



イメージングプレートを用いたCs-137とSr-90の識別

大橋, 改
中山, 高宏
宮田, 隆永
山内, 知也
小田, 啓二

(Citation)

神戸大学大学院海事科学研究科紀要, 11:39-44

(Issue Date)

2014

(Resource Type)

departmental bulletin paper

(Version)

Version of Record

(JaLCD0I)

<https://doi.org/10.24546/81008068>

(URL)

<https://hdl.handle.net/20.500.14094/81008068>



イメージングプレートを用いた Cs-137 と Sr-90 の識別

Discrimination of Cs-137 and Sr-90 Using Imaging Plate

大橋 改*, 中山 高宏**, 宮田 隆永***, 山内 知也, 小田 啓二

Kai Ohashi*, Takahiro Nakayama**, Takahisa Miyata***

Tomoya Yamauchi, Keiji Oda

(平成 26 年 5 月 7 日受付)

Abstract

A severe accident on Fukushima Daiichi nuclear power plants caused a decontamination of radioactive materials in soil and ocean. An imaging plate (IP) is one of most effective tools for two-dimensional radiation image, but it is not possible to identify the nuclides only by IP response, photo-stimulated luminescence (PSL) intensity. The purpose of this study is set to check an applicability of the methods proposed in the past studies to separation of radioactive nuclides.

The attenuation curve, which is most important and fundamental data for a proposed technique, was measured carefully for Cs-137 and Sr-90 sources. Then, after repeating the measurements with radioactive sources and the calculations with EGS5 Monte Carlo code, a configuration consisting of opposing two IP sheets and 120 mg/cm²-thick absorber between them has been concluded to be suitable for discrimination of two nuclides. Other problems for practical application are also discussed about the observation area of interest and mixture of two nuclides.

(Received 7 May, 2014)

1. はじめに

2011 年 3 月 11 日に起きた東日本大震災によって、福島第一原発事故が発生し、大気や土壌、海水など様々な場所へ大量の放射性物質が放出された。放出された核種の中でも、放射能汚染における主要三核種である Cs-137、Cs-134、I-131 をはじめ、Sr-90 も要注意核種のひとつとして取り上げられている。セシウムはアルカリ金属元素であり、生体における化学的、生物学的性質が、人体における必須栄養素であるカリウムに似ている。放射性セシウムを体内に取り込んだ場合約 10 パーセントはすぐに排泄されるが、残りは 100 日

程度体内に残存する(生物学的半減期)。また放射性セシウムは高温になるとガス化して広範囲に拡散する性質を持つ[1]。ストロンチウムはアルカリ土類金属元素であり化学的、生物学的性質がカルシウムに似ている。カルシウムはよく知られている通り体内における非常に重要な栄養素のひとつである。ストロンチウムは一度体内に取り込まれると大部分が骨に取り込まれ、その生物学的半減期は約 50 年にも及ぶ。しかしセシウムに比べると揮散しにくい物質である[2,3]。ヨウ素は甲状腺の機能維持に必須な元素であり、甲状腺に蓄積される。放射性ヨウ素が甲状腺がんの原因になると言われるのはこのためである[4]。

原発事故から 3 年近く経過した今、半減期を考慮すると、I-131 以外の核種、特に Cs-137 と

* 神戸大学大学院海事科学研究科博士前期課程

** 神戸大学海事科学部マリンエンジニアリング学科

*** 現 (株) JFE エンジニアリング

Sr-90(Y-90)を識別する方法を確立することが、今後原子炉建屋内部などの除染を効率よく進めていく上で重要な課題となる[5]。現在、イメージングプレートは、土壌内の汚染分布を測定することに応用されているが、放射線量を読み取るだけでは放射線の種類や放射性核種を識別することはできない。過去の研究において、IP 上のある領域内における入射粒子の統計的なばらつきの違いを利用して、頻度分布により線種を識別する方法[6-8]や、IP を複数枚重ねて各層における吸収エネルギーの減弱割合の差をみることによって線種を識別する方法(重ね合わせ法)[9,10]などが提案された。

