

技術報告

Global Ionizing Radiation Monitoring Network の構築

- CsI(Tl) / PD から SrI₂(Eu) / MPPC へ -

永井 滋一,^{1*} 河村 憲,² 木村 吉秀,² 志水 隆一,³ 吉井 淳治,⁴ 池田 練造,⁵
竹内 宣博,⁶ 太田 朗生,⁶ 酒井 昭宏,⁶ 杉山 誠,⁶ 柳田 由香,⁶ 鈴木 敏和,⁶

¹ 三重大学大学院 工学研究科

〒 514-8507 三重県津市栗真町屋町 1577

² 大阪大学大学院 工学研究科

〒 565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

³ 大阪大学 産学連携本部

〒 565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1

⁴ 株式会社 CLOUDOH

〒 226-0015 神奈川県横浜市緑区三保町 3015-2

⁵ 株式会社 スカイテクノロジー

〒 305-0032 茨城県つくば市竹園 2-10-8

⁶ 株式会社 千代田テクノ

〒 311-1313 茨城県東茨城郡大洗町成田町 3681

*nagai@elec.mie-u.ac.jp

(2015 年 4 月 1 日受理; 2015 年 5 月 20 日掲載決定)

γ 線スペクトロメトリーに適した特性を有する SrI₂(Eu)シンチレータを用いた global ionizing radiation monitoring network (GIRMN) を構築した. SrI₂(Eu)は, 高光収率 (>80,000 ph / MeV), 4% 以下の分解能, 高光電断面積で高感度など, γ 線スペクトロメトリーにとって優秀な物理特性を有している. 本研究で開発した GIRMN には, ユニオンマテリアル社の SrI₂シンチレータ (25 mm ϕ × 25 mm) と光検出に MPPC (Multi Pixel Photon Counter) を採用したシステムを構築した. これにより, 福島原発事故由来の Cs からの γ 線と他の核種から放出される γ 線を分離・同定できる性能を実現した. さらに, NIST が公表している ANSI N4242 に準拠したソフトウェアプラットフォームを採用した本 GIRMN は, 標準放射線モニタリングとしての要件を満たすものである.

Development of Global Ionizing Radiation Monitoring Network - Replacement of CsI(Tl) / PD with SrI₂(Eu) / MPPC -

Shigekazu Nagai,^{1*} Ken Kawamura,² Yoshihide Kimura,² Ryuichi Shimizu,³ Junji Yoshii,⁴ Renzo Ikeda,⁵
Nobuhiro Takeuchi,⁶ Akio Ohta,⁶ Akihiro Sakai,⁶ Makoto Sugiyama,⁶ Yuka Yanagida,⁶ Toshikazu Suzuki⁶

¹ Graduate School of Engineering, Mie University
1577 Kurima-machiya, Tsu, Mie 514-8507, Japan

² Graduate School of Engineering, Osaka University
2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

³ Office for University-Industry Collaboration, Osaka University
2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan

⁴ CLOUDOH Inc.

3015-2 Mihocho, Yokohama Midori-ku, Kanagawa 226-0015, Japan

⁵ Sky Technology Co.Ltd.

2-10-8 Takezono, Tsukuba, Ibaragi 305-0032, Japan

⁶ Chiyoda Technol Corp.

3681 Narita-cho, Oarai-machi, Higashi-ibaragi-gun, Ibaragi 311-1313, Japan

*nagai@elec.mie-u.ac.jp

(Received: April 1, 2015; Accepted: May 20, 2015)

Development of the global ionizing radiation monitoring network (GIRMN) system has progressed significantly by the use of SrI₂(Eu)-scintillator which has excellent material properties for γ -ray spectroscopy; high light yield (>80,000 ph/MeV), excellent light yield proportionality, high photo electric cross-section, etc. The high energy resolution (<4 %) and high sensitivity of the SrI₂(Eu)-scintillator of 25mm ϕ \times 25 mm high supplied by Union Materials Inc. Japan allows to discriminate the Cs originated γ -rays from the other nucleus species. The software platform newly adopted in the GIRMN is based on the use of ANSI N4242 Data File Format published by NIST and is, therefore, expected to afford the requirements for the standardization and sustainability as a standard ionizing radiation monitoring.

