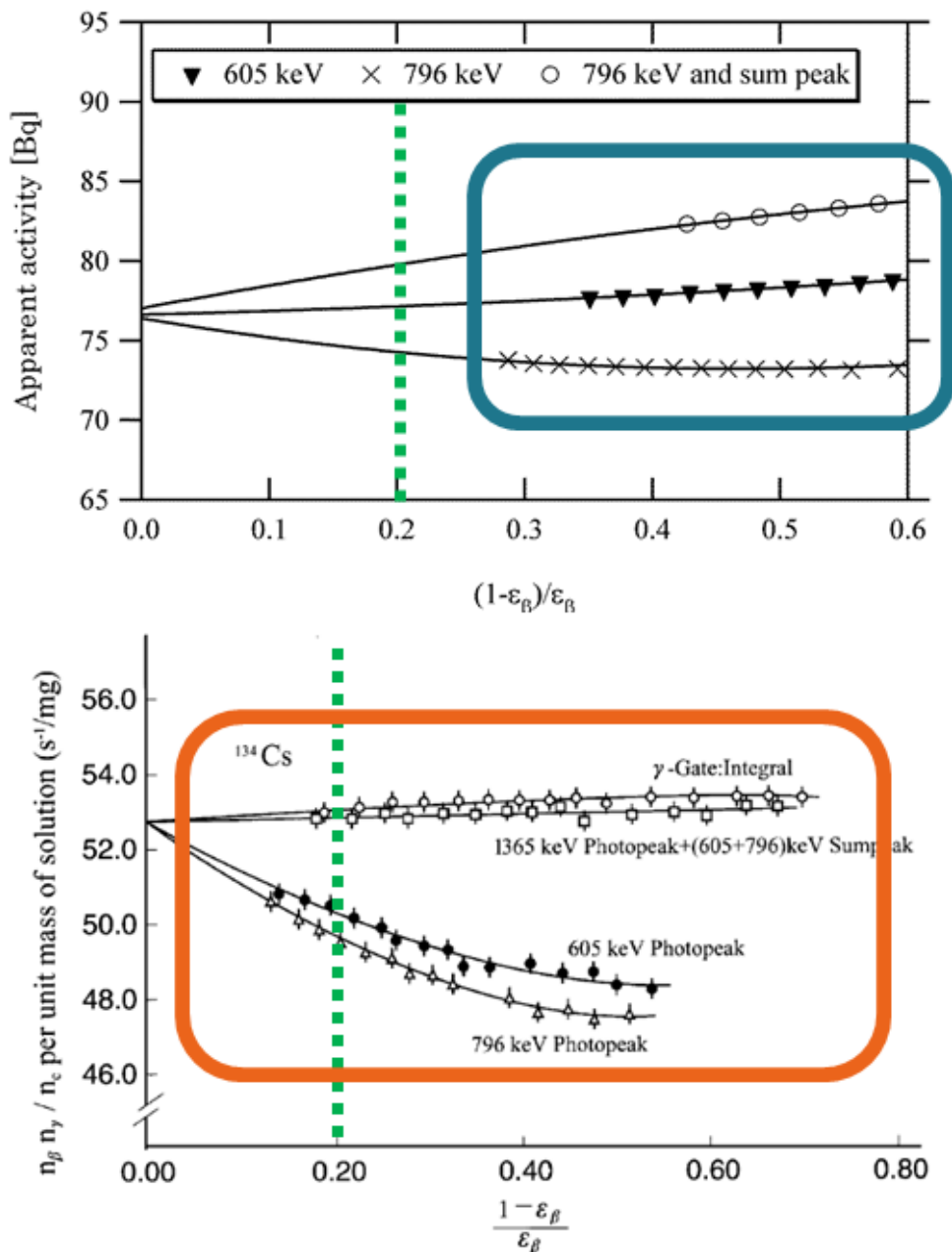


図 3.16 実証実験と過去文献の効率外挿図の比較（上：本研究の実証実験より、下：2004 年の河田氏論文より引用）

うに遮へいすることを考えることになる。図 3.1 に示したように実証実験で用いた装置全体のサイズは幅 56 cm、高さ 70 cm である。このサイズの装置全体を遮へいするためには、遮蔽体のサイズが大きくなり、実作業への負担が大きくなる。したがって、本測定法に用いる装置は小型化する必要がある。

### 3.4 本章のまとめ

本章では、プラスチックシンチレーション検出器と NaI(Tl) シンチレーション検出器を組合わせ、ベータ線とガンマ線の双方に大きな立体角を持つ  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置を組上げた。試料は、Cs-134 のみ試料、Cs-134 + Cs-137 混合試料、Cs-134 + Cs-137 + Sr/Y-90 混合試料の 3 つを用意した。この装置では、ベータ線とガンマ線の両方を大立体角で測定できるように検出器を配置した。検出器からの信号からデータを取得するための測定回路を、NIM 規格と CAMAC 規格のモジュールを使用して構成した。

この実証実験用の装置により、Cs-134 と Cs-137 との混在状態にある Sr/Y-90 の放射能を測定した。本測定法で実際に Sr/Y-90 放射能を測定できることを実証した。

実証実験の測定結果に対する不確かさを要因別に評価した。その結果、主な不確かさの要因は効率外挿、バックグラウンド、ガンマ線スペクトロメトリであることが示された。

これらの低減が本測定法に用いる装置の課題であり、効率外挿の不確かさに対して影響するベータ線計数効率を上げるための検討を本章に続く第 4 章で述べる。

ガンマ線検出器の違いによる効率外挿曲線への影響は、第 5 章でシミュレーションを利用して検討する。

バックグラウンドによる不確かさを低減するためには、小型化が必要であり、第 6 章での測定装置の作製で考慮する。

## 第4章

# ベータ線検出器の検討

第3章では、本測定手法に用いる装置の課題として、ベータ線計数効率を向上させることが挙げられた。

本章では、下記の点で計数効率の改善を検討する。

- 光電子増倍管までの導光路による違い
- 光電子増倍管1本と反射材を使用した場合との違い
- プラスチックシンチレータのサイズと光電子増倍管の種類による違い

### 4.1 緒言

先に述べたように、本研究では、ベータ線検出器にプラスチックシンチレータを用いている。プラスチックシンチレータでベータ線が検出される過程では、試料中から放出されたベータ線がプラスチックシンチレータ領域に侵入し、ベータ線により沈着エネルギーを与えられたプラスチックシンチレータ中で蛍光が発生し、光学接続されたシンチレータ自身とライトガイドを通過して光電子増倍管の光電面まで導光され、光電面で放出される光電子が増倍され電気信号となり、電気回路にて処理される。プラスチックシンチレーション検出器でのベータ線計数効率を向上させるために、この過程における要素を最適化し、計数効率の向上を図る。

プラスチックシンチレータによるベータ線検出特性については過去に Miramonti により調べられている [81]。この報告では、測定体系が本研究とは異なるものの、プラスチックシンチレーション検出器による低エネルギー光子（電子）の 10 keV 以上では 100 % の計数効率を持つと報告されている。Miramonti によるプラスチックシンチレータの計数効率評価から想定される Cs-134 における計数効率は 95 % にまで達する。前章の実証実験で Cs-134 放射能に対するベータ線計数効率は 74 % であり、実証実験のベータ線計数特性は改善できる余地がある。

その改善を検討する点として、

1. 光電子増倍管までの導光路による違い

2. 光電子増倍管 1 本と反射材を使用した場合との違い
3. プラスチックシンチレータのサイズと光電子増倍管の種類による違い

と考え、実験的な検討を行った。上記以外に、光学グリスの違いによる影響も試験したが、最大波高に若干の差異が見られるもののベータ線計数特性には影響しないことを確認した。

これらの比較においては、波高分解能、波高下限エネルギー、計数効率を評価した。

なお、3.1.1 項に示した測定試料の準備により、試料内でのベータ線自己吸収は、最小に抑えられた条件 [35] で評価した。

## 4.2 光電子増倍管までの導光路による違い

### 4.2.1 測定機器

図 4.1 に使用した機器の配置を示す。実証実験と同様に試料を封入したプラスチックシンチレータ (EJ-212) と光電子増倍管 (H3177-50) を使用して、対向式プラスチックシンチレーション検出器を構成した。実証実験での蛍光受光立体角を改善するために、プラスチックシンチレータと光電子増倍管の光学接続は、ライトガイドを介さずにプラスチックシンチレータ円面の上下に直接、光電子増倍管を取付けた。プラスチックシンチレータと光電子増倍管の間は光学グリスで接続している。また、蛍光発生位置と光電子増倍管の距離を近づけるために、プラスチックシンチレータの厚さを、試料から見て片側 4 mm (2 枚合計で 8 mm)、片側 1 mm (2 枚合計で 2 mm) の 2 種類のプラスチックシンチレータを用意した。実際の試料設置の様子を示す写真を図 4.2 に示す。光電子増倍管は同じ支柱に固定されたクランプとはめ合わせ治具により固定した。黒色テープで 2 つの光電子増倍管の間を遮光した。測定回路は実証実験に用いた回路のベータ線測定システムだけを生かして利用した (図 4.3)。測定に使用した試料の核種は、波高をベータ線エネルギー情報に校正するための Cd-109、Cs-137、計数効率を評価するための Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90、Co-60 とした。



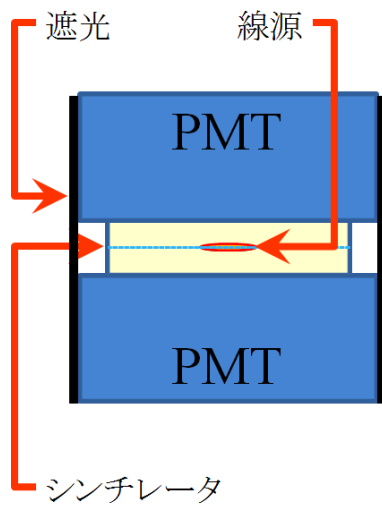


図 4.1 対向式プラスチックシンチレーション検出器の配置図

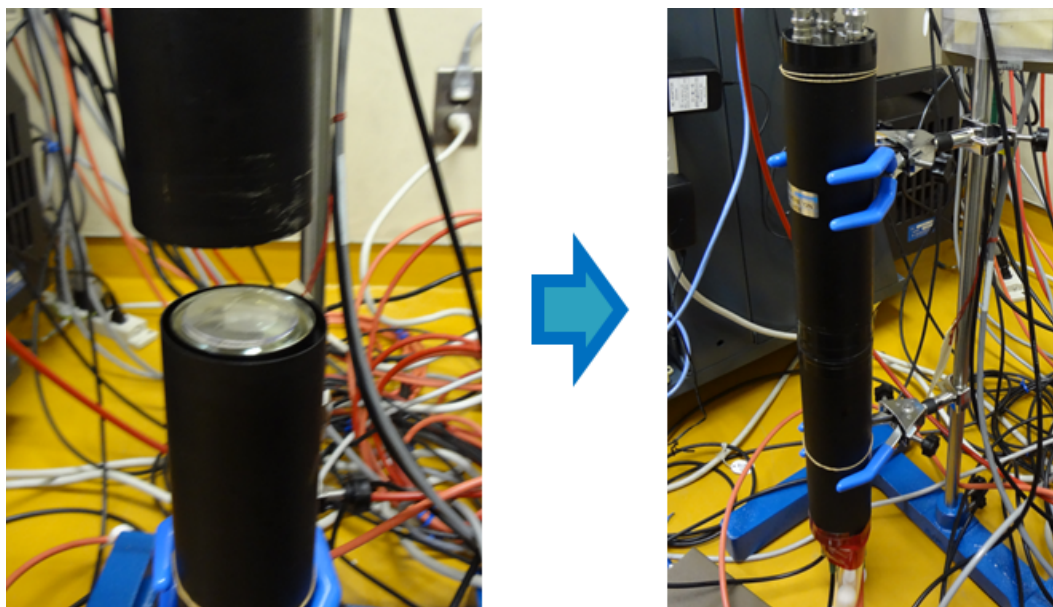


図 4.2 対向式プラスチックシンチレーション検出器の配置写真

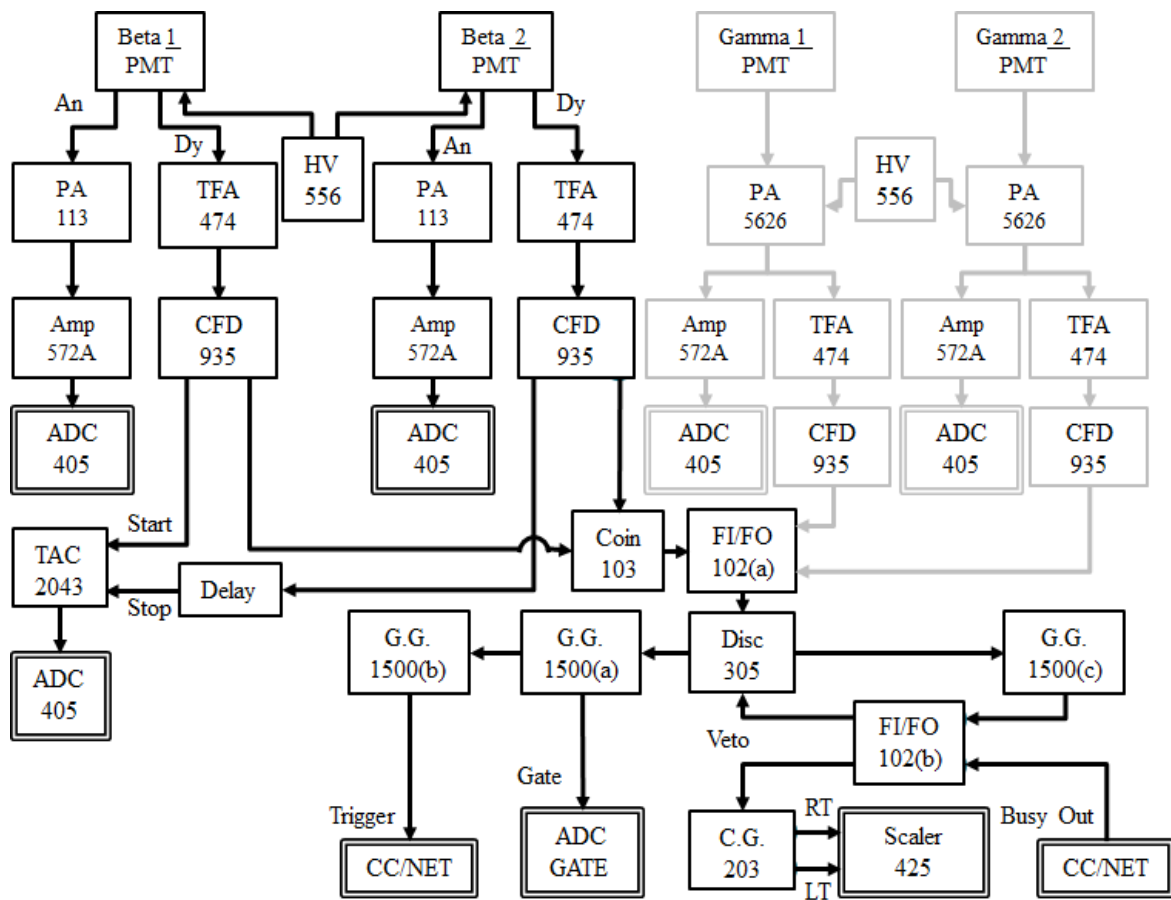


図 4.3 ベータ線検出器検討用のアナログ電気信号回路のブロック図（薄灰色部分は不使用）

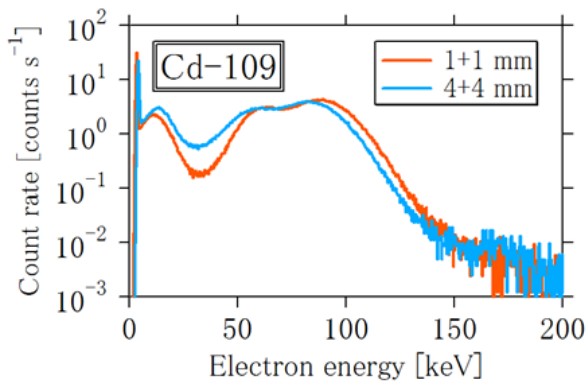
表 4.1 エネルギー校正に使用した各核種のエネルギー点の一覧

核種	放出形式	エネルギー (keV)	Ref.
Cd-109	オージェ電子 (X 線)	18-25	[4]
Cd-109	内部転換電子 ( $\gamma$ 線)	63, 85	[4]
Cs-137	内部転換電子 ( $\gamma$ 線)	630 (平均)	[6]

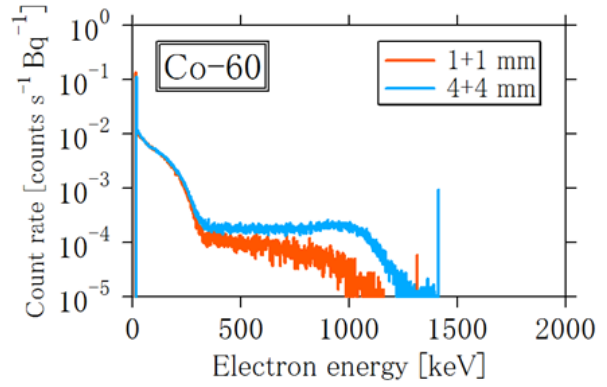
## 4.2.2 測定結果

### 波高分布 (波高分解能と下限エネルギー)

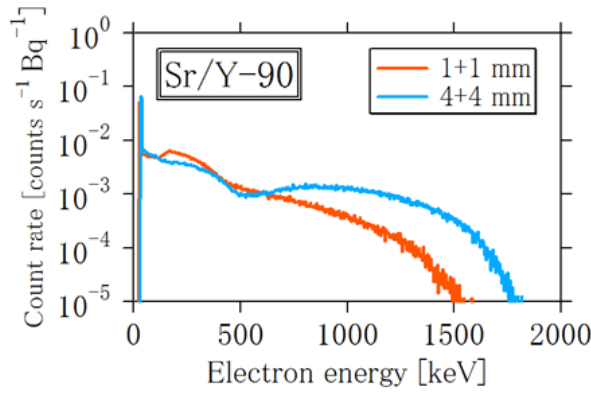
図 4.4 に取得されたベータ線エネルギースペクトルを示す。横軸のベータ線エネルギーは Cd-109 のオージェ電子、内部転換電子ピークと Cs-137 の内部転換電子ピークにより波高を校正した。Co-60、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 の横軸は同一スケールとしたが、Cd-109 の場合は低エネルギー側を 10 倍に拡大して表示している。スペクトル上限に見られるピークは、ADC が受けられる最大波高を超えたイベントが計数されている。各核種のエネルギー点は表 4.1 の通りである。各グラフの水色線は 1 枚のシンチレータの厚さ 4 mm のものを 2 枚合わせて全 8 mm (4+4 mm)、橙色線は 1 枚が厚さ 1 mm のものを 2 枚合わせて全 2 mm (1+1 mm) としたものの結果である。Co-60、Cs-134 のスペクトルの高エネルギー側の領域では水色線の方が計数率が高い。4 mm 厚のプラスチックシンチレータの方が計数率が高かった。Co-60 水色線の 1000 keV 付近のエッジは、1173 keV と 1333 keV のコンプトンエッジに近いエネルギーに対応している。波高分解能は Cs-137 の内部転換電子ピークで半値幅 12 % (4+4 mm) であり、Cd-109 のオージェ電子ピークでは 100 % 近くにまで広がっているが、それぞれの中心値で波高エネルギー校正を実施した。このエネルギー校正による評価により、20 keV 付近の電子までは計数できていることが確かめられた。一方で、Sr/Y-90 の厚さ 8 mm のスペクトルは Sr-90 と Y-90 のベータ線放出スペクトルの重なりに沿った形状であるが、Y-90 の高エネルギー終端はベータ線最大エネルギー 2.3 MeV よりも低くなっている。2 mm 厚では、低エネルギー側にずれ込むイベントの割合が多くなった。



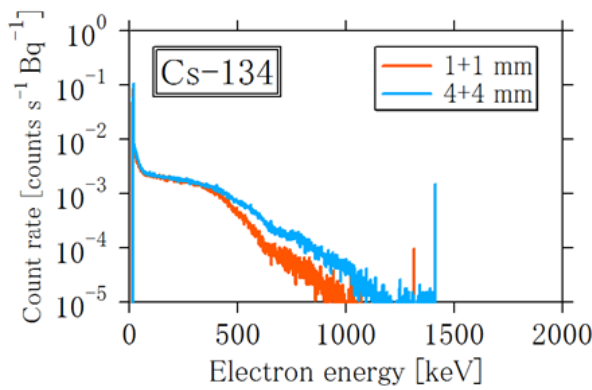
(a) Cd-109エネルギースペクトル



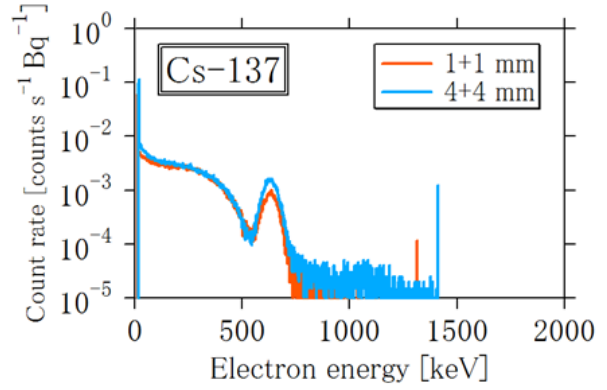
(b) Co-60エネルギースペクトル



(c) Sr/Y-90エネルギースペクトル



(d) Cs-134エネルギースペクトル



(e) Cs-137エネルギースペクトル

図 4.4 対向式プラスチックシンチレーション検出器により取得したベータ線波高分布（核種別）

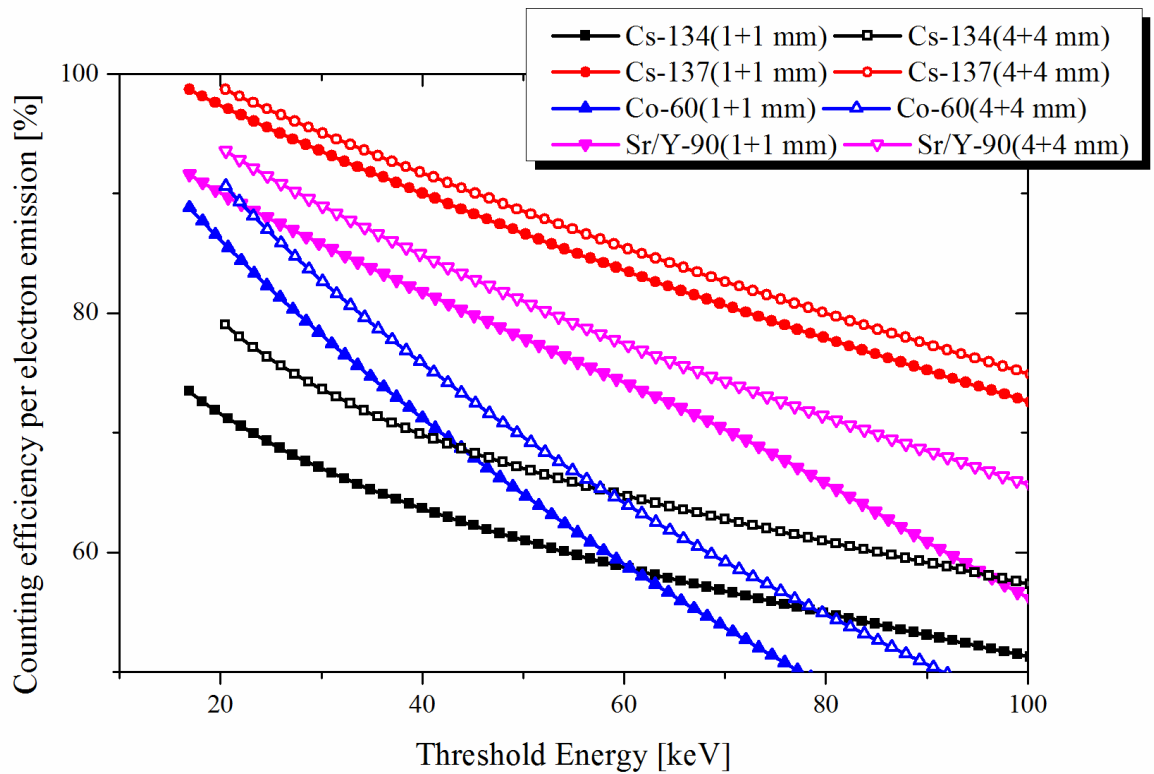


図 4.5 1 崩壊あたりの各核種の電子放出率に対する計数効率

### 計数効率

図 4.5 に計数効率を示す。横軸は、計数効率を算出するしきいエネルギーを表す。Cs-134、Cs-137、Co-60、Sr/Y-90 について、プラスチックシンチレータの厚さが 2 mm (1+1) と 8 mm (4+4) として測定した。いずれの核種の場合も、効率は 8 mm(4+4 mm) 厚の方が高かった。核種間では、Cs-137 の効率が最も高く、続いて Sr/Y-90、Co-60、Cs-134 の順になっている。Cs-134 は、他の核種に比べ計数効率が低い。しかし、前章の実証実験では同じ 8 mm(4+4 mm) の最大の計数効率 74 % であり、本実験の方が 5 % 程度だけ計数効率が高い。