Cs-137 と Sr-90 は、ともに β 線を放出する核種であることから、頻度分布によって分離識別することは難しいと考えられるため、本研究では、重ね合わせ法を応用することで Cs-137 と Sr-90 の識別が可能かどうかを検討することを目的とした。

2. 減弱曲線

2.1 Cs-137 及び Sr-90 の照射実験及びシミュレーション計算

過去に線種識別法として用いられた重ね合わせ法は、IP 複数枚を単純に重ねて、各層における吸収エネルギーの減弱割合の違いをみることによって放射線の線質(種類とエネルギー)を識別する方法であった[9]。本研究においては、ただ IP を重ね合わせるのではなく、重ね合わせ方を工夫(裏向きと表向きで蛍光体層までの厚さが違うことを利用)することや、IP の間に適切な厚さの遮蔽材(吸収体)を挿入することで、Cs-137 と Sr-90 の識別がより効果的に行えると考えた。しかし IP 2 枚と遮蔽材の組み合わせ方のパターンは多数存在するため、すべての組み合わせを実験するには多くの時間を必要としてしまう。

そこで減弱曲線の測定、モンテカルロ計算による再現性の確認、最適体系の設計という手順で研究を進めた。第一段階として、IP を 2 枚重ねて、1 枚目の IP 画像と 2 枚目の IP 画像間で減衰率を算出する画像処理演算を行い、その画像色調差(減衰率の差)によって核種を識別する

という方法を想定し、有効な体系を数パターンに絞り込むために不可欠なデータである減弱曲線の測定実験を行った。実験においては、低エネルギー β 線や α 線などの検出に優れたタイプの IP (BAS-TR2025 富士フィルム社製)を使用した。IP は蛍光体層(BaFBr:Eu^{2+})-下塗層-支持体層-磁気吸着層の四層から構成されていて、蛍光体層の部分が有感層である。線源には Cs-137 の $\gamma \cdot \beta$ 線源、Sr-90 の β 線源を用い、アクリル棒と穴を開けたアルミニウム板を組み合わせた専用のホルダーを作製し、距離が一定になるようにして照射した。遮蔽材には厚さの違うプラスチック(アクリル、アルミニウム、PET、塩化ビニル)を組み合わせて用いて、厚さ依存性を調べた。IP で記録された情報は専用の IP リーダー BAS-1800 で読み取り、その際中心付近の $50\text{mm} \times 50\text{mm}$ を測定領域とした。

次に、モンテカルロコード EGS5 を用いて実験を模擬した体系で計算し、再現性を調べた。シミュレーション計算における計算体系を Fig. 1 に示す。下塗層は厚さが薄いため与える影響が少ないと判断し、簡略化のため省略した。線源から発生する放射線のエネルギーには Cs-137 と Sr-90 のそれぞれのエネルギースペクトルを入力し、入射粒子数は全体を 100 万個として、各線種別の放出率(分岐比)に設定した。粒子は一様かつ等方的に発生させ、線源の直径は実験で用いた線源に合わせて、Cs-137 が 2mm、Sr-90 は 6mm とした。遮蔽材の大きさは $60\text{mm} \times 60\text{mm}$ とし、測定領域は $50\text{mm} \times 50\text{mm}$ とした。

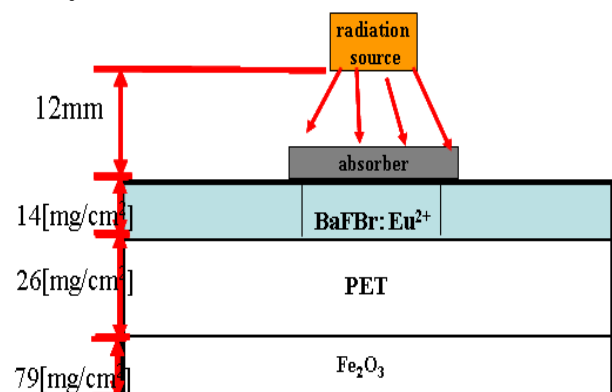


Fig. 1. Geometry of simulation

実験結果及び計算結果を Fig. 2 に、各々、丸印及び実線で示した。このように両者の間には良い一致が見られ、EGS5 の再現性を確認することができた。このことから、2 枚の IP の重ね合わせ方や間に置く遮蔽材の厚さなどのパラメータを決定する際、シミュレーションを有効に使えることが分かった。

