

(19)日本国特許庁(JP)

(12)特許公報(B2)

(11)特許番号

特許第7055560号  
(P7055560)

(45)発行日 令和4年4月18日(2022.4.18)

(24)登録日 令和4年4月8日(2022.4.8)

|              |       |           |         |       |   |
|--------------|-------|-----------|---------|-------|---|
| (51)Int. Cl. |       | F I       |         |       |   |
| G 0 1 T      | 1/167 | (2006.01) | G 0 1 T | 1/167 | C |
| G 0 1 T      | 1/16  | (2006.01) | G 0 1 T | 1/16  | A |
| G 0 1 T      | 1/169 | (2006.01) | G 0 1 T | 1/169 | A |

請求項の数 2 (全 12 頁)

|          |                              |          |                     |
|----------|------------------------------|----------|---------------------|
| (21)出願番号 | 特願2018-53329(P2018-53329)    | (73)特許権者 | 501273886           |
| (22)出願日  | 平成30年3月20日(2018.3.20)        |          | 国立研究開発法人国立環境研究所     |
| (65)公開番号 | 特開2019-164096(P2019-164096A) |          | 茨城県つくば市小野川16-2      |
| (43)公開日  | 令和1年9月26日(2019.9.26)         | (74)代理人  | 100141966           |
| 審査請求日    | 令和3年3月5日(2021.3.5)           |          | 弁理士 新井 範彦           |
|          |                              | (74)代理人  | 100103539           |
|          |                              |          | 弁理士 衡田 直行           |
|          |                              | (72)発明者  | 山田 一夫               |
|          |                              |          | 茨城県つくば市小野川16-2 国立研究 |
|          |                              |          | 開発法人国立環境研究所内        |
|          |                              | (72)発明者  | 竹内 幸生               |
|          |                              |          | 茨城県つくば市小野川16-2 国立研究 |
|          |                              |          | 開発法人国立環境研究所内        |

最終頁に続く

(54)【発明の名称】β線核種の分別定量方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記(A)~(E)工程を少なくとも含む、放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種の分別定量方法。

(A)測定対象である放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種を含む複数の固体を成形した後、該成形体を切断し、該切断した成形体の切断面の少なくとも片面または両面を遮蔽材で遮蔽した標準試料を作製する、標準試料の作製工程

(B)前記標準試料から放出される線の計数率を測定する、線の計数率の測定工程

(C)前記標準試料中の放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種の比放射能、および前記線の計数率に基づき、下記(1)式および(2)式を用いて回帰分析を行い、回帰係数 $a_i$ および $k_i$ の値を求める、回帰分析工程

$$I_{s0} = \sum_{i=1}^n I_i = \sum_{i=1}^n (a_i \times C_i) \quad \dots (1)$$

$$I_{sx} = \sum_{i=1}^n (k_i \times I_i) = \sum_{i=1}^n (k_i \times a_i \times C_i) \quad \dots (2)$$

(ただし、(1)および(2)式中、 $I_{s0}$ は遮蔽されていない試料の線の計数率、 $n$ は2、 $I_i$ は放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の

線核種  $i$  の 線の計数率、 $a_i$  は放射性セシウム ( $Cs - 137$ ) と放射性ストロンチウム ( $Sr - 90$ ) の 線核種  $i$  の比放射能を計数率に換算するための係数、 $C_i$  は放射性セシウム ( $Cs - 137$ ) と放射性ストロンチウム ( $Sr - 90$ ) の 線核種  $i$  の比放射能 ( $Bq / kg$ )、 $I_{sx}$  は遮蔽されている試料の 線の計数率、および、 $k_i$  は遮蔽材による放射性セシウム ( $Cs - 137$ ) と放射性ストロンチウム ( $Sr - 90$ ) の 線核種  $i$  の減衰率を表す。

(D) 前記回帰係数  $a_i$  および  $k_i$  の値を代入した前記 (1) 式および (2) 式に、測定対象試料の 線の計数率 (実測値) を代入して得た  $n$  元連立 1 次方程式を解いて、解である比放射能  $C_i$  の値を算出する、比放射能の算出工程

(E) 線の測定器の測定ピクセルごとに、前記比放射能  $C_i$  の値を 2 次元および / または 3 次元表示して定量マッピング像を作成する、定量マッピング工程

10

#### 【請求項 2】

前記遮蔽材の密度が  $0.9 \sim 3.0 \text{ g / cm}^3$  である、請求項 1 に記載の放射性セシウム ( $Cs - 137$ ) と放射性ストロンチウム ( $Sr - 90$ ) の 線核種の分別定量方法。