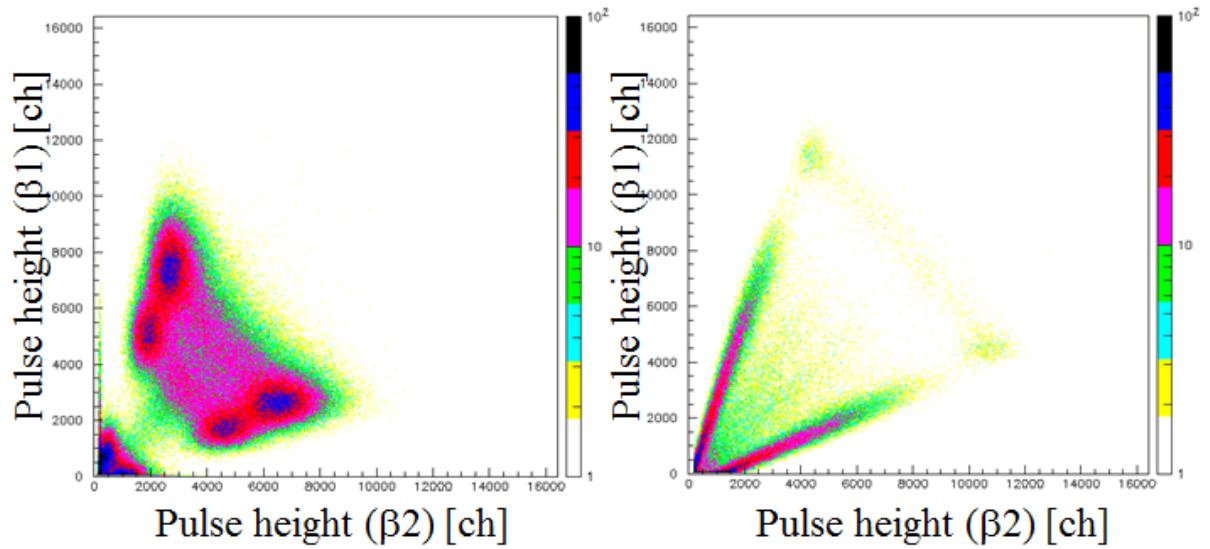


図 4.6 対となるベータ線検出器により取得された 2 次元波高分布 (左 : Cd-109、右 : Cs-137)

#### 波高 2 次元分布

図 4.6 に 2 つのベータ線検出器での 2 次元波高分布を、Cd-109 と Cs-137 の場合で示す。Cd-109 と Cs-137 の場合では、2 つのベータ線波高のいずれもゲインを 10 倍にしている。Cd-109 と Cs-137 のいずれでも、明らかな  $x$   $y$  対称の 2 集団の分布を示した。一方の検出器で高い波高が検出されたときに、他方ではそれよりも低い波高が検出されていることを示している。前述の波高分布、計数効率の評価はこの 2 つのベータ線波高分布をイベントごとに足し合わせて示した。

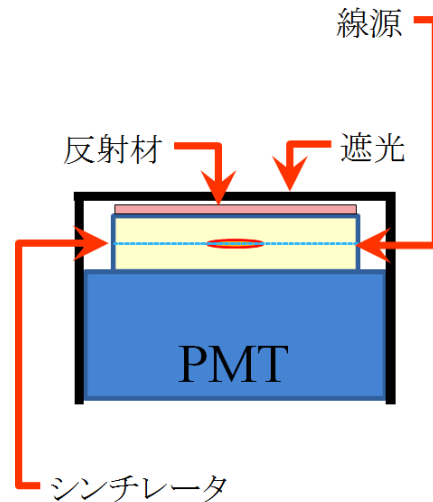


図 4.7 反射剤塗布プラスチックシンチレーション検出器による測定器配置図

### 4.3 光電子増倍管 1 本と反射材を使用した場合との違い

図 4.7 に示すように、対向する光電子増倍管の代わりに反射材塗布面を配置した場合の波高分布を測定した。これは、双方向の場合と片側の場合での波高分布の違いを調べるためである。反射材は白色反射材 (EJ-510) を塗布した。プラスチックシンチレータ (EJ-212) は 8 mm(4+4 mm)、光電子増倍管は H3177-50 を使用した。

図 4.8 に対向式プラスチックシンチレーション検出器、図 4.9 に反射材塗布プラスチックシンチレーション検出器により取得された Cs-137、Cs-134、Sr/Y-90 のベータ線波高分布を示す。Sr/Y-90 のみ波高分布のゲインを他の半分にして表示している。図 4.9 は図 4.8 の波形整形増幅器のゲインを 2 倍にしている。それ以外の信号取得パラメーターは全く同一であり、対向式プラスチックシンチレーション検出器の方が波高が高く、得られている光量が 1.4 倍程度多いことが示された。Cs-137 の内部転換電子ピークの半値幅は、対向式プラスチックシンチレーション検出器の場合は 12 %、反射材塗布プラスチックシンチレーション検出器の場合は 16 % であった。

次に計数効率を評価する。光電子増倍管が 1 本で反射材を使用した場合、波高分布の下端でノイズ成分と信号成分が連続しているため、明確な切り分けが困難である。下端部分での波高信号成分の連続部分から読み取ると、Cs-137 と Sr/Y-90 の最大効率は 98 % 程度、Cs-134 の最大効率は 80 - 85 % 程度に達した。この結果を前述の光電子 2 本が対向した場合と比べると、同程度が改善されているように見受けられる。

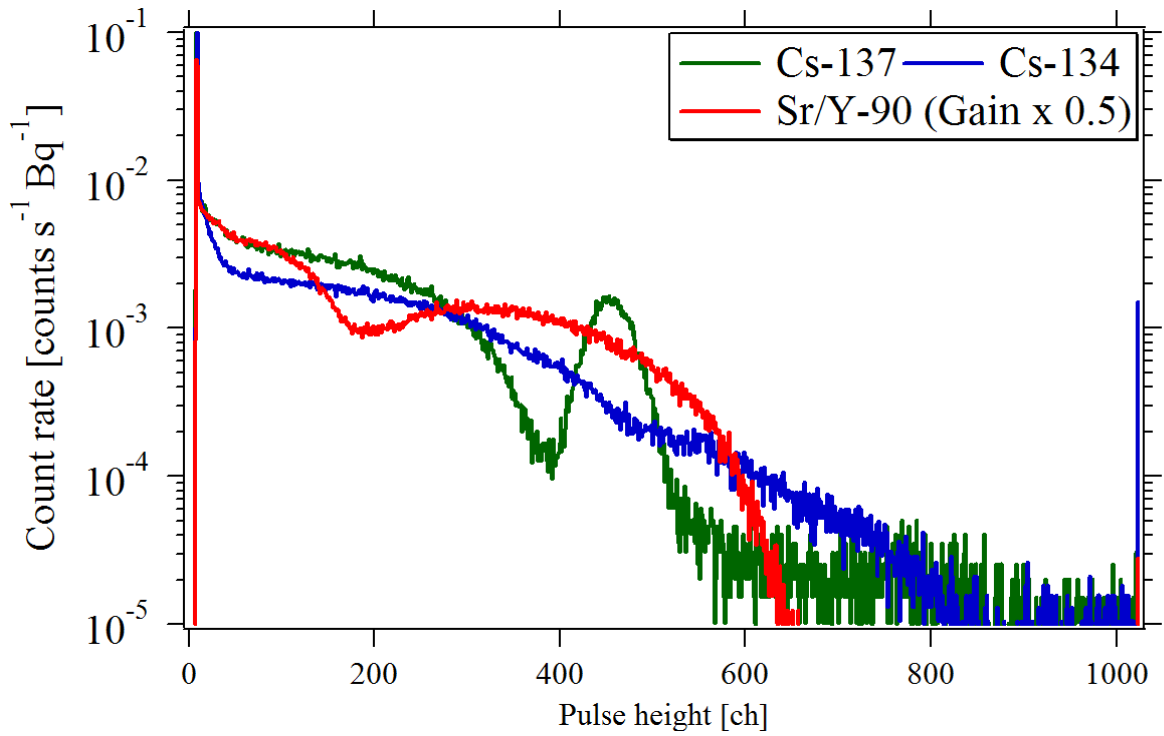


図 4.8 対向式プラスチックシンチレーション検出器により取得されたベータ線波高分布

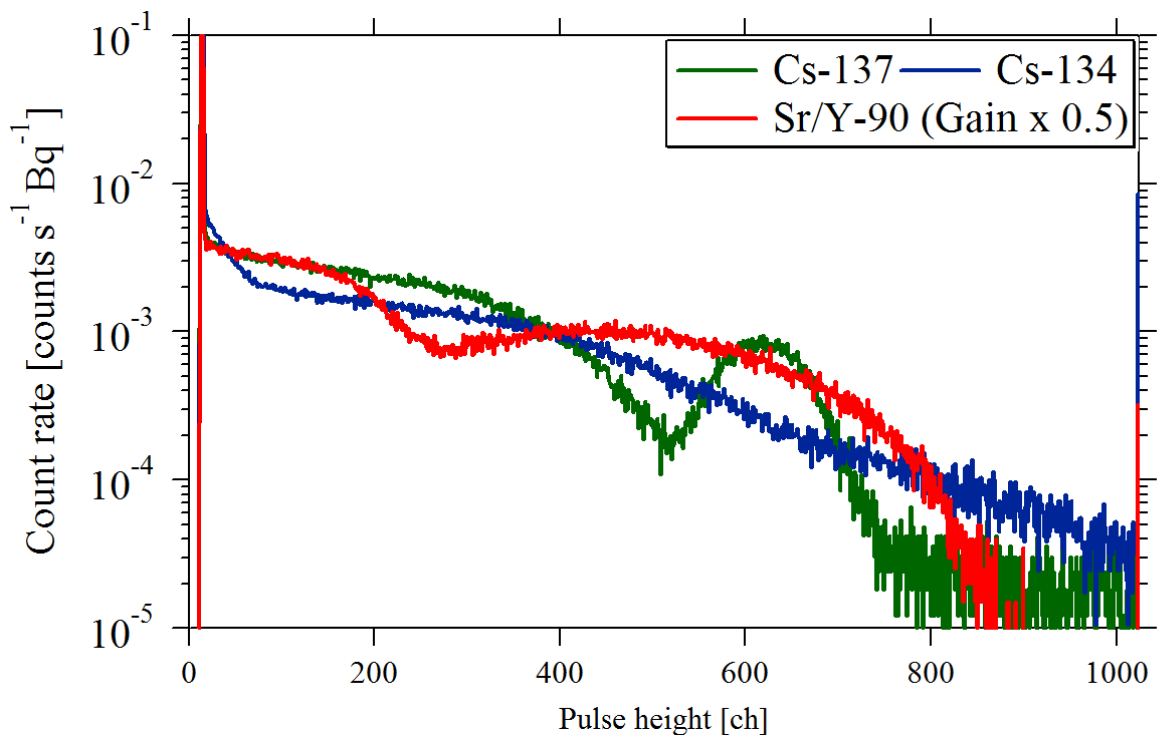


図 4.9 反射材塗布プラスチックシンチレーション検出器により取得されたベータ線波高分布



## 4.4 プラスチックシンチレータのサイズによる違い

### 4.4.1 測定機器

これまでの検討で、プラスチックシンチレータ中の蛍光を取り出すため、光電子増倍管の配置と導光過程の改善を試みた。ここでは、プラスチックシンチレータのサイズを変更する。それに伴い、組合わせて使用する光電子増倍管を変更する。

#### 高感度化への検討

図 4.10 に本実験で使用したプラスチックシンチレータに近い物質として PMMA (アクリル樹脂、Polymethyl methacrylate) 中の電子の飛程を示す [82]。この電子の飛程から、プラスチックシンチレータ内での蛍光発生は試料部分から 1 mm 程度の近い領域に集中していることが考えられる。それに対して、ここまで用いてきたプラスチックシンチレータは直径 40 mm と大きく、プラスチックシンチレータ内の試料から遠い領域はベータ線検知に有効ではない。プラスチックシンチレータがベータ線検知のために必要な以上に大きくなると、発生した蛍光が散逸しやすくなると考えられる。そこで、プラスチックシンチレータを試料溶液の十分な量 (100 mg 程度) を滴下可能で、できるだけ小型化することを考えた。

プラスチックシンチレータが小型化されると、光電子増倍管がここまでで使用されてきた 2 インチサイズの H3177-50 である必要がなくなる。むしろ、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定装置の設計を考慮すると、プラスチックシンチレータ用の光電子増倍管が大きいことは、1) 付随するガンマ線検出器が大型化し高価になる、2) 遮蔽体が大きくなり重量が増加すること、3) 光電面が必要以上に大きいため光電面からの熱電子放出によるノイズが大きくなる [83]、という不利な点がある。そこで、より小型な光電子増倍管の候補として、R9880U-210 と H3164-10 を候補とした。表 4.2 に、それぞれの光電子増倍管のカタログ上の仕様を抜粋して示す。比較のために、H3177-50 も合わせて示す。これまで使用してきた、H3177-50 は最もゲインが大きい。一方、R9880U-210 と H3164-10 は、光電面が直径 8 mm であり、前述の試料滴下するために必要なプラスチックシンチレータの大きさに適している。陽極ゲインは R9880U-210 の方が高く、光電面もウルトラバイアルカリであり量子効率が高い。したがって、プラスチックシンチレータで発生した蛍光量をより高い感度で得られる R9880U-210 を採用した。同じ R9880U-210 でも、ゲインを統一した個体を選別し、 $5.0 \times 10^6$  程度のものを使用した。R9880U-210 に対応するソケットは E10679 を使用することとした。この R9880U-210 を使用した光電子増倍管を、ここでは指頭型 PMT と呼ぶことにする。

#### R9880U-210 を使用したベータ線検出器の設計

この指頭型 PMT に対応して決定したプラスチックシンチレータのサイズと形状を図 4.11 に示す。プラスチックシンチレータは凹部と凸部を用意し、凹部の凹み部分に水溶液試料を滴下し乾燥した後に、凸部のプラスチックシンチレータをはめ合わせた。滴下した水溶液が漏出することを

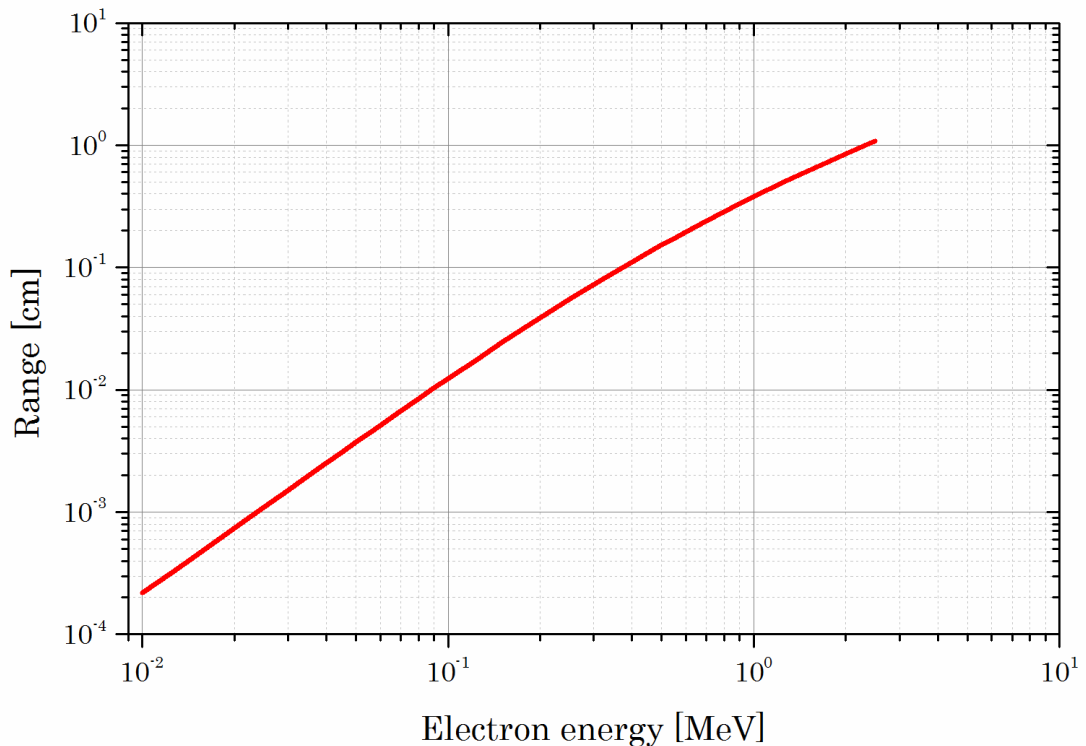


図 4.10 PMMA 中の電子の飛程

表 4.2 候補とした光電子増倍管の一覧 (カタログより)

型番	R9880U-210	H3164-10	H3177-50
光電面有効エリア直径 (mm)	8	8	46
光電面種類	ウルトラバイアルカリ	バイアルカリ	バイアルカリ
陽極ゲイン	$2.0 \times 10^6$	$1.0 \times 10^6$	$1.0 \times 10^7$
外径サイズ (mm)	16	10.5	60

防ぐ役割を凹部外周エッジ部が果たしている。滴下した溶液を乾燥させた後、凹部と凸部の外周エッジ部分を光学セメント (ELJEN Technology、EJ-500) で接着した。後述のプラスチックシンチレータと指頭型 PMT との接着にはグリスを使用しており、試料脱着の際にプラスチックシンチレータの凹部と凸部接着が剥がれ、内部の非密封状態の放射性物質が外部に出ることを防止している。プラスチックシンチレータの材質は、これまでと同じ EJ-212 である。

実際のプラスチックシンチレータを 2 つの指頭型 PMT で挟む様子を図 4.12 に示す。プラスチックシンチレータの直径は 8 mm で、指頭型 PMT の光電面有効エリアと一致している。指頭型 PMT には、光電面の周囲にケースによる 0.5 mm の凹みがあり、その凹みを利用してプラスチッ

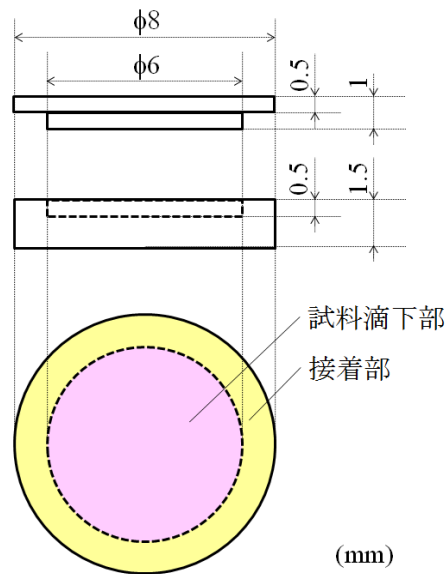


図 4.11 光電子増倍管 R9880U-210 に対応した凹凸型プラスチックシンチレータの図面

クシンチレータを光電面上に固定した。2本の指頭型PMTはプラスチックシンチレータの上下円面と光学グリスで接続し、互いを黒色テープで固定しつつ、遮光した。

#### 測定回路

光電子増倍管の変更に対応して、前置増幅器を Canberra 製 2005 に変更した。それ以外は、前述と同じ回路を使用した。



図 4.12 R9880U-210 とプラスチックシンチレータ（上：光電面にプラスチックシンチレータが乗った状態、下：遮光済みで測定準備完了の状態）

## 4.4.2 測定結果

### 波高分布

図 4.13 及び図 4.14 に、取得された Cd-109 と Cs-137 の波高分布を示す。ここに示す波高分布は、2つの指頭型 PMT により取得された波高を合算して示している。黒線の取得した波高 (Raw) と2つの PMT が同時に計数したシグナル成分 (Signal) の波高分布は、図 4.13 の低波高領域まで重なっている。この Cd-109 波高分布においては、Cs-137 の場合よりもゲインを 10 倍にして取得した。縦軸は、それぞれの放射能あたりの計数率で規格化した。いずれのグラフでも、取得されたスペクトルの加工を加えていない生の波高分布を黒線で、2つの R9880U-210 で同時に計数したという条件下での波高分布を赤線で示している。

Cs-137 の高波高領域から、Cd-109 の低波高領域まで、赤線と黒線は完全に重なっている。Cd-109 の低波高下端で、黒線から赤線が下がっている。

図 4.14 より Cs-137 の内部転換電子ピークの形状が崩れているものの、Cd-109 の波高分布までの波高と電子エネルギーの線形性は保たれていることがわかる。Cd-109 の内部転換電子、K 殻オージェ電子によるピークよりも低波高領域での計数が確認された。

図 4.15 に Cs-134 の低波高領域の波高分布を示す。Cd-109 の場合と、ゲインは一致している。800 ch から 600 ch までに計数率の低下が見られる。100 ch 以下では、より低い波高領域にかけて計数率が急激に上昇している。この部分を依り詳細に調べるために、さらにゲインを 10 倍 (Cs-137 の場合からは 100 倍) した波高分布を図 4.16 に示す。

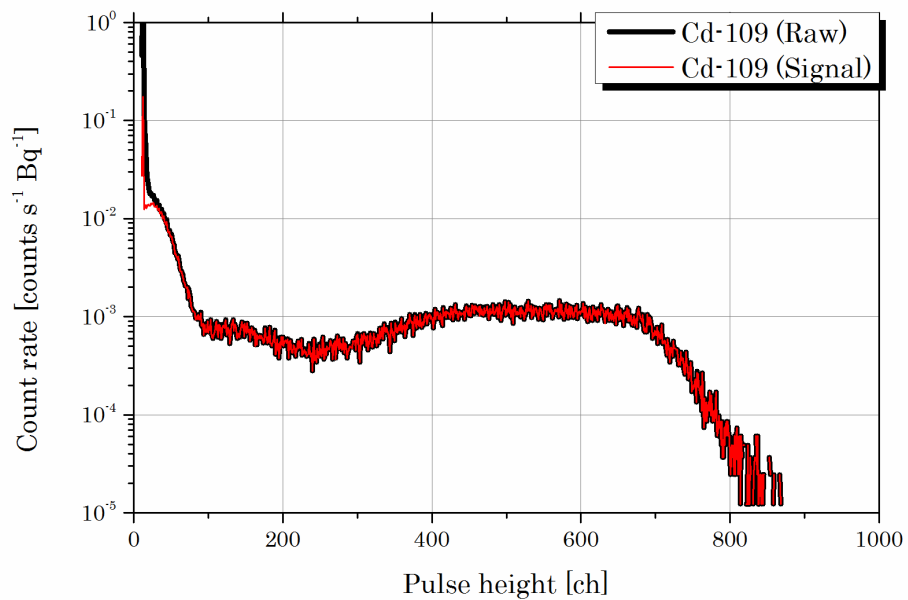


図 4.13 直径 8 mm のプラスチックシンチレータでの蛍光を R9880U-210 で取得した波高分布 (Cd-109、ゲイン 10 倍)

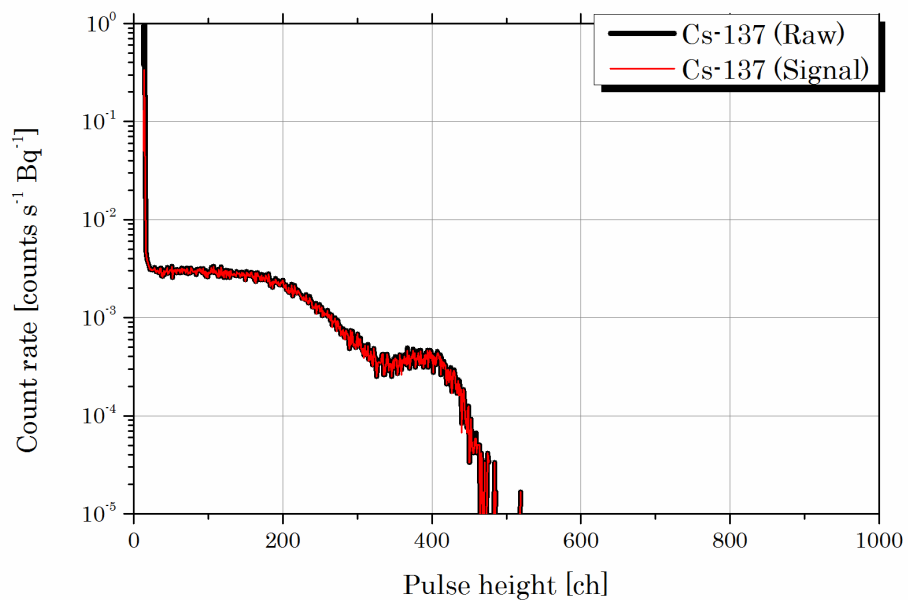


図 4.14 直径 8 mm のプラスチックシンチレータでの蛍光を R9880U-210 で取得した波高分布 (Cs-137)

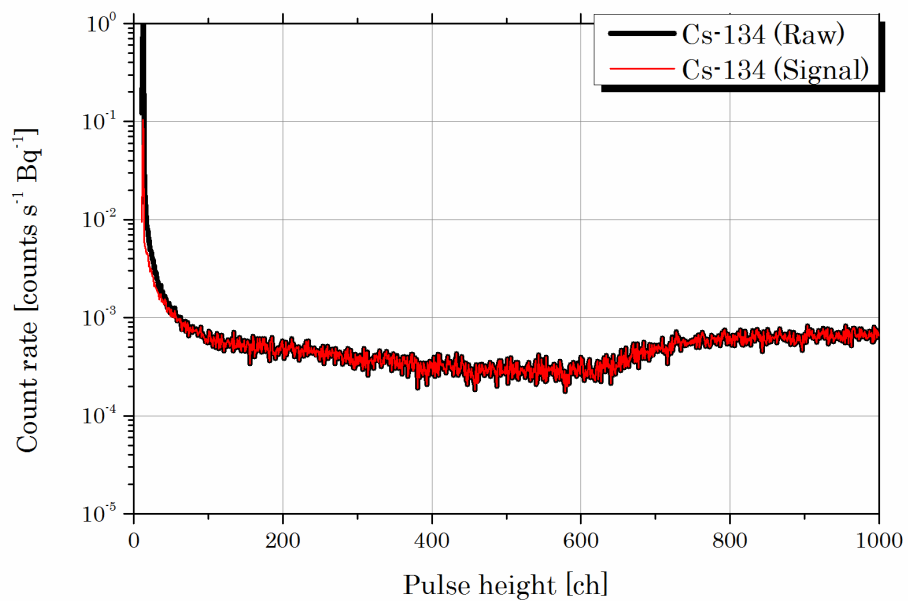


図 4.15 直径 8 mm のプラスチックシンチレータでの蛍光を R9880U-210 で取得した波高分布 (Cs-134、ゲイン 10 倍)