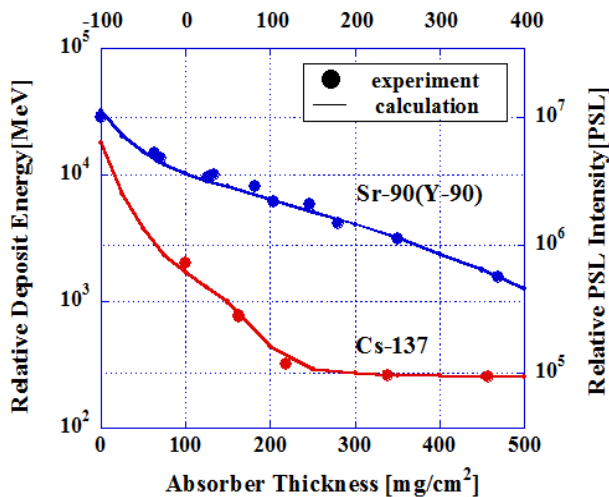


Fig. 2. Attenuation curves for Cs-137 and Sr-90

本節の実験で設定した領域 50mm×50mm を、さらに 2mm×2mm の 625 領域に細分割し、得られた Sr-90 の詳細な空間分布の一例を Fig. 3 に示す。Fig. 3 の上図が三次元の空間分布、下図がそれを上からみたものである。Fig. 3 より実験結果と計算結果は良い一致が見られ、EGS5 が微小な領域においても高い再現性を持つことがわかった。

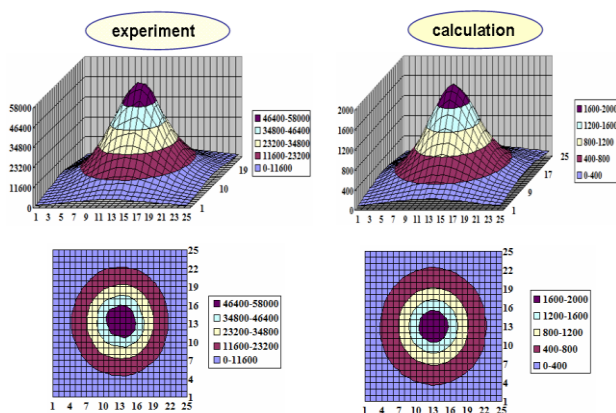


Fig. 3. Spatial distribution of PSL intensity near radioactive sources.

2.2 線種別壊変あたり減弱曲線

実在する線源からは、 β 線、 γ 線、 α 線、X 線など種々の放射線が同時に放出されているため、減弱曲線における線種依存性を実験で調べることはできない。前節までの計算結果から、IP に線源を用いて放射線を照射する実験において、EGS5 による再現性があることがわかった。そこで本節では EGS5 を用いて線種別に減弱曲線を作成した。計算体系は Fig. 1 の遮蔽材の大きさを、IP 全体を覆う形とした。計算条件はすべて 2.1 節のものと同様に設定した。

Cs-137 及び Sr-90 の計算結果を、各々 Fig. 4 及び Fig. 5 に示す。縦軸は壊変あたりの吸収エネルギーとし、その減弱曲線における各成分をしめしている。Fig. 4 より、Cs-137 の減弱曲線は 200 mg/cm² 付近まで内部転換電子の影響が大きく、それ以降では特性 X 線の影響が大きいことがわかった。また Fig. 5 より、200 mg/cm² 以上では、Y-90 が支配的であることが確認できる。

