

# Identification of $^{90}\text{Sr}/^{40}\text{K}$ based on Cherenkov detector for recovery from the Fukushima nuclear accident

2016年01月18日

著者：伊藤博士

## 概要

2016年1月18～21日にKEKで開催された第1回 iSRD2016 における私の発表内容の一部を紹介し、学会の様子を示せたらいいかな。発表のネタはチェレンコフ90カウンターでカリウム40との識別の結果報告だ。そして、この技術を用いた福島復興への提案だ。

## 1. はじめに

ストロンチウム90カウンター開発においてまず知っておかなければいけない背景を記そう。このプロジェクトは2011年3月東日本大震災の2次災害として福島第一原子力発電所の事故から始まった。この事故直後から5年経った今でも福島県沖漁業が再開されていない（図

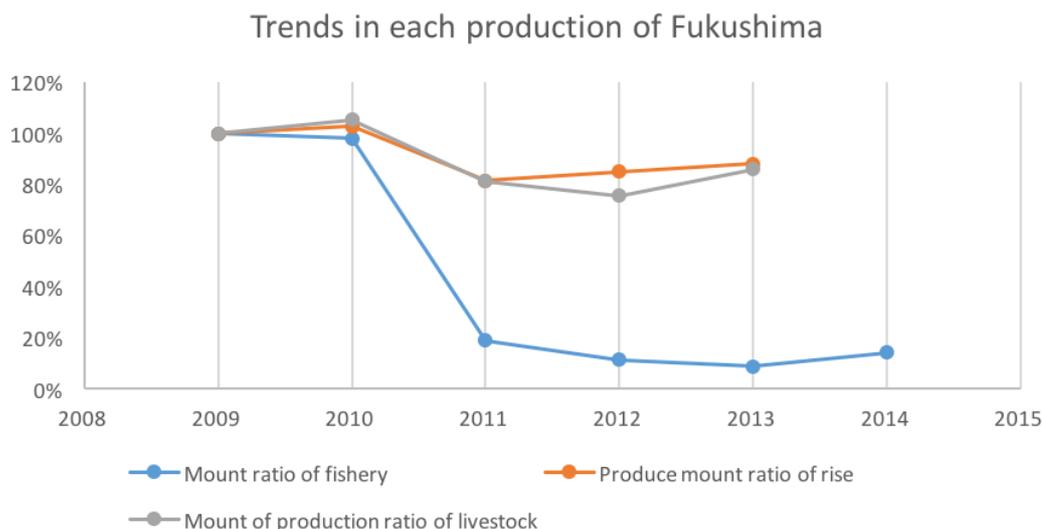


図 1. 農業・畜産・漁業の生産高の年間推移の比

1)。この原因はストロンチウム 90 (以降  $^{90}\text{Sr}$ ) が即時測定できないことにあることを知っているだろうか。よくメディアに取り上げられるのはセシウム 134, 137 (以降  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ ) で、食品に含まれる基準値が 100 Bq/kg と厚生労働省が 2011 年に改定した。

### **$^{90}\text{Sr}$ はなぜ危険なのか**

一方  $^{90}\text{Sr}$  について政府は触れてこなかった。基準値も設定されていない。食品に含まれる放射性物質は全核種合計で 100 Bq/kg と定め、放射性セシウム( $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$  など)でもその基準値に設定されている。

自然界にも放射性物質が多く存在し、その例がカリウム 40, ラドン 222, ポロニウム 210 などのウランやトリウム崩壊チェインの核種だ。主に海水に含まれているものは  $^{40}\text{K}$  である。カリウムの約 0.0117% が  $^{40}\text{K}$  の存在率と言われ、放射能で示すとカリウム 1 g 当たり 30.4 Bq である。我々の体内にも約 4,000 Bq の  $^{40}\text{K}$  が存在する (成人 60 kg に対して) と言われ、これによる年間被曝が 0.18 mSv と見積もられている。

ここで核種の半減期についておさらいしておこう。半減期には 2 種類あり、物理学的半減期 ( $\tau_{\text{phys}}$ ) と生物学的半減期 ( $\tau_{\text{bio}}$ ) がある。前者は原子核の性質で決まり、後者は生物の代謝や化学的作用などから決定される。 $^{137}\text{Cs}$  の  $\tau_{\text{phys}} = 30$  年、 $^{134}\text{Cs}$  の  $\tau_{\text{phys}} = 2$  年、そして Cs の  $\tau_{\text{bio}} = 70$  日である。2 つの半減期を考慮したものを実効半減期といい、 $\tau_{\text{eff}}^{-1} = \tau_{\text{phys}}^{-1} + \tau_{\text{bio}}^{-1}$  の関係をもつ。したがって、放射性セシウムの実効半減期は生物学的半減期が強く作用し約 70 日で体内から半分排出される。セシウムの生物学的半減期はアルカリ金属特有の化学的性質が関係しており、ナトリウムやカリウムなどは全身、筋肉などに分布し循環する。そして汗・尿などで代謝される。

たとえば、放射性セシウムが 100 Bq/kg 含まれている食品を我々が摂取し続け、成人の 1 日の食品摂取量は約 2 kg であると仮定すると毎

日 200 Bq 摂取することになる。人体のナトリウムは1日あたり約 10% が入れ替わると「河合論」では考えられている。これでいくと、約 70 日で体内の放射能は 2,000 Bq で飽和状態に達し、毎日摂取し続けたとしても上昇することはない。

一方  $^{90}\text{Sr}$  は物理学的半減期約 29 年、生物学的半減期約 50 年なので実効半減期が約 18.4 年と放射性セシウムと比較して長い。アルカリ土類金属でカルシウムなどと似て骨に蓄積する性質を持つことから説明できる。水溶性があり福島原発事故で海水に大量に排出された可能性がある。海水を通し植物プランクトン、動物プランクトン、小魚、大魚と食物連鎖を重ねていき、我々の食卓まで濃縮されてやってくる。つまりこれが、福島県沖漁業が未だに全面自粛している背景なのだ。

ではどのくらい危険なのかというと、例えば放射セシウムと同じ基準で毎日 100 Bq/kg 摂取するとすると仮定した場合、骨に含まれたカルシウムは1日あたり 0.5%入れ替わると仮定して（河合論）、約 18 年後に飽和状態となるのだが、それは考えたくない。例