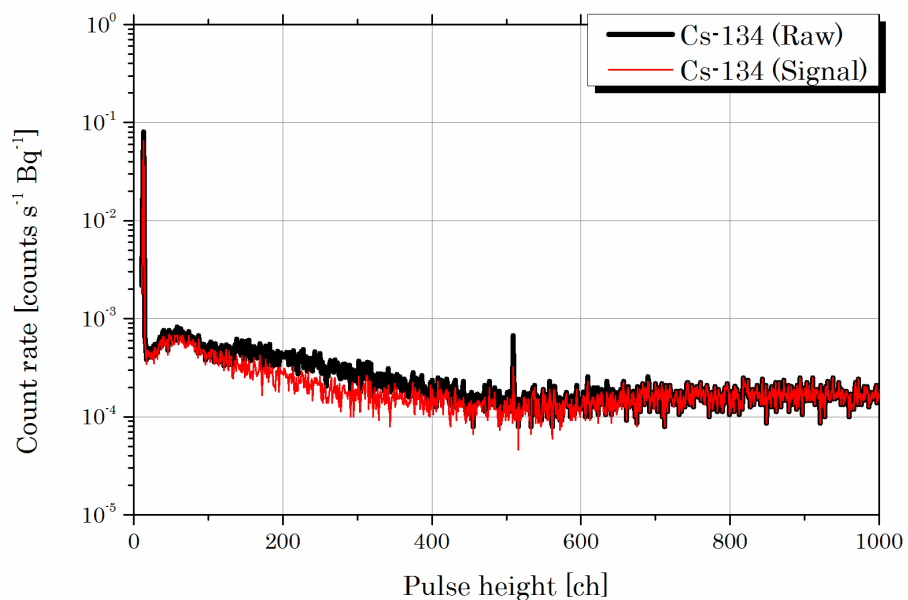


図 4.16 直径 8 mm のプラスチックシンチレータでの蛍光を R9880U-210 で取得した波高分布 (Cs-134、ゲイン 100 倍)

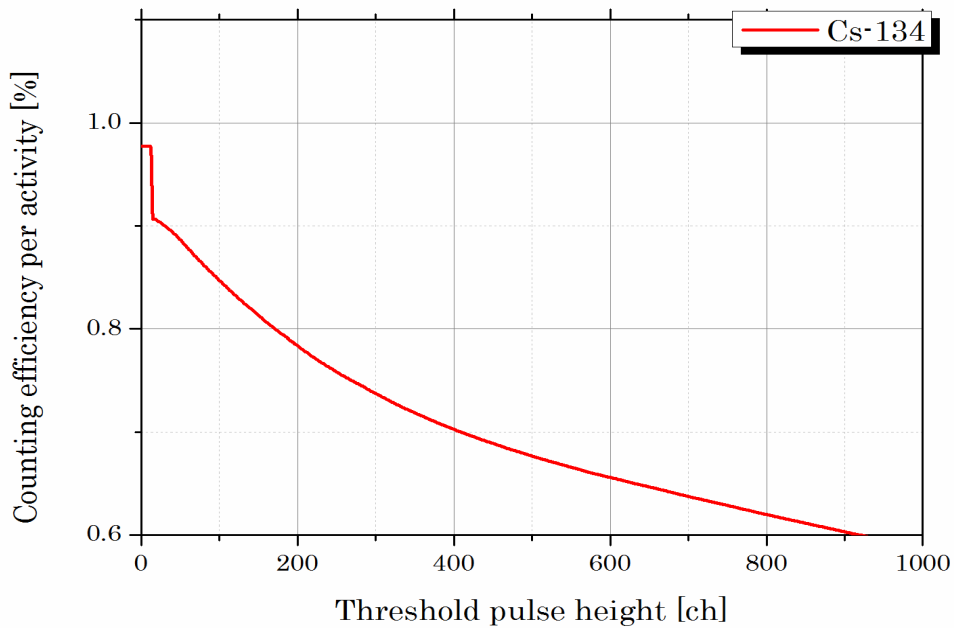


図 4.17 Cs-134 に対する R9880U-210 測定での計数効率 (横軸 ch はゲイン 100 倍)

#### 計数効率

図 4.17 に、Cs-134 の計数効率をしきい波高チャンネルの関数として示す。波高チャンネルは図 4.16 の場合と一致しており、図 4.16 の赤線である信号成分の計数率から算出した。最大計数効率は 91 % にまで達し、図 4.5 の場合に比べて大幅に改善された。



## 4.5 考察

### 4.5.1 蛍光の導光路を変更した場合の評価

図 4.4 の対向式プラスチックシンチレーション検出器による波高分布測定の結果において、Co-60、Cs-134 のスペクトルにおける高い波高領域で 4 mm 厚のプラスチックシンチレータの方が計数率が高かった。これは、4 mm 厚の方がガンマ線の感度が高く計数が多いためであると考えられる。Cs-137 の内部転換電子ピークは、662 keV ガンマ線の光電ピークと重なり、4 mm 厚の方がピーク計数率が高いことも同様の原因であると考えられる。Cd-109 においても、特性 X 線への感度が 4 mm 厚の方が計数率が高い。Cd-109 のスペクトルにおける 100 keV 付近での 1mm 厚との計数率の逆転についての原因は不明である。

Sr/Y-90 の波高分布では、4 mm 厚のスペクトルの上端が、ベータ線最大エネルギーよりも低い。これは、高エネルギーのベータ線が全エネルギーを沈着させず外部に突き抜けるためと考えられる。一方、1 mm 厚では、スペクトル形状がベータ線放出スペクトルの形状とは異なっている。これは、1 mm 厚では、突き抜けるベータ線の割合が多くなり、沈着するエネルギーが小さくなっているためであると考えられる。図 4.10 によると、電子の飛程は 2 MeV を超えると 1 cm 近くまで達し、400 keV 以上では 1 mm よりも大きいことが分かる。

Cs-137、Cd-109 の波高分布におけるピーク分解能において、1 mm 厚と 4 mm 厚の間で差異は見られなかった。これは、プラスチックシンチレータ厚を変えて蛍光発生位置に光電子増倍管を近づけることの効果が見られないことを意味している。

また、この分解能評価により、低エネルギー領域では分解能が劣化していることが示された。そのため、厳密な下限エネルギーを評価することは困難である。この分解能劣化は、低エネルギー電子による蛍光の収集量が小さく、統計にばらつきが出るためであると考えられる。

この蛍光に対して感度を向上させるためには、1) 蛍光を光電子増倍管に導く光路の効率を高める、2) より感度が高い光電子増倍管を用いる、という方法が考えられる。その他、3) 発光量がより大きいプラスチックシンチレータに変更する、という手段も考えられる。その候補となる材料としては、例えば、中村により開発されたシンチレックス [84] が考えられ、将来の安定供給が期待される。

計数効率評価の結果を、図 4.5 にしきいエネルギーの関数として示した。プラスチックシンチレータ厚さ 4 mm の場合の方が 1 mm の場合よりも計数効率が高い理由は、4 mm の方がベータ線以外のガンマ線や制動放射線の検出により計数効率が高いためであると考えられる。核種間の最大計数効率を比較すると、平均エネルギーの順とは Cs-137 と Sr/Y-90 の関係が、4 mm の場合で 2 % 程度の差で逆になっている。それぞれの試料作製に使用した溶液の放射能濃度に付せられた不確かさの合計が 1.7 % ( $k = 2$ ) であり、試料作製、ベータ線測定による不確かさを含めると、2 % 程度の差異と近くなる。したがって、この違いの原因を特定することは困難である。その他の Co-60、Cs-134 は平均エネルギーの順である。Cs-134 は、最大エネルギー 89 keV と 658 keV の

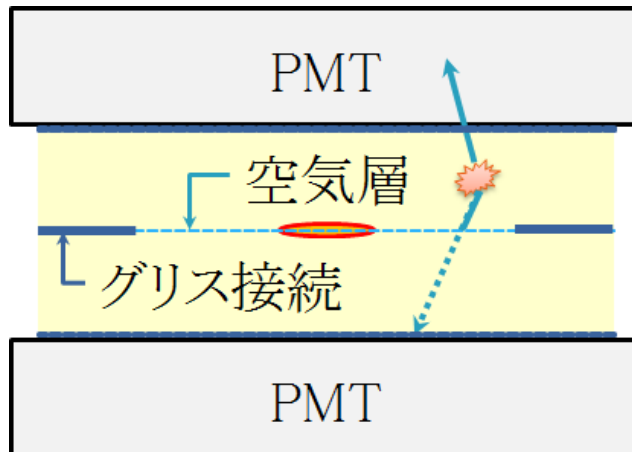


図 4.18 試料付近の空気層による透過率低下の模式図

ベータ線放出ブランチを持ち、それぞれの放出割合は 27.3 % と 70.2 % である。図 4.5 に示すしきいエネルギー関数による Cs-134 計数効率の変化が、20-40keV 付近で曲線形状になっているのは、このエネルギー領域で 89 keV のベータ線放出ブランチ由来のベータ線計数が寄与しているためである。

上述のように、4 mm 厚と 1 mm 厚のプラスチックシンチレーション検出器でのベータ線測定を比較すると、波高分解能の面では差が現れず、計数効率では 4 mm 厚の方がベータ線検出器でのベータ線以外の検出が多いことが示された。

2.2.2 節の式 2.20 でベータ線検出器でのガンマ線計数率は無視されるという条件においては、4 mm 厚よりも 1 mm 厚の方が真値からのずれが小さいことを意味する。したがって、この観点からは、プラスチックシンチレータはサイズが小さい方が望ましい。

本実験での波高 2 次元分布の取得により、2 つのベータ線用光電子増倍管で対称となる信号が得られていることが明らかになった。これは、図 4.18 に示すように、試料付近の二つのプラスチックシンチレータの界面には空気層が存在し、蛍光の透過を妨げていることが原因である。この空気層は、光学グリス自身でのベータ線吸収による計数効率低下を避けるために必ず存在する。実際に、試料付近まで光学接続した場合、3 % 程度の計数効率の低下が見られた。また、その場合は二次元分布が一つの分布になることが確かめられている。この空気層による蛍光透過の妨害による影響は、後述の反射材を使用した場合のベータ線計数特性にも現れている。

第 3 章の実証実験の場合から蛍光の導光路を変更し収集効率を大きくした本実験の場合の計数効率を比較すると、改善が見られた。これは、ベータ線による蛍光発生位置から光電子増倍管までの距離が小さくなり、蛍光の収集効率の向上による効果である。しかし、この改善された計数率でも、Miramonti によるプラスチックシンチレータの計数効率評価から想定される計数効率には届いていない。

#### 4.5.2 反射材を使用した場合の評価

図 4.8 と図 4.9 に示された Cs-137 内部転換電子ピークの半値幅評価の比較により、対向式プラスチックシンチレーション検出器は反射材塗布プラスチックシンチレーション検出器に比べて、取得できる波高分解能が優れていることが明らかになった。

計数効率の評価では光電子増倍管が 1 本で反射材を使用しても同程度であるか 5 % 以内の改善が見られる程度であることが示された。しかし、波高分布下端のノイズ成分は、光電子増倍管を遮光してからの静置時間や電気ノイズにより変化が見られた。特に、本研究のように、試料交換のたびに光学接続を切り、光電子増倍管の光電面を外光に曝すことが不可避な場合は、大きな問題となる。一方で、2 本の光電子増倍管が対向する場合は、2 本の光電子増倍管での同時計数条件をかけてノイズを低減できる利点がある。したがって、光電子増倍管が 1 本で反射材を使用しても、光電子増倍管 2 本が対向する場合の計数効率を著しく改善することはできず、ノイズ成分の影響を受けやすくなるため、必ずしもベータ線計数効率の改善につながらない。

光電子増倍管 2 本が対向した場合と光電子増倍管が 1 本で反射材を使用した場合の、互いの蛍光の導光過程を比較する。光電子増倍管 2 本が対向した場合では、光電子増倍管 1 本あたりの受光量が減少するため、光電子増倍管の自己ノイズの中にベータ線検出による信号が埋もれて、計数効率下がっている可能性がある。一方で、光電子増倍管が 1 本で反射材を使用した場合では、反射の漏れにより光電子増倍管の受光量が減少する。波高分解能の評価からこの両者を比較すると、波高が小さい場合は前者の損失による影響が見られ、波高が大きい場合は後者の損失による影響があることが示された。

#### 4.5.3 プラスチックシンチレータのサイズを変更した場合の評価

プラスチックシンチレータを小型化し、光電子増倍管を光電面が小さくゲインが高い指頭型 PMT に変更した。その結果、得られた波高分布の形状に変化が見られた。

Cs-137 の波高分布では、内部転換電子ピークの崩れが見られた。光電子増倍管の変更に伴い、波高リニアリティの上限が H3177-50 の 500 mA(変動 5%) から、指頭型 PMT では 10 mA に大きく下がった。これが影響し、Cs-137 波高分布の内部転換電子ピークが崩れていると考えられる。したがって、高いベータ線エネルギーを放出する核種の場合も、600 keV 程度以上の成分については、波高情報を得ることは困難であると考えられる。

一方、Cd-109 の波高分布では、低波高領域の下端付近に、H3177-50 の場合には見られなかった計数率の上昇が見られた。これは、L 殻オーージェ電子 (2-4 keV) による蛍光発生を計数している可能性がある。

Cs-134 の波高分布での、図 4.15 の 600-800 ch の計数率の低下の原因は不明である。この領域から低波高領域にかけては、Cs-134 の最大エネルギー 89 keV のベータ線放出ブランチが計数率へ寄与している。そのため、波高下端にかけて計数率が上昇した。

プラスチックシンチレータと光電子増倍管の小型化により、計数効率の向上が図られた。その結果、Cs-134の計数効率が、第3章の実証実験での最大74%、4.2節のH3177-50を使った場合の最大80%から91%にまで改善された。これは、Cs-134のベータ線放出スペクトルから計算される10 keV以上のベータ線を全て計数している場合に相当する。10 keV以下の低いエネルギー領域では、蛍光発生収集だけでなく、非常に寄与が小さいと考えていた試料中での自己吸収が大きく影響すると考えられる。

## 4.6 本章のまとめ

本章では、ベータ線計数効率の改善に向けて、主に3つの視点から実験的に検討を行った。

まず、同じ試料とプラスチックシンチレータに対して、光電子増倍管の配置を変更し、蛍光の導光路の影響について調べた。その結果、前章の実証実験からは改善が見られたものの、過去の文献から期待されるプラスチックシンチレーション検出器での計数効率には及ばなかった。

次に、プラスチックシンチレータの円面片側に反射材を施し、その反対側に1つの光電子増倍管を接続する方式をテストした。その結果、2つの光電子増倍管で測定した場合からは、同程度か最大5%程度の改善が見られたが、1つの光電子増倍管の場合、信号成分の下端領域でノイズとの切り分けが困難であった。そのため、反射材と1つの光電子増倍管を使用する方式は、必ずしも有利ではなかった。

次に、プラスチックシンチレータと光電子増倍管を小型化した測定を実施した。光電面が小さいもののゲインが十分に高いR9880U-210を光電子増倍管として採用した。前置増幅器をCanberra製2005に変更した。その結果、Cs-134の計数効率は90%を超え、前章の実証実験の最大74%から大幅に改善された。

この結果は、第6章での核種混在試料中の純ベータ核種を測定する装置に反映する。

## 第5章

# 効率外挿曲線のシミュレーション

本章では、第4章に引き続き、核種混在試料中の純ベータ核種を測定する装置の課題について検討する。

第3章では、本測定手法に用いる装置の課題として、ガンマ線検出器の違いによる効率外挿曲線への影響を検討することが挙げられた。

本章では、下記の点について述べる。

- 効率外挿曲線のシミュレーションに用いる線源プログラムの詳細
- シミュレーションによる効率外挿曲線の模擬
- 効率外挿曲線に変化を与えるパラメータの検討

### 5.1 緒言

$4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法における測定では、ベータ線計数効率を変化させて放射能を決定する効率外挿曲線を描く。ベータ線検出器、ガンマ線検出器の測定に関わる特性パラメータの違いにより、この効率外挿曲線が変化の様子を計算で模擬し、外挿による不確かさ低減を目指したいというモチベーションは、本研究のみならず  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法の研究全体に存在する。この効率外挿曲線のシミュレーションのためには、ガンマ線だけでなくベータ線も同時に放出する線源プログラムを開発する必要がある。

本章では、ベータ線、ガンマ線の放出を崩壊形式の通りに模擬するプログラムを開発し、電子・光子輸送モンテカルロコード EGS5 [85] に組み込むこととした。このプログラムにより、ガンマ線検出器の計数効率を計算できるだけでなく、効率外挿曲線を模擬できるようになる。

$4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置の場合、ガンマ線検出器でも高い計数効率求められる。そのため、1) ベータ線検出器の中の試料にガンマ線検出器をできるだけ近づける、2) ガンマ線検出器を大きくする、3) 井戸型ガンマ線検出器を採用する、などの手段によりガンマ線検出器を配置した例がある。

しかしながら、ガンマ線検出器の計数効率を上げるために立体角を大きくした場合の計数効率は、サムコインシデンス効果を考慮して見積る必要がある。ここで開発する線源プログラムは、核

種データの通りにガンマ線放出し、サムコインシデンス効果を考慮することができる。

これまでに、シミュレーションによりベータ線検出器とガンマ線検出器の応答を模擬して得られる計算結果から  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数法における外挿曲線形状の解明と、それにより  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置の最適化を試みた例がある。本研究では、それらの先行研究で用いられたあらかじめ応答曲線を用意して計算する手法ではなく、ベータ線とガンマ線を同時に放出したとみなせる状態を模擬し、その中で出力される結果をリストデータとして取扱っている。そのため、本研究でのシミュレーションの結果から、1) ベータ線放出分岐比を考慮した効率外挿曲線を模擬でき、また、2) 検出されるベータ線検出器、ガンマ線検出器の特性を考慮して模擬できる。

## 5.2 線源プログラムの詳細

図 5.1 に、ベータ線、ガンマ線の放出を模擬する線源プログラムのブロック図と EGS5 コードによる輸送計算に必要なファイルを示す。線源プログラムは、通常の EGS5 コードのユーザーコードの中に組み込んだ。物質情報、幾何情報を記述するインプットデータに加え、放射性核種崩壊データファイルを用意した。以上のプログラムとファイルにより、実際の崩壊と同じようにベータ線とガンマ線を同時に放出し、周囲の物質との相互作用を取扱うシミュレーションが可能になった。

放射性核種崩壊データファイルには、参照データの通りのベータ線、ガンマ線の放出比と崩壊形式が取り込まれた。このデータには、(1) 親核種から各励起準位へ移るベータ崩壊の分岐比、(2) 各励起準位からのガンマ崩壊の分岐比、ガンマ線エネルギー、内部転換電子の放出割合が含まれている。

線源プログラムは、線源発生位置を決定した後、励起準位の選択から始まる。励起準位が決定されると、各励起準位で異なるベータ線放出エネルギー分布に沿った確率で、放出されるベータ線のエネルギーが決定される。それぞれのベータ線放出エネルギー分布は ICRU report 56 [86] により示されている近似式にて算出した。ベータ線の発生方向は全方向一様分布で乱数により決定した。これらのパラメータの決定の後に、ベータ線を輸送する。物質内で吸収されるか関心領域外に飛び出してしまふまでの相互作用の過程は EGS5 コードの輸送ルーチンにより模擬した。

ベータ線の輸送が終了した後に、同じイベントとしてガンマ線放出と相互作用を扱う。励起準位からの崩壊経路が崩壊分岐比の割合に沿った確率で決定されると、ガンマ線のエネルギーはそれぞれの崩壊経路に固有に決まる。ガンマ線の発生方向は、ベータ線の方向とは無関係に、全方向一様分布で乱数により決定し、 $\beta\text{-}\gamma$ 、 $\gamma\text{-}\gamma$  のいずれも角相関は考慮していない。また、内部転換電子放出に伴う特性 X 線やオージェ電子の放出についても含まれていない。この条件下でガンマ線の放出と相互作用を模擬した。このガンマ線の発生・輸送は、基底準位に達するまで繰り返す。この線源プログラムでは、ベータ線とガンマ線の発生位置は全く同一である。

この線源プログラムとそれを組み込んだシミュレーションにより、ベータ線検出器とガンマ線検出器に設定された領域での付与エネルギーが計算される。一回の崩壊に伴うイベントを共有し、出力されるデータはそれぞれの崩壊ごとでリスト化される。このシミュレーションにより得られるデータがリストデータであるため、後述のように効率外挿曲線を描くことができる。

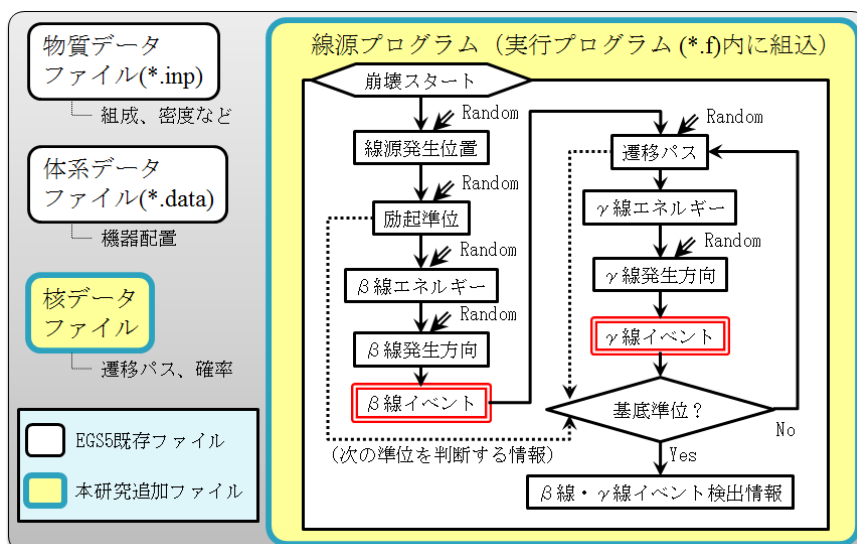


図 5.1 ベータ線、ガンマ線放出計算プログラムのブロック図と EGS5 輸送計算に必要なファイルの一覧

表 5.1 線源プログラムの結果と参照値のガンマ線放出割合の比較

keV	BIPM-5 [10] (%)	TOI [1] (%)	本研究 (%)
242.8	0.02	0.02	0.02
326.5	0.01	0.02	0.02
475.4	1.5	1.5	1.5
563.2	8.4	8.3	8.4
569.3	15.4	15.3	15.4
604.7	97.6	97.6	97.6
795.8	85.4	85.5	85.5
801.9	8.7	8.7	8.7
1038.6	1.0	1.0	1.0
1167.9	1.8	1.8	1.8
1365.2	3.0	3.0	3.0

## 5.3 線源プログラムの妥当性の検証

### 5.3.1 文献値との比較による検証

開発した線源プログラムが正しく動作していることを確かめるために、Cs-134 に対する線源プログラムにより発生が模擬されるベータ線エネルギースペクトルとガンマ線放出割合を文献値（入力値）[86, 87] と比較した。

Cs-134 のベータ線放出エネルギースペクトルを図 5.2 に示す。ICRU56 は近似式より計算される分布を各分岐比で重みをかけて表示している。ICRP107 は、出典元のデータのままだに各ベータ線エネルギー点での放出割合を表示している。線源プログラムにより放出されるベータ線のエネルギー分布は、全エネルギー領域にわたり入力値・参照値を良く再現していることが確かめられた。

表 5.1 に Cs-134 のガンマ線の放出割合を対応するガンマ線エネルギーごとに示す。全てのガンマ線エネルギーの放出割合が、線源プログラムと参照値で良く一致している。線源プログラムでは、ガンマ線が放出される割合を各励起準位からの分岐比として入力している。出力された結果は、一連の崩壊を通じた結果の放出割合を示しており、その結果は文献値と一致した。