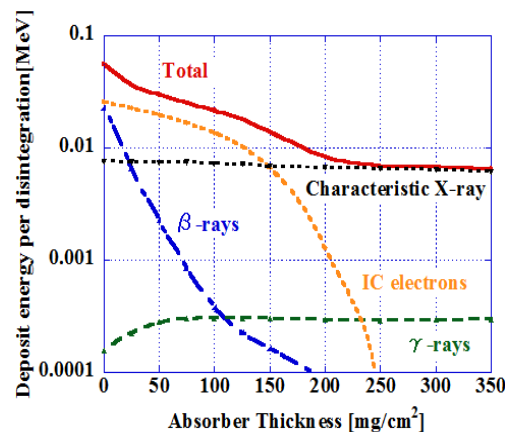


Fig. 4. Attenuation curve for Cs-137 source

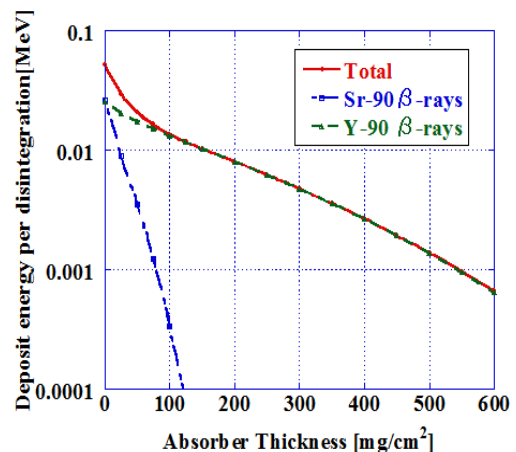


Fig. 5. Attenuation curve Sr-90 source

2.3 測定領域を変化させた場合の減弱曲線

本研究において Cs-137 と Sr-90 の識別法として検討するのは、IP を 2 枚重ねて、1 枚目の IP 画像と 2 枚目の IP 画像間の、減衰率を算出する画像処理演算を行い、その画像色調差(減衰率の差)を比較するという方法である。2.1 節での実験及びシミュレーション計算では、解析時の測定領域を 50mm×50mm に設定して減弱曲線の作成を行なった。しかし、減衰率画像の各ピクセルの画像濃度を Fig. 2 を用いて予測する場合、測定領域をより小さな領域に設定した場合の減弱曲線と Fig. 2 の比較を行なう必要がある。そこで本節では 2.1 節の実験で得られたデータを、解析時に測定領域の変更を行い(Fig. 6)、減弱曲線を作成した。また EGS5 においても Fig. 1 と同様の体系で、実験に合わせて測定領域を変更し、シミュレーション計算を行なった。

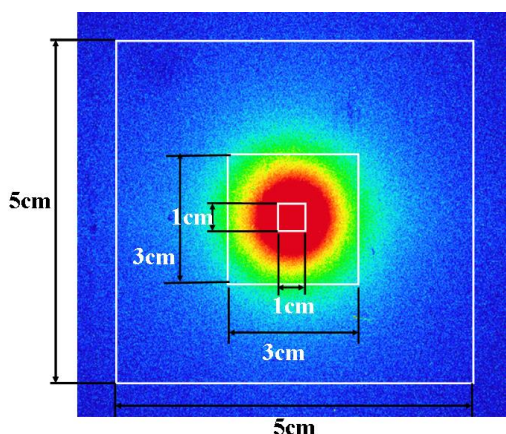


Fig. 6. Setting of the measurement area

縦軸を厚さ 0[mg/cm²]における PSL 強度で規格化した相対値の減弱曲線を、各々、Fig. 7(Cs-137)及び Fig. 8(Sr-90)に示す。

前者(Cs-137)では、測定領域 50mm×50mm の結果とそれ以外の測定領域の結果において若干の差がみられる。この原因には線源の密封容器厚さ分だけ減弱割合がずれていることが考えられた。そこで EGS5 で剥き出しの状態の線源を設定しシミュレーション計算を行った。その結果を Fig. 9 に示す。Fig. 9 から測定領域を変更しても減弱割合に大きな変化がないことがわかった。また Fig. 8 より、Sr-90 においても測定領域の変更による減弱割合の大きな変化はなかった。これらの結果か