#### 【発明の詳細な説明】

#### 【技術分野】

#### 【0001】

本発明は、線ラジオグラフを用いて、コンクリート等の固体中の複数の 線核種を分別して定量する方法に関する。

#### 【背景技術】

20

#### 【0002】

線ラジオグラフは、放射性セシウム ( $Cs - 137$ 、 $Cs - 134$ ) や放射性ストロンチウム ( $Sr - 90$ ) 等の、線を放出する放射性物質 (以下「線核種」という。) の固体中の分布状態を調べるのに簡易で有用な方法である。この一例として、後掲の図 1 の (B) に、放射性セシウムに汚染された構造物から採取した、直径  $4 \text{ cm}$  のコンクリートコア (図 1 の (A)) の浸透面 (円形の面) の線ラジオグラフを示す。この図から分かるように、放射性セシウムはコンクリートの表面に不均一に分布し、特に、ひび割れに沿って高い濃度で存在する。また、コアを切断すると (図 1 の (C))、深さ方向の分布も分かる (図 1 の (D))。しかし、放射性セシウムの分布は、標準線源と比較した濃淡に基づき放射線強度の分布は定量できるが (図 2)、標準線源と測定対象のコンクリートは同じ材料とはみなせないため、放射線強度を放射能強度に換算して、放射能強度の分布を定量することはできない。(非特許文献 1)。

30

#### 【0003】

さらに、複数の核種が存在する場合、各核種の空間分布を調べる方法は未だ確立されていない。図 2 に、事故後に福島第一原子力発電所から採取したコンクリートコアの線ラジオグラフを示す。このコンクリートコアには、放射性セシウムと放射性ストロンチウムが併存すると考えられるが、両者の分布は分別できない。

もっとも、 $Cs - 137$  と  $Sr - 90$  では線のエネルギーが異なるため、適切な遮蔽材を試料と検出器の間に設置した場合に、 $Sr - 90$  よりもエネルギーが低い  $Cs - 137$  の計数率がより低くなることを利用すれば、両者を分別して定量できるとされている (非特許文献 2)。

40

#### 【先行技術文献】

#### 【非特許文献】

#### 【0004】

【非特許文献 1】前田宏治、佐々木新治、熊井美咲、佐藤勇、須藤光雄、逢坂 正彦、福島第一原子力発電所の廃止措置に向けた 2—(1)—1 建屋内遠隔除染技術の開発; JAEA におけるサンプルの詳細分析結果、JAEA-Research 2013-025

【非特許文献 2】大橋改、中山高宏、富田隆永、内山知也、小田啓二、イメージングプレートを用いた  $Cs 137$  と  $Sr 90$  の識別, 神戸大学大学院海事科学研究科紀要, Vol. 11, pp.39-44, 2014

50

## 【発明の概要】

## 【発明が解決しようとする課題】

## 【0005】

そこで、本発明は、線ラジオグラフを用いて、固体中の複数の線核種を分別して定量する方法を提供することを目的とする。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0006】

本発明者らは、前記目的にかなう複数の線核種の分別定量方法を鋭意検討したところ、下記の構成を有する線核種の分別定量方法は前記目的を達成できることを見出し、本発明を完成させた。

[1] 下記(A)～(E)工程を少なくとも含む、放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種の分別定量方法。

(A) 測定対象である放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種を含む複数の固体を成形した後、該成形体を切断し、該切断した成形体の切断面の少なくとも片面または両面を遮蔽材で遮蔽した標準試料を作製する、標準試料の作製工程

(B) 前記標準試料から放出される線の計数率を測定する、線の計数率の測定工程

(C) 前記標準試料中の放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種の比放射能、および前記線の計数率に基づき、下記(1)式および(2)式を用いて回帰分析を行い、回帰係数 $a_i$ および $k_i$ の値を求める、回帰分析工程

$$I_{s0} = \sum_{i=1}^n I_i = \sum_{i=1}^n (a_i \times C_i) \quad \dots (1)$$

$$I_{sx} = \sum_{i=1}^n (k_i \times I_i) = \sum_{i=1}^n (k_i \times a_i \times C_i) \quad \dots (2)$$

(ただし、(1)および(2)式中、 $I_{s0}$ は遮蔽されていない試料の線の計数率、 $n$ は2、 $I_i$ は放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種 $i$ の線の計数率、 $a_i$ は放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種 $i$ の比放射能を計数率に換算するための係数、 $C_i$ は放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種 $i$ の比放射能(Bq/kg)、 $I_{sx}$ は遮蔽されている試料の線の計数率、および、 $k_i$ は遮蔽材による放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種 $i$ の減衰率を表す。)

(D) 前記回帰係数 $a_i$ および $k_i$ の値を代入した前記(1)式および(2)式に、測定対象試料の線の計数率(実測値)を代入して得た $n$ 元連立1次方程式を解いて、解である比放射能 $C_i$ の値を算出する、比放射能の算出工程

