

環境中における放射性物質の 簡易型リアルタイムモニタリングシステムの開発

筑波大学附属病院放射線治療品質管理室

准教授 磯辺 智範

(共同研究者)

筑波大学陽子線医学利用研究センター 教授 榮 武二

筑波大学医学医療系 助教 高田 健太

筑波大学附属病院放射線部 診療放射線技師 森 祐太郎

筑波大学医学医療系 講師 山本 哲哉

はじめに

2011年3月11日14時46分、宮城県牡鹿半島の東南東沖130kmの海底を震源としたマグニチュード9.0の大地震が発生した。それに伴い、津波が発生し、東北地方と関東地方の太平洋沿岸部に壊滅的な被害をもたらした。この津波は、東京電力福島第一原子力発電所にも到達し、原子炉の電源装置を破壊、冷却機能が麻痺した。それにより、福島第一原子力発電所で水素爆発が発生し、この事故により圧力抑制プールの一部が破壊され、大気中に多くの放射性物質が放出された^[1-3]。このうち、茨城県つくば市に降下した放射性物質の多くは¹³¹Iと¹³⁷Csであった^[4]。¹³¹Iと¹³⁷Csの物理学的半減期は8.021日と30.04年であることから、事故から約19ヶ月経過した現時点（2012年10月）で土壤中に存在する放射性物質の大半は¹³⁷Csと考えられる。土壤に降下した放射性物質は、雨などとともに土壤中に浸透し、やがては地下水に達する。あるいは、河川に流れ込み、水道水に含まれることも懸念される。よって、現時点において放射性物質による汚染として問題になるのは、水および土壤である。本研究では、水道水と土壤の汚染に注目し、水道水の放射線量を簡易かつリアルタイムに測定できるシステム、および土壤の深層分布を測定する新たな技術の開発に取り組んだので報告する。

方 法

(1) 水道水リアルタイムモニタリングシステムの開発

a) ¹³⁷Csのエネルギースペクトルの取得

システム開発の基礎実験として、放射性物質のエネルギースペクトルの取得を行った。本研究では、放射線検出器としてCdTe半導体検出器を採用した。CdTe半導体検出器は、環境

放射線測定で多用されるNaI (Tl) などのシンチレーション検出器と比較し、放射線をシンチレーション光に変換する際の損失が無く、放射線から電気信号への変換効率が良いことから、エネルギー分解能および検出感度が高いという利点を有している。本検出器は、原子番号と物質密度が高いため、放射線吸収率が高い。さらに、バンド・ギャップエネルギーも大きいため、室温下において漏電流が少なく、常温での使用が可能である。また、同じ半導体検出器であるゲルマニウム (Ge) 型検出器と比べ、液体窒素による冷却や光電子増倍管が不要であるため、小型で使いやすく、コストを抑えることができるという特徴を有する。

本研究のリアルタイムモニタリングシステム (図1) を概説する。電源は、乾電池 (9V) を使用した。はじめに、CdTe半導体検出器で放射線を検出し、電気パルス信号へ変換する。ここで得られた電気パルス信号を、プリアンプを通すことにより信号の積分を行う。一般に、プリアンプは高価であるため、本研究ではコストを抑えるため、片電源型回路による独自設計のプリアンプを採用した (図2)。入力された信号は、コンデンサに蓄えられる。このコンデンサと抵抗を並列に接続し、電荷積分作用が生じない程度の長い減衰時間で電荷を解放する。積分作用のため、プリアンプは入力側から見て高インピーダンスとなるが、後続する回路へは低インピーダンスのケーブルを通じて信号を伝搬する。よってプリアンプはインピーダンス整合の役割も果たしており、信号対雑音比 (SN比) を向上させる。プリアンプで積分された信号は、スペクトロスコープアンプ (CP4417; クリアパルス社) を通すことにより、各エネルギーでの入力パルスの整形および増幅を行い、波高分析器 (MCA600; Laboratory Equipment Corporation 社)、および波高分析ソフト (MCA標準ソフト; Laboratory Equipment Corporation 社) で増幅された入力パルスのエネルギーを各チャンネルに分けて出力することにより、エネルギースペクトルを得ることができる。