ら[線源中心付近の領域における減弱割合]≈[測定領域全体の減弱割合]であることがわかる。これは線源の中心付近の領域における吸収エネルギーが高いため、領域全体の減弱割合が中心付近の領域における吸収エネルギーの減衰率に依存していることが原因であると考えられる。

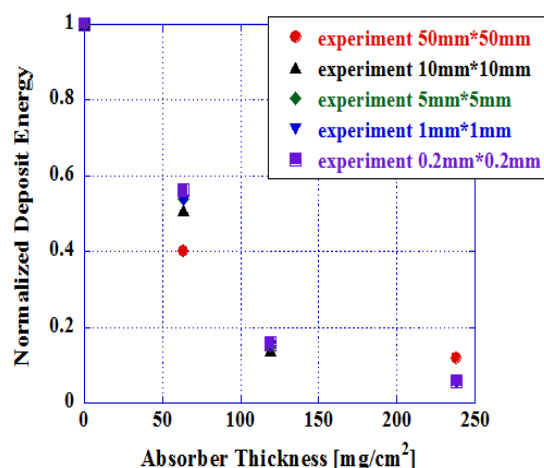


Fig. 7. Normalized attenuation curve for Cs-137

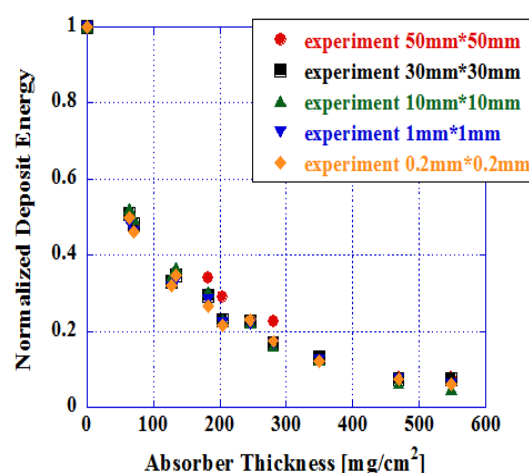


Fig. 8. Normalized attenuation curve for Sr-90

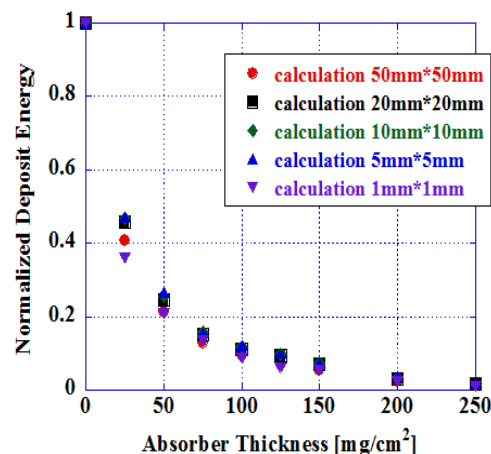


Fig. 9. Calculated attenuation curve for Cs-137

3. 核種識別に最適な体系の検討

Fig. 2 の減弱曲線より、2 点間の減衰率の差が大きくなるようなポイントの選び方としては、①100mg/cm² 付近と 200mg/cm² 付近、② 0 付近と 230mg/cm² 付近、及び③230mg/cm² 付近と 600mg/cm² 付近が挙げられる。1 枚目の IP の前の吸収体厚さ、1 名の IP の向き（2 枚目の IP と対向させるか平行に置くか）及び両者の間に置く吸収体の厚さの 3 つのパラメータがあるが、上述の①から③の厚さに配慮しながら、予備計算を行い、有効であると考えられる体系を 4 つに絞り込んで実験を行った。

このための実験には、ステンレス資料皿上に固定された面線源（薄いアルミニウムでコーティングされたもの）を使用した。放射能は、Cs-137 が 10kBq、Sr-90 が 2.5kBq である。事前のシミュレーションによる予想、及びいくつかの体系での実験を繰り返した結果、最終的に、2 枚の IP を対向させ、両者の間に 119mg/cm² のアクリルを置いた体系が、本研究で目的としている 2 つの核種の識別において最適な体系であると結論づけた。