(E) 線の測定器の測定ピクセルごとに、前記比放射能 $C_i$ の値を2次元および/または3次元表示して定量マッピング像を作成する、定量マッピング工程

[2] 前記遮蔽材の密度が0.9～3.0 g/cm<sup>3</sup>である、前記[1]に記載の放射性セシウム(Cs-137)と放射性ストロンチウム(Sr-90)の線核種の分別定量方法。

## 【発明の効果】

## 【0007】

本発明の線核種の分別定量方法によれば、固体中の複数の線核種を分別して定量できるため、固体中の線核種の濃度および分布を簡易かつ精度よく知ることができる。

## 【図面の簡単な説明】

## 【0008】

【図1】(A)は、採取したコンクリートコアの全体の写真である。(B)は、コンクリートコアの放射性セシウムの浸透面(円形面)における、Cs-137の分布を示す線

10

20

30

40

ラジオグラフである。(C)は、鉄粉入り樹脂を表面にコーティングした後の、コンクリートコアの切断面の写真である。また、(D)は、前記コンクリートコアの切断面の線ラジオグラフである。

【図2】標準線源との比較によりコンクリートコア中の線の分布を示す線ラジオグラフである。

【図3】(A)は、サーベイメータを用いて測定したCs-137とSr-90を含む標準試料の計数率(実測値)と比放射能に基づき求めた回帰式を用いて算出した計数率の推定値、および実測値の相関図である。また、(B)は、イメージングプレートを用いて測定したCs-137とSr-90を含む標準試料の計数率(実測値)と比放射能に基づき求めた回帰式を用いて算出した計数率の推定値、および実測値の相関図である。

10

【図4】(A)は、それぞれ1MB/kgのCs-137とSr-90を含む材齢2週間のセメントペースト断面のCs-137とSr-90の分布を2次元表示して、定量マッピングした線ラジオグラフである。また、(B)は、材齢4週間の前記セメントペースト断面のCs-137とSr-90の分布を2次元表示して、定量マッピングした線ラジオグラフである。また、(C)は、材齢4週間の前記セメントペースト断面のCs-137とSr-90の分布を、厚さが0.6mmのアルミニウム板で遮蔽した状態で撮影した線ラジオグラフである。また、(D)は、Cs-137とSr-90を含む材齢1か月のセメントペーストからCs-137を分別して、Cs-137の分布を3次元表示して定量マッピングした図である。また、(E)は、前記セメントペーストからSr-90を分別して、Sr-90の分布を3次元表示して定量マッピングした図である。

20

#### 【0009】

本発明の線核種の分別定量方法は、前記のとおり、前記(A)標準試料の作製工程、(B)線の計数率の測定工程、(C)回帰分析工程、(D)比放射能の算出工程、および(E)定量マッピング工程を少なくとも含む方法である。

以下、本発明の線核種の分別定量方法について、標準試料の作製工程、線の計数率の測定工程、回帰分析工程、比放射能の算出工程、および定量マッピング工程に分けて詳細に説明する。

#### 【0010】

##### (A)標準試料の作製工程

該工程は、測定対象である複数の線核種を含む複数の固体を成形した後、該成形体を切断し、該切断した成形体の切断面の少なくとも片面または両面を遮蔽材で遮蔽した標準試料を作製する工程である。

30

##### (i)固体

線の最大飛程は、例えば、密度 $2.3\text{ g/cm}^3$ のコンクリート中では、Cs-137で $0.71\text{ mm}$ 、Sr-90(ただし、正確にはSr-90の娘核種のY-90である。)で $4.79\text{ mm}$ である。したがって、線核種が固体の表面にのみ存在する場合と、固体の内部にまで存在する場合は、線の計数率が変化する。

ここで、固体の外部から内部へ線核種が浸透した場合を想定して、図2に示すような、固体の深さ(長さ)方向に沿って、線核種の濃度の変化を考える。図2では、線核種は標準試料の切断面の垂直方向に、ほぼ均一に分布すると想定されるため、標準試料はある程度の厚さが必要である。市販の標準線源のように面的線源では、固体の内部から放出される線の影響を評価できないため、線核種が固体表面にのみ存在する場合には定量分析の標準試料として適用できるが、線核種が固体の内部に存在する場合には定量分析用の標準試料として使えない。なお、標準試料の切断面(測定面)の形状は、特に制限されず、円形や正方形等が挙げられる。

40

標準試料の数は、測定対象の線核種の種類の数だけ(例えば、Cs-137とSr-90の2種類であれば2個)あれば、実際の評価対象試料の比放射能の推定はできるが、標準試料中の線核種の比放射能を変えたり、線核種の組み合わせを変えたりして、標準試料の数が多くなるほど推定精度が高まるので好ましい。

