

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 19 日現在

機関番号：12501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2013～2013

課題番号：25610049

研究課題名(和文)リアルタイムストロンチウム90検出器の開発

研究課題名(英文)Development of Real-Time 90Sr Counters

研究代表者

河合 秀幸 (KAWAI, Hideyuki)

千葉大学・理学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：60214590

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円、(間接経費) 960,000円

研究成果の概要(和文)：福島第一原発事故では90Srを含んだ汚染水の漏出が続いている。90Srは高エネルギーβ線を出し、生体内でCaのように骨に沈着する。β線を放出しないため測定が困難で、JIS規格の計測法では4週間程度必要である。

我々は屈折率1.05のシリカエアロゲルを使ったチェレンコフカウンターで、1.2MeV以上のβ線に反応し低エネルギーβ線やγ線にほとんど反応しない90Sr測定器を開発した。有効面積300平方cmの試作品は1分の計測時間で表面汚染密度を0.1Bq/cm²の精度で測定できる。この測定器は大型化が容易で、1平方mの装置なら10分の計測で排水の体積汚染密度を10Bq/kgで測定できる。

研究成果の概要(英文)：From Fukushima No.1 nuclear plant, a large amount of 90Sr is released into the Pacific Ocean. 90Sr emits high energy beta rays and attaches into bone same as Ca. It is difficult to measure the density of 90Sr since it does not emit gamma rays. It is needed 4 weeks in the standard measuring procedure.

We have developed the real-time 90Sr counter. It is a threshold type Cherenkov counter with Silica Aerogel of $n=1.05$. It corresponds to the threshold kinetic energy of 1.2MeV for electrons. This counter has almost no efficiency for low energy beta rays and gamma rays. The lower limit of the detectable surface density is 0.1Bq/cm² with 1 minute of measurement. It is easy to produce larger detector. The expected lower limit of the volume density for waters with 1cm thickness may be 10Bq/kg with 10 minutes of measurement.

研究分野：素粒子実験

科研費の分科・細目：物理学 素粒子・原子核・宇宙線

キーワード：粒子測定技術 シリカエアロゲル 難測定放射性物質 リアルタイム測定 チェレンコフカウンター
しきい値型

1. 研究開始当初の背景

東京電力福島第一原子力発電所事故では大量の放射性物質が環境中に放出されたが、メルトダウンした燃料の冷却に使用した汚染水が地下水と混ざり合って ^{90}Sr の太平洋への流出は今も完全に止まっているとは言い切れない状況である。ほとんどの核分裂生成核は 崩壊の直後に β 線を放出するが、 ^{90}Sr は 2 回の 崩壊を起こす。特に 2 回目の崩壊では最大運動エネルギー 2.28MeV の高エネルギー β 線を放出するため外部被曝に配慮が必要である。また生体内でストロンチウムはカルシウムのように振る舞い骨組織に沈着するため、生物学的半減期はセシウム (70 日) よりはるかに長い 50 年である。海産物中の放射性セシウム濃度が規制値以下であっても ^{90}Sr 濃度も規制値以下である保障はない。

β 線放出核は検出器のエネルギースペクトル中にその核種特有の光電ピークが見られるため核種の判定や放射能絶対値の推定が可能である。 ^{90}Sr は β 線をほとんど放出しないため通常の放射線検出法では測定できない。 β 線はニュートリノを含む 3 体崩壊であるため β 線は発生時から連続エネルギー分布を持つ。また検出器に入るまでに空気でもエネルギー損失を起こす。 β 線エネルギーを測定しても核種は推定できない。JIS 規格で定められた ^{90}Sr の放射能測定方法は、ストロンチウムの精製 長期間放置による $^{90}\text{Sr}/^{90}\text{Y}$ 放射平衡状態の実現 イットリウム の分離という工程であるため、結果が判定するまで 2 ~ 4 週間必要である。この期間は ^{90}Y の半減期によって定まるため短縮することは困難である。今後福島第一原発や他の運転の終わった原発の廃炉作業を安全に進めるため、あるいは原子力発電所の安全運転の監視に廃水や排気ガス中の ^{90}Sr 濃度を連続測定するために、さらに福島県沖合漁業の再開のため海産物中の ^{90}Sr 濃度を短時間で測