Fig. 10 にこの体系で行った実験結果を示す。Cs-137 と Sr-90 の各々の線源に対して、1 枚目と 2 枚目の比を演算した結果を示している。両者の色調に明らかな違いがあり、IP 画像の演算処理によって簡単に識別できることがわかった。なお、中心付近の 10mm×10mm 領域の減衰率（PSL2 枚目の IP/ PSL1 枚目の IP）を算出したところ、Sr-90 の減衰率が 0.6、Cs-137 は 0.2 であった。

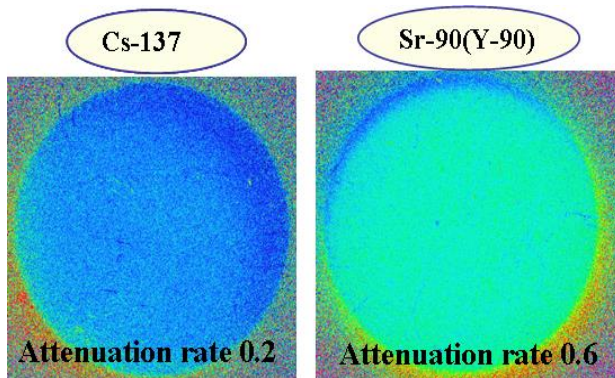


Fig. 10. Image data after division processing

4. 核種が混在している場合の検討

実際の土壌中においてはCs-137とSr-90が混在している場合が考えられる。そこで核種が混在している場合、減衰率が受ける影響について検討してみた。

実験は前節で決定した体系とした。まず、Sr-90線源を照射した後、領域が一部重なるように（少し位置をずらして）Cs-137線源を照射した。その際フルエンス（線源の放射能と照射時間の積に比例）の割合（Cs:Sr）を16:1から1:4まで変化させた。なお、フェーディングの影響は考慮しなかった。測定領域は10mm×10mmとし、2つの核種の放射線が重複している部分を測定した。

一方、計算体系をFig. 1と同様にし、計算条件は2.1節で設定したものから、測定領域を10mm×10mmに、線源の直径を46mmに変更してシミュレーション計算を行い、厚さ119[mg/cm²]と238 [mg/cm²]における吸収エネルギーから減衰率を算出した。

横軸を Cs-137 の比率とし、それに対する減衰率の変化を Fig. 11 に示す。なお、実験値を丸印、計算値を実線で表している。この図より、Cs-137 の比率が 0.7 程度では減衰率にあまり変化が見られないことが分かった。このことから、核種が混在している場合において、単純に減衰率から混合比を推定することは難しく、本手法の改良が必要であると言える。

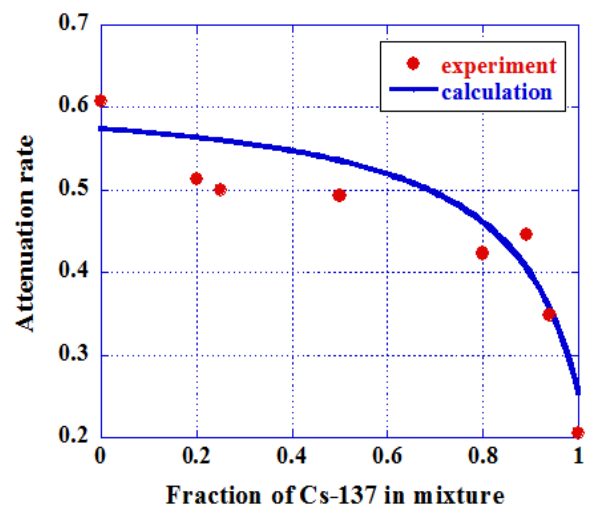


Fig. 13. Dependence of the attenuation rate on fraction of Cs-137

5. 結論

本研究では、過去に IP による線種識別法として考案された重ね合わせ法を参考に、減衰率画像の色調の比較による核種の識別法について検討することを目的とした。研究によって得られた結果を以下にまとめる。