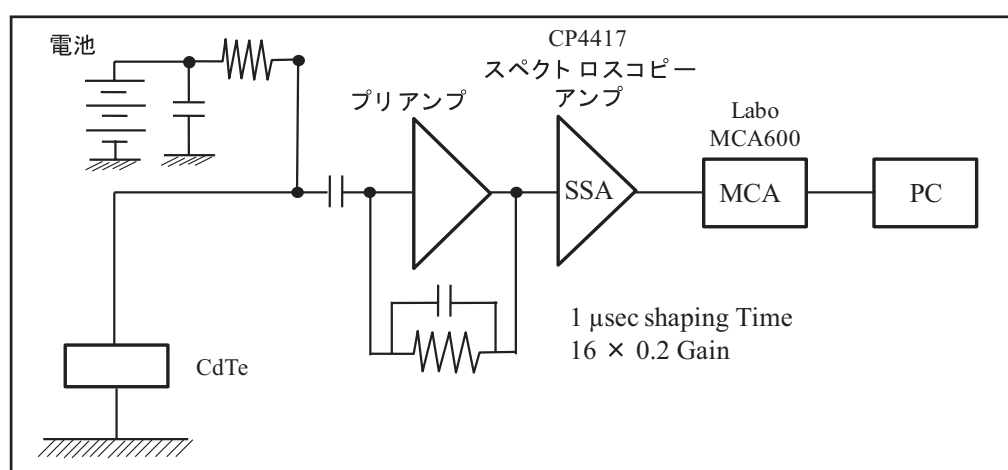


図1 リアルタイムモニタリングシステムの概念図

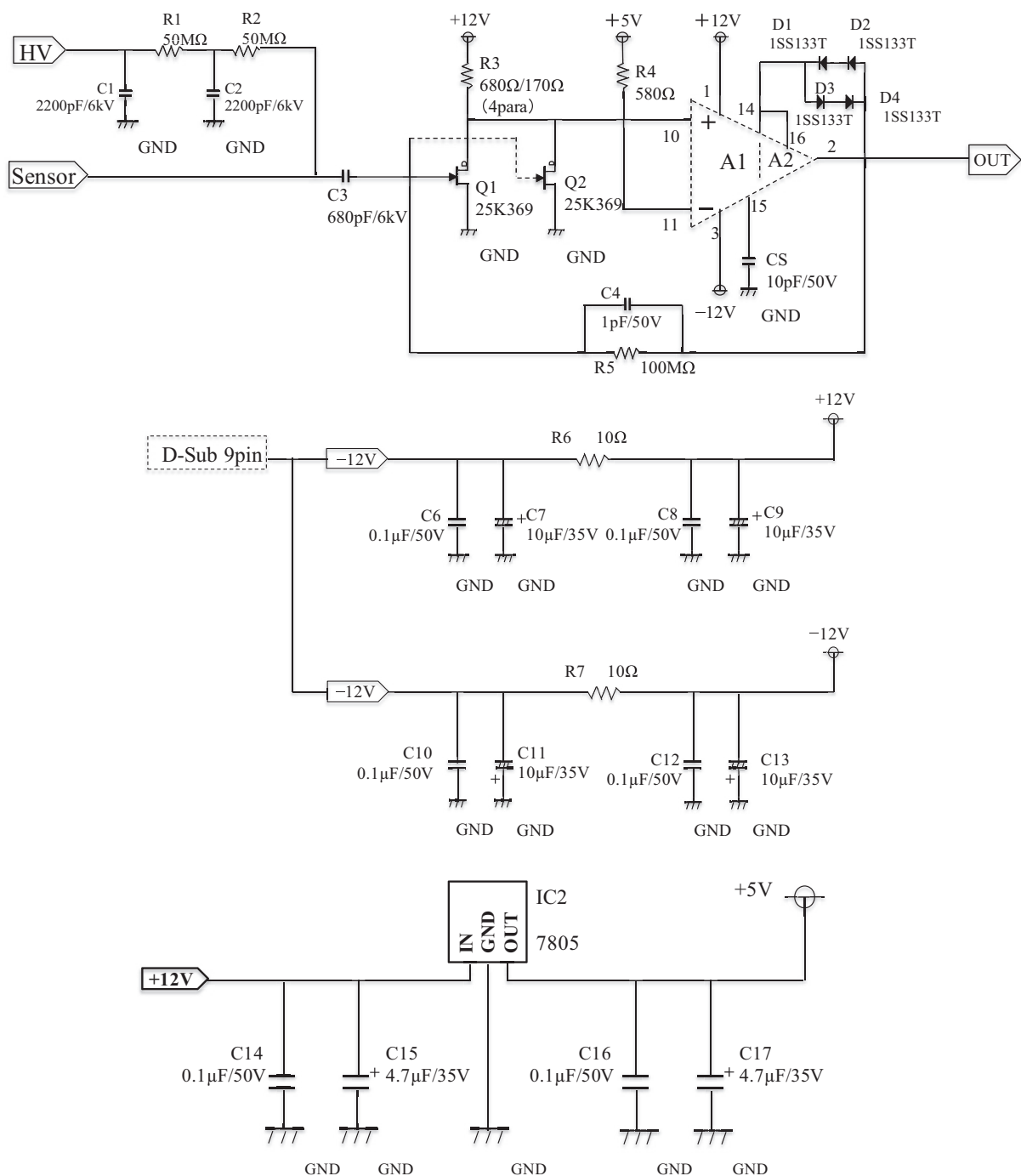


図2 プリアンプ設計図

測定の対象とした放射性物質は、現在環境中に最も多く含まれる放射性物質である ^{137}Cs とした。本測定の実験系を図3に示す。CdTe 半導体検出器の先端に標準線源 (^{137}Cs) を貼り付け、周辺からの放射線の混入を防ぐためにその周囲を鉛で遮蔽した。その後、標準線源を取り外し、バックグラウンド (B. G.) の測定を行った。測定条件は、Shaping Time = $1\ \mu\text{sec}$ 、Gain = 16×0.2 、Time = 3600 sec とした。

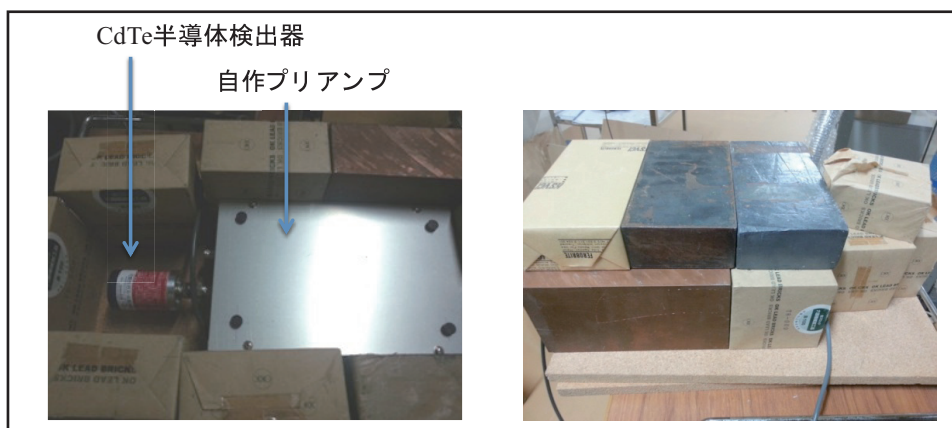


図3 CdTe半導体検出器の測定系

(2) 土壌の深層分布を測定する新規測定技術の開発

a) 高純度Ge検出器を用いた測定

土壌に含まれる ^{131}I と ^{137}Cs を対象とし、高純度Ge検出器（GEM20P4-70 ; Seiko E&G 社）を用いて深層分布の測定を行った。測定の際、自然な状態（表層と深層の土が混合しない状態）で土壌を採取することは極めて難しい。そこで、筒型のオリジナル土壌用サンプル容器(図4)を用いることにより、自然な状態の土壌採取を可能にした。容器の高さは70 mm、幅は30 mm Φ である。測定系は、鉛でスリット（5 mm）を作り、土壌用サンプル容器の表面をスリットより下端（-2.5 mm）にセットした部分を最浅部とし、5 mm 間隔で測定を行った。この際、1 ポイントの測定時間を1時間とし、全9ポイントの測定を行い、各ポイントにおける測定データからB. G. のデータを引いた値を真値とした。