以上により、崩壊の途中の親核種からのベータ線分岐比、励起準位からのガンマ線分岐比を含めて正しく動作していることが確かめられた。



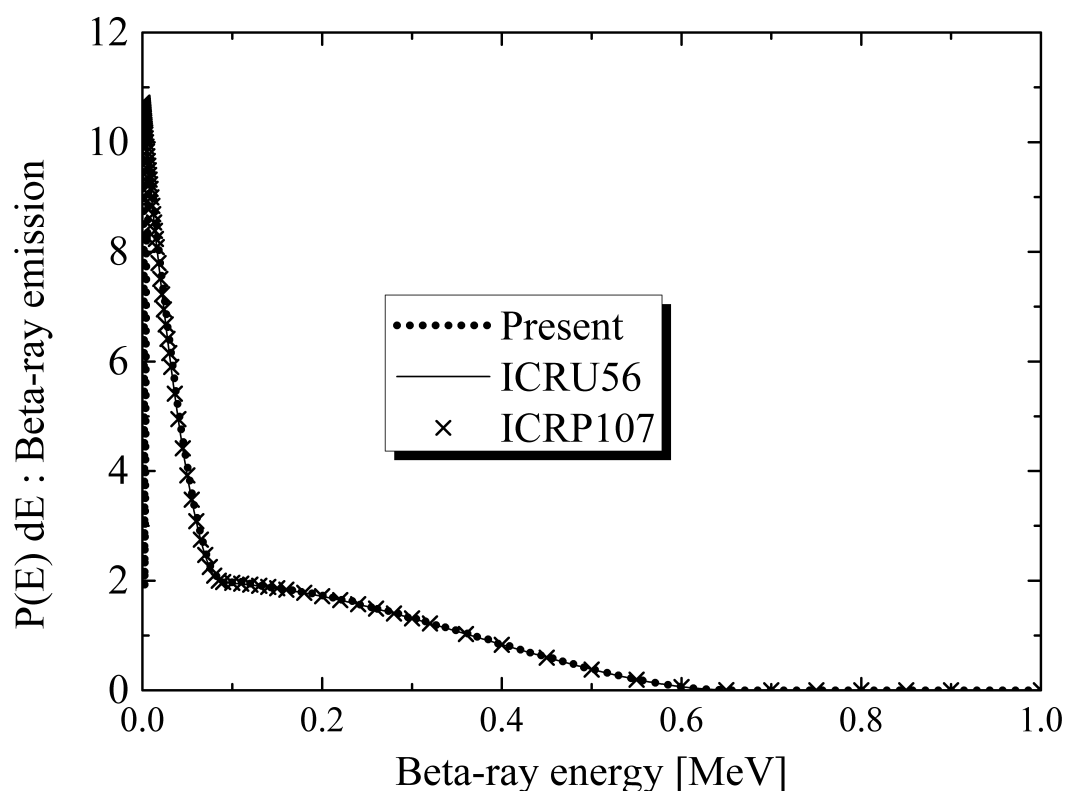


図 5.2 線源プログラムによる結果と参照値のベータ線放出エネルギースペクトルの比較

### 5.3.2 実測のサムコインシデンス効果評価による検証

本章で開発された線源プログラムは、ガンマ線放出部分だけに注目すると Cs-134 のようなマルチカスケード核種によるサムコインシデンス効果を模擬できる。(公社)日本アイソトープ協会から頒布されているアルミナ粉末製の放射能標準ガンマ体積線源 [88] (図 5.3) を使って、線源プログラムでサムコインシデンス効果を正しく模擬できるかどうかを検証した。

この体積線源では U8 容器にアルミナ線源が密封されている。Cd-109、Co-57、Ce-139、Cr-51、Sr-85、Cs-137、Mn-54、Y-88、Co-60 の 9 核種が混合されている標準ガンマ体積線源と Cs-134、Cs-137 混合の 2 種類が混合されている標準ガンマ体積線源を使用した。これらの核種の内、サムコインシデンス効果が現れる核種は Y-88、Co-60、Cs-134 である。Y-88、Co-60、Cs-134 の光電ピーク計数効率、サムコインシデンス効果によりガンマ線の吸収に沿った計数効率曲線から外れる。

標準ガンマ体積線源のそれぞれの核種の放射能は校正されており、付されている不確かさは 4.5 % (包含係数  $k=2$ ) から 5.3 % である。この標準線源により高純度ゲルマニウム半導体検出器の計数効率を実測した結果を、開発された線源プログラムによる計算結果と比較する。

測定では高純度ゲルマニウム半導体検出器 (ORTEC、GEM-130225) を使用した。この検出器は、厚さ 10 cm 以上の鉛遮蔽体の中に設置された。この検出器の結晶直径は 89.8 mm、結晶長さは 99.6 mm で、結晶からエンドキャップまでは 4 mm である。図 5.4 に示すように、標準ガンマ体積線源を使用し、測定器のエンドキャップ上に直接置いた。

図 5.5 に高純度ゲルマニウム半導体検出器の計数効率曲線を示す。表 5.2 に核種別の実測値と計算値の計数効率の比較を示す。計数効率曲線からのサムコインシデンス効果による補正は、(a)Cs-134 の 605 keV で 0.851、(b)Y-88 の 898 keV で 0.892、(c)Co-60 の 1173 keV で 0.905 と評価された。サムコインシデンス効果が現れる核種を含む、どの核種のエネルギーにおいても、実測値と計算値は 3 % 以内で一致した。この差異は、標準ガンマ体積線源の不確かさの範囲内であり、標準ガンマ体積線源の均一性や、高純度ゲルマニウム半導体検出器の結晶不感層、ハウジング位置、構造材などの不一致によると考えられる。

この結果から、開発された線源プログラムがガンマ線同時放出を正しく模擬し、サムコインシデンス効果を反映していることが示された。

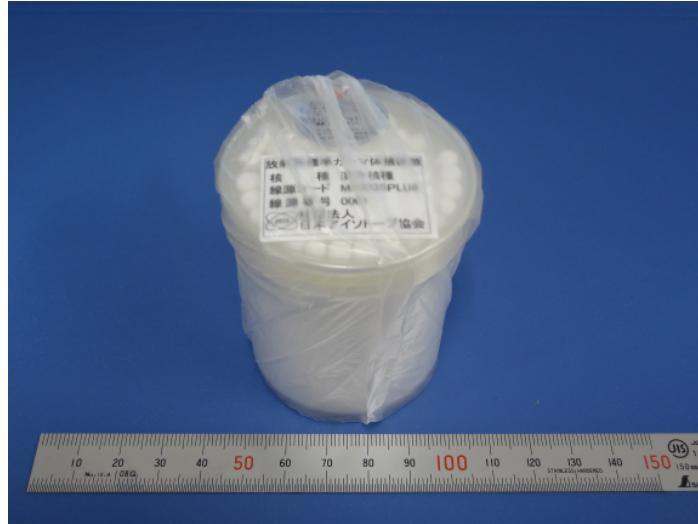


図 5.3 U8 容器タイプの標準ガンマ体積線源

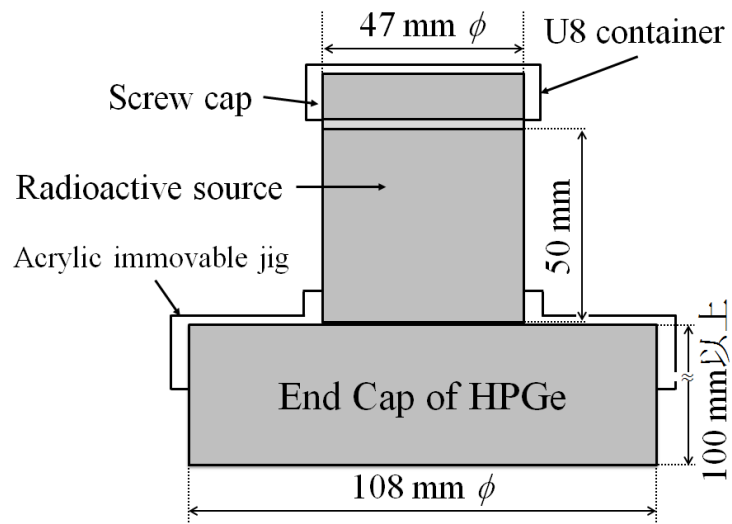


図 5.4 標準ガンマ体積線源を用いた高純度ゲルマニウム半導体検出器の計数効率評価のための測定配置図

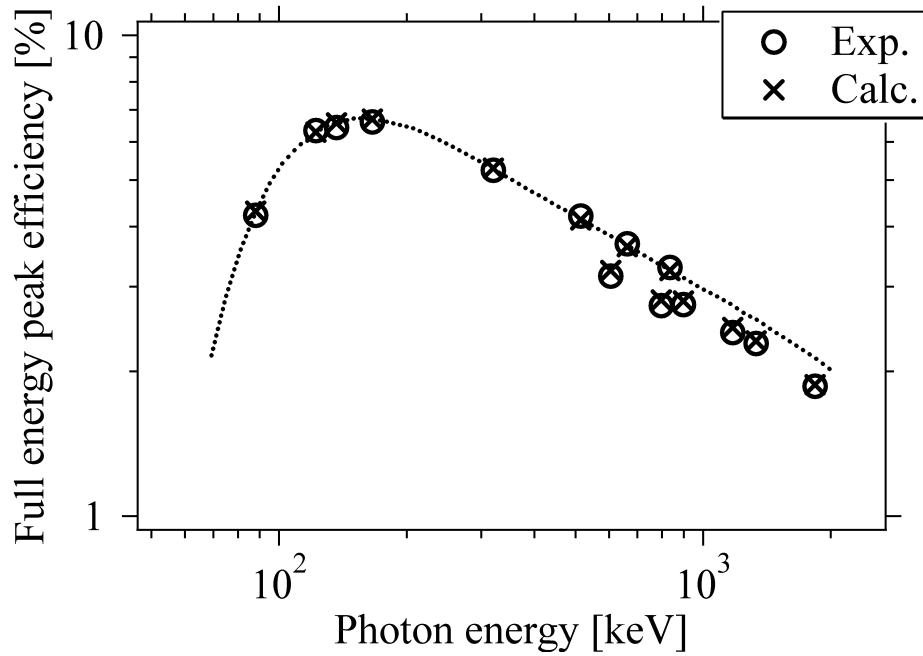


図 5.5 高純度ゲルマニウム半導体検出器の計数効率の実験値と計算値の比較

表 5.2 計数効率の実測値と計算値の比較

核種	(keV)	1-C/E (%)	U (%)	核種	(keV)	1-C/E (%)	U (%)
Cd-109	88.0	-1.94	5.3	Cs-137	661.7	+1.34	4.5
Co-57	122.1	+0.70	4.7	Cs-134	795.8+801.9	-2.70	4.5
Co-57	136.5	-2.30	4.7	Mn-54	834.8	+1.47	4.7
Ce-139	165.9	-1.34	4.7	Y-88	898.0	-1.69	4.7
Cr-51	320.1	-0.94	4.8	Co-60	1173.2	-2.72	4.7
Sr-85	514.0	+1.74	4.9	Co-60	1332.5	-1.28	4.7
Cs-134	604.7	-2.76	4.5	Y-88	1836.1	-1.39	4.7

## 5.4 $4\pi\beta - \gamma$ 同時計数装置への適用

本節では、開発された線源プログラムを、3章の実証実験で用いた  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置で Cs-134 単体試料を測定した場合（実証実験の Sample(a) の場合、3.2.3 節）に適用して計算コードを実行する。この線源プログラムにより、 $4\pi\beta - \gamma$  同時計数法の効率外挿曲線を模擬できることを示す。このシミュレーションは、ベータ線検出器とガンマ線検出器の測定に関わる特性パラメータが効率外挿曲線に及ぼす影響を検討するために用いられる。また、 $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置に用いられるガンマ線検出器の計数効率を算出するためにも用いられる。

### 5.4.1 計算コードによる効率外挿曲線の模擬

シミュレーションの結果、1つの線源プログラムの実行ごとにベータ線検出器とガンマ線検出器での付与エネルギーが得られる。その1つ1つのイベントをそれぞれの検出器での検出イベントと見なした。プログラムにより、各イベントの条件「ベータ線検出エネルギーがしきい値を超えているか」、条件「ガンマ線検出エネルギーが計数領域内であるか」、条件「前述の2条件を両方共に満たしているか」を判断し、それぞれをベータ線検出イベント、ガンマ線検出イベント、同時計数イベントとして計数した。この条件を判別する際のベータ線検出のしきい値を変化させて、計算コードによる効率外挿曲線を模擬した。また、複数のガンマ線エネルギーの計数領域に対応して、それぞれのガンマ線計数と同時計数を求めて、効率外挿曲線を描画する。線源プログラムの実行回数を放射性核種の壊変数と見なして規格化した。

この計算手法により模擬された効率外挿曲線を図 5.6 に示す。複数のガンマ線計数領域に対して計算値から外挿曲線を描き、全ての曲線は y 軸で真値（規格化された 1）に収束した。複数のガンマ線計数領域は、互いに主な光電ピーク、サムピークの領域とコンプトン領域の有無が異なる。プロットした点は、沈着したエネルギーが全て計数されたと仮定して、しきい値を y 軸に近い側から 10 keV から 150 keV まで 10keV ずつで区切ったときのガンマ線計数、同時計数から計算された見かけ上のベータ線効率と放射能を表している。ガンマ線ゲートの違いにより、外挿曲線の形状が異なっている。Cs-134 の最大ベータ線エネルギー 89 keV の計数が現れる領域と外挿曲線の傾きが変化する領域が重なっており、ベータ線分岐比が外挿曲線の傾きに影響していることがわかる。

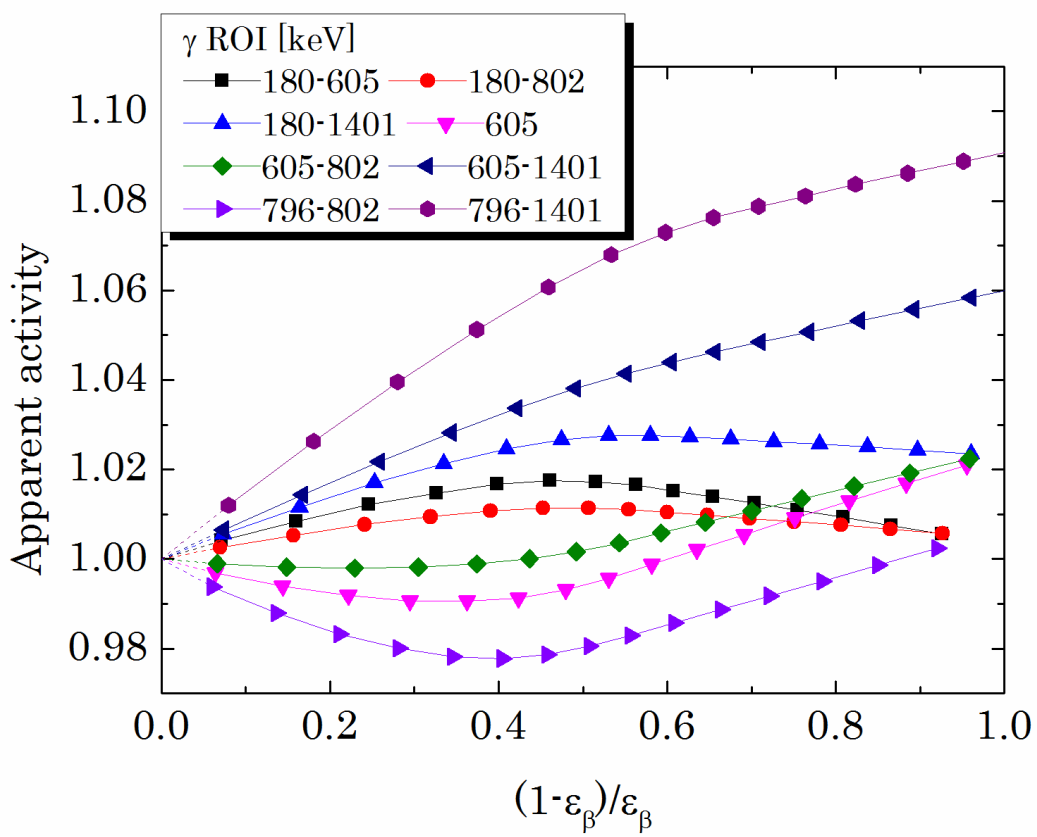


図 5.6 実証実験用測定器に対する計算により模擬された効率外挿曲線

## 5.5 考察

### 5.5.1 効率外挿曲線を変化させるパラメータの検討

計算により実測の効率外挿曲線の変化を再現するためには、計算結果に対して、下記の項目について検討することとした。

- ベータ線計数効率
- ベータ線波高分解能
- ガンマ線検出器の位置
- ガンマ線波高分解能
- ガンマ線エネルギーの計数領域のウィンドウ幅

これまでの実測上の経験で、同じ核種を対象とした測定であっても、ベータ線検出器とガンマ線検出器の組み合わせやガンマ線検出器の配置 [89] により効率外挿曲線の形状が変化することがわかっている。

#### ベータ線計数効率

図 5.7 に示すように、ベータ線計数効率が低下する 5 つの場合を仮定した。この仮定でのベータ線計数効率の変化が効率外挿曲線へ及ぼす影響を調べた。計算結果より得られるベータ線検出器領域への付与エネルギーに対して、図 5.7 に応じたウェイトをベータ線計数、同時計数にかけた。その結果として得られた外挿曲線の変化を図 5.8 に示す。図 5.8 の黄色四角で示した数字は、仮定された 10 keV での計数効率を示している。

ここでは、後述のベータ線波高分解能、ガンマ線波高分解能は考慮しておらず、ガンマ線検出器の位置は体系中心から 12 mm、ガンマ線エネルギーの計数領域はピーク上側に対して +0.1 %、下側に対して -0.1 % とした。

図 5.8 に示すように、ベータ線計数効率により効率外挿曲線の傾きが大きく変わらないことがわかる。しかしながら、計数効率が下がると、同じ効率外挿曲線上での y 軸に最も近い点の位置が y 軸から離れていく傾向が認められる。これは、外挿曲線フィッティングの残差から計算される外挿の不確かさが大きくなることを意味している。

また、例えば、605-802 keV ガンマ線ゲートの外挿曲線のように、効率が低い場合、y 軸に最も近い点付近で曲線形状が変化する場合がある。これは、実測の場合の外挿フィッティングでは、絶対値を決めるためのフィッティング関数のパラメータ設定が困難になることを意味している。

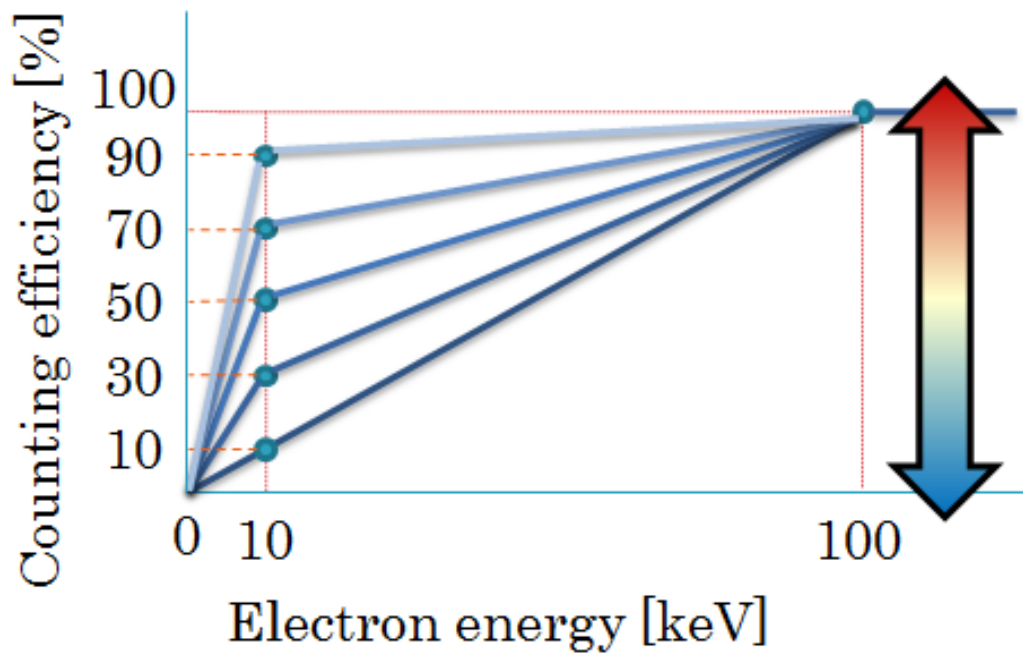


図 5.7 効率外挿曲線への影響を評価するために仮定したベータ線計数効率の変化



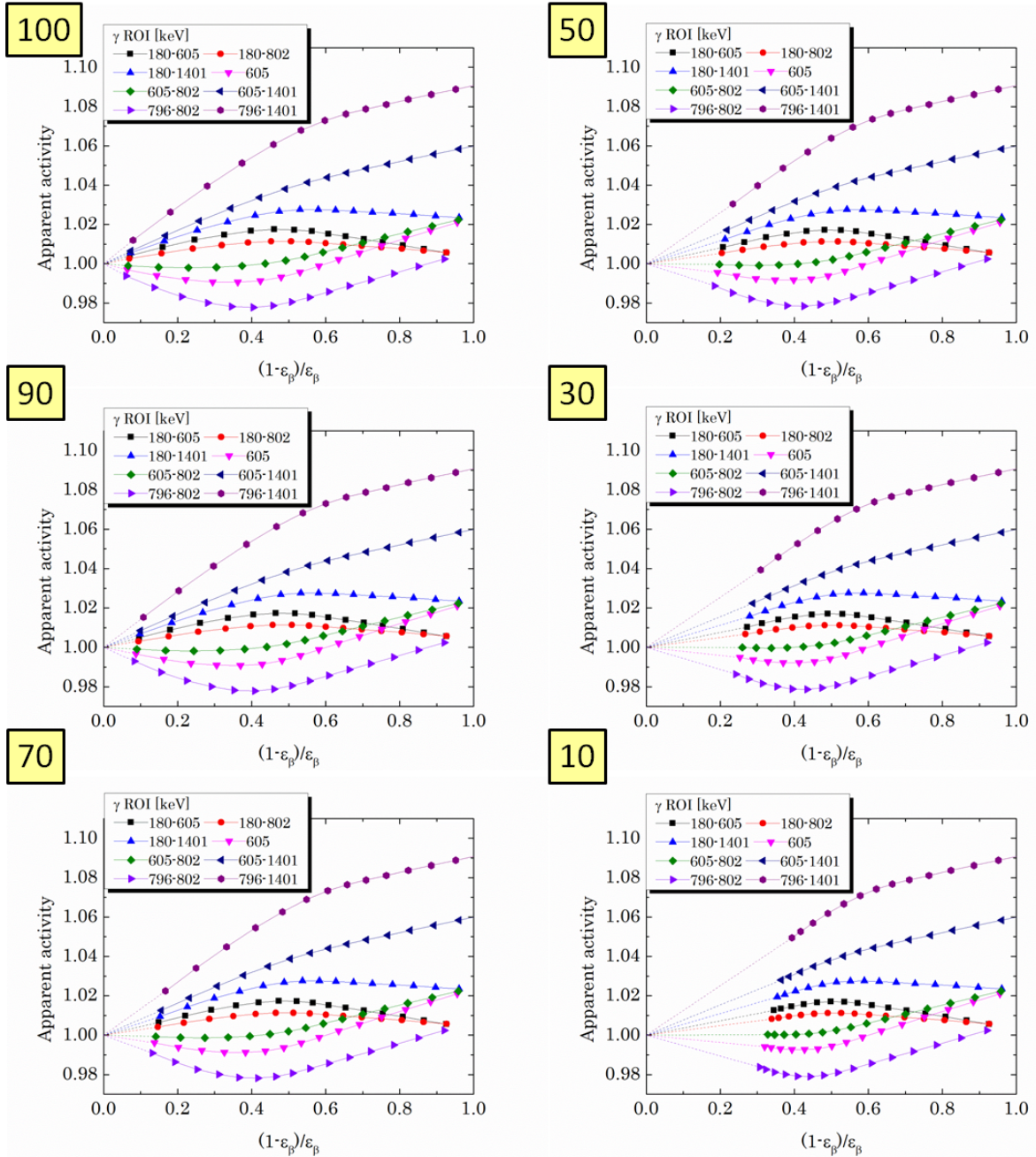


図 5.8 ベータ線計数効率の変化による効率外挿曲線の変化 (黄色四角で示した数字は、仮定された計数効率の 10 keV での値)

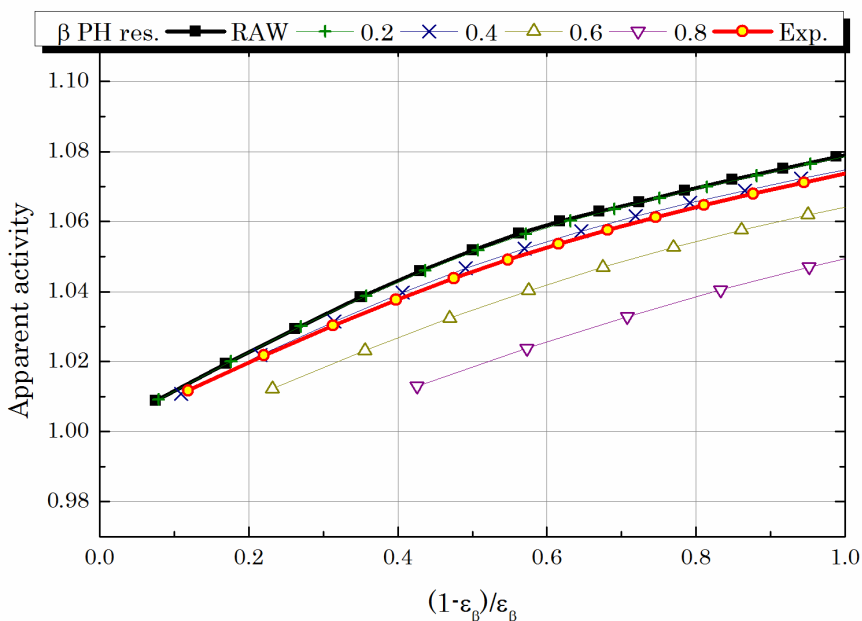


図 5.9 効率外挿曲線へのベータ線波高分解能の影響 (ゲート:605 keV)

### ベータ線波高分解能

計算結果に対して波高分解能を反映させるために、計算結果で得られた付与エネルギーを中心に、ガウス分布でウェイトを振り分け、ガウス分布全体の総和が1になるように規格化した。この手法により波高分解能を変化させ、図 5.9 に 605 keV ピークにゲートをかいた外挿曲線、図 5.10 に 605 keV ピークから 802 keV ピークまでゲートをかいた外挿曲線、図 5.11 に 796-802keV ピークにゲートをかいた外挿曲線を示す。これらの図では基の外挿曲線 (RAW) から、全てのベータ線に対してガウス分布の標準偏差が 0.2、0.4、0.6、0.8 を仮定した場合を示した。実証実験では、Cd-109 の K 殻オージェ電子ピークの半値幅は 100 % を超え、Cs-137 の内部転換電子ピークの半値幅は 20 % 程度だった。この 2 点間の半値幅が電子エネルギーに対して比例関係であると仮定した場合の外挿曲線 (Exp.) も併せて示している。