1. はじめに

我々が、市販の放射線サーベイメータ (Radi - Horiba Inc.) を改造した CsI(Tl) / PD - モジュールを福島県に持ち込んで空間線量を計測したのは、福島第一原発事故発生直後の 2011 年 4 月 23 日であった [1]. この改造モジュールは、PC に接続して、計測した空間線量を刻一刻と Google Map と連携し世界に発信することにより情報を共有することを目指したものであった. 幸い日本学術振興会 (学振) の支援により、2011 年度特別支援事業として活動を展開することが出来た. 即ち、2011 年 10 月には福島県の温泉地域 21 ヶ所を選んで、空間線量定点観測拠点として CsI(Tl)/PD - モジュールユニットを設置して、Global Ionizing Radiation Monitoring Network

(GIRMN)を構築したのである[2]. この GIRMN は、計測した空間線量のみならず γ 線スペクトルも合わせて大阪大学工学部に設置された Key-station に送信し、2 台のサーバに記録・保管し、必要に応じて世界に発信する機能を完備した. 目指すところは、正確な放射線計測結果を発信して、現地が悩まされていたいわれの無い風評被害を少しでも軽減することにあった. この間の事情については、中間報告書[3]に詳細にわたって記載されているので割愛する.

特筆すべきことは、この GIRMN によって次のような全く予想だにされていなかった新しい知見が得られたことであった. それは、21 の定点観測拠点の 1 つである磐梯熱海温泉におけるモニタリングの解析により、この地域における空間線量は第一原発事

故に由来する ^{134}Cs - や ^{137}Cs - 放射線によるものではなく、古来より天然に存在したとみられる ^{226}Ra 由来の放射線によるものであることが判明したことである。さらに磐梯熱海温泉地域のほかにも、少なくとも二岐温泉と裏磐梯温泉の2つの地域についても同様の知見が得られた。他の18の定点観測拠点では空間線量が大なり小なり時間経過と共に減少しているのに対して、これらの3つの地域では空間線量がこの4年間で殆んど変化していないのである。これについては本報告でも触れることにする。

この新しい知見から、我々は放射線モニタリングにあたっては、従来の単なる空間線量の計測のみならず、 ^{134}Cs - ならびに ^{137}Cs - 放射線を分離抽出して計測することが必須であり、そのためには従来広く用いられてきた CsI - や NaI - シンチレータのエネルギー分解能 (<7%) では不十分で、より高いエネルギー分解能を有する新しい放射線検出器 (エネルギー分解能 <4%) の活用が必要であることを提案した[4].

本報告は、この提案に基づいて、新しい放射線計測モジュールとして $\text{SrI}_2(\text{Eu}) / \text{MPPC}$ (Multi Pixel Photon Counter) - モジュールを用いた GRMN の構築に取り組んできたもので、その第1報である。

本報告は、この提案に基づいて、新しい放射線計測モジュールとして $\text{SrI}_2(\text{Eu}) / \text{MPPC}$ (Multi Pixel Photon Counter) - モジュールを用いた GRMN の構築に取り組んできたもので、その第1報である。

2. $\text{SrI}_2(\text{Eu})/\text{MPPC}$ - モジュールの構成要素

2-1. $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ 結晶

$\text{SrI}_2(\text{Eu})$ 結晶がシンチレータとして優れた特性を有することは、早くから注目されていた。Table 1 に最も広く用いられている NaI(Tl)との特性の比較を示す。特に注目されるのは、その高い発光量とエネルギー分解能である。

この $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ については、アメリカ (US) では国

Table 1 Comparison of characteristics between $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ and NaI(Tl).

	Melting point (°C)	Density (g/cm ³)	Hygroscopic nature	Emission wavelength (nm)	Light yield (Ph./Mev)	Energy resolution (at 662KeV)	Decay time (ns)	Light yield proportionality (5~1000 KeV)	Self activity
$\text{SrI}_2(\text{Eu})$	538	4.6	Yes	430	>80000	<4%	~1000	<5%	Non
NaI(Tl)	661	3.7	Yes	415	38000	7%	230	17%	K-40