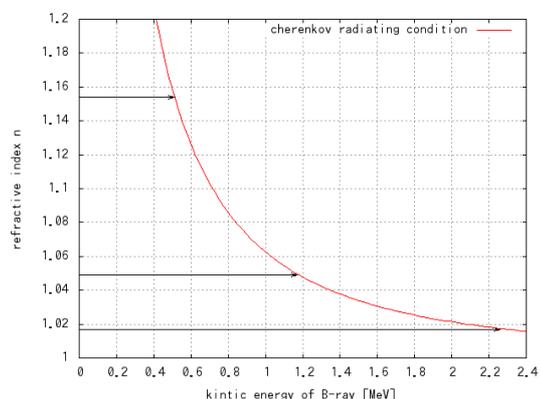
定するために、リアルタイム ^{90}Sr カウンターは必要不可欠である。

β 線エネルギー測定器はまだ十分な能力を持つものは開発されていない。これは、大面積のエネルギー測定器は分解能の一様性が不十分であることに加えて、複数の放射線が同時入射した場合にそのエネルギーの和が計測されること (^{134}Cs の β 線と β 線のエネルギーの和は最大 2.08MeV) や、検出器の中核部分の光電子増倍管などに β 線が入射すれば大きな信号が発生することなどの原理的な困難点が存在する。

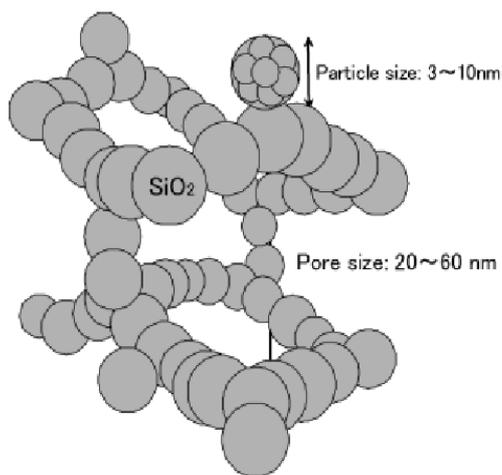
2. 研究の目的

本研究は ^{137}Cs 、 ^{134}Cs 、 ^{131}I 、 ^{40}K などの放射線物質が存在し、さまざまなエネルギーの β 線や β 線が飛び交う環境中で、 ^{90}Sr の放射能絶対値がリアルタイムで連続測定できるカウンターを、シリカエアロゲルを用いたしきい値型チェレンコフカウンターで実現する。

一般に波源の移動速度が波自身の伝播速度を上回れば衝撃波が発生する。例えば船が低速で移動すれば多数の小さな波が同心円状に発生するが、高速では船先から一対の大きな三角波が発生する。船自体を観測しなくても波打ち際に打ち寄せる波を観測するだけで高速の船の通過を知ることができる。可視光の衝撃波がチェレンコフ光である。下図は β 線の運動エネルギーとチェレンコフ発光が起きる屈折率の関係を示す。



図で上の矢印は ^{137}Cs の崩壊分岐比 95% で生じる線の最大運動エネルギー 0.512MeV を示す。この線は屈折率 1.152 以上の物質中でチェレンコフ発光する。2 番目の矢印は 5% の分岐比で ^{137}Cs が ^{137}Ba の基底状態に直接崩壊する際の線の最大運動エネルギー 1.174MeV では屈折率 1.048 以上の物体中でチェレンコフ発光が起きることを示す。下の矢印は ^{90}Y の最大運動エネルギー 2.28MeV では屈折率 1.018 以上で発光することを示す。すなわち屈折率が 1.018 ~ 1.048 の透明な物質があれば ^{137}Cs では全く発光せず ^{90}Sr の娘核である ^{90}Y から発生する高速線には反応するしきい値型チェレンコフカウンターが実現できる。なお ^{134}Cs は 1.4MeV までの線を放出する。このエネルギーでは光電効果は無視でき、コンプトンエッジは 1.15MeV である。すなわちこのカウンターは ^{134}Cs にもほとんど反応しない。