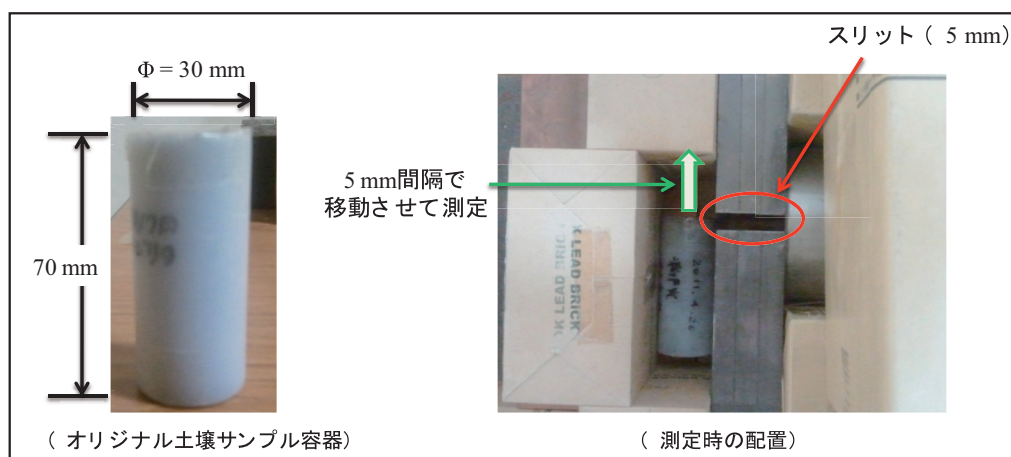


図4 高純度Ge検出器を用いた土壌の深層分布の測定システム

b) IPを用いた測定

従来、放射性物質による土壌の深層分布の測定は、高純度Ge検出器を用いた測定方法が一般的である。しかし、高純度Ge検出器は極めて高価であり、限られた施設にしか設置さ

れていないのが現状である。そこで、安価で簡易的に土壌の放射性物質を評価するシステムを開発することを目指し、イメージングプレート（imaging plate : IP）を用いたオートラジオグラフィによる深層分布の定性評価法を採用した。IPを用いた土壌の深層分布の測定系を図5に示す。IP（BAS-MS ; FUJIFILM社）は、2cm×20cmの短冊状にカットした。地中に傾斜のある穴を5cm掘り、IPの検出面が土壌に接触するように設置した。IPでは蓄積された情報が、可視光により消去されてしまう、いわゆるフェーディング現象を生じる恐れがあるため遮光が必須となる。本研究では、効率的に遮光でき、かつ ^{137}Cs から放出される β 線が遮蔽されない厚さを持つアルミ蒸着ポリエステルフィルムを遮光に採用した。また、雨風などの防水対策も必須である。そこで、IPをラップで覆い、IPが動かないように真鍮で固定し、さらにシートをかぶせた。本測定系で3時間放置した後、読み取り機器（FLA-7000 ; FUJIFILM社）および読み取りソフト（Image Reader ; FUJIFILM社）を用いてIP上に蓄積されたデータを取得し、解析専用ソフト（Multi Gauge Ver3. X ; FUJIFILM社）を用いて解析を行った。