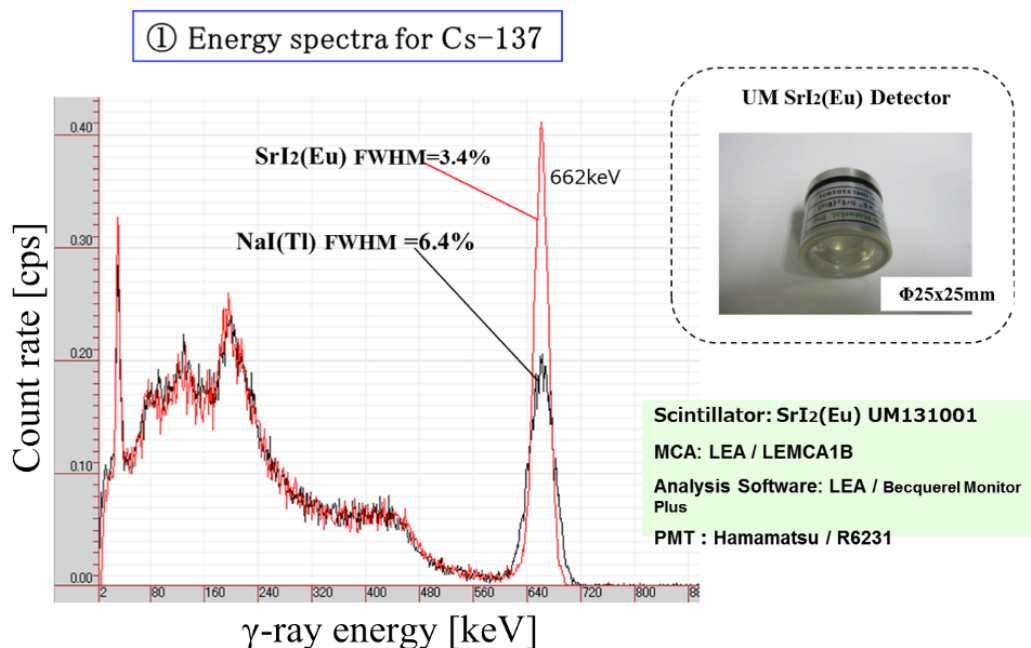


Fig. 1. UM $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ -detector and γ -ray energy spectra for evaluations of energy resolution.

費を投じてすでに 2003 年より Lawrence Livermore Laboratory, Oak Ridge National Laboratory, Fisk University, Radiation Monitoring Devices Inc.によって大々的に開発が行われ, Radiation Monitoring Devices Inc.よりその製品化が公知されている[5]. 又, ヨーロッパ (EU) においても 2005 年より Delft University of Technology (オランダ), EU Space Energy (オランダ), Hellma Materials (ドイツ), Schott AG (ドイツ), Scioviz BV (オランダ) のチームによる開発が進められてきた. 我が国でも最近, 東北大学金属材料研究所, オキサイド (株), ユニオンマテリアル (株), 他数社がその製品化に成功している.

我々は, $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ -scintillator (UM131001[6]) をユニオンマテリアル社より購入し, 後述するように浜松ホトニクス (株) より購入した MPPC (Multi Pixel Photon Counter) に取り付けて, オール国産の $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ / MPPC - モジュールを製作することにした. Fig. 1 にその $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ -scintillator の外観写真とエネルギー分解能評価スペクトルを示す. また, エネルギー分解能評価においては従来の手法を踏襲して, 光検出に PMT (Photomultiplier tube) を用いた. ^{137}Cs 標準

線源からの 662 keV の光電ピークに対して, $\text{NaI}(\text{Tl})$ シンチレータの分解能が 6.4 %であるのに対し, 本研究で採用した $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ の分解能は 3.4 %と高分解能である.

2-2. MPPC

浜松ホトニクス (株) によって開発された MPPC (Multi Pixel Photon Counter) は, 現在広く用いられている PMT (Photomultiplier Tube) に代わる小型光子増倍素子として注目され, すでに各種シンチレータや半導体検出器と組み合わされて放射線検出モジュールとして商品化されている. 我々も早くから注目しており, $\text{CsI}(\text{Tl})$ -scintillator と組み合わせた $\text{CsI}(\text{Tl})$ / MPPC - モジュールを製作して, 食材用ベクレルカウンタを製造して (Smart Becquerel Counter - SBC) 福島県各地に供用してきた[7]. したがって今回の開発にあたっては, $\text{CsI}(\text{Tl})$ ($35 \times 35 \times 40 \text{ mm}^3$) の代わりに UM131001 $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ ($25 \text{ mm } \phi \times 25 \text{ mm}$) に SBC に採用した MPPC-C12137 を接続したので, スペクトロスコピーに必要なソフト等は SBC 製作時に開発したものをそのまま踏襲することが出来