また、標準試料は、試料内部からの線の透過率、および線が試料に作用して発生す

50

る特性 X 線や制動 X 線の影響を同じにするために、評価対象試料と同じ素材であることが好ましく、特に、密度は同じであることがより好ましい。

#### 【 0 0 1 1 】

##### ( ii ) 遮蔽材

前記標準試料の切断面の少なくとも片面または両面を遮蔽材で遮蔽する。標準試料と線の測定装置は、像の空間分解能を高めるため可能な限り密着させる必要があるから、遮蔽材の厚さは薄い（すなわち高密度）ものが好ましいが、例えば、高密度の金属等を遮蔽材に用いると高エネルギーの X 線を放出するため、像に影響を及ぼす。一方、遮蔽材が低密度では、遮蔽するために必要な厚さがより厚くなり、したがって、空間分解能が低下する。そこで適切な密度を有する材質と厚さの選択が重要であり、遮蔽材の密度は  $0.9 \sim 3.0 \text{ g/cm}^3$  が好ましく、例えば、アルミニウム（ Al ）箔等が好適である。評価対象核種によっては、標準試料の作成時には標準試料中に核種が均一に分布していても、切断後、切断面からの水分の移動や炭酸化により移動する場合があるため、切断面を薄いプラスチックフィルムで覆うなどして、外環境の影響を遮断することが好ましい。

#### 【 0 0 1 2 】

##### ( B ) 線の計数率の測定工程

該工程は、前記標準試料から放出される線の計数率を測定する工程である。

計数率の測定方法は、イメージングプレート（以下「 IP 」という。）を用いる方法やサーベイメータを用いる方法等がある。これらのうち、 IP を用いた方法は、試料を輝尽性蛍光体で構成された IP 上に載置して、影絵を取得する方法である。 IP で得られる信号は、一般に広範囲にわたり直線性を示すため、低濃度から高濃度まで数桁にわたる広い範囲で線核種を測定できる。また、使用する IP の種類にもよるが、最大で  $50 \mu\text{m}$  の空間分解能を有する。ただし、 IP の種類により感度と空間分解能が異なり、また同じ種類でもプレートが異なれば異なる感度特性を示すため、標準試料と測定対象試料は同じ IP で測定することが好ましい。

また、 IP は前のデータを消去して繰り返し使用できるものの、メモリー効果があるため前の測定の履歴は完全に消去できないから、残存する信号に対して、新たに測定する線強度が十分に大きくなければ誤差が大きくなる。また、 IP は可視光領域の光にも感光するので、試料の暴露は暗室で行うことが好ましく、また、読み取り機上へ試料を載置する際も可視光や放射線を遮断した状態で行うことが好ましい。

さらに、 IP に蓄積された信号は一定の速度で退行し、高温ほどこの退行は著しい。したがって、測定時間が長くなればなるほど、退行の影響を受けるため、測定時間が 2 倍になったからと云って、得られる信号が 2 倍になるわけではない。この退行現象は、試料を複数の測定時間で測定することにより、計算で補正できる。この測定は評価対象核種ごとに実施することが好ましい。また、標準試料と測定対象試料の測定時間を統一することにより、退行現象の影響を回避できる。 IP の測定範囲は限界があるため、試料の比放射能に応じて測定時間の上限を設定する必要がある。測定限度の 50 % を超えると信号は飽和する傾向がある。これらの条件を考慮して測定しなければ、定量分析の精度は低下する。

標準試料は測定対象の線核種を均一に含むので、この標準試料の切断面について IP を用いて、前記の事項を勘案し所定の条件を定めて線の計数率を測定するとよい。

標準試料は、 IP 上に密着できる平滑なものが好ましい。また、標準試料の切断面の垂直方向への濃度分布は、一定範囲内（  $0.1 \sim 1 \text{ mm}$  程度 ）では一定であることを前提としている。

なお、 Cs - 137 は、標準試料の乾燥や炭酸化の進行に伴い、標準試料中を移動するため、数日から 1 週間程度経過するとバルク全体として均一な濃度が検出できない場合がある。したがって、標準試料の線核種の計数率は、切断面を切り出した後、直ちに測定するのが好ましいが、直ちに測定できない場合はラップ等で覆って、標準試料の乾燥や炭酸化を防止するとよい。

#### 【 0 0 1 3 】

##### ( C ) 回帰分析工程

10

20

30

40

50

該工程は、前記標準試料中の線核種の比放射能、および前記線の計数率に基づき、下記(1)式および(2)式を用いて回帰分析を行い、下記(1)式および(2)式の回帰係数 $a_i$ および $k_i$ の値を求める工程である。

$$I_{s0} = \sum_{i=1}^n I_i = \sum_{i=1}^n (a_i \times C_i) \quad \dots (1)$$

$$I_{sx} = \sum_{i=1}^n (k_i \times I_i) = \sum_{i=1}^n (k_i \times a_i \times C_i) \quad \dots (2)$$