上図のようにシリカエアロゲルは二酸化珪素の微粒子が三次元的に数珠繋ぎとなり、間に大量の空気を含む。シリカや空気塊の大きさが光の波長よりはるかに小さいので、光学的にはシリカと空気の体積比に応じた屈折率を持つような物質のように振舞う。我々は高エネルギー素粒子実験における粒子識別装置の開発研究の中でシリカエアロゲルの製法を確立している。現在では 1.0025 から 1.25 までの任意屈折率のシリカエアロゲ

ルが製造可能である。

シリカエアロゲル製造法の研究を行っているグループはリュブリアナ大学、ノボシビルスク大学、NASA など少数である。我々は松下電工中央研究所 パナソニック電工新事業企画室と 1997 年以來共同研究を行ってきたが、パナソニック(株)はシリカエアロゲルの製造販売事業から撤退した。代わって財団法人ファインセラミックセンターに製法を伝えたが、まだ同等な性能のエアロゲルの製造に至っていない。

我々が提案する放射線計測器は、核分裂生成物のほとんどの放射線は検出せず、 ^{90}Sr の娘核である ^{90}Y からの高エネルギー線のみをリアルタイムに検出できる。

3. 研究の方法

本研究のリアルタイムカウンターはシリカエアロゲル内で線をチェレンコフ発光させ、その光を直径 0.2mm の波長変換光ファイバーで導き、直径 8mm の光電子増倍管で計測する。構造を下図に簡単に示す。



有効面積は $10\text{cm} \times 30\text{cm}$ である。

Trigger scintillator は(株)クラレが製造している直径 0.2mm のシンチレーションファイバーSCSF-78MJ である。

Silica Aerogel は屈折率 1.048 で厚さが 20mm である。この厚さでは運動エネルギー 1.174MeV の線が全てシリカエアロゲル中で静止する。

Wave length shifter fiber はやはり(株)クラレの 4 種類の波長変換ファイバーB-3,Y-11,O-2,R-3 で、直径はいずれも 0.2mm である。波長変換ファイバーは側面から入射した光

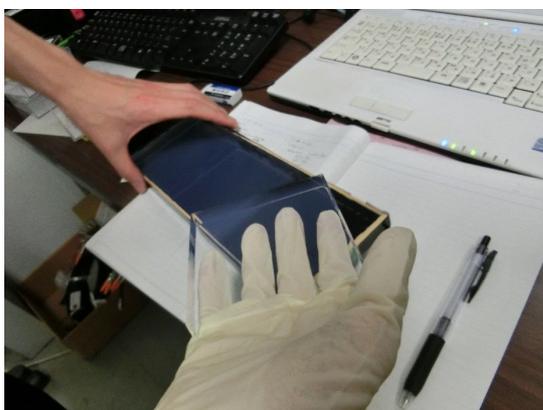
を吸収すると少し長波長の光を等方的に放出する。このうち全反射条件を満たす光だけがファイバー端まで伝播する。このためチェレンコフ光を吸収する大きな有効面積に比べて極めて小型の受光素子で十分な測定が行える。

PMT は(株)浜松ホトニクスの小型光電子増倍管 R9880-210 であり、受光面直径 8mm 外径 14mm である。

波長変換ファイバー面の上には厚さ 5mm のアルミニウム板があり、全ての 線を遮蔽する。その上には宇宙線 μ 粒子を測定するためのプラスチックシンチレーター板が置かれている。ここでは描かれていないが、シンチレーター板にはやはり波長変換ファイバーが接着されており、1本の光電子増倍管に繋がっている。すなわちこの測定器は7本の光電子増倍管を使用している。