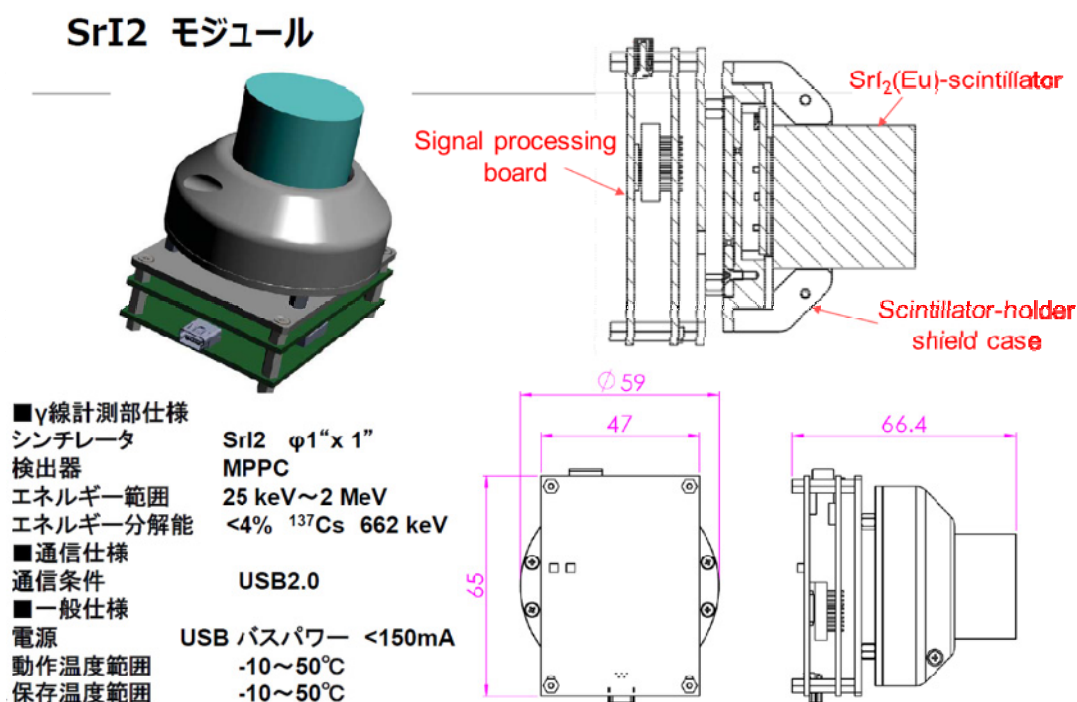


Fig. 2. $\text{SrI}_2(\text{Eu})$ / MPPC-module developed for γ -ray spectroscopy.

た。開発着手後、実質 4 ヶ月足らずで本 GIRMN 構築の実現を見ることが出来たのはこれらの技術の積み重ねに負うところが大きであった。

2.3 SrI₂(Eu) / MPPC - モジュール

Fig. 2 に製作した SrI₂(Eu) / MPPC - モジュールの概略図を示す。SrI₂(Eu)- scintillator からの信号は裏面に張り付けた MPPC で検出され信号処理ボードを介してコントローラ（後述）へ導かれる。表示されている寸法よりみられるように、従来の scintillator / PMT タイプのスペクトロメータに比べて極めて小型・軽量化（手のひらに載る）に成功している。

SrI₂ / MPPC モジュールの感度、および指向性の評価するために、千代田テクノ大洗研究所に標準場に設置された ¹³⁷Cs 標準線源を用いて、放射線量の校正実験を行った。Fig. 3 は、標準場の空間線量に対する SrI₂ / MPPC モジュールと先行設置した改造 Radi (CsI/PD) の計数率を示している。この結果より、SrI₂ / MPPC モジュールの感度は、先行設置した CsI / PD に比べておよそ 8 倍であることが判明した。また、MPPC が取り付けられている裏面からの照射では計数率が 7 % だけ低下するものの、側面および上面からの照射による計数率のばらつきは 1 % 程度であり、円筒型のシンチレータを採用したことにより先行設置した改造 Radi に比べて指向性を極力抑えることができた。

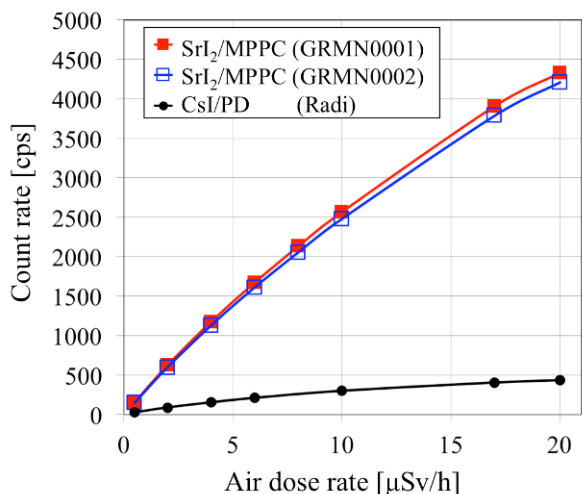


Fig. 3. Count rate with respect to standard air dose rate for SrI₂ / MPPC and CsI / PD.