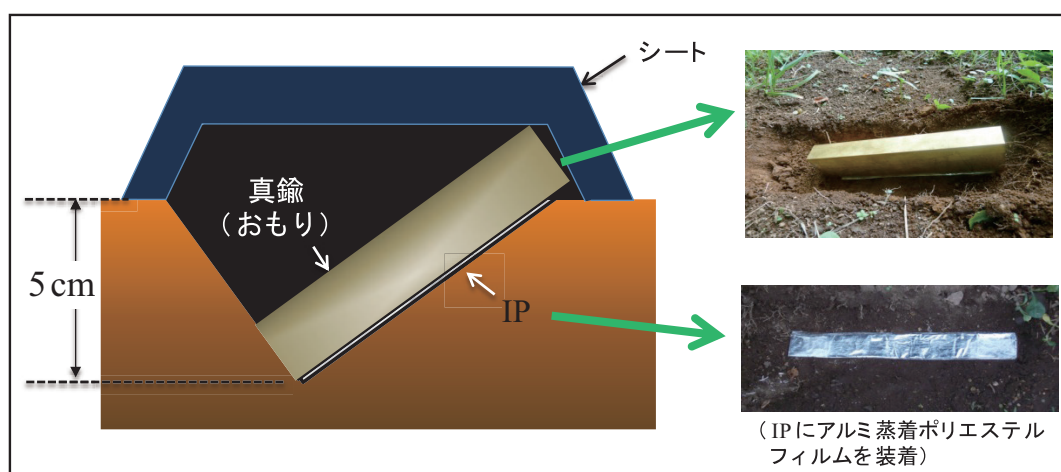


図5 IPを用いた土壌の深層分布の測定システム

結 果

(1) リアルタイムモニタリングシステム開発に向けた ^{137}Cs のエネルギースペクトルの取得

CdTe半導体検出器と自作プリアンプの組み合わせにより得られた ^{137}Cs およびB.G. のエネルギースペクトルを図6に示す。縦軸は単位時間あたりに測定された放射性物質のカウント数、横軸はチャンネルである。チャンネルはエネルギーの相対値に相当する。B.G. では、112チャンネルで放射線量は10572カウントであったが、チャンネル数の増加に伴い放射線量は減少し、150チャンネルで36カウント、200チャンネル以上では放射性物質は検出されなかった。一方、図中の青線で示したグラフでは、400チャンネルまで放射性物質が検出された。これは、 ^{137}Cs に由来するものと推測できる。

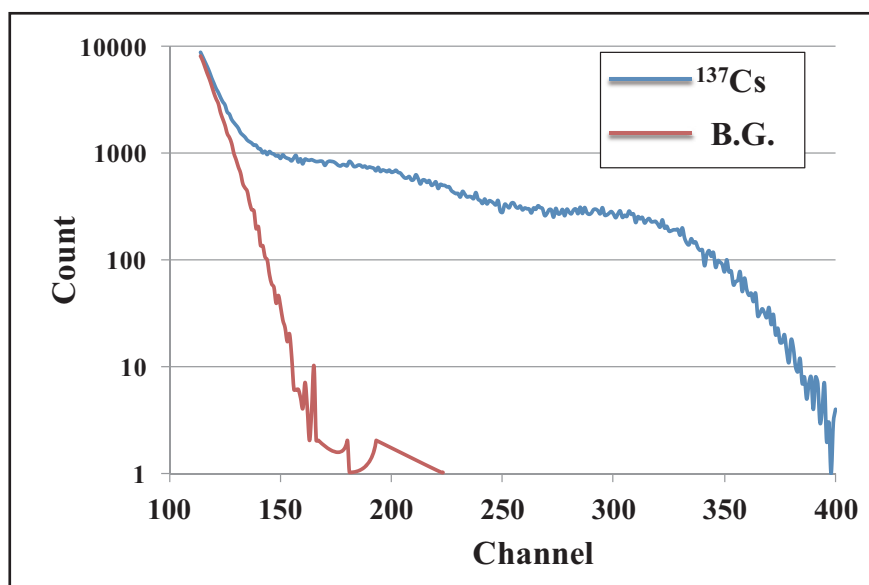


図6 CdTe半導体検出器の基礎データ
(^{137}Cs およびB.G. のエネルギースペクトル)