原理的に 線に全く反応しない 線検出器は存在しない。我々の測定器は、線に対して全く発光しないシリカエアロゲルと物質量が非常に少ない波長変換ファイバーや光電子増倍管を用いているので 線の感度は非常に小さい。

下の写真は波長変換ファイバーシートとシリカエアロゲルである。シートの上に 10cm × 10cm のシリカエアロゲルが2枚置かれていて、3枚目を乗せようとしている。



次の写真は密封線源を使って性能評価測定を行っている様子である。



下の写真はこの検出器専用に林栄精器株に特注した光電子増倍管用高電圧電源と計数回路を一体化したものである。



この計測器は1個のAC100Vコンセントで全ての電源を供給する。パネルにはスタート(緑)ストップ(赤)リセット(灰)の3個のボタンがあるだけで、緑と赤を同時に押すと2系統(ファイバーシンチレーターの2本 + μ 粒子除去用シンチレーターの1本、波長変換ファイバーシートの4本)の光電子増倍管の電圧設定モードと計測モードの切り替えができる。電圧設定モードでは緑と灰を同時に押すと光電子増倍管の印加電圧が 0V 事前に設定してあった電圧に切り替わる。設定電圧は右側の2個のつまみで調節できる。計測モードではスタート、ストップ、リセットのボタンだけで計数し、計数値はパネルに表示される。このように、操作は非常に簡単である。

4. 研究成果

放射能絶対値が判明している密封線源を

使った性能評価実験を行った。

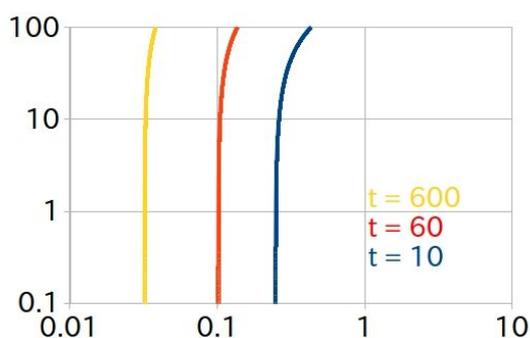
この検出器では ^{90}Sr に対する”hit”の条件を、シンチレーションファイバーに繋がった2本のPMTが同時に反応したときに波長変換ファイバーに繋がった4本のPMTのうちN本以上が反応したとすると、Nの値を1~4から選ぶことができる。性能評価実験で、 ^{90}Sr 感度、 ^{137}Cs に対する反応率、雑音頻度を測定した。その値は

N = 1 0.41% 2.1×10^{-5} 0.11Hz
N = 2 0.21% 1.0×10^{-6} 0.012Hz

となった。

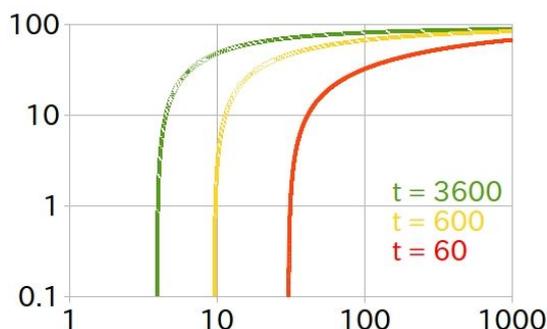
なお、この研究は中部電力原子力安全技術研究の平成25年度公募研究にも採用された。その研究発表会が6月14日に浜岡原子力発電所最寄りの御前崎市民会館で500名以上の参加者で開催され、この検出器は一般市民やマスコミ関係者の前で展示運転を行なった。

上記の測定結果からこの検出器の表面汚染密度の測定限界を評価した値が次の図である。横軸は ^{90}Sr 表面汚染密度で単位は Bq/cm^2 、縦軸は ^{90}Sr に対する ^{137}Cs の濃度比（無次元）である。測定時間は左から10分（黄）1分（赤）10秒（青）である。