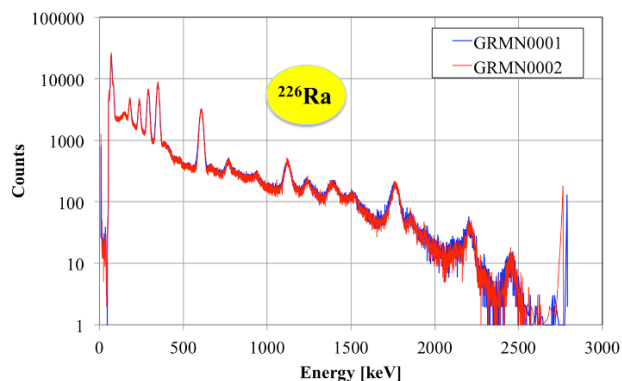


Fig. 4. Comparison of γ -ray spectra for standard ²²⁶Ra-source obtained with two SrI₂(Eu)/MPPC-modules.

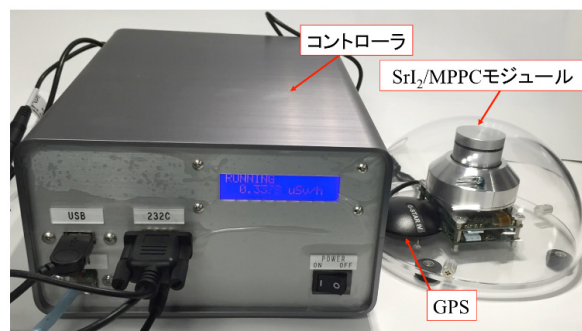


Fig. 5. Controller and SrI₂(Eu) / MPPC-module.

Fig. 4 には、²²⁶Ra 標準線源からの γ 線スペクトルの測定結果を示す。エネルギー軸を校正するために、²²⁶Ra の γ 線スペクトル中のピークを同定し、モジュールから出力された波高値をエネルギーに換算した。製作した 2 々の SrI₂(Eu) / MPPC - モジュールによるスペクトルが非常に良い一致を示しており、波高値-エネルギー換算係数にも個体差は無いことが判る。

このモジュールをコントローラに接続したユニット全体の外観写真を Fig. 5 に示す。モジュールは外気の温度変化の影響を極力避けるためにプラスチック製の半球型シールドの中に格納した。モジュールに取り付けた GPS 素子も見えている。又、外部環境下での計測にあたって直射日光等の影響を避けるために半球型シールドの内面に Al を蒸着したシールドも別途準備した。必要に応じて付け替えれば良い。またコントローラの容積は殆んど格納した電池の大きさによる（停電時に 6 時間余にわたって正常動作を確保する）もので、高性能小型電池を採用するこ

とにより Fig. 5 に示されている半球型プラスチックシールド内に収容することも可能であり、極めて小型の放射線計測ユニットが実現出来る。例えば河川の川底などに設置して定点定期観測を行うことも可能になるであろう。

3. GIRMN のソフトウェアとデータフォーマットの標準化[8]

本開発では、開発期間の短縮と改良を迅速かつ効率的に行うために、ソフトウェアプラットフォームを定義し、開発を行った。National Instruments 社製汎用制御基板、ビジュアル言語開発環境 LabVIEW と、統一データフォーマットを考慮して下記のプラットフォームを構築した。まず制御モジュール、収録モジュール、解析モジュール、GUI モジュール、データ出力モジュールの 5 つのモジュール群を LabVIEW 上で選択、組み合わせることで要求に沿ったソフトウェアを開発した。これにより 1 つの計測機器を様々なシステムに転用することが出来る。またユーザ自身が個別にモジュールを開発し追加することが出来る等、自己増殖的にソフトウェア資産が

増えることが期待出来る。また XML 形式で定義された計測データ出力フォーマットは、インターネット環境及びデータベース化が容易であるため、様々な公開用途での活用が期待出来る。

具体的には、(1) ソフトウェアプラットフォームを活用してサンプリング速度を向上させパルス読み取り精度を向上させるために、SBC に装備した Audio DAC (44 kHz) から National Instruments 社製 DAC (200 kHz) に変更した。(2) さらに LabVIEW 上でサンプリングの制御からデータ収録、スペクトル分離・抽出、画面表示までの機能を実装した。さらに(3)データ交換用ファイルフォーマットとして、スリーマイルアイランド原発事故を受けて米国国土安全省が Sandia National Laboratories と共同で開発し、NIST より公開されている ANSI N42-42 の Data File Format[9]を設計搭載することにより標準化を視野に入れた対応を行った。

全体構成は Fig. 6 に見られる通りである。定点観測拠点で観測された放射線はすべてそれぞれの $SrI_2(Eu)$ / MPPC - モジュールからコントローラを経て Cable-LAN を介して、インターネット上に構築さ