(2) 土壌の深層分布を測定する新規測定技術の開発

a) 高純度Ge検出器を用いた測定

高純度Ge検出器を用いた測定結果を図7に示す。左図は ^{131}I 、右図は ^{137}Cs を示す。縦軸は相対線量、横軸は土中の深さ (cm) である。地表2.5 cmにおける放射線量を基準の放射線量とし、地中の放射線量を相対線量として算出した。 ^{131}I と ^{137}Cs の両者において、深さ0.75 cmにピークが検出され、相対線量はそれぞれ 8.05 ± 4.84 と 2.53 ± 0.249 であった。 ^{131}I では、深さ3.0 cmで相対線量は最も低くなったが、深さ4.75 cmでは 22.35 ± 1.56 となり、地表0.25 cmに対して3倍であった。一方、 ^{137}Cs では、深さ3.75 cm以降の相対線量は 0.233 ± 0.0593 となり、B.G. レベルであった。

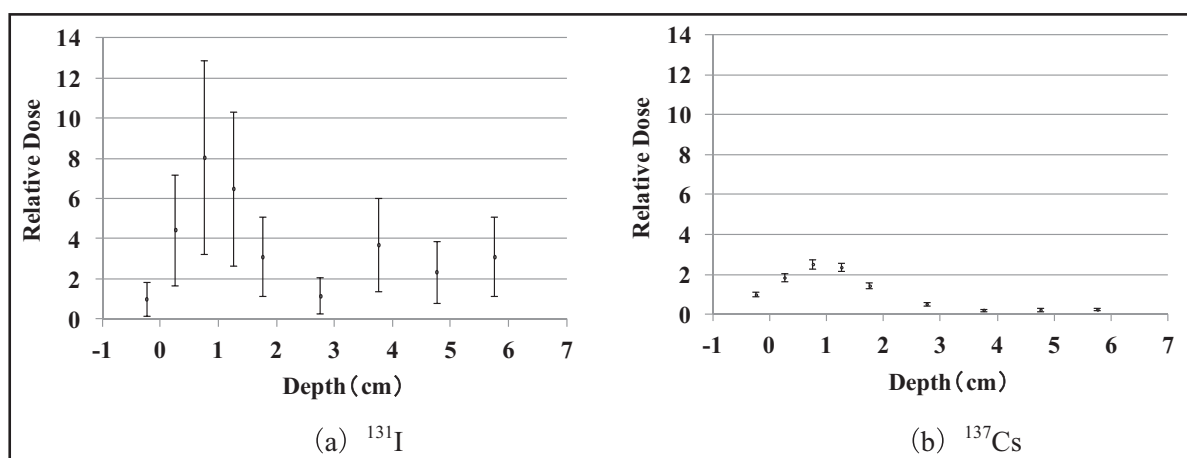


図7 高純度Ge検出器を用いた土壌の深層分布

b) IPを用いた測定

IPを用いた土壌の深層分布の測定結果を図8に示す。横軸は地表からの深さを示し、右にいくほど深くなる。また、放射性物質の分布はカラー表示され、赤いほど放射性物質濃度が高く、黄－緑－青の順に低いことを表している。本結果は、地表付近ほど放射性物質が多く集積し、深くなるほど集積が減少していることを示している。