(1) Cs-137 と Sr-90 の密封線源を用いて IP に放射線を照射し、吸収エネルギーの減弱曲線を測定する実験を行なった。併せて EGS5 によるシミュレーション計算も行なった。それぞれの核種における実験結果と計算結果はよい一致を得られ、EGS5 による再現性を確認することができた。また空間分布についても良い一致を得られ、EGS5 の計算の精度が高いことがわかった。

(2) 測定領域を 50mm×50mm よりも小さくして実験及び計算を行なった結果、吸収体が無い場合の吸収エネルギー値で規格化した減弱曲線に変化は表れなかった。このことから 50mm×50mm の測定領域の減弱曲線により、減衰率画像色濃度の領域全体の平均値を予測することが可能であると判断した。

(3) Cs-137 の線種別減弱曲線の計算結果から、厚さ 200mg/cm² 付近までは内部転換電子、それ以降では特性 X 線の影響が大きいとわかった。Sr-90 の線種別減弱曲線の計算結果から、100mg/cm² 以上では Y-90 からの β 線の寄与で決まることがわかった。

(4) Cs-137 と Sr-90 の減衰率画像の色調差が出る体系を、予備計算によって 4 つの体系に絞った上で実験で確認した。その結果から、2 枚の IP を対向させ、その間に厚さ 119mg/cm² のアクリルを配置する体系が、Cs-137 と Sr-90 の識別に最適な体系であると結論付けた。

(5) 2 つの核種が同時に存在する場合についても検討するため、混合照射実験及び計算を行った。

計算結果から、Cs-137 の割合が 0.7 程度では減衰率に変化が見られず、核種が混在している場合、本手法には適用限界があることが分かった。

参考文献

- [1] LNE-LNHB/CEA-Table de Radionuclides Cs-137
(http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Cs-137_tables.pdf)
- [2] LNE-LNHB/CEA-Table de Radionuclides Sr-90
(http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Sr-90_tables.pdf)
- [3] 一般社団法人 日本土壌肥料学会: 「原発事故関連情報 (3): 放射性ストロンチウム (Sr) の土壌-作物系での動きに関する基礎的知見」, 2011.
(<http://jssspn.jp/info/secretariat/3sr.html>)
- [4] LNE-LNHB/CEA-Table de Radionuclides Y-90
(http://www.nucleide.org/DDEP_WG/Nuclides/Y-90_tables.pdf)
- [5] 東京電力株式会社: 「建屋内の遠隔除染技術の開発」における現場調査の実施について」, 2012.
(http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/120423/120423_02jj.pdf)
- [6] 塚原一孝 「イメージングプレートを用いた線種識別の試み」, 神戸商船大学学位論文, (2004)
- [7] K. Oda, K. Tsukahara, H. Tada and T. Yamauchi, “Proposal of new method for identifying radiation species based on distribution of PSL intensity recorded in imaging plate,” *Jpn. J. Radiat. Safety & Management*, 5 (1), 32-38, 2006.
- [8] K. Oda, K. Tsukahara, H. Tada and T. Yamauchi, “Analysis of distribution of PSL intensity recorded in imaging plate,” *Jpn. J. Radiat. Safety & Management*, 5 (2), 27-32, 2006
- [9] Chizuo Mori (1999) Instruments for Radiation Measurement in Biosciences (Series 3 : Radioluminography), 10. “Measurement of Extremely Low-level Radioactivity Distributions with Imaging Plate”, *Radioisotopes*, 48 (9), 589-599, 1999.
- [10] Toshihiro Obata, Koji Iwamoto, Yoshihiro Shiraiwa, Nakajima Eiichi, Kenji Kawai, Hideyo Shindo: Instruments for Radiation Measurement in Biosciences : Series 3. Radioluminography. 17. “Analysis of Double-labelled Samples by the Imaging Plate (IP)”, *Radioisotopes*, 49 (12), 623-636, 2000.