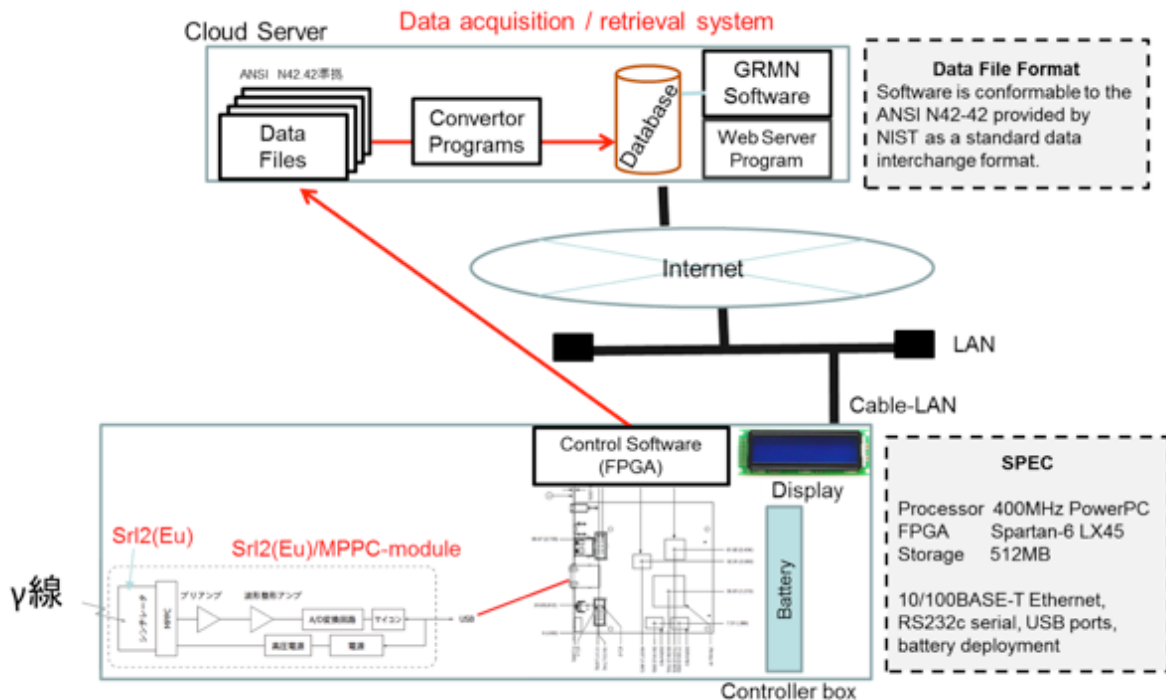


Fig. 6. System Images of the radiation monitoring unit.