(ただし、(1)および(2)式中、 $I_{s0}$ は遮蔽されていない試料の線の計数率、 $n$ は線核種の種類の数、 $I_i$ は線核種 $i$ の線の計数率、 $a_i$ は線核種 $i$ の比放射能を計数率に換算するための係数、 $C_i$ は線核種 $i$ の比放射能(Bq/kg)、 $I_{sx}$ は遮蔽されている試料の線の計数率、および、 $k_i$ は遮蔽材による線核種 $i$ の減衰率を表す。)

ただし、前記線の計数率の単位は、サーベイメータを用いて測定した場合は「cpm」、IPを用いて測定した場合は「PSL/p×/cm<sup>2</sup>・day」である。

なお、前記 $i$ は1～ $n$ の数値であるとともに、線核種の種類を表し、例えば、線核種の原子番号の順に $i = 1 \sim n$ を割り当てて線核種を数字で表すことができる。

#### 【0014】

##### (D) 比放射能の算出工程

該工程は、前記回帰係数 $a_i$ および $k_i$ の値を代入した前記(1)式および(2)式に、測定対象試料の線の計数率(実測値)を代入して得た $n$ 元連立1次方程式を解いて、解である比放射能 $C_i$ の値を算出する工程である。

$n$ 元連立1次方程式を解くためには、標準試料(すなわち、線の計数率のデータ数)は $n$ 種類以上必要であるが、そのうち1種類は遮蔽されていない標準試料(ブランク)であるから、遮蔽された標準試料は、 $n - 1$ 種類以上必要である。これは、定量対象の線核種が、例えばCs-137とSr-90の2種類であれば、遮蔽されていない標準試料(ブランク)は1種類、遮蔽された標準肥料は少なくとも1種類必要である。ここで、遮蔽された標準肥料が2種類の場合、合計で3種類の線の計数率(実測値)のデータが得られるから、1次方程式は3つになって、 $C_2 = 3$ 通りの1次方程式の組み合わせが可能になって、3組の解( $C_1$ 、 $C_2$ )が得られるから、その平均を取れば、1組の解の場合に比べ解(すなわち、比放射能の推定値)の精度は向上する。

なお、測定対象の線核種が放出する線のエネルギーが近い場合には判別精度が悪くなる。本発明は、Cs-137とSr-90のように放出する線のエネルギーに一定程度の差がある場合に適用するのが好ましい。

#### 【0015】

##### (E) 定量マッピング工程

該工程は、線の測定器の測定ピクセルごとに、前記比放射能 $C_i$ の値を2次元および/または3次元表示して定量マッピング像を作成する工程である。ただし、遮蔽材の有無により、IP上の座標は変化するので、画像ソフトなどを用いて、予め位置を一致させてから解析を行う必要がある。この際、マーカーを標準試料に設定しておく位置の補正が容易になる。なお、定量マッピング用ソフトは、商品名ORIGIN(LightStone社製)等が挙げられる。

#### 【実施例】

#### 【0016】

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されない。

##### 1. 使用材料

##### (1) 線核種

測定対象である線核種は、福島第一原子力発電所の事故により漏洩して、高い空間線量率の原因となっているCs-137と、原子炉内部で同程度の比放射能を有すると考えられるSr-90を用いた。なお、これらの線核種は日本アイソトープ社から購入した

10

20

30

40

50

。

## (2) 測定対象の固体

前記 線核種のコンクリートへの浸透は、廃炉時の放射性廃棄物量を推定する上で重要なため、測定対象試料にはコンクリートを用いた。また、コンクリートはセメントペーストと骨材からなるが、外部のイオンはセメントペーストを通して内部に浸透するため、標準試料はセメントペーストを用いた。

## (3) 普通ポルトランドセメント

密度  $3.16 \text{ g/cm}^3$ 、太平洋セメント社製

## (4) フライアッシュ

密度  $2.37 \text{ g/cm}^3$

10

## (5) 豊浦産標準砂

平均粒径  $0.234 \text{ mm}$ 、密度  $2.63 \text{ g/cm}^3$

## (6) 増粘剤

商品名：ビスコトップ 200LS-2、花王社製

## (7) 蒸留水

## (8) 線核種

Cs-137 と Sr-90

## (9) アルミニウム (Al) 箔テープ

アルミニウム層の厚さが  $0.05 \text{ mm}$  の光沢アルミテープまたは防水アルミテープ (ニトムズ社製)

20

## 【0017】

## 2. 標準試料の作製

表1に示す配合に従い、プラスチック製の容器内に、Cs-137、Sr-90、普通ポルトランドセメント、蒸留水、および増粘剤等を入れて、プラスチック製の匙で混練して、セメントペーストとモルタルを作製した。なお、一般的なコンクリートの水/セメント比を想定して、水/結合材比は0.5にした。