ここでの結果は、前述のベータ線計数効率を考慮しておらず、後述のガンマ線波高分解能は半値幅 6 %、ガンマ線検出器の位置は体系中心から 12 mm、ガンマ線エネルギーの計数領域は対象エネルギー範囲の上側に対して +10 % と下側に対して -10 % である。

これらの結果より、いずれのガンマ線ゲートの効率外挿曲線においても、ベータ線波高分解能が著しく劣化し、全エネルギー領域で半値幅が 100 % 以上になると、外挿の結果が真値を示さないことが示唆された。一方で、前述の実証実験を仮定した半値幅では考慮しない場合と比べ、わずかに傾きが鈍化し、y 軸からの距離が僅かに離れた。実測の条件では、ベータ線波高分解能は効率外挿曲線に対して大きくは寄与しないことが示された。

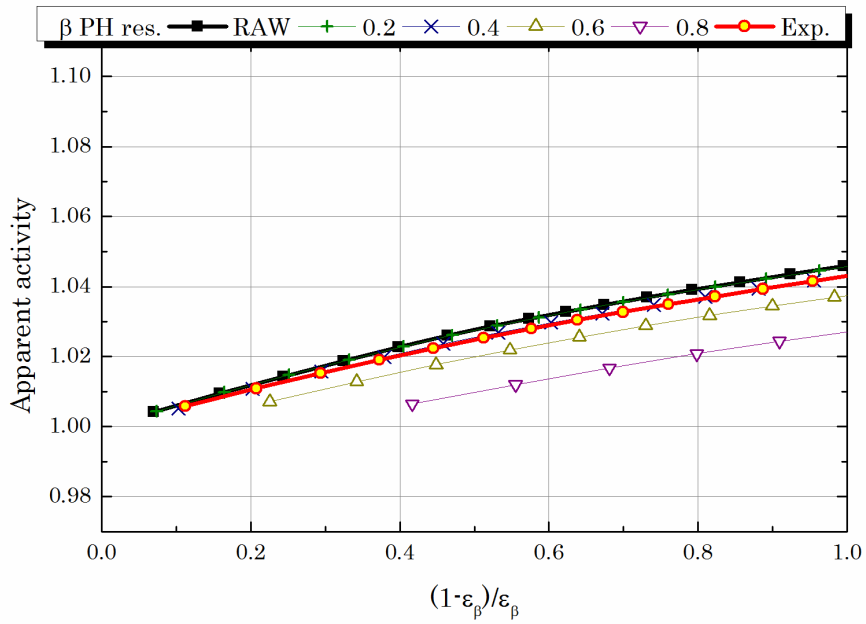


図 5.10 効率外挿曲線へのベータ線波高分解能の影響 (ゲート:605-802 keV)

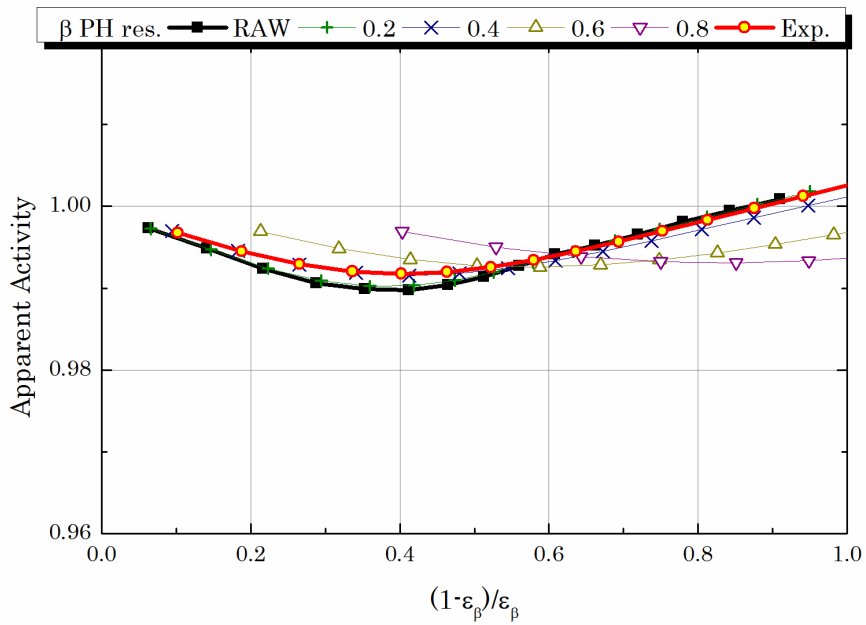


図 5.11 効率外挿曲線へのベータ線波高分解能の影響 (ゲート:796-802 keV)

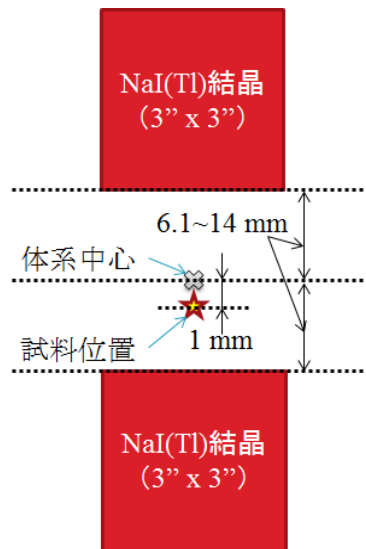


図 5.12 効率外挿曲線への影響を評価するために変化させたガンマ線検出器 (NaI(Tl) 結晶) の位置

#### ガンマ線検出器の位置

$4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置では、試料と検出器間が近いために、ガンマ線検出器のエンドキャップ位置だけではなく、封じられたガンマ線検出器筐体内の結晶本体の位置が計数率に影響する。図 5.12 に示したように、体系中心あるいは試料位置からの距離を 6.1 -14 mm で結晶位置を変化させ、効率外挿曲線の変化を調べた。図 5.13 に 605 keV ピークにゲートをかけた外挿曲線、図 5.14 に 605 keV ピークから 802 keV ピークまでゲートをかけた外挿曲線、図 5.15 に 796-802 keV ピークにゲートをかけた外挿曲線の変化を示す。

ここでの結果は、前述のベータ線計数効率の低下は考慮せず、ベータ線波高分解能は実測に則り、後述のガンマ線波高分解能は半値幅 6 %、ガンマ線エネルギーの計数領域は対象エネルギー範囲の上側に対して +10 % と下側に対して -10 % である。

以上述べたように、ガンマ線検出器の位置により、効率外挿曲線の傾きや形状が大きく変化する。605 keV ピークの効率外挿曲線の場合、結晶が近い距離の場合は直線近似に近くなり、結晶が離れるにつれて多項式近似に近くなっている。605-802 keV ピークの効率外挿曲線の場合、結晶が遠い距離の場合は単調増加曲線あるいは直線であるが、近距離の場合は極点を持ち傾きが負から正に変化した。796-802 keV ピークの効率外挿曲線の場合、距離が近くなるにつれて、外挿曲線の負の傾きが急激に大きくなることを示している。

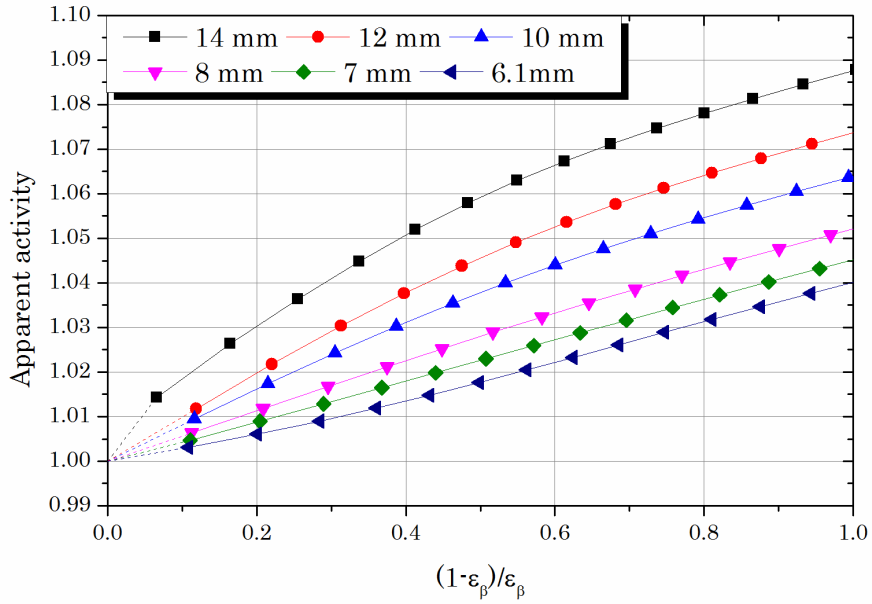


図 5.13 効率外挿曲線へのガンマ線検出器位置の影響 (ゲート : 605 keV)

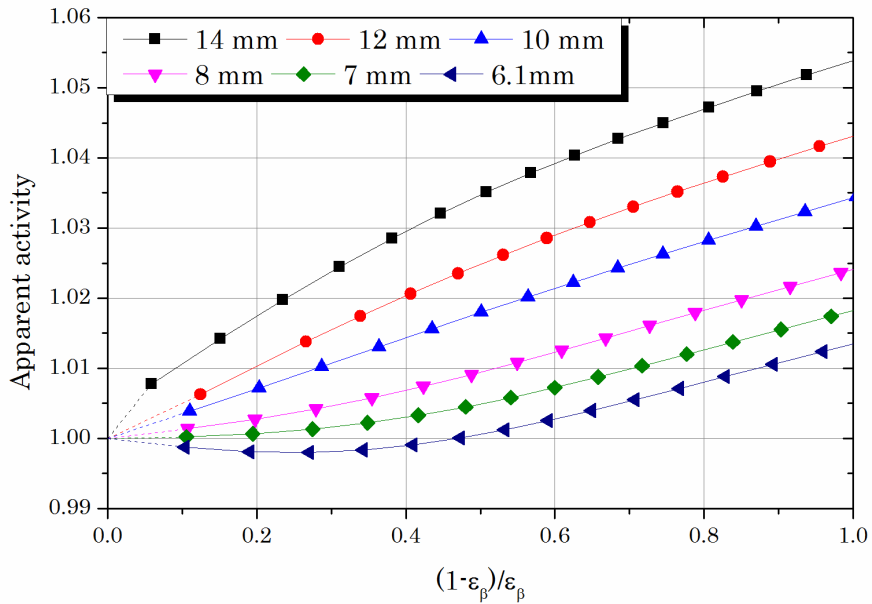


図 5.14 効率外挿曲線へのガンマ線検出器位置の影響 (ゲート : 605-802 keV)

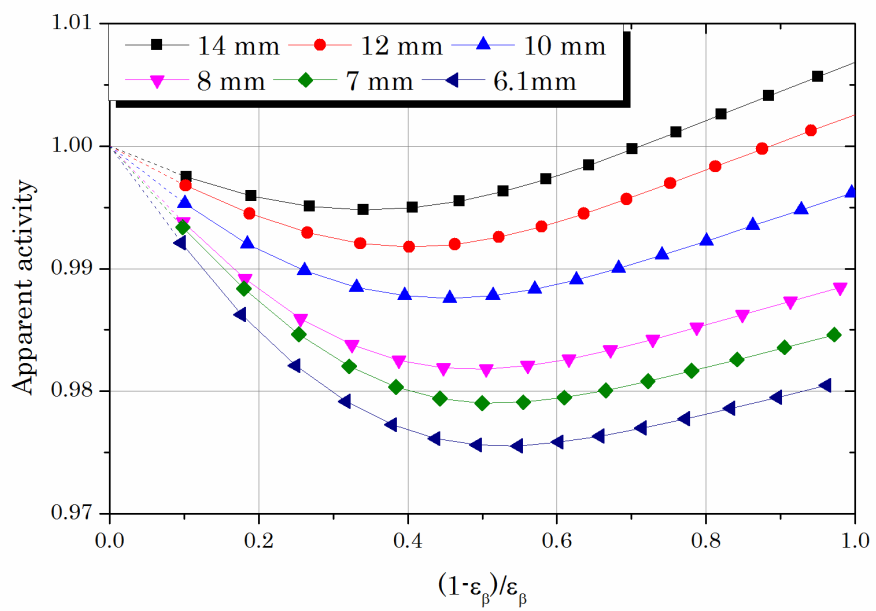


図 5.15 効率外挿曲線へのガンマ線検出器位置の影響 (ゲート : 796-802 keV)

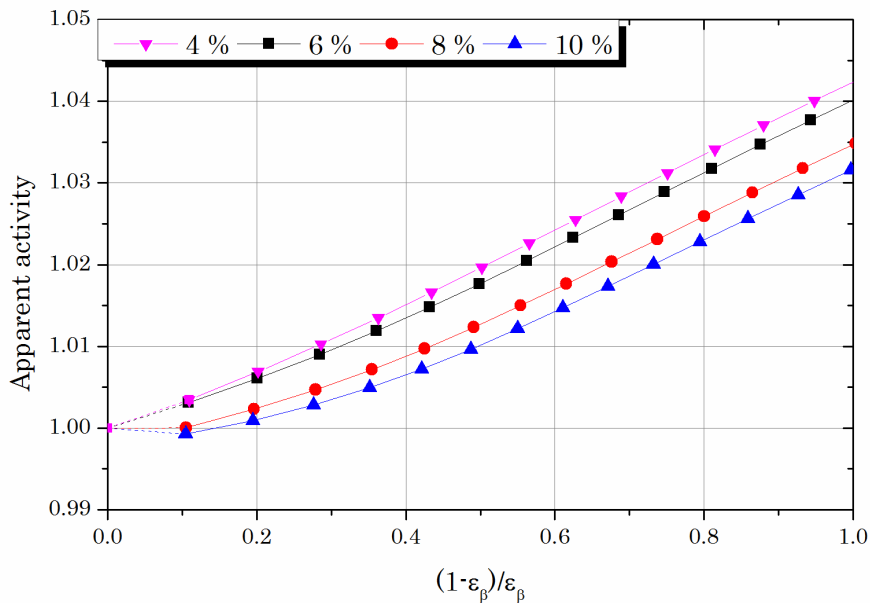


図 5.16 効率外挿曲線へのガンマ線波高分解能の影響 (ゲート:605 keV)

### ガンマ線波高分解能

実際のシンチレーション検出器によるガンマ線測定では、主に付与エネルギーと発光量の非線形性、発光量による統計的なばらつき、回路ノイズにより、エネルギー分解能に広がりを生じる。例えば、NaI(Tl) シンチレーション検出器の場合は、Cs-137 の 662 keV に対する分解能は半値幅で 6 % 程度である。この波高分解能を考慮するために、ベータ線波高分解能の場合と同様に、付与エネルギーを中心にしたガウス分布でウェイトを振り分け、半値幅を 4、6、8、10 % と変化させた場合の効率外挿曲線の変化を調べた。図 5.16 に 605 keV ピークにゲートをかけた外挿曲線、図 5.17 に 605 keV ピークから 802 keV ピークまでゲートをかけた外挿曲線、図 5.18 に 796-802keV ピークにゲートをかけた外挿曲線を示す。

ここでの結果は、前述のベータ線計数効率の低下は考慮しておらず、ベータ線波高分解能は実測に則り、ガンマ線検出器位置は 6.1 mm、後述のガンマ線エネルギーの計数領域は対象エネルギー範囲の上側に対して +10 % と下側に対して -10 % である。

605-802 keV ゲートの場合、ガンマ線波高分解能によって外挿による結果が真値から外れる場合がある。一方、605 keV 光電ピーク、796-802 keV 光電ピークゲートの場合、ゲート幅に対してピークが十分に小さい分解能である場合は、効率外挿曲線への変化は小さいが、ゲート幅と波高分解能が近づくると外挿曲線の形状が変化した。

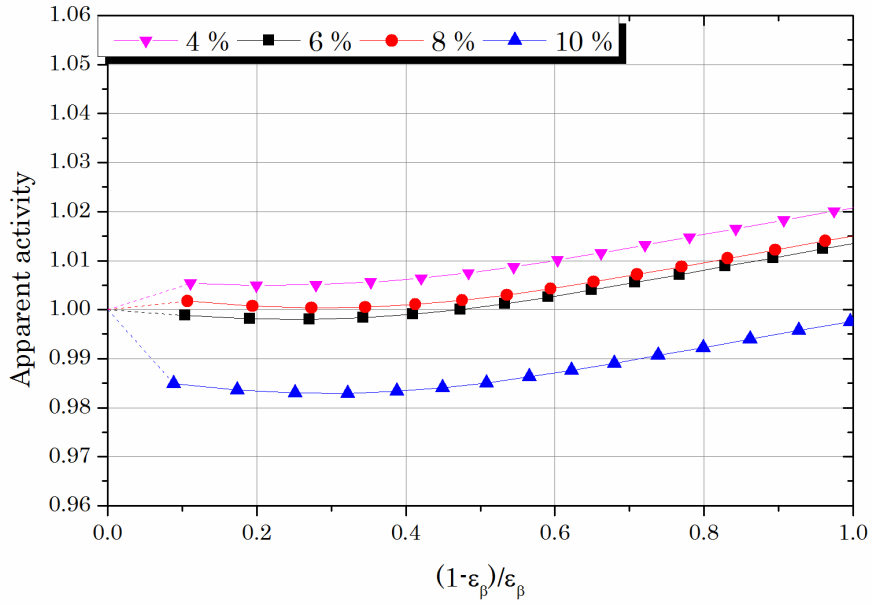


図 5.17 効率外挿曲線へのガンマ線波高分解能の影響 (ゲート:605-802 keV)

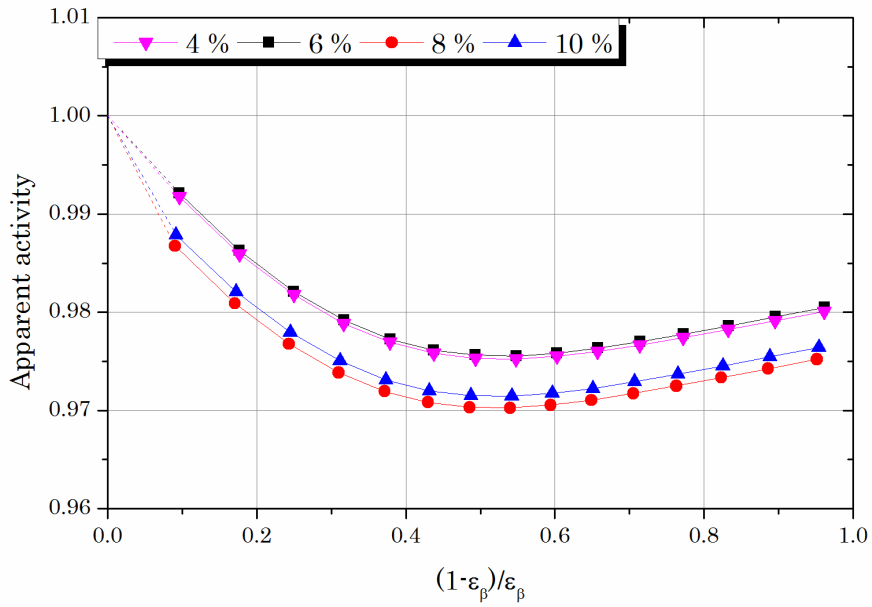


図 5.18 効率外挿曲線へのガンマ線波高分解能の影響 (ゲート:796-802 keV)



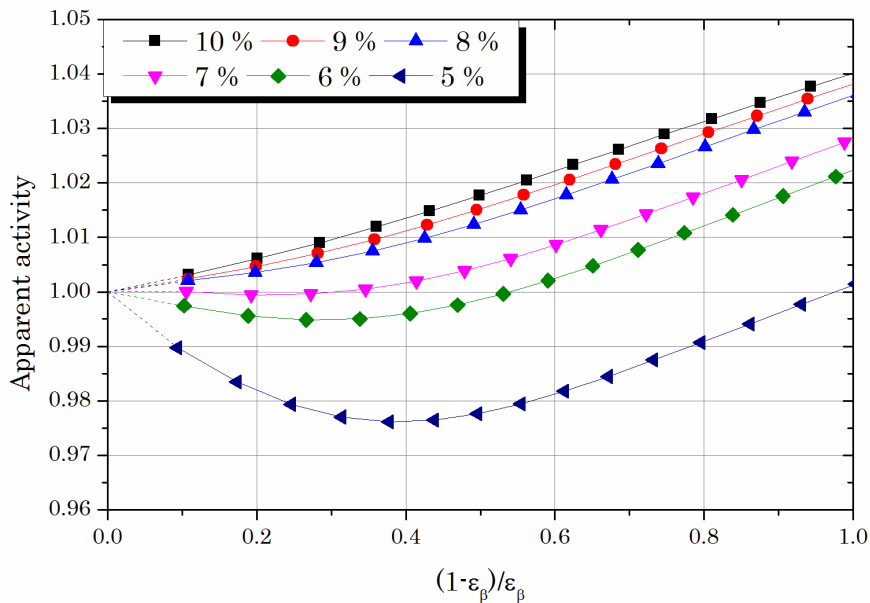


図 5.19 効率外挿曲線へのガンマ線計数ウィンドウ幅の影響 (ゲート:605 keV)

#### ガンマ線エネルギーの計数領域のウィンドウ幅

実証実験におけるガンマ線測定では、Cs-134 の光電ピークに対して中心から 10 % 程度のガンマ線エネルギーの計数領域のウィンドウ幅を設定した。このガンマ線計数領域のウィンドウ幅が及ぼす効率外挿曲線への影響を調べた。図 5.19 に 605 keV ピークにゲートをかかけた外挿曲線、図 5.20 に 605 keV ピークから 802 keV ピークまでゲートをかかけた外挿曲線、図 5.21 に 796-802keV ピークにゲートをかかけた外挿曲線を示す。

ここでの結果は、前述のベータ線計数効率の低下は考慮しておらず、ベータ線波高分解能は実測に則り、ガンマ線波高分解能は半値幅 6 %、ガンマ線検出器位置は 6.1 mm である。ウィンドウ幅は、ピーク上側と下側で対称に  $\pm 5-10\%$  の範囲で変化させた。

いずれの外挿曲線も、y 軸で真値に交わるように収束しているが、ウィンドウ幅によって外挿曲線の形状が大きく変化している。ウィンドウ幅が小さくなると、傾きが小さくなり、ウィンドウ幅の違いによる影響が大きくなる傾向を示した。

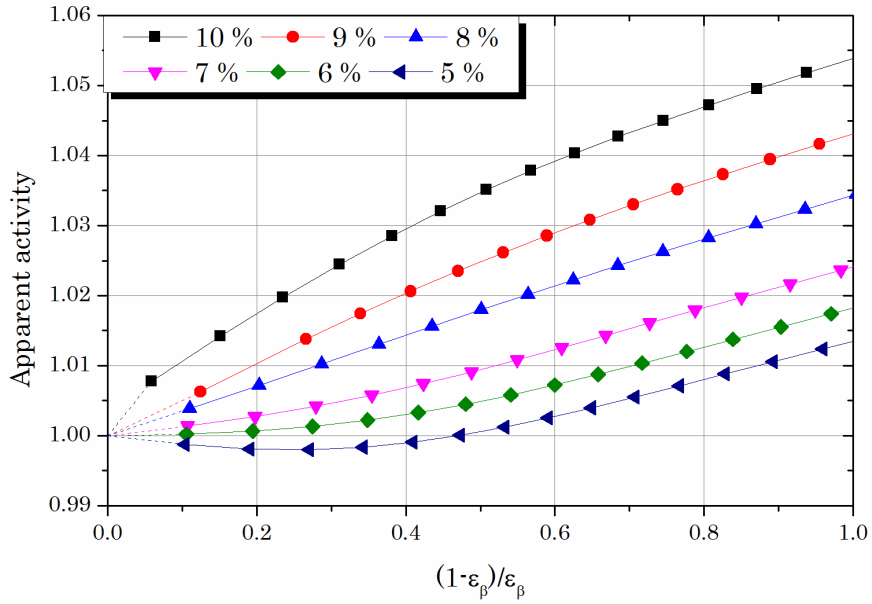


図 5.20 効率外挿曲線へのガンマ線計数ウィンドウ幅の影響 (ゲート:605-802 keV)

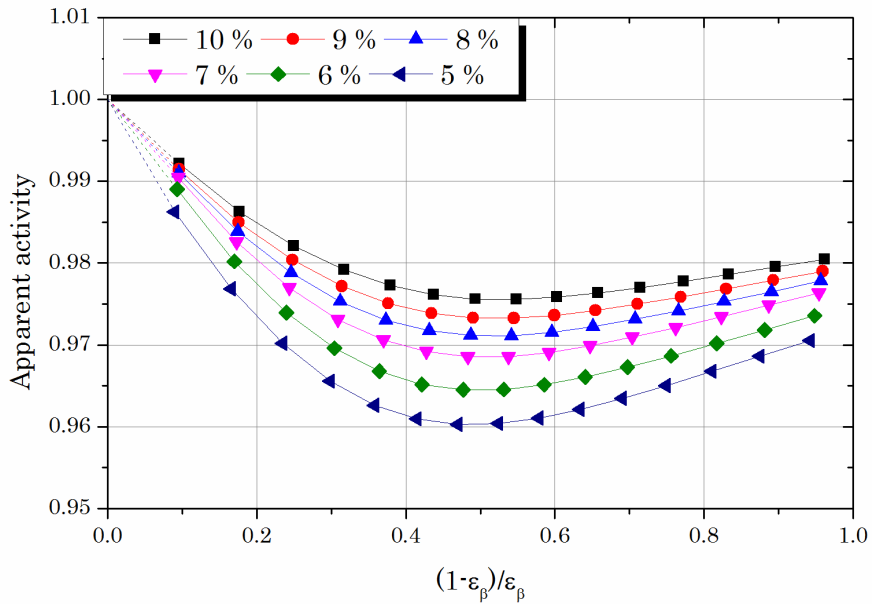


図 5.21 効率外挿曲線へのガンマ線計数ウィンドウ幅の影響 (ゲート:796-802 keV)