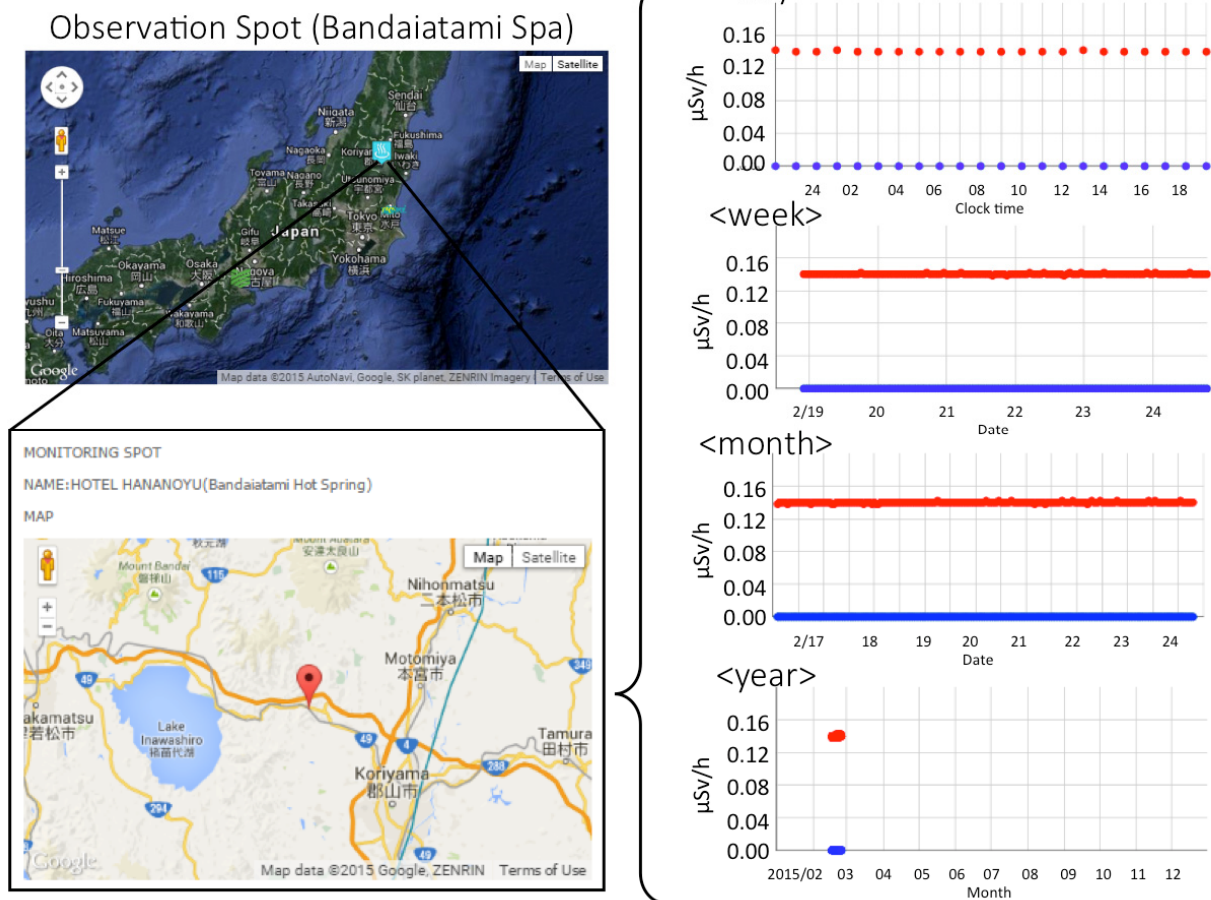


Fig. 9. Three ambient doses assessed from the total counts (conventional, red), ^{134}Cs - (green) and ^{137}Cs - radiations (blue).

^{137}Cs からの γ 線特有の 662 keV のピークも観測されていない。一方で、200-400 keV と 600 keV のピークが ^{226}Ra 標準スペクトルと対応している。この結果より、この地域の空間線量を支配しているのは福島第一原発事故による Cs 汚染によるものではなく、古来より天然に存在すると思われる ^{226}Ra 由来の放射線によるものであることを再確認出来ている。また、1500 keV 付近の明瞭なピークも、天然に存在する半減期 10^9 年のカリウム (^{40}K) 由来の γ 線である。

Fig. 9 には観測された放射線量について、従来型の空間線量ならびにその中から分離・抽出された ^{134}Cs と ^{137}Cs - 放射線量とを表示している。ただし、 ^{134}Cs , ^{137}Cs の強度はともに $0 \mu\text{Sv/h}$ であり、両者のプロット点は重なっている。空間線量については、原発事故発生 7 ヶ月後に観測した線量と殆んど同じレベル ($\sim 0.13 \mu\text{Sv/h}$) で推移して現在に至って

るのに対して、Cs 由来の放射線量は検出限界以下のレベルにあることが分かる。

PC 上で画面上の定点観測拠点 (現在は 2 ヶ所: 磐梯熱海温泉と三重大学工学部) をクリックしてやれば自動的に Fig. 9 右側の観測されている空間線量と Cs 放射線量の時間経過に伴う推移を見ることが出来る。さらに定点観測拠点を増やしていけば、それぞれの拠点での空間放射線量についての情報を拠点同士で共有することが出来る。風評被害に対する適切な対応の 1 つになるであろう。

5. おわりに

本報告は、2014 年 10 月より 2015 年 3 月までの半年間にわたって千代田テクノルの委託研究により行われた共同研究の成果である。この貴重な機会を

与えて下さった細田敏和 千代田テクノル社 CEO に心より感謝申し上げます。

SrI₂(Eu) / MPPC - モジュールを開発するにあたって、浜松ホトニクス (株) の中村重幸, 桜井直人, 内山徹也の各氏より賜った御支援, 御指導に対して心より御礼申し上げます。又, SrI₂(Eu) - 単結晶について貴重な情報を頂きご協力下さったユニオンマテリアル社の桜木史郎氏に厚く御礼申し上げます。

定点観測実施にあたっては, 研究開始当初 (2011年9月) 以来片寄久巳氏 (福島県災害対策本部主幹一当時) と菅野豊理事長, 佐藤精寿事務局長両氏 (福島県旅館・ホテル衛生同業組合) よりたまわった御協力, 御支援なくしては, 本研究への展開はなかった。ここに記して深甚の謝意を表します。

最後に本研究は, 表題に示す通り世界の主要定点観測拠点 (チェルノブイリ, スリーマイルアイランド, 等) に設置して, Global Ionizing Radiation Monitoring Network を構築することを目指したものである。事実, 海外のいくつかの研究機関より協力の申し出を受けてきた。時間的・財政的制約もあり, その実現に至らなかったことはまことに残念であった。この研究がきっかけになって近い将来, 念願とした本来の Global Ionizing Radiation Monitoring Network が構築されることを念願して止まない。