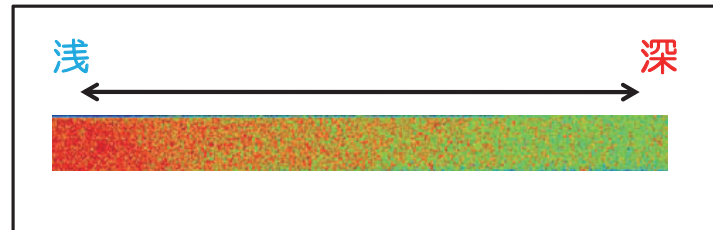


図8 IPを用いた土壌の深層分布

考 察

(1) CdTe半導体検出器と自作プリアンプの組み合わせによるエネルギースペクトルの取得

本研究では、水道水内に含まれる放射性物質をリアルタイムでモニタリングすることを目的として、CdTe半導体検出器と自作プリアンプを用いた測定システムを構築した。CdTe半導体検出器は、その分解能の高さから、エネルギースペクトルの測定に用いられている。 ^{137}Cs のエネルギースペクトルは、0.662 MeVに鋭く立ち上がるピーク（光電ピーク）が見られ、それより低いエネルギー領域に検出器の一部と光電効果、またはコンプトン効果などの相互作用を起こした結果、エネルギーがわずかに変化することによってスペクトルが広がり、上に凸な山形（コンプトンテール）となるのが一般的な形状である。しかし、本測定結果では、光電ピークやコンプトンテールがはっきりとは認められなかった。この原因として考えられるのは、プリアンプの性能である。プリアンプは、入力された情報からSN比を向上させ、後段に接続されたスペクトロスコピーアンプに出力する役割を担っている。しかし、本研究で用いた自作プリアンプでは、光電ピークを確認できるほどのSN比を確保できなかった。一方、 ^{137}Cs のエネルギースペクトルについては、B.G.と比較してスペクトルの変化を明確に捉えており、放射性物質を検出できていることが確認された。

(2) 水道水測定の実用化へ向けたモデリング

^{137}Cs のエネルギースペクトルを取得したCdTe半導体検出器を線量検出ユニットとして組み込み、水道水中の放射線量をリアルタイムで測定できる新たな水道水リアルタイムモニタリングシステムの設計に取り組んだ。本システムの外観（a）と設計図（b）および（c）を図9に示す。水道水の蛇口を供給口に接続し、CdTe半導体検出器の測定系（放射線検出管）を縦型に配置した。水供給口から流入した水道水は、この放射線検出管を通過して吐出口か

ら排出される。すなわち、水道水を循環させるシステムとなっている。また、自宅などの一般の水道設備に外付けできる仕組みになっており、簡易・普及型のモニタリングシステムといえる。