### 実測の効率外挿曲線との比較

これまでの計算結果に対して、効率外挿曲線に対する各変動パラメータの寄与について検討した。ここで、図 5.22 に 3.2.3 節の実証実験で実測した外挿曲線を規格化して示す。計算結果との比較をすると、605 keV ゲートと 796-802keV ゲートでは、

- ベータ線波高分解能：実測に則り仮定
- ガンマ線検出器の位置：体系中心から 6.1 mm
- ガンマ線波高分解能：6 %
- ガンマ線エネルギーの計数領域のウィンドウ幅:10 %

の条件（605 keV ゲート：図 5.19 の黒線、796-802 keV ゲート:図 5.18 の黒線）が最も近い形状となる。605-802 keV ゲートは、他のゲートの場合とは異なり、より狭いウィンドウ幅の方が近い結果となった。y 軸からの距離の違いは、実際のベータ線計数効率が低いためであると考えられる。これらの条件は、実際の条件に近く、計算による効率外挿曲線が実測した効率外挿曲線を模擬していることを示している。

以上の結果から、開発された線源プログラムを EGS5 コード内で実行して得られる検出器領域での付与エネルギーに対して、実際の検出器での測定条件を考慮することで、効率外挿曲線が模擬できることが示された。ただし、ゲート幅が広い場合には必ずしも効率外挿曲線を模擬できていない。これは、ゲート幅を広げた場合に計数率の中で寄与が大きくなるコンプトン成分が十分に模擬できていないためであると考えられる。

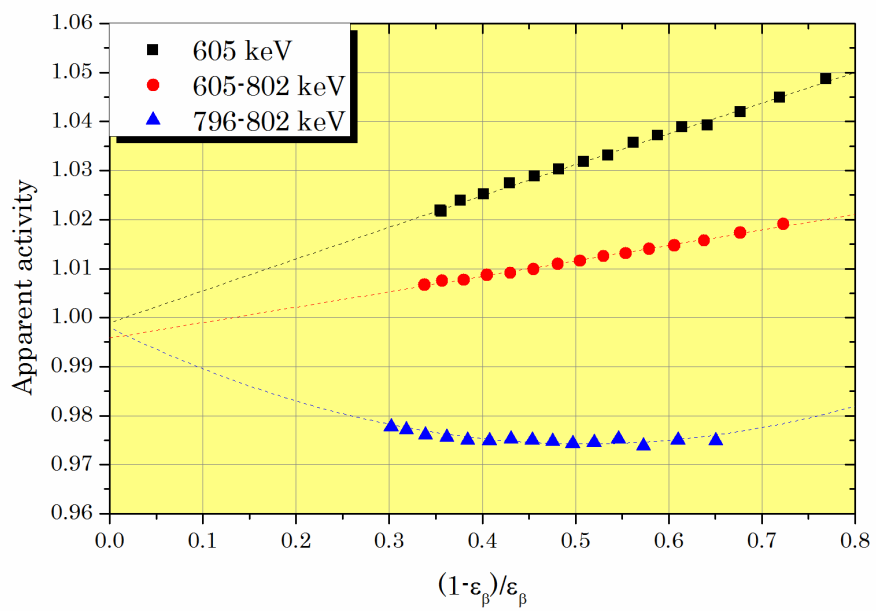


図 5.22 実証実験で実測した効率外挿曲線（比較のため規格化）

表 5.3 ガンマ線ウィンドウ幅と計数効率の変化

Window	605 keV [%]	605-802 keV [%]	796-802 keV [%]
10 %	16.7	32.9	14.4
9 %	16.2	32.3	13.8
8 %	15.7	31.6	13.2
7 %	15.0	30.8	12.5
6 %	14.2	30.1	11.9
5 %	13.1	28.8	10.9
実験値 (10 % )	16.3	30.2	11.6

### 5.5.2 計数効率の比較

表 5.3 に実験値と計算値のガンマ線計数効率の比較を示す。計算値ではガンマ線波高分解能は半値幅 6 % を仮定し、それに対してガンマ線ウィンドウ幅を 5-10 % で変化させた。実験値は上下いずれも  $\pm 10$  % 程度のゲート幅である。ガンマ線ゲートは 605 keV(光電ピークのみ)、605-802 keV(コンプトン成分含む)、796-802 keV(光電ピークのみ)、である。実験値と計算値は、どのガンマ線ゲート、ウィンドウ幅においても 3% 程度以内で良く一致している。

## 5.6 本章のまとめ

本章では、ベータ線・ガンマ線同時放出線源プログラムを使用したシミュレーションにより、 $4\pi\beta - \gamma$  同時計数法の効率外挿曲線を計算結果から得られることを示した。これにより、各測定パラメータの効率外挿曲線への寄与が明らかにできるようになった。

この線源プログラムは、核データの通りに、ベータ線の放出とガンマ線の放出を一貫して実行し、その結果をリストデータとして出力するように作製された。

この線源プログラムの動作検証を、1) 放出されるベータ線・ガンマ線のエネルギーと放出比、2) 同時放出の相関関係、に分けて実施した。前者は、プログラムの出力を参照値と比較により実施した。後者は、ガンマ線スペクトロメトリにおける現れるサムコインシデンス効果を利用して実測値と計算値を比較して実施した。その結果、ベータ線・ガンマ線の放出は参照値と一致し、サムコインシデンス効果は測定の不確かさの範囲内で一致した。これらにより、線源プログラムが正しく動作していることが確認された。

続いて、線源プログラムは  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数法の効率外挿曲線を計算結果から模擬した。模擬された効率外挿曲線が、実際のベータ線・ガンマ線の計数効率・波高分解能により変化する様子を、個々のパラメータに対して明らかにした。

効率外挿曲線の形状に対して大きく影響するのはガンマ線検出器の位置とウィンドウ幅であった。ガンマ線波高分解能は、ウィンドウ幅に対して十分に小さい場合は効率外挿曲線の形状に対して影響しないが、逆にウィンドウ幅と半値幅が近づくと効率外挿が真値から外れることを示した。ベータ線波高分解能は、実証実験で評価された分解能であれば、効率外挿曲線には影響しない。ベータ線計数効率は、効率外挿曲線の形状に対しては影響しないが、計数効率が下がると外挿による不確かさが大きくなる方向に影響することが示された。

以上のように、実証実験で使用された検出器をモデルにして、このシミュレーションにより実測の効率外挿曲線を模擬できることを示した。

この結果は、 $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置のガンマ線検出器を変更した場合に、効率外挿曲線の形状が変化することを意味している。

本章の結果を受けて、次章の核種混在試料中の純ベータ核種を測定する装置では、ガンマ線検出器よりもベータ線検出器での計数効率が、外挿による不確かさを低減するためには優先される。

## 第 6 章

# 核種混在試料中純ベータ核種測定装置

第 4 章では、プラスチックシンチレーション検出器でのベータ線計数効率の改善に向けて検討した。

第 5 章では、ベータ線検出器、ガンマ線検出器による測定パラメータの違いによる効率外挿曲線への影響を検討した。

本章では、これらの検討に基づき、下記の点について述べる。

- 核種混在試料中の純ベータ核種を測定する装置を作製
- 測定結果の評価

### 6.1 緒言

第 4 章でのプラスチックシンチレーション検出器の評価により、小型化したプラスチックシンチレータ中の蛍光を光電子増倍管 (R9880U-210、指頭型 PMT) を用いて大立体角で捉えるように配置し、ベータ線計数効率が改善できることが分かった。次に、第 5 章でシミュレーションにより効率外挿曲線の変化を検討した。その結果、外挿による不確かさを低減するためにはガンマ線検出器よりもベータ線検出器での計数効率を優先するべきことがわかった。

核種混在試料中の純ベータ核種を測定する装置において、指頭型 PMT を使ったプラスチックシンチレーション検出器での高いベータ線計数効率を損なわずに、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法を成立させるガンマ線検出器を用意する必要がある。

構成された装置により、Cs-134 と Cs-137 が混在した試料中の Sr/Y-90 放射能の測定を実施する。

## 6.2 測定機器

### 6.2.1 ガンマ線検出器

第3章の実証実験で実施した  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数測定で、外挿による不確かさが測定不確かさ全体を支配する要因の一つであることを示した。その原因は、ベータ線計数効率が低いことであると考えた。そこで、第4章でベータ線計数効率の改善を試み、指頭型 PMT を使ったベータ線検出器が、実証実験の場合よりも高い計数効率を達成できることを示した。ここでは、その指頭型 PMT を使ったベータ線検出器と合わせて  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置を成立させるためのガンマ線検出器を決定する。

$4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置では、ベータ線計数率との統計のバランスを取るために、ガンマ線検出器の計数効率が可能な限り高くなるように配慮する必要がある。したがって、ガンマ線検出器の決定においては、1) 試料にできるだけ近づけること、2) 大型化して計数効率を上げることを考える。

$4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置では、試料の周囲に必ずベータ線検出器が存在し、ガンマ線検出器は試料から離れざるを得ない。実証実験で用いたような円柱状の結晶を持ったガンマ線検出器は、試料からの距離が離れると、急激に立体角を失う。その結果、計数効率が低くなってしまふ。

そこで、河田は井戸形のガンマ線検出器を採用した [60]。井戸底部に試料を置き井戸開口部にベータ線信号読み出し用の機器を配置すれば、高い立体角でガンマ線検出器を配置できる。しかし、第4章でベータ線検出効率が高いことが示された指頭型 PMT を用いたベータ線検出器は、両側から信号を読み出す構造であり、井戸底部に試料を置くことができない。

本研究では、図 6.1 のようにシンチレータ結晶の内部に貫通孔を持つガンマ線検出器（ここでは、スルーホール型ガンマ線検出器と呼ぶ）を用いることを考案した。このような機構を持つガンマ線検出器を利用することで、指頭型 PMT を用いたベータ線検出器を用いながら高い計数効率のガンマ線検出器を配置した  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置を構成できる。

表 6.1 に、計数効率を計算した結果を示す。シンチレータは、実証実験と同じように、直径 3 インチ、高さ 3 インチの NaI(Tl) シンチレータを使用したとして、指頭型 PMT ベータ線検出器を挿入するための貫通孔（内径 20 mm）を通すため、シンチレータに内径 1 インチの貫通孔を開けたとした。比較のため、実測した計数効率と、実証実験の計数効率と合わせて示す。実証実験では直径 3 インチ、高さ 3 インチの NaI(Tl) シンチレータを 2 つ使用しているが、スルーホール型ガンマ線検出器では 1 つだけである。しかし、両者の間で主な光電ピークの計数率は同程度かスルーホール型ガンマ線検出器の方が計数効率が高い。これは、スルーホール型ガンマ線検出器の方が、立体角が大きいためである。スルーホール型ガンマ線検出器は、使用する NaI(Tl) シンチレータの結晶体積が実証実験の場合の半分である。

以上により、 $4\pi\beta - \gamma$  同時計数装置を指頭型 PMT ベータ線検出器とスルーホール型ガンマ線検出器で構成すると、ベータ線計数効率が高く、ガンマ線計数効率を下がらない装置を実現できることが分かった。この装置による  $4\pi\beta - \gamma$  同時計数測定は、実証実験よりも外挿による不確かさが



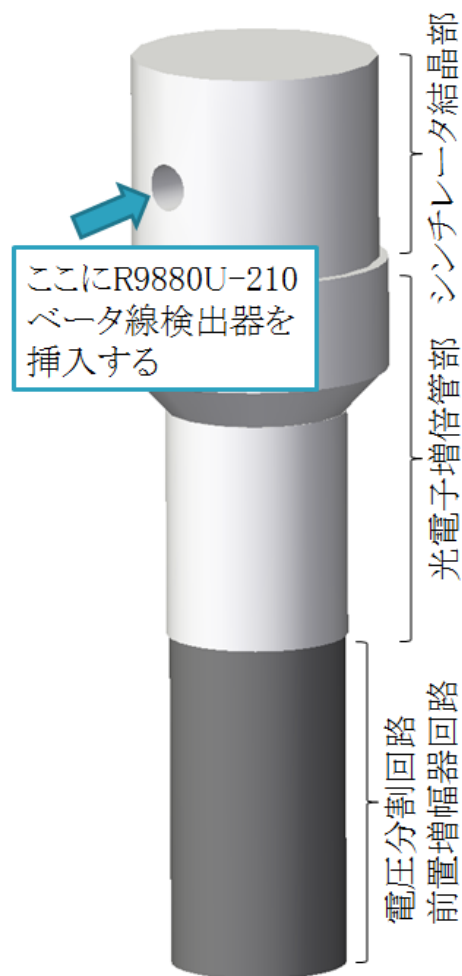


図 6.1 スルーホール型ガンマ線検出器の模式図

小さいと期待される。

図 6.2 にスルーホール型の NaI(Tl) シンチレーション検出器 (Oken、12H12DM) を示す。貫通孔部 (直径 20 mm) にプラスチックシンチレータを内包した 2 つの指頭型 PMT が挿入される (図 6.3)。NaI(Tl) シンチレータ結晶の全体サイズは直径 3 インチ、高さ 3 インチで、円柱側面の中心に直径 24 mm の貫通孔がある。貫通孔内部と円柱外側表面全体は反射材として白色テフロンテープを巻いてある。図 6.4 に示すように、スルーホール型ガンマ線検出器と R9880U-210 による  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置は、全長 340 mm 弱、幅 100 mm 弱で実証実験用の装置よりも大幅に小型化され、鉛遮蔽体の内部に全体を入れることができた (図 6.5)。そのため、バックグラウンドの影響が大幅に低減される。この遮蔽体は上部レールスライド式で、肉厚が 10 cm である。スルーホール型ガンマ線検出器の内部に挿入された R9880U-210 ベータ線検出器は、治具により公差  $\pm 0.2$  mm

表 6.1 スルーホール型ガンマ線検出器でのガンマ線計数効率の実験値と計算値の比較

Flag	Window [keV]	スルーホール計算値 (%)	スルーホール実験値 (%)	実証実験 (%)
A	180-605	34.9	33.3	36.7
B	180-802	49.5	47.6	50.6
C	180-1401	65.0	64.9	65.8
D	605	18.0	18.4	16.3
E	605-802	32.7	32.8	30.2
F	605-1401	48.1	50.1	45.4
G	796-802	13.2	14.0	11.6
H	796-1401	28.7	31.2	26.8

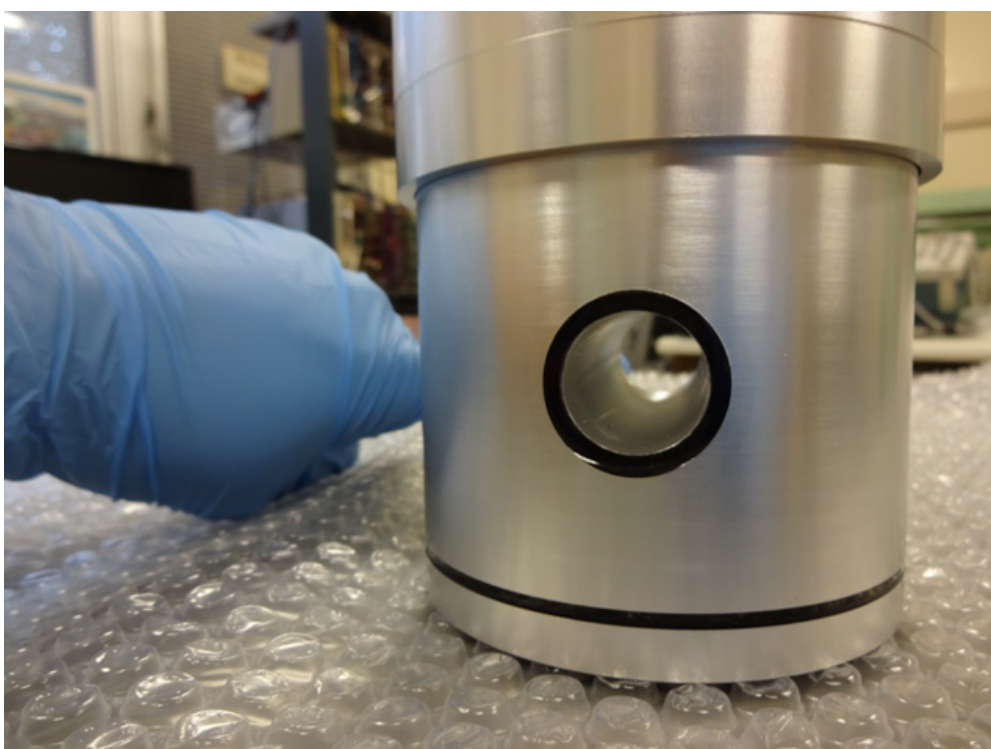


図 6.2 スルーホール型 NaI(Tl) シンチレーション検出器の写真

で中心位置に固定される。遮光処理とガンマ線検出器へのセットが別々にされたため、試料交換後の光電子増倍管のノイズ低下を待つ静置時間無しで連続的に測定できる。

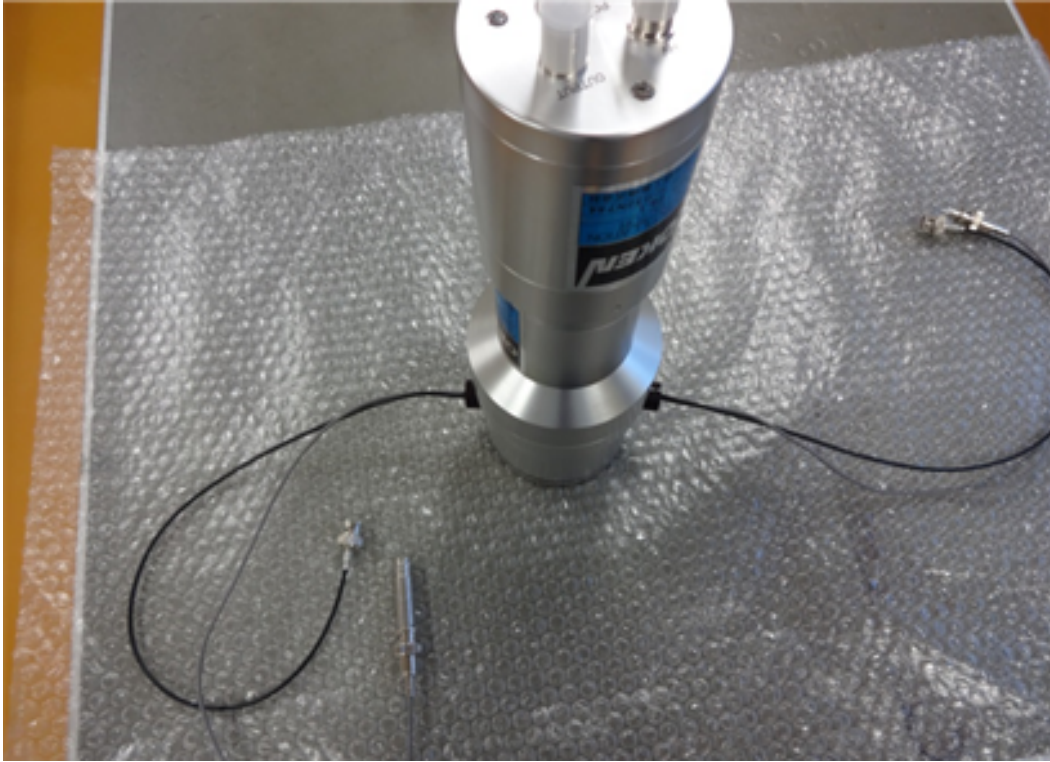


図 6.3 スルーホール型ガンマ線検出器の貫通孔に R9880U-210 が挿入される様子

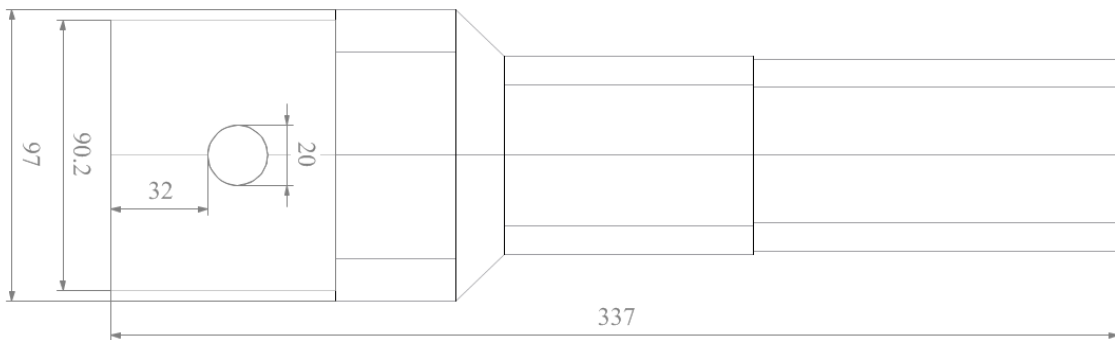


図 6.4 スルーホール型ガンマ線検出器のサイズ

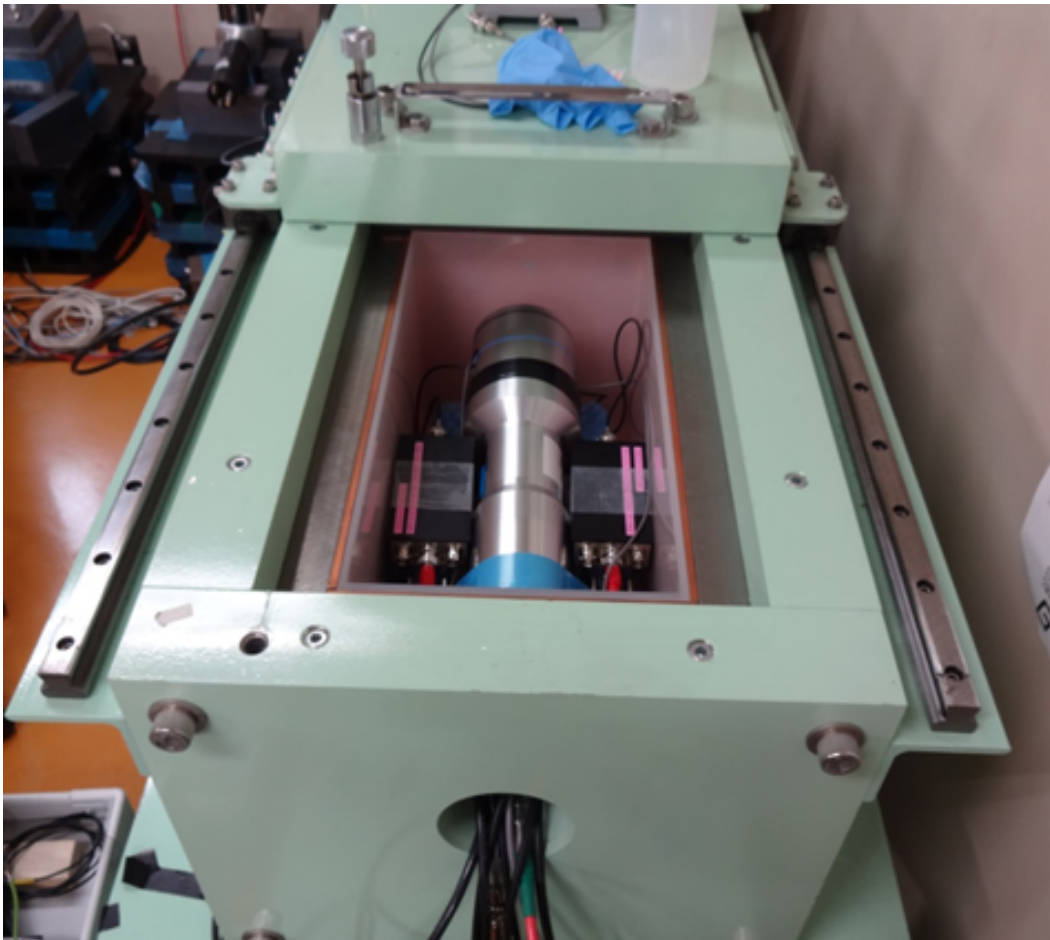


図 6.5 鉛遮蔽体の中に全体が入られたスルーホール型ガンマ線検出器の様子

表 6.2 用意された試料の一覧

核種	Sample(d)		Sample(e)		Sample(f)	
	(Bq)	(mg)	(Bq)	(mg)	(Bq)	(mg)
Cs-134	202.8	18.1	162.5	14.6	76.3	6.84
Cs-137	...	...	113.7	12.2	108.7	11.7
Sr/Y-90	...	...	...	...	42.4	9.97

### 6.2.2 測定試料の準備

第 4 章で示した凹凸形が一組となり直径 8 mm、厚さ 2 mm となるプラスチックシンチレータ (EJ-212) の凹型の方に、既知濃度の放射能溶液を滴下乾燥した後に、エッジ部を光学セメントで接着して試料とした。用意した試料の放射能と滴下量の一覧を表 6.2 に示す。Cs-134+Cs-137+Sr/Y-90 混合試料は、Sr/Y-90 の放射能を Cs-134 と Cs-137 の放射能合計の四分の一程度とした。既知濃度に付せられた不確かさは実証実験と同様に、Cs-134 で 0.9 %、Cs-137 で 1.2 %、Sr/Y-90 で 1.4 % (包含計数  $k=2$ ) である。滴下された溶液の乾燥に半日、完全に光学接着が固まるまでに半日程度ずつ時間を置いた。プラスチックシンチレータと R9880U-210 の光学接着に光学グリス (Bicron、BC-600) を用いた。遮光から 30 分程度静置してから前述のスルーホール型ガンマ線検出器の貫通孔部に装着した。