次に、前記セメントペーストとモルタルは、内径が  $20 \text{ mm}$  のプラスチック板で底面を接着して封をした塩化ビニル製パイプ内に流し込んだ後、水の蒸発を防止するため、パイプの上面をプラスチックフィルムで封をした。

材齢3日で、セメントペーストおよびモルタルの硬化体を取り出してパイプの長さ(長さ)方向と直交する方向に沿って切断して、厚さがそれぞれ  $17 \text{ mm}$ 、 $27 \text{ mm}$ 、および  $50 \text{ mm}$  の標準試料を作製した。次に、アルミニウム箔テープを用いて、厚さが  $17 \text{ mm}$  および  $50 \text{ mm}$  の標準試料は円形の切断面の片面を遮蔽し、また、厚さが  $27 \text{ mm}$  の標準試料は、後日、放射線を測定するため円形の切断面の両面を遮蔽した。これは、サーベイメータ、またはイメージングプレートを用いた放射線の測定時まで、標準試料の乾燥や吸湿を防いで、試料内部の水分の移動に伴う線核種の移動を抑制するためである。厚さが  $50 \text{ mm}$  の標準試料は、パイプの片側を塩化ビニル樹脂製の板で塞いで打設したため、片側は化ビニル樹脂製の板で閉塞しており、切断面はアルミニウム箔テープを使用せず測定面として観察した。

30

なお、標準試料の厚さを  $17 \text{ mm}$ 、 $27 \text{ mm}$ 、および  $50 \text{ mm}$  にしたのは、放射線の測定に及ぼす標準試料の厚さの影響を知るためであったが、測定値には、厚さの影響が見られなかった。

40

## 【0018】

【表 1】

| No. | W/B | 1 試料あたりの質量 (g/35 cm <sup>3</sup> ) |         |      |      |     |                        |                        |
|-----|-----|------------------------------------|---------|------|------|-----|------------------------|------------------------|
|     |     | 水(W)                               | 結合材 (B) |      | 細骨材  | 増粘剤 | β線核種 (Bq/kg)           |                        |
|     |     |                                    | OPC     | FA   |      |     | Cs-137                 | Sr-90                  |
| 1.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 0                      | 0                      |
| 2.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>2</sup> | 0                      |
| 3.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>4</sup> | 0                      |
| 4.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>6</sup> | 0                      |
| 5.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 0                      | 1.00 × 10 <sup>2</sup> |
| 6.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 0                      | 1.00 × 10 <sup>4</sup> |
| 7.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 0                      | 1.00 × 10 <sup>6</sup> |
| 8.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>2</sup> | 1.00 × 10 <sup>2</sup> |
| 9.  | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>4</sup> | 1.00 × 10 <sup>4</sup> |
| 10. | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>6</sup> | 1.00 × 10 <sup>6</sup> |
| 11. | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>6</sup> | 1.00 × 10 <sup>6</sup> |
| 12. | 0.5 | 20                                 | 40      | 0    | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>6</sup> | 1.00 × 10 <sup>6</sup> |
| 13. | 0.5 | 19.3                               | 27      | 11.6 | 0    | 2   | 0                      | 0                      |
| 14. | 0.5 | 19.3                               | 27      | 11.6 | 0    | 2   | 1.00 × 10 <sup>4</sup> | 0                      |
| 15. | 0.5 | 9.5                                | 19      | 0    | 50.7 | 0.6 | 0                      | 0                      |
| 16. | 0.5 | 9.5                                | 19      | 0    | 50.7 | 0.6 | 0                      | 1.00 × 10 <sup>4</sup> |
| 17. | 0.5 | 9.5                                | 19      | 0    | 50.7 | 0.6 | 1.00 × 10 <sup>4</sup> | 1.00 × 10 <sup>4</sup> |

注) OPCは普通ポルトランドセメント、FAはフライアッシュを表す。

## 【 0 0 1 9 】

## 3 . 線の計数率の測定と回帰分析の実施

前記標準試料について、ラギッドシンチレーションサーベイメータ（型番：TCS - 319H、日立アロカメディカル社製）を用いて、表1に示す17種類の標準試料（その総数は17種類×厚さ3種類 = 51個）の線の計数率を測定した。計測時間は1試料あたり2分であり、実験室のバックグラウンドは補正した。

なお、本実施例では、前記(1)式と(2)式は、それぞれ下記(3)式と(4)式になる。

$$I_{s0} = I_{cs} + I_{sr} = a \times C_{cs} + b \times C_{sr} \quad \dots(3)$$

$$I_{sx} = k_{1cs} \times I_{cs} + k_{1sr} \times I_{sr} = k_{1cs} \times a \times C_{cs} + k_{1sr} \times b \times C_{sr} \quad \dots(4)$$