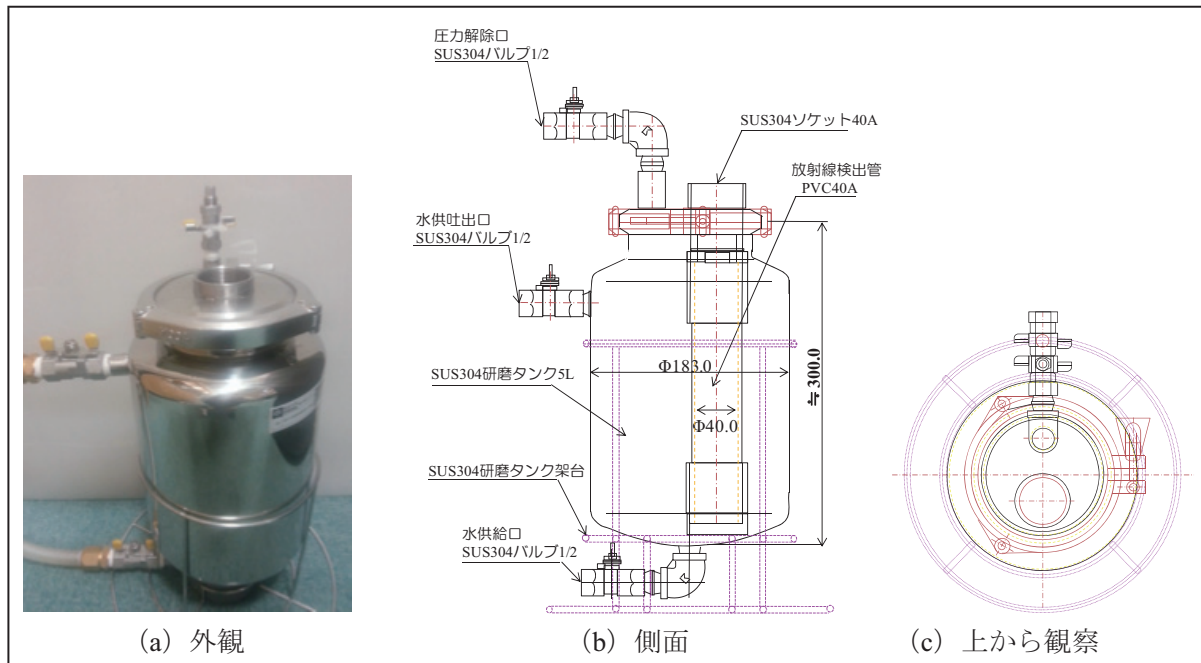


図9 本システムの外観と設計図

(3) 土壌深層分布の新規測定技術の開発

高純度Ge検出器を用いた土壌の深層分布測定では、 ^{131}I と ^{137}Cs の両者に地中0.75cmにピークが検出され、 ^{137}Cs では深さ3.75cmでB.G.と同等の値を示した。一般に、土壌中における ^{137}Cs は、土壌と親和性が高く、吸着されやすいという特徴を有している。このことから、土壌の深部に行くほど ^{137}Cs の放射線量は減少したと考えられる。本結果は、地表付近の放射性物質濃度が高いという過去の報告^[6, 7]と一致した。

IPを用いた土壌の深層分布測定では、地表付近で放射線量が高く、深くなるほど放射線量が低くなる結果となり、高純度Ge検出器を用いた測定と同様の結果を得た。高純度Ge検出器を用いる場合、詳細に深層分布を測定するためには、スリットを細くし、細かな間隔で測定する必要があり、多大な時間を要するというデメリットがある。一方、IPを用いた測定では、IPを土壌中に配置し、数時間放置するだけで深層分布を容易に得ることができる。IPは医療現場ではX線写真などに用いられ、汎用性が非常に高い^[8-10]。これらの点を考慮すると、高価な高純度Ge検出器に比べ、IPを用いた本手法の持つアドバンテージは高い。しかし、IPを用いた本手法では、得られた値がLAU (Luminescence arbitrary units) と呼ばれる光量の相対値であることから、視覚的な定性評価に留まっているのが現状である。この点に関しては、今後、定量評価に向けた新たな測定・解析手法の開発に取り組む予定である。

結 語

本研究では、水道水リアルタイムモニタリングシステムの開発、およびIPを用いた土壌の深層分布を測定する新規測定技術の開発に取り組んだ。本研究で開発した水道水リアルタイムモニタリングシステムでは、エネルギー分解能を改善する必要があるが、 ^{137}Cs を検出できる可能性が示唆され、水中に含まれる放射性物質を簡易的かつリアルタイムに測定することが可能であると言える。また、IPを用いた土壌の深層分布の測定では、高純度Ge検出器と同等の評価が可能であることが示された。本研究で開発したこれらのシステムは、開発費用が安価であり、測定方法も簡易的であることから、広く普及させることが可能であると考えている。

参考文献

- [1] Sanami T, et al.: Time Variations in Dose Rate and γ Spectrum Measured at Tsukuba City, Ibaraki, due to the Accident of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station. Transactions of the Atomic Energy Society of Japan 10, 163-169, 2011.
- [2] Stohl A, et al.: Xenon-133 and caesium-137 releases into the atmosphere from the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant: determination of the source term, atmospheric dispersion, and deposition. Atmospheric Chemistry and Physics 11, 28319-28394, 2011.
- [3] Chino M, et al.: Preliminary estimation of release amount of ^{131}I and ^{137}Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into the atmosphere. Journal of Nuclear Science and Technology 48, 1129-1134, 2011.
- [4] Environmental radiation at High energy accelerator research organization, <http://www.kek.jp/ja/Research/ARL/RSC/Radmonitor/>, [in Japanese].
- [5] 社団法人 日本アイソトープ協会：アイソトープ手帳（第11版），丸善，2010.
- [6] Fukui M, et al.: Transportation of Long-lived Radionuclides in Soil Water. Health Physics 11, 275-283, 1976.
- [7] Giani L, et al.: Migration of Cesium-137 in typical soils of North Germany ten years after the Chernobyl accident. Zeitschrift fur Pflanzenernahrung und Bodenkunde 160, 81-83, 1997.
- [8] Amemiya Y and Miyahara J : Imaging plate illuminates many fields. Nature 336, 89-90, 1998.
- [9] Takabayashi Y and Shchagin AV: Observation of parametric X-ray radiation by an imaging plate. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms 278, 78-81, 2012.
- [10] Sakurai T, et al.: Relationship between radiation dose reduction and image quality change in photostimulable phosphor luminescence X-ray imaging systems. Dentomaxillofacial Radiology 39, 207-215, 2010.