本検出器は大面積化が容易な構造をしている。試作品は幅10cmであるがこれを5倍にしても同じ大きさのPMTが使用できる。また波長変換ファイバーやシンチレーションファイバーの減衰長は2.7mである。そこで、有効面積 $50\text{cm} \times 2\text{m} = 1\text{m}^2$ に大型化しても性能はあまり変化しないと予想できる。下

図はこの 1m^2 検出器を深さ1cmの排水路上に設置した場合の予想検出限界値である。横軸は排水中の ^{90}Sr 体積濃度検出限界で単位は Bq/L 、縦軸は前図と同じ縦軸は ^{90}Sr に対する ^{137}Cs の濃度比である。測定時間は左から1時間（緑）10分（黄）1分（赤）である。



^{90}Sr からの線は水中で急速にエネルギーを失うため測定できる線は表面付近のおよそ1mm以内で発生したものに限られるが、線にとっては1cmの水は無視できるため雑音は排水全体から発生する。もし排水を薄い容器に入れた後に100度以上に加熱して水分を蒸発させてから測定すれば ^{90}Sr 検出限界は1/10になるのは明白である。

試作品ではファイバーシンチレーターに繋がったPMTからの信号と波長変換ファイバーに繋がったPMTからの信号の「同時」という条件を時間差50nsec以内とした。NIM規格の同時計数回路を使っている場合はこの同時条件は10nsec程度までしか限定できないが、Time to Digital Converterを使えばより正確な時間計測が可能である。我々の測定ではファイバーシンチレーターの時間分解能は標準偏差で130psec程度であった。同時条件を500psec程度に設定しても感度の低下は1%以下でおさえられる。測定限界は雑音頻度の平方根にほぼ比例するので、同時条件の時間幅を1/100にすれば測定限界が1桁下がることが期待できる。すなわち据付型大面積測定器は、排水濃度測定のような十分なサンプル試料がある場合は $1\text{Bq}/\text{L}$ （連続測定）~ $0.1\text{Bq}/\text{L}$ （加熱処理を加え

たバッチ測定)の⁹⁰Sr 検出能力を、食品サンプルで 100g 程度の試料しかない場合でも 1Bq/μg程度の⁹⁰Sr 検出能力が予想される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

〔雑誌論文〕(計 0件)

〔学会発表〕(計 4件)

H. Ito, S. Iijima, S. Han, H. Kawai,
S. Kodama, D. Kumogoshi, K. Mase and
M. Tabata
Development of Real Time 90Sr Counter
Applying Cherenkov Light Detector
Technology and Instrumentation in
Particle Physics 2014, Jun. 2 ~ 6 2014,
Beurs van Verlage, Amsterdam,
Netherland

S. Iijima, S. Han, H. Ito, H. Kawai,
S. Kodama, D. Kumogoshi, K. Mase and
M. Tabata
Development of Real Time 90Sr Counters
IEEE Nuclear Science Symposium and
Medical Imaging Conference 2013,
Oct. 28 ~ Nov. 2 2013,
COEX Seoul Convention Center,
Seoul, Korea

飯島周多郎、伊藤博士、河合秀幸、
児玉諭士、雲越大輔
リアルタイム 90Sr カウンターの開発
日本物理学会 2013 年秋季大会、
2013 年 9 月 26 ~ 29 日、徳島大学

伊藤博士、飯島周多郎、河合秀幸、
児玉諭士、雲越大輔、間瀬圭一、
鈴木清太郎、田端誠
チェレンコフ光検出を応用した
リアルタイム 90Sr カウンターの開発
第 106 回日本医学物理学会学術大会、
2013 年 9 月 13 ~ 16 日、
大阪大学コンベンションセンター

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

取得状況(計 0件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕
ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

河合 秀幸 (KAWAI Hideyuki)
千葉大学 大学院理学研究科 准教授
研究者番号：60214590

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：