(ただし、(3)および(4)式中、 $I_{so}$ は遮蔽がない試料の線の計数率(cpm)、 $I_{cs}$ と $I_{sr}$ はそれぞれCs-137およびSr-90からの計数率(cpm)、 $a$ および $b$ はそれぞれCs-137およびSr-90の比放射能を計数率に換算するための係数、 $C_{cs}$ および $C_{sr}$ はそれぞれCs-137およびSr-90の比放射能、 $I_{sx}$ は遮蔽材(アルミニウム箔テープ)がある試料の線計数率(cpm)、並びに、 $k_{1cs}$ および $k_{1sr}$ はそれぞれ遮蔽材によるCs-137およびSr-90の減衰率を表す。)

#### 【0020】

前記各標準試料の線計数率(実測値)、および表1に記載の標準試料の比放射能の値に基づき、前記(3)式および(4)式を用いて回帰分析を行い、回帰係数 $a$ 、 $b$ 、 $k_{1cs}$ 、および $k_{1sr}$ の値を求めた。次に、これらの係数の値を代入した(3)式および(4)式を用いて、標準試料の比放射能に基づき線の計数率(推定値)を算出して、計数率の実測値との相関を求めた。図3の(A)に示すように、推定値と実測値は1:1の極めて高い相関を示すことから、前記(3)式および(4)式は線の計数率の推定精度が高いと云える。

10

#### 【0021】

また、IP(品番:BAS-SR2040およびBAS-MS2040、いずれも富士フィルム社製)を用いて、1ピクセル当たり $50\mu\text{m}$ の読み出し分解能で、標準試料のQL(Quantum Level)値を測定した。該測定では、各標準試料を厚さが $0.04\text{mm}$ のポリエチレン製のシート上に載置して、標準試料を作製した実験室内と同じ環境(温度と湿度)で暴露露光した。遮蔽材は厚さ $0.6\text{mm}$ のアルミニウム板を用いた。得られたQL値に基づき、下記文献Aの記載に準拠して、PSL(Photo-Stimulated Luminescence)値を算出した。

20

#### 【0022】

##### 【文献A】

山寺亮、バイオサイエンスのためのアイソトープ測定機器：第三シリーズ ラジオルミノグラフィ(RLG,放射線測定ルミネッセンス輝尽性発光技術) 13.イメージングプレートの放射線管理への応用, RADIOISOTOPES, Vol.49, No.1, 2000.1

#### 【0023】

サーベイメータを用いて測定した場合と同様に、前記各標準試料のPSL値(実測値)、および表1に記載の標準試料の比放射能の値に基づき、前記(3)式および(4)式を用いて回帰分析を行い、回帰係数 $a$ 、 $b$ 、 $k_{1cs}$ 、および $k_{1sr}$ の値を求めた。次に、これらの係数の値を代入した(3)式および(4)式を用いて、各標準試料の比放射能に基づきPSL値(推定値)を算出し、PSL値の実測値との相関を求めた。図3の(B)に示すように、推定値と実測値は1:1の極めて高い相関を示すから、IPを用いて測定した場合でも、前記(3)式および(4)式はPSL値の推定精度が高いと云える。

30

#### 【0024】

##### 4. 比放射能の算出

前記回帰係数 $a$ 、 $b$ 、 $k_{1cs}$ 、および $k_{1sr}$ の値を代入した(3)式および(4)式に、測定対象試料のPSL値(実測値)を代入して得た $n$ 元連立1次方程式を解いて、解であるCs-137の比放射能( $C_{cs}$ )およびSr-90の比放射能( $C_{sr}$ )の値を算出した。

40

#### 【0025】

##### 5. 定量マッピングの作成

前記Cs-137の比放射能およびSr-90の比放射能の値を、定量マッピング用ソフト(商品名ORIGIN、LightStone社製)を用いて、測定ピクセルごとに2次元表示および3次元表示(前記値に色彩を割り当てて表示)して、定量マッピング像を作成した(図4の(A)~(C)は線ラジオグラフであり、図4の(D)、(E)は分別定量した定量マッピング像である。)

図4の(A)に示すように、Cs-137を $1\text{MBq/kg}$ 、Sr-90を $10\text{kBq/kg}$ 含む、材齢2週の標準試料(普通ポルトランドセメントペースト硬化体)では、濃