6. 参考文献

- [1] 志水隆一 : 「福島支援 JSPS - Global Radiation Monitoring Network の展開について」(独)日本学術振興会「マイクロビームアナリシス第 141 委員会」第 145 回研究会資料(H23.9.15~16)
- [2] 木村, 永井, 吉井, 細川, 佐藤, 岩田, 志水 : 「JSPS - Global Radiation Monitoring Network - 福島支援に向けて」(独)日本学術振興会「マイクロビームアナリシス第 141 委員会」第 146 回研究会資料(H23.11.24~25)
- [3] 吉井, 永井, 木村, 佐藤, 志水 : 『福島支援事業「JSPS - Global Radiation Monitoring Network の展開」』(独)日本学術振興会「マイクロビームアナリシス第 141 委員会」第 155 回研究会資料 (H26.1.30~31)
- [4] Professor Glen F. Knoll の特別講演*に負うことが大きい。教授は講演の中で CdZnTe - 検出器(分解能<4%)の活用を力説された。
*Glen F. Knoll 「Trends in Detectors for Ionizing Radiation」(独)日本学術振興会「放射線科学とその応用 第 186 委員会」第 3 回研究委員会資料(H24.10.19, 京都大学医学部創立百周年記念施設「芝蘭会館別館」)
- [5] P. R. Beck, N. J. Cherepy, S. A. Payne, E. L. Swanberg, K. E. Nelson, P. A. Thelin, S. E. Fisher, S. Hunter, B. M. With, K. S. Shah, R. Hawrami, A. Burger, J. A. Busger, L. A. Boatrer, M. Monayeqi, K. T. Stevens, M. H. Randles, D. Solodovnikov : Proc. of SPIE vol. 8213 92130N-1 (2014)
- [6] S. Sakuragi and S. Hashimoto : Proc. 28th Workshop on Radiation Detectors and Their Uses (Jun. 28, 2014, KEK, Tsukuba, Japan) in press.
- [7] 永井, 木村, 吉井, 細川, 佐藤, 志水, 野田 : 「携帯型スマートベクレルカウンターの試作 - 福島支援に向け」(独)日本学術振興会「マイクロビームアナリシス第 141 委員会」第 147 回研究会資料(H24.2.29~3.1, 産総研, つくば)
- [8] 吉井, 池田, 木村, 河村, 真鍋, 佐藤, 永井, 大久保, 志水 : 「Smart Becquerel Counter のソフトウェアプラットフォーム」(独)日本学術振興会「マイクロビームアナリシス第 141 委員会」第 149 回研究会資料(H24.9.27~28, 名大工, 名古屋)
- [9] G. Lasche and B. Huckins : 「An Introduction to the ANSI N42.42 Data File Format」(ANSI N42.42 short course, NIST, August 9, 2006)

査読コメント, 質疑応答

査読者 1. 吉川英樹 (物質・材料研究機構)

本論文は, 放射線を自動計測し, 標準化を念頭においたデータフォーマットでデータを記録するシステムを紹介しており, 表面分析における標準データフォーマットに通じるものがありますので, JSA 誌への掲載の意義があると考えます. ただし, 以下のコメントにありますように放射線の専門誌ではない JSA 誌の読者を念頭においた原稿の改訂をお願い致します.

[査読者 1-1]

本論文は, 著者が述べるように GRMN の構築が主眼であり, かつ JSA 誌の読者にとって関心のあるところのテーマの一つが共通データフォーマットですので, 本開発で使用されている XML データフォーマットについて実例を交えて詳細を説明して下さい.

[著者]

ご指摘ありがとうございます. XML ファイルの一例を Fig. 7 に示し, 記述内容の説明文を加筆いたしました.

[査読者 1-2]

Fig. 8 で, 磐梯熱海温泉でのスペクトルと ^{226}Ra の標準スペクトルとの比較から「磐梯熱海温泉でのスペクトルは ^{226}Ra 由来のもの」と結論づけていますが, Fig. 8 を見る限り磐梯熱海温泉でのスペクトルと ^{226}Ra の標準スペクトルとで一致していると思われる部分もあれば, 一致していないと見える部分もあります. 放射線計測の専門でない読者にとって, 著者の結論が妥当かどうかの判断が出来ません. 読者の理解を助けるため, Fig. 8 から今回の結論に至った理由の説明を加えて下さい.

[著者]

ご指摘の通り, 「磐梯熱海温泉でのスペクトルが ^{226}Ra 由来のものである」と言う結論に到るまでの記述が不足していました. 図中に ^{134}Cs , と ^{137}Cs の標

準線源からのスペクトルを追加し, 磐梯熱海温泉のスペクトルが ^{226}Ra 由来であると結論づけた理由を記しました.

査読者 2.

査読内容非公開