### 6.2.3 測定回路とデータ解析

第 3 章の測定回路からの変更点は次の通りである。

ベータ線検出器からの信号を増幅する前置増幅器には、Canberra 製 2005 を使用した。ガンマ線検出器の個数が 1 個になり、ガンマ線の系統が 1 つになった。指頭型 PMT には -1 kV を印加し、スルーホール型ガンマ線検出器には + 900 V を印加した。いずれの検出器も、波形整形増幅器のゲインを ADC に合わせて調整した。

データ解析は、実証実験の場合と同様である。

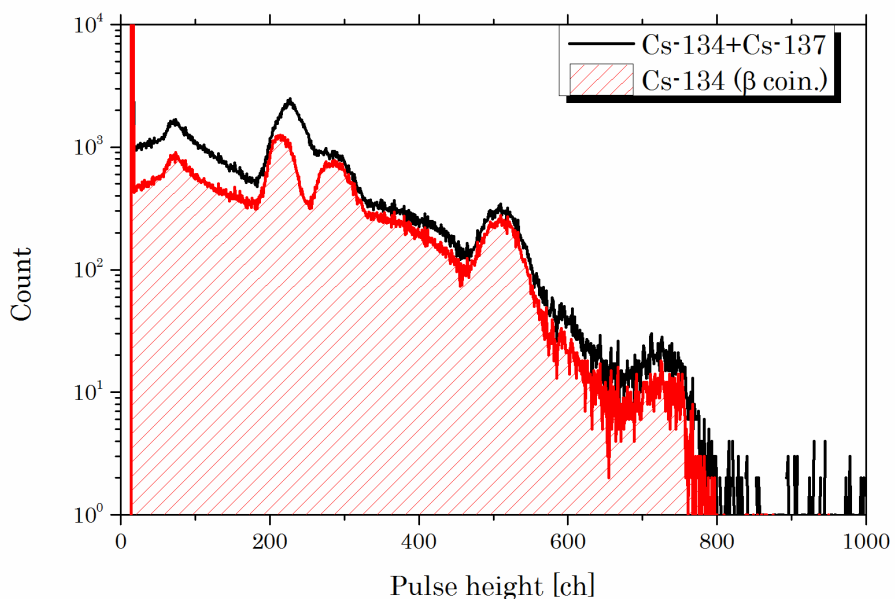


図 6.6 スルーホール型ガンマ線検出器で取得されたガンマ線波高分布 (Cs-134+Cs-137 試料)

## 6.3 測定結果

### 6.3.1 ガンマ線波高分布

図 6.6 に Cs-134 + Cs-137 混合試料の場合のガンマ線波高分布を示す。Cs-134 の 605 keV、796 keV 光電ピーク、それらのサムピークに加えて、トリプルサムピークが観測された。個々のガンマ線ピークでは、実証実験の場合に比べてガンマ線波高分解能の劣化が認められ、Cs-137 の 662 keV ガンマ線に対して 17 % となった。

この原因を探るために、図 6.7 に示す線源位置で Cs-137 の場合のガンマ線波高分布を取得した、それぞれの位置に対応した波高分布を図 6.8 に示す。いずれも横軸の波高ゲインは一致させ、縦軸は視認解釈のためにずらして表示している。波高分布中の 662 keV 光電ピーク中心が 2 成分に分かれ、線源の位置を変えることにより、ピークの重心位置が変化している。

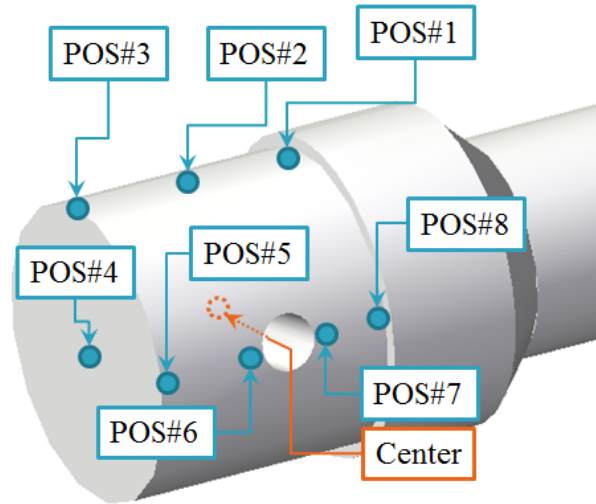


図 6.7 波高分解能劣化の原因を探るためにガンマ線波高分布を取得した線源位置

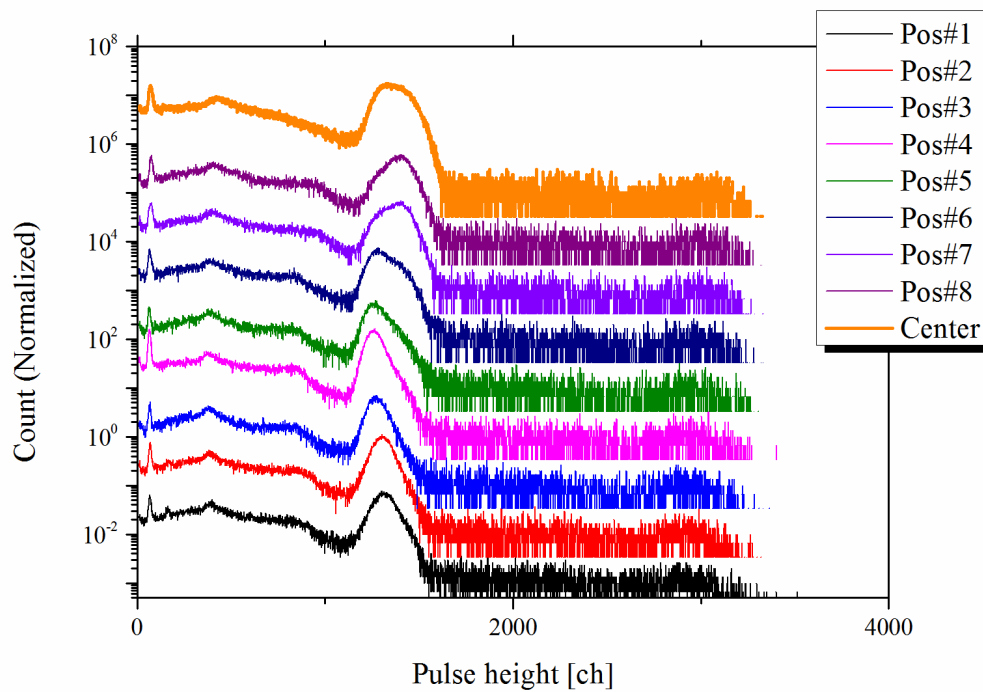


図 6.8 各位置でのスルーホール型ガンマ線検出器の波高分布 (Cs-137、Center:ホール内の中心位置)

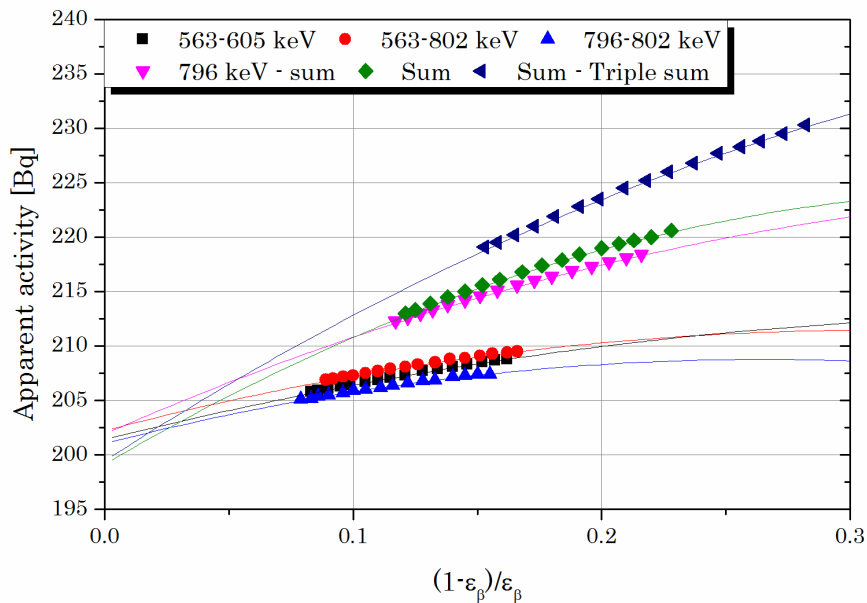


図 6.9 Sample(d) 中の Cs-134 放射能評価のための外挿曲線

### 6.3.2 Cs-134 のみ試料の放射能測定

Sample(d) の測定は、1709 秒かけて実行した。図 6.9 に、Cs-134 単体試料を測定した場合の効率外挿曲線を示す。ガンマ線計数領域は、605 keV を主とする光電ピーク領域 (563-605 keV)、796 keV を主とする光電ピーク領域 (796-802 keV)、その両者を含む領域 (563-802 keV)、サムピーク領域 (Sum)、796 keV を主とする光電ピークからサムピークまでを含む領域 (796 keV-sum)、サムピークから主に 569+769+605 keV の三重サムピークまでを含む領域 (Sum - Triple sum) に設定した。それぞれのガンマ線計数領域に対して、二次多項式近似により外挿曲線を作製した。

実証実験の場合と比べて、実測で得られる測定点の y 軸までの距離が小さくなった。外挿により得られた Cs-134 放射能は 201.2 Bq で、既知値との差は-0.8 % であった。この外挿による不確かさは 0.5 % ( $k=1$ ) で、実証実験の場合の 1.0 % ( $k=1$ ) から半減された。

Sr/Y-90 の放射能測定に向けては、この結果から Cs-134 のガンマ線計数効率が得られる。



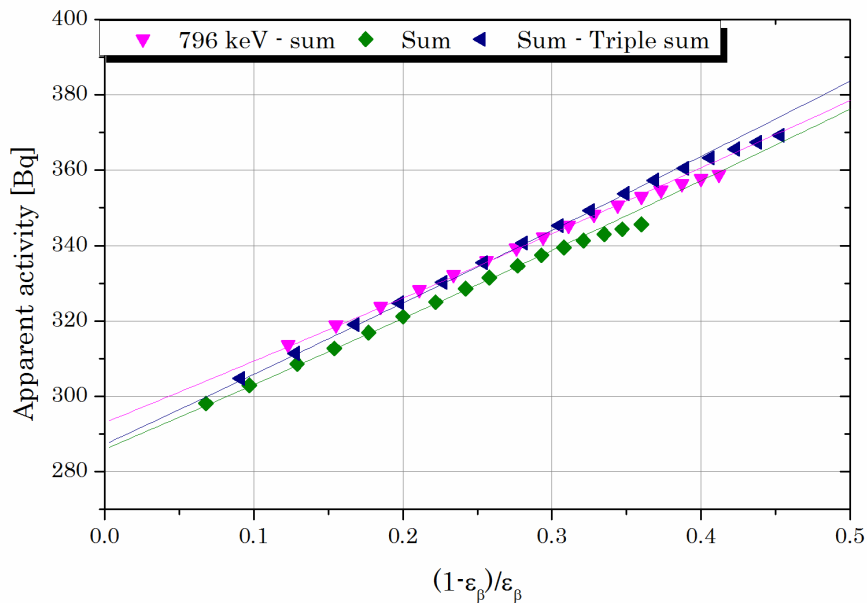


図 6.10 Sample(e) 中の Cs-134 と Cs-137 からの全ベータ線放出率評価のための外挿曲線

### 6.3.3 Cs-134+Cs-137 試料の全ベータ線放出率測定

Sample(e) の測定は、2464 秒かけて実行した。図 6.10 に、Cs-134 + Cs-137 試料を測定した場合の効率外挿曲線を示す。ガンマ線計数領域は、前述の Sample(d) の場合からは、Cs-137 の 662 keV 光電ピークを避けた。それぞれのガンマ線計数領域に対して、二次多項式近似により外挿曲線を作製した。

外挿により得られた全ベータ線放出率は  $289.3 \text{ s}^{-1}$  で、既知値との差は  $+0.8 \%$  であった。この外挿による不確かさは  $0.9 \%$  ( $k=1$ ) で、実証実験の場合の  $2.1 \%$  ( $k=1$ ) から半分以下にまで小さくすることができた。

Sr/Y-90 放射能の測定に向けては、この外挿の結果から Cs-137 のガンマ線計数効率を得られる。

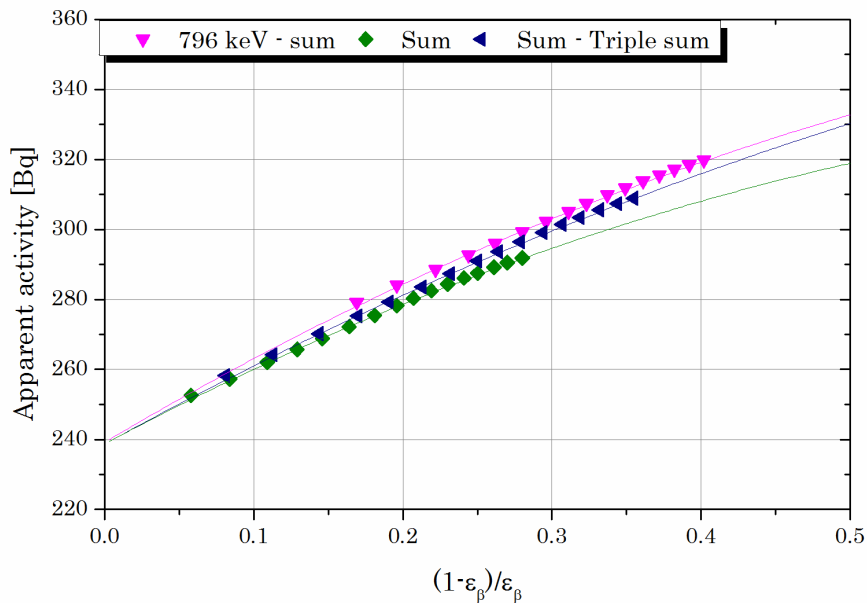


図 6.11 Sample(f) 中の Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 からの全ベータ線放出率評価のための外挿曲線

### 6.3.4 Cs-134+Cs-137+Sr/Y-90 試料の全ベータ線放出率測定

Sample(f) の測定は、3380 秒かけて実行した。図に、Cs-134 + Cs-137 + Sr/Y-90 試料を測定した場合の効率外挿曲線を示す。ガンマ線計数領域は、Sample(e) の場合と同じである。それぞれのガンマ線計数領域に対して、二次多項式近似により外挿曲線を作製した。

外挿により得られた全ベータ線放出率は  $239.6 \text{ s}^{-1}$  で、既知値との差は  $+0.8 \%$  であった。この外挿による不確かさは  $0.7 \%$  ( $k=1$ ) で、実証実験の場合の  $1.3 \%$  ( $k=1$ ) からほぼ半減された。

この核種混在試料中の Sr/Y-90 は、この全ベータ線計数率から前述の Cs-134 と Cs-137 のガンマ線効率により求められる Cs-134 と Cs-137 の寄与分を差し引くことにより求められる。

表 6.3 測定された Sr/Y-90 放射能に対する不確かさ評価の一覧

No.	Component	A <sub>Sr</sub>	A <sub>Entire</sub>		A <sub>134</sub>		A <sub>137</sub>	
			u % (k=1)		u % (k=1)		u % (k=1)	
1	計数統計		1.09		0.90		0.97	
2	効率外挿		0.72		0.50		0.93	
3	ガンマ線スペクトロメトリ		-		1.26		1.11	
4	バックグラウンド		0.15		-		-	
5	試料設置再現性		0.29	1.07	-	1.35	-	1.46
6	試料位置		0.57		-		-	
7	時間		0.01		-		-	
8	分解時間		0.21		-		-	
9	不感時間		0.40		-		-	
10	核データ		-		-		0.17	
Total % (k=1)		10.3	1.5		1.6		1.8	
全ベータ線放出率 (s <sup>-1</sup> )		42.5	239.6		77.0		120.1	
Total s <sup>-1</sup> (k=1)		4.38	3.63		1.25		2.10	

## 6.4 考察

### 6.4.1 Cs-134 と Cs-137 が混在した試料中の Sr/Y-90 放射能測定の不確かさ

上述の Sample(d)、Sample(e)、Sample(f) による測定結果に対する不確かさを算出して表 6.3 に示す。計数統計を除く全ベータ線放出率、Cs-134、Cs-137 に対する不確かさはそれぞれ 1.07 %、1.35 %、1.46 % (k=1) であった。全ベータ線放出率と Cs-137 のベータ線放出率は、実証実験における 2.33 %、1.10 %、2.40 % (k=1) から小さくなったが、Cs-134 はガンマ線スペクトロメトリによる不確かさが増している。効率外挿による不確かさは実証実験から半分程度に小さくなった。ガンマ線検出器のバックグラウンド計数率は全ガンマ線計数率で実証実験の 85 cps から 4.7 cps に下がり、測定不確かさ全体への影響は無視できるほど小さくできた。今後、さらなる不確かさの低減に向けて、ガンマ線スペクトロメトリの不確かさの低減が課題となる。

最終的な Sr/Y-90 放射能の測定に対する不確かさは 10.1 % と評価される。実証実験の場合よりも Cs-134 と Cs-137 放射能に対する Sr/Y-90 放射能の比が小さいために、相対不確かさは大きくなる。仮に、Sr/Y-90 放射能と、Cs-134 と Cs-137 の放射能合計との比が実証実験と同じであれば、その不確かさは 2.0 % (k=1) と見積られ、実証実験の 5.2% から小さくなった。

## 6.4.2 測定可能な Sr/Y-90 放射能の Cs-134 と Cs-137 放射能に対する下限混在比

測定可能な Sr/Y-90 放射能の Cs-134 と Cs-137 に対する測定下限比としての棄却限界（得られる正味計数値が意味を持つレベル）を 2.3 節の式 2.21 で算出する。

$\sigma$  は Cs-134 と Cs-137 の不確かさの合成とし、 $k_C$  はここでは両側信頼度が 95.45% となる 2.00 とする。式により計算される棄却限界は 8.73 s<sup>-1</sup> であり、Cs-134 と Cs-137 の合計のベータ線放出率に対しては 4.4 % であった。これは、実証実験の 7.3 % から大きく改善された。

## 6.4.3 本測定装置への評価

スルーホール型 NaI(Tl) シンチレーション検出器は、プラスチックシンチレーション検出器でのベータ線計数効率を高く維持したまま、ガンマ線計数効率を高く保つために導入した。その結果、十分な計数効率を得られた反面、ガンマ線波高分解能が劣化した。これは、貫通孔により光電子増倍管から陰になる領域がシンチレータ結晶内に生まれ集光量が減少したことが考えられる。Cs-137 線源の位置を変え、波高分布の変化を調べた結果、線源が光電子増倍管から離れると波高が低い側に重心が移った。これは、貫通孔よりも遠い側で発生する蛍光は、近い側で発生した場合よりも小さくなることを示している。したがって、この波高分解能の劣化は、蛍光の読み出しを両側にする等の工夫により改善できると考えられる。ただし、スルーホール型にしたことにより、円柱型に比べ分解能の低下が起きたが、Cs-134、Cs-137 を対象とした  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置としての機能には影響しなかった。

このスルーホール型 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ベータ核種測定装置を、Cs-134 と Cs-137 の混在試料中の Sr/Y-90 放射能の測定に適用した。実証実験の場合に比べ、効率外挿とバックグラウンドによる不確かさを大きく低減できた。第 3 章で挙げた課題に対する第 4 章と第 5 章での検討を経て作製した本装置で、期待された効果が認められた。

本実験では、Cs-134 と Cs-137 のガンマ線計数効率は、標準溶液により校正するのではなく、直接に絶対測定して求めた。これにより、標準溶液の不確かさの一次標準以外に起因する不確かさを排除できる。しかし、現状では、まだ絶対測定による不確かさは標準溶液の放射能濃度に付せられた不確かさ 0.9 % ( $k=2$ ) よりもまだ僅かに大きい。今後、この標準溶液よりも小さい不確かさが実現できるようになれば、現在の国家標準と標準供給体制を改良できる可能性が出てくる。

本測定装置を用いたことによる不確かさの低減に伴い、測定可能な Sr/Y-90 放射能の Cs-134 と Cs-137 放射能に対する下限混在比は実証実験の場合から低減された。この下限混在比は 10 % よりも十分に小さく、飲食物摂取制限指標 [90] で仮定された放射性セシウム対放射性ストロンチウム比以上の Sr/Y-90 が含まれる試料は測定可能であることを意味する。

## 6.5 本章のまとめ

スルーホール型 NaI(Tl) シンチレーション検出器を使った  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置を構成し、測定実験を実施した。その結果は既知値と良く一致し、期待された測定不確かさの低減が実現された。これは、ベータ線検出器の計数効率を実証実験に比べ改善した  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置を構成できたことと、バックグラウンド計数率を低減できたためであった。スルーホール型 NaI(Tl) シンチレーション検出器は、個数を減らし結晶体積を半分にしながらも、ガンマ線計数効率を低下させることなく、高い計数効率のベータ線検出との組合せによる  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置を実現した。

実証実験から、ベータ線検出器とガンマ線検出器を変更したことにより、装置全体の大きさを小型化できた。それにより、バックグラウンド計数率の低減に必要な遮へい量の減量に成功した。その結果、バックグラウンド計数率を、実証実験からは 10 分の 1 以下に抑えられた。これらは、バックグラウンド計数率による不確かさを低減できた。

この低減された不確かさから、Cs-134 と Cs-137 の混在試料中の Sr/Y-90 の測定できる下限混在比を改善できた。

## 第7章

# 結語

本研究では、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法を応用し、大立体角のベータ線、ガンマ線検出器を用いた装置により、核種混在状態の試料中に含まれる純ベータ核種の放射能を測定する方法を考案した。特に、福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質が対象である場合を考慮すると、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 が関心核種であるため、この3核種に対して検討した。本研究の測定法では、化学分離を必要とせず、Sr-90 と Y-90 が放射平衡状態に達するまで待機することなく測定できる点が特長である。

本研究では、核種混在状態の試料中に含まれる純ベータ核種の放射能測定法を確立することを目的とし、新たに大立体角を有するベータ線検出器とガンマ線検出器を組み合わせた装置を開発した。さらに、この測定法と測定装置により、実際に核種混在試料中の純ベータ核種の放射能を測定できることを明示することを目的とした。

第2章では、本測定法の原理を説明した。本測定法では、核種混在試料に対して、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法により全ベータ線放出率が測定され、ガンマ線スペクトロメトリにより測定される Cs-134 と Cs-137 のベータ線放出率を差し引くことにより、Sr/Y-90 放射能を求める。測定結果を得る過程において、効率外挿法により絶対値を決定すること、核種混在試料では  $\beta\text{-}\gamma$  核種の効率を写し取る効率トレーサ法により全ベータ線放出率を求めることを、数式を基にして説明した。

第3章では、測定原理を実証するための実験について記述した。測定装置を組み、測定結果を求め、不確かさを評価し、既知値と比較することにより、本測定法で Sr/Y-90 を測定できることを示した。この実験では、直方体のライトガイドにはめ込んだプラスチックシンチレーション検出器をベータ線検出器、3" x 3" の円柱状 NaI(Tl) シンチレーション検出器をガンマ線検出器として使用した。この実証実験における不確かさ要因の分析により、効率外挿による不確かさとバックグラウンド計数率による不確かさが主な要因であることが明らかになった。

この実証実験において、ベータ線計数効率の向上により効率外挿による不確かさが低減されることが見込まれることから、測定器の最適化に向けて、プラスチックシンチレータのベータ線計数特性の改善を試みる方針を決めた。また、ガンマ線検出器の違いによる外挿の不確かさへの影響についても検討することを決めた。

第4章では、プラスチックシンチレーション検出器でのベータ線の波高分解能、下限エネルギー

を評価した。ベータ線計数効率の向上を図るために、蛍光の収集効率の違い、プラスチックシンチレータのサイズによる違いによる影響を評価した。蛍光導光路を変更した測定の結果では、想定されるほどの計数効率の改善は得られなかった。反射材を使用した測定でも十分な改善は見られず、むしろ、ノイズが影響しやすくなることを示した。これらの結果を受けて、プラスチックシンチレータのサイズと光電子増倍管の種類を変更した。光電子増倍管を小型な R9880U-210 に変更し、プラスチックシンチレータはその光電面サイズに合わせて小型化しつつ、できるだけ大きな滴下量を受けられるように凹凸形に変更した。その結果、光電子増倍管の波高リニアリティの限界により波高分布に乱れが生じたものの、91 % まで計数効率を改善できることが明らかになった。

第 5 章では、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数法の効率外挿曲線を模擬した。このシミュレーションは  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置でベータ線検出器と組み合わせるガンマ線検出器を決定するために用いた。このシミュレーションのために、ベータ線・ガンマ線同時放出線源プログラムを開発した。この線源プログラムをベータ線とガンマ線の発生に用い、ベータ線とガンマ線の輸送には EGS5 コードを用いて、ベータ線検出器とガンマ線検出器の付与エネルギーを一崩壊ごとのリストデータとして計算できるシミュレーションを実現した。計算結果を用いて、ベータ線検出器の計数効率と波高分解能、ガンマ線検出器の配置、計数効率、波高分解能による効率外挿曲線の変化を調べられることを示した。