50

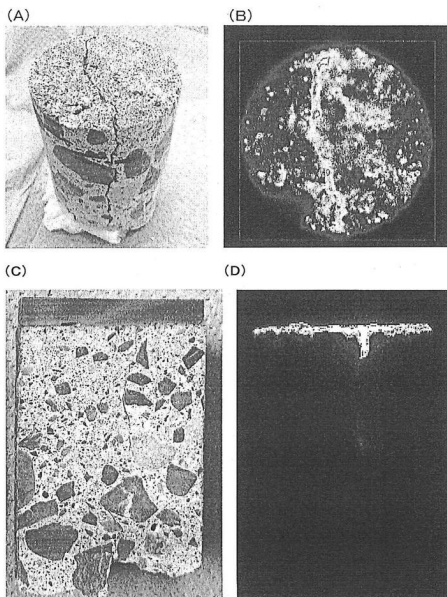
度むらは見られない。しかし、図4の(B)に示すように、この標準試料を材齢4週で測定したところ、試料周辺部が明るくなって色むらが生じていた。次に、この標準試料を厚さが0.6mmのアルミニウム板で遮蔽したところ、図4(C)に示すように、色むらが薄くなったため、この色むらはCs-137の移動によるものと推定できる。この原因は、コンクリートが乾燥するとコンクリート中の水分の移動が起こることと、表面が大気中の二酸化炭素ガスにより炭酸化するとアルカリ元素が内部から移動して表面に濃縮することから、標準試料はポリエチレン袋内で保管していたものの、水等の減少が標準試料でも発生し、Cs-137が、セメント中に含まれる安定セシウムや、その他のアルカリイオンとともに移動したためと考える。

また、図4の(D)に示すように、Cs-137の分布は、周辺部において4MBq/kgに濃縮している状況が識別できる。これに対し、図4の(E)に示すように、Sr-90の分布は、1MBq/kgで均一であり元の濃度を保っていた。

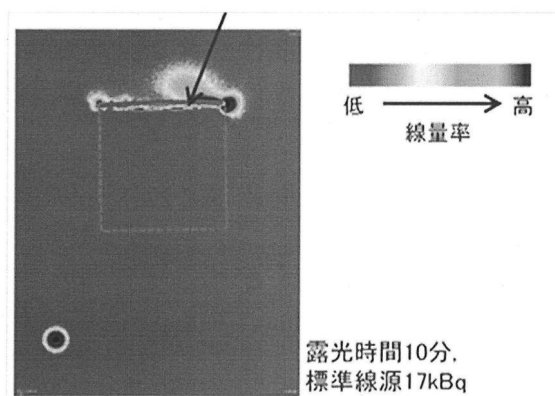
以上述べたように、本発明の線の分別定量方法によれば、固体中の複数の線核種を分別して定量できるため、固体中の線核種の濃度および分布を簡易かつ精度よく知ることができる。

10

【図1】

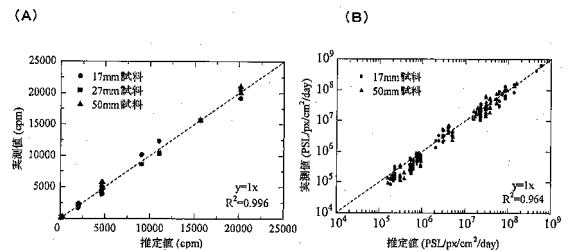


【図2】

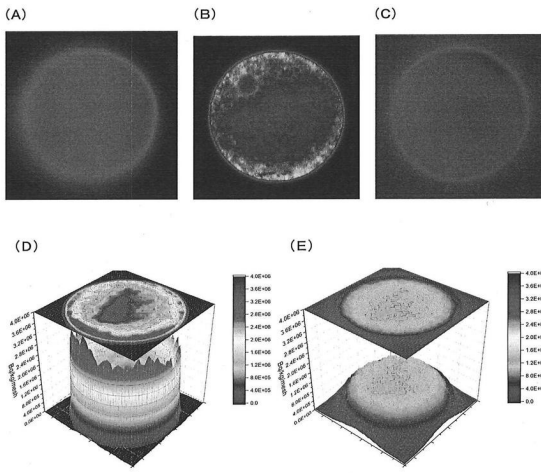


前田宏治ほか、福島第一原子力発電所の廃止措置に向けた2・①・1建屋内遠隔除染技術の開発、JAEA Research 2013-023

【図3】



【 図 4 】



---

フロントページの続き

(72)発明者 五十嵐 豪

宮城県仙台市青葉区片平二丁目1番1号 国立大学法人東北大学内

(72)発明者 大澤 紀久

宮城県仙台市青葉区片平二丁目1番1号 国立大学法人東北大学内

審査官 富士 健太

(56)参考文献 特開2013-167527(JP, A)

韓国公開特許第10-2005-0097294(KR, A)

大橋改、中山高宏、宮田隆永、山内知也、小田啓二、イメージングプレートを用いたCs-137とSr-90の識別，神戸大学大学院海事科学研究科紀要，日本，神戸大学大学院海事科学研究科，2014年，39-44

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

G01T 1/00-7/12

G21F 9/00-9/36