第 6 章では、第 4 章と第 5 章でのベータ線検出器、ガンマ線検出器の検討を経て、ベータ線検出器として R9880U-210 を使った小型プラスチックシンチレーション検出器を用い、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用いた  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置を構成した。R9880U-210 を使ったベータ線検出器を用いながら、ガンマ線検出器を試料に近づける装置を検討した。スルーホール型 NaI (Tl) シンチレーション検出器は、第 5 章で開発されたシミュレーションを用いて計数効率を算出した。その結果、3" x 3" の円柱状の結晶に、直径 1" の貫通孔を開けたスルーホール型の検出器を選定した。スルーホール型 NaI(Tl) シンチレーション検出器の計数効率を計算した結果、第 3 章の実証実験で用いた NaI(Tl) シンチレーション検出器の半分の体積の結晶で同程度の計数効率を得られることが明らかになった。この装置を用いて得た測定結果と既知値は、不確かさの範囲内で一致した。また、外挿による不確かさとバックグラウンド計数率による不確かさが低減されたことが示された。用意された試料に対する測定不確かさの評価から、Cs-134 と Cs-137 の放射能に対して測定できる Sr/Y-90 の下限混在比も改善されることを明らかにした。

以上の研究により、 $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時測定装置で、化学分離を要せずに核種混在試料中の純ベータ核種の放射能を測定する手法を確立した。改良された  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数装置により測定できる Sr/Y-90 放射能の不確かさと Cs-134 と Cs-137 の放射能に対する下限混在比が改善された。

本研究では、Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 の組合せが検討されたが、その他の純ベータ核種が混在した場合にも適用できる可能性がある。プラスチックシンチレーション検出器での  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  同時計数測定の不確かさがさらに低減されれば、国の計量標準を改良できる可能性がある。

本研究では、検出器の特性が効率外挿曲線に及ぼす影響をシミュレーションにより初めて明らかにした。従来の計算手法では、ベータ線検出器の計数効率やガンマ線検出器の波高分解能などの個々のパラメータについて検討した例は無い。ガンマ線検出器の位置については、河田による研

究 [89] のように、実験的に調べることができるが、ベータ線計数効率やガンマ線検出器の波高分解能の影響を実験的に調べるためには、さらに多くの実験が必要になる。本研究により開発されたプログラムを用いたシミュレーションでは、入力パラメータを変更することにより、より容易かつ詳細に調べることができる。本研究により開発されたシミュレーション技術を用いた、将来の検出器または検出器を組合わせた放射能測定器が期待される。

本研究により、福島第一原子力発電所事故に起因する Cs-134、Cs-137、Sr/Y-90 を含む実試料の放射能分析に用いられる可能性がある新たな手法が提案された。実用に向けては、関心対象と測定対象の放射能濃度範囲の整合、K-40 などの天然放射性核種の影響、試料処理・性状によるベータ線自己吸収変化の影響が課題としてあげられる。



## 参考文献

- [1] Richard B. Firestone, Virginia S. Shirley, S.Y. Frank Chu, Coral M. Baglin, and Jean Zipkin. Table of isotopes 8th edition. 1996. (CD ROM).
- [2] International Commission on Radiation Units and measurements (ICRU). Fundamental quantities and units for ionizing radiation. 2011. ICRU report 85.
- [3] M.-M. Bé, B. Duchemin, J. Lamé, C. Morillon, F. Piton, E. Browne, V. Chechev, R. Helmer, and E. Schönfeld. *Table de Radionucléides*, Vol. 1. Commissariat à l'Énergie Atomique, DAMRI/LPRI BP 52, F-91193 Gif-sur-Yvette Cedex, France, 1999.
- [4] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, A. Nichols, E. Schönfeld, and R. Dersch. *Table of Radionuclides*, Vol. 1 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2004.
- [5] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, A. Nichols, E. Schönfeld, and R. Dersch. *Table of Radionuclides*, Vol. 2 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2004.
- [6] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, C. Baglin, V. Chechev, N. Kuzmenko, R. Helmer, F. Kondev, D. MacMahon, and K.B. Lee. *Table of Radionuclides*, Vol. 3 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2006.
- [7] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, F. Kondev, A. Luca, M. Galán, A. Pearce, and X. Huang. *Table of Radionuclides*, Vol. 4 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2008.
- [8] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, E. Browne, V. Chechev, N. Kuzmenko, F. Kondev, A. Luca, M. Galán, A.L. Nichols, A. Arinc, and X. Huang. *Table of Radionuclides*, Vol. 5 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2010.
- [9] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, V. Chechev, N. Kuzmenko, F. Kondev,

- A. Luca, M. Galán, A.L. Nichols, A. Arinc, A. Pearce, X. Huang, and B. Wang. *Table of Radionuclides*, Vol. 6 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2011.
- [10] M.-M. Bé, V. Chisté, C. Dulieu, X. Mougeot, V.P. Chechev, F.G. Kondev, A.L. Nichols, X. Huang, and B. Wang. *Table of Radionuclides*, Vol. 7 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Pavillon de Breteuil, F-92310 Sèvres, France, 2013.
- [11] Michael F. L'Annunziata. *Handbook of Radioactivity Analysis 3rd edition*. Elsevier, 2012.
- [12] Takuya Kobayashi, Haruyasu Nagai, Masamichi Chino, and Hideyuki Kawamura. Source term estimation of atmospheric release due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident by atmospheric and oceanic dispersion simulations. *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 50, No. 3, pp. 255–264, 2013.
- [13] 日本国政府原子力災害対策本部. 原子力安全に関する IAEA 閣僚会議に対する日本国政府の報告書-東京電力福島原子力発電所の事故について-, 2011.
- [14] 文部科学省 原子力災害対策支援本部. 放射線量等分布マップの作成等に関する報告書 (第 1 編), 2012. 東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に伴い放出された放射性物質の分布状況等に関する調査研究結果.
- [15] 文部科学省 原子力災害対策支援本部. 放射線量等分布マップ関連研究に関する報告書 (第 2 編), 2012. 東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に伴い放出された放射性物質の分布状況等に関する調査研究結果.
- [16] 農林水産省 農林水産技術会議事務局. 農地土壌の放射性物質濃度分布マップ関連調査研究報告書 (第 3 編), 2012. 東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に伴い放出された放射性物質の分布状況等に関する調査研究結果.
- [17] 東京電力 (株). 福島第一原子力発電所 1 ~ 4 号機の廃炉措置等に向けた中長期ロードマップ. <http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/index-j.html>.
- [18] 佐波俊哉, 佐々木慎一, 飯島和彦, 岸本祐二, 齋藤究. 茨城県つくば市における福島第一原子力発電所の事故由来の線量率とガンマ線スペクトルの経時変化. *日本原子力学会和文論文誌*, Vol. 10, No. 3, pp. 163–169, 2011.
- [19] (独) 産業技術総合研究所. つくばセンター放射線測定結果. <http://www.aist.go.jp/taisaku/ja/measurement/index.html>.
- [20] Yasuhiro Unno, Akira Yunoki, Yasushi Sato, and Yoshio Hino. Estimation of immediate fallout after the accident at Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant by using HPGe detector and EGS5 code. *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 81, pp. 348–352, 2013.
- [21] UNSCEAR. *UNSCEAR 1988 Report Annex D Exposures from the Chernobyl accident*. 1988.
- [22] 厚生労働省 東日本大震災関連情報 食品中の放射性物質への対応. 食品中の新たな基準値. [http://www.mhlw.go.jp/shinsai\\_jouhou/shokuhin.html](http://www.mhlw.go.jp/shinsai_jouhou/shokuhin.html).
- [23] 東京電力 (株). 福島第一原子力発電所における汚染水対策について. <http://www>

- .tepcoco.jp/news/2013/images/130927a.pdf.
- [24] 文部科学省. 放射能測定法シリーズ2「放射性ストロンチウム分析法」. (公社)日本分析センター, 2003.
- [25] 文部科学省. 放射能測定法シリーズ2 3「液体シンチレーションカウンタによる放射性核種分析法」. (公社)日本分析センター, 1996.
- [26] 住友スリーエム(株). 3M エムポア ラドディスク. <http://www.mmm.co.jp/filter/empore/rad/>.
- [27] A. Rytz. Activity concentration of a solution of  $^{137}\text{Cs}$ : An international comparison. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 228, No. 2-3, pp. 506–511, 1985.
- [28] J. V. Dunworth. The application of the method of coincidence counting to experiments in nuclear physics. *Review of Scientific Instruments*, Vol. 11, No. 5, pp. 167–180, 1940.
- [29] P. J. Champion. The standardization of radioisotopes by the beta-gamma coincidence method using high efficiency detectors. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 4, No. 3-4, pp. 232–248, 1959.
- [30] National Bureau of Standards (NBS). Radioactivity-recommendations of the International Commission on Radiological Units and Measurements. 1963. ICRU report 10c, NBS Handbook 86.
- [31] W. B. Mann, R. L. Ayres, and S. B. Garfinkel. *Radioactivity and Its Measurement*. 1966.
- [32] International Atomic Energy Agency (IAEA). Proceedings of a symposium on standardization of radionuclides. 1967.
- [33] International Commission on Radiation Units and measurements (ICRU). Radiation quantities and units. 1968. ICRU report 11.
- [34] International Commission on Radiation Units and measurements (ICRU). Radiation quantities and units. 1971. ICRU report 19.
- [35] Yasushi Kawada. Extended applications and improvement of the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence method in the standardization of radionuclides. 1972. 電子技術総合研究所研究報告第730号.
- [36] Proceedings of the first international summer school on radionuclide metrology. *Nuclear Instruments and Methods*, Vol. 112, No. 1-2, 1973.
- [37] National Council on Radiation Protection and Measurements (NCRP). *A Handbook of radioactivity measurements procedures Second Edition*. 1985. NCRP report; no. 58.
- [38] International Commission on Radiation Units and measurements (ICRU). Radiation quantities and units. 1980. ICRU report 33.
- [39] 社団法人日本アイソトープ協会. 放射能標準体・標準線源とその使用法. 1981.
- [40] International Committee for Radionuclide Metrology (ICRM) 9th meeting. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 34, No. 8, 1983.

- [41] 工業技術院電子技術総合研究所. 放射線特集. 電子技術総合研究所彙報, 1983.
- [42] International Committee for Radionuclide Metrology 1993 (ICRM'93). *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 339, No. 1-2, 1994.
- [43] International Commission on Radiation Units and measurements (ICRU). Particle counting in radioactivity measurements. 1994. ICRU report 52.
- [44] International Committee for Radionuclide Metrology 1997 (ICRM'97). *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 49, No. 9-11, 1998.
- [45] International Committee for Radionuclide Metrology 1999 (ICRM'99). *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 52, No. 3, 2000.
- [46] International Committee for Radionuclide Metrology 2001 (ICRM'01). *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 56, No. 1-2, 2002.
- [47] International Committee for Radionuclide Metrology 2003 (ICRM'03). *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 60, No. 2-4, 2004.
- [48] International Committee for Radionuclide Metrology 2005 (ICRM'05). *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 64, No. 10-11, 2006.
- [49] Special issue on radionuclide metrology. *Metrologia*, Vol. 44, No. 4, 2007.
- [50] International Committee for Radionuclide Metrology 2007 (ICRM'07). *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 66, No. 6-7, 2008.
- [51] International Committee for Radionuclide Metrology 2009 (ICRM'09). *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 68, No. 7-8, 2010.
- [52] International Committee for Radionuclide Metrology 2011 (ICRM'11). *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 70, No. 9, 2012.
- [53] P. J. Campion, J. G. V. Taylor, and Janet S. Merritt. The efficiency tracing technique for eliminating self-absorption errors in  $4\pi\beta$ -counting. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 8, No. 1, pp. 8–19, 1960.
- [54] Y. Kawada. Counting errors in radioactivity measurements by the efficiency tracing technique. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 16, No. 6, pp. 371–375, 1965.
- [55] A. P. Baerg. The efficiency extrapolation method in coincidence counting. *Nuclear Instruments and Methods*, Vol. 112, No. 1-2, pp. 143–150, 1973.
- [56] Hiroshi Miyahara, Takumaro Momose, and Tamaki Watanabe. Optimisation of efficiency extrapolation functions in radioactivity standardisation. *International Journal of Radiation Applications and Instrumentation. Part A. Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 37, No. 1, pp. 1–5, 1986.
- [57] Christophe Bobin. Primary standardization of activity using the coincidence method based on analogue instrumentation. *Metrologia*, Vol. 44, No. 4, pp. S27–S31, 2007.

- [58] A. P. Baerg. Pressurized proportional counters for coincidence measurements. *Nuclear Instruments and Methods*, Vol. 112, No. 1-2, pp. 95–99, 1973.
- [59] Osamu Yura.  $4\pi\beta(\text{LS})\text{-}\gamma$  coincidence counting in the electrotechnical laboratory. *Bulletin of the Electrotechnical Laboratory*, Vol. 47, No. 9, 10, pp. 815–821, 1983.
- [60] Yasushi Kawada, Masashi Ohtuka, Qiu-Wei Wang, and Yoshio Hino. Absolute radioactivity measurements by the use of a  $4\pi\beta\text{-}4\pi\gamma$  detector configuration. *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 60, No. 2-4, pp. 357–362, 2004.
- [61] John Keightley and Tae Soon Park. Digital coincidence counting for radionuclide standardization. *Metrologia*, Vol. 44, No. 4, pp. S32–S35, 2007.
- [62] (独) 製品評価技術基盤機構. JCSS. <http://www.iajapan.nite.go.jp/jcss/index.html>.
- [63] 山田崇裕, 桧野良穂. 計量法に基づく放射能標準のトランスファ. *RADIOISOTOPES*, Vol. 52, No. 2, pp. 98–110, 2003.
- [64] Bureau International des Poids & Mesures (BIPM). The BIPM key comparison database. <http://kcdb.bipm.org/>.
- [65] Y. Hino, Y. Kawada, and Nazaroh. An improved leakage current compensation technique for a  $4\pi\gamma$  ionization chamber system. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 369, No. 2-3, pp. 392–396, 1996.
- [66] H. Suzuki, K. Sibaike, H. Hashimoto, Y. Kawada, and Y. Hino. Analysis of  $4\pi\gamma$  ionization chamber response using EGS4 monte carlo code. *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 49, No. 9-11, pp. 1245–1249, 1998.
- [67] Y. Kawada. A new method of measuring the response of a  $4\pi\beta$ -counter to  $\gamma$ -rays and internal conversion electrons. *The International Journal of Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 20, No. 6, pp. 413–422, 1969.
- [68] B. D. Pate and L. Yaffe. A new material and techniques for the fabrication and measurement of very thin films for use in  $4\pi$ -counting. *Canadian Journal of Chemistry*, Vol. 33, No. 1, pp. 15–23, 1955.
- [69] Yasushi Kawada. Self- and foil-absorptions of low energy internal conversion electrons in  $4\pi\beta$ -counting. *Nuclear Instruments and Methods*, Vol. 98, No. 1, pp. 21–27, 1972.
- [70] T. Yamada, H. Ishizu, and Y. Kawada. A simple method for activity determination of  $^{134}\text{Cs}$  and  $^{137}\text{Cs}$  in foodstuffs using NaI(Tl) scintillation spectrometer. *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 81, pp. 353–355, 2013.
- [71] Gordon Gilmore and John D. Hemingway. 実用 ガンマ線測定ハンドブック. 2002.
- [72] Glenn F. Knoll. *Radiation detection and measurement fourth edition*. Wiley, 2010.
- [73] Nerine J. Cherepy, Giulia Hull, Alexander D. Drobshoff, Stephen A. Payne, Edgar van Loef, Cody M. Wilson, Kanai S. Shah, Utpal N. Roy, Arnold Burger, Lynn A. Boatner, Woon-Seng Choong, and William W. Moses. Strontium and barium iodide high light

- yield scintillators. *Applied Physics Letters*, Vol. 92, No. 8, pp. –, 2008.
- [74] K. S. Shah, J. Glodo, W. Higgins, E. Van Loef, William W. Moses, S. E. Derenzo, and M. J. Weber. CeBr<sub>3</sub> scintillators for gamma-ray spectroscopy. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, Vol. 52, No. 6, pp. 3157–3159, 2005.
- [75] Ra Sejin, Kim Sunghwan, H. J. Kim, H. Park, Lee Sanghoon, Kang Heedong, and Doh Sih-Hong. Luminescence and scintillation properties of a CeBr<sub>3</sub> single crystal. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, Vol. 55, No. 3, pp. 1221–1224, 2008.
- [76] Kei Kamada, Takayuki Yanagida, Takanori Endo, Kousuke Tsutumi, Yoshiyuki Usuki, Martin Nikl, Yutaka Fujimoto, Akihiro Fukabori, and Akira Yoshikawa. 2 inch diameter single crystal growth and scintillation properties of Ce:Gd<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>. *Journal of Crystal Growth*, Vol. 352, No. 1, pp. 88–90, 2012.
- [77] Alain Iltis, M. R. Mayhugh, P. Menge, C. M. Rozsa, O. Selles, and V. Solovyev. Lanthanum halide scintillators: Properties and applications. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 563, No. 2, pp. 359–363, 2006.
- [78] P.R. Menge, G. Gautier, A. Iltis, C. Rozsa, and V. Solovyev. Performance of large lanthanum bromide scintillators. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, Vol. 579, No. 1, pp. 6–10, 2007.
- [79] Bureau International des Poids & Mesures (BIPM). Procedures for accurately diluting and dispensing radioactive solutions. 1975. Monographie BIPM-1.
- [80] European Laboratory for Particle Physics (CERN). Physics Analysis Workstation. <http://paw.web.cern.ch/paw/>.
- [81] Lino Miramonti. A plastic scintillator detector for beta particles. *Radiation Measurements*, Vol. 35, No. 4, pp. 347–354, 2002.
- [82] M.J. Berger, J.S. Coursey, M.A. Zucker and J. Chang. Stopping-Power and Range Tables for Electrons, Protons, and Helium Ions. <http://www.nist.gov/pml/data/star/index.cfm>.
- [83] 浜松ホトニクス株式会社. 光電子増倍管-その基礎と応用- 第3版. 2005.
- [84] H. Nakamura, Y. Shirakawa, S. Takahashi, and H. Shimizu. Evidence of deep-blue photon emission at high efficiency by common plastic. *EPL (Europhysics Letters)*, Vol. 95, No. 2, p. 22001, 2011.
- [85] H. Hirayama, Y. Namito, A.F. Bielajew, S.J. Wilderman, and W.R. Nelson. The EGS5 code system. 2005. SLAC-R-730, KEK Report 2005-8.
- [86] International Commission on Radiation Units and measurements (ICRU). Dosimetric of external beta rays for radiation protection. 1997. ICRU report 56.
- [87] International Commission on Radiation Protection (ICRP). Nuclear decay data for dosimetric calculation. 2008. ICRP publication 107.

- [88] 公益社団法人 日本アイソトープ協会 協会製品カタログ. 放射能標準ガンマ体積線源.  
<http://www.jrias.or.jp/products/cat3/sub3-01/2013catalog05.html>.
- [89] Y. Kawada, A. Yunoki, T. Yamada, and Y. Hino. Gamma geometry dependency of efficiency functions in the  $4\pi\beta\text{-}\gamma$  coincidence measurements of complex decaying nuclides. *Applied Radiation and Isotopes*, Vol. 87, pp. 183–187, 2014.
- [90] 原子力安全委員会 原子力発電所等周辺防災対策専門部会 環境ワーキンググループ. 飲食物摂取制限に関する指標について, 1998.

## 謝辞

本学位論文を審査して頂きました総合研究大学院大学の榎本和義教授、波戸芳仁教授、佐々木慎一教授、佐波俊哉准教授、萩原雅之助教、東北大学の馬場護研究教授、元成蹊大学教授の河田燕氏に深く感謝を申し上げます。

総合研究大学院大学博士後期課程で研究初期の方針策定から、具体的な研究遂行に対する貴重なご意見を頂き、推敲を重ねて本論文をまとめるに至るまで、多大なご指摘を頂きました、佐々木慎一教授、佐波俊哉准教授、萩原雅之助教に感謝申し上げます。

本研究に取り組む以前の東北大学大学院博士前期課程に在籍中に、実験手順から解析して結果を出し、対外的に発表するまでの基礎となる心得をご指導頂きました馬場護教授に感謝申し上げます。

東北大学大学院を修了後に入所した(独)産業技術総合研究所の研究において、電子技術総合研究所時代から蓄えられてきた貴重な知見や世界中の放射能計量標準に関わる測定技術へ深い見識を包括して、現在における技術的な課題に対するご意見、ご指導を頂きました河田燕氏に感謝申し上げます。

産業技術総合研究所における業務と本論文に関する研究活動の両立にご支援を頂きました、産業技術総合研究所 量子放射科そして放射能標準グループの皆様感謝申し上げます。

研究活動の上では詳細かつ具体的なことのご指導を頂き、私生活では心身の健康維持へのご配慮を頂きました、諸先輩方に感謝申し上げます。

そして、東日本大震災後の困難な時期にも支え続けてくれた家族に感謝致します。

本研究は JSPS 科研費 24686106 の助成を受けたものです。

海野 泰裕



## 本研究に関する主な発表・成果一覧

### 雑誌投稿

1. Y. Unno, T. Sanami, M. Hagiwara, S. Sasaki, A. Yunoki, 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* **51**, 3 (2014) 376-384
2. Y. Unno, T. Sanami, M. Hagiwara, S. Sasaki, A. Yunoki, 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 (2014) 100-110, KEK Proceedings 2013-9
3. Y. Unno, T. Sanami, M. Hagiwara, S. Sasaki, A. Yunoki, Application of beta coincidence to nuclide determination of radioactive samples contaminated by Fukushima accident, *Progress in Nuclear Science and Technology* (In press)
4. Y. Unno, T. Sanami, M. Hagiwara, S. Sasaki, A. Yunoki, Beta ray coincidence in radioactivity measurement of mixed radionuclide samples, *American Nuclear Science Transactions* (To be published)
5. Y. Unno, M. Hachinohe, S. Hamamatsu, S. Todoriki, A. Yunoki, T. Miura, Characterization of brown rice as a certified reference material for the Fukushima accident-related radioactivity measurement, *Applied Radiation and Isotopes* **87**(2014) 485-488
6. Y. Unno, A. Yunoki, Y. Sato, Y. Hino, Estimation of immediate fallout after Fukushima NPP accident with HPGe detector using EGS5 code, *Applied Radiation and Isotopes* **81**(2013) 348-352
7. Y. Unno, T. Sanami, M. Hagiwara, S. Sasaki, T. Kurosawa, Application and Validation of EGS5 code to estimate detection efficiencies of multi-cascade nuclides, Proceedings of the 19th EGS Users' Meeting in Japan (2012) 10-15, KEK Proceedings 2012-7
8. Y. Unno, T. Kurosawa, A. Yunoki, T. Yamada, Y. Sato, Y. Hino, Measurement of anisotropic angular distributions of photon energy spectra for I-125 brachytherapy sources, *Applied Radiation and Isotopes* **70**, 9 (2011) 2240-2242
9. Y. Unno, T. Kurosawa, A. Yunoki, T. Yamada, Y. Sato, High sensitive standard measurement to determine strength of an I-125 brachytherapy source, Conference record of 2011 IEEE Nuclear Science Symposium (2011) 377-381

### 招待講演

1. Y. Unno, T. Sanami, M. Hagiwara, S. Sasaki, A. Yunoki, Beta ray coincidence in radioactivity measurement of mixed radionuclide samples, American Nuclear Society Winter Meeting 2013, (Nov 2013)

2. 海野泰裕、佐波俊哉、萩原雅之、佐々木慎一、柚木彰、大立体角ガンマ線・ベータ線同時検出を利用した放射能測定法の開発、日本原子力学会 2013 年春の年会 放射線工学部会企画セッション、2013. 3

#### 学会発表（国際）

1. Y. Unno, M. Hachinohe, S. Hamamatsu, S. Todoriki, A. Yunoki, T. Miura, Characterization of brown rice as a certified reference material for the Fukushima accident-related radioactivity measurement, 19 th International Conference on Radionuclide Metrology (ICRM2013), 2013. 6
2. Y. Unno, A. Yunoki, Y. Sato, Y. Hino, Estimation of immediate fallout after Fukushima NPP accident with HPGe detector using EGS5 code, 6 th International Conference on Radionuclide Metrology Low-Level-Radioactivity Measurement Techniques (ICRM-LLRMT2012), 2012. 9
3. Y. Unno, T. Sanami, M. Hagiwara, S. Sasaki, A. Yunoki, Application of beta coincidence to nuclide determination of radioactive samples contaminated by Fukushima Accident, 12th International Conference on Radiation Shielding (ICRS-12), 2012. 9
4. Y. Unno, T. Kurosawa, A. Yunoki, T. Yamada, Y. Sato, High sensitive standard measurement to determine strength of an I-125 brachytherapy source, 2011 IEEE Nuclear Science Symposium, Medical Imaging Conference (NSS/MIC), 2011. 10
5. Y. Unno, T. Kurosawa, A. Yunoki, T. Yamada, Y. Sato, Y. Hino, Measurement of anisotropic angular distributions of photon energy spectra for I-125 brachytherapy sources, 18 th International Conference on Radionuclide Metrology (ICRM2011), 2011. 9

#### 学会発表（国内）

1. 海野泰裕、三浦勉、柚木彰、八戸真弓、濱松潮香、等々力節子、放射性セシウム分析のための玄米認証標準物質（3）認証値の決定、第 50 回アイソトープ・放射線研究発表会、2013. 7
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. 2
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. 9
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. 9
5. 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. 8
6. 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. 7

7. 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. 4
8. 海野泰裕、樋渡武彦、西島俊二、柚木彰、佐藤泰、産総研における福島第一原子力発電所事故由来の放射能測定、研究会「放射線検出器とその応用」(第 26 回)、2012. 1

#### 産業財産権

1. 大立体角ガンマ線・ベータ線同時検出装置、海野泰裕、佐々木慎一、佐波俊哉、萩原雅之、特願 2013-197916、2013/09/25
2. 放射性物質の測定方法およびそのための測定装置、海野泰裕、佐々木慎一、佐波俊哉、萩原雅之、特願 2012-081420、2012/03/30

#### 外部資金

1. 科学研究費助成事業：「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」、研究代表者、若手研究(A)(H24年度-H25年度)、課題番号：24686106

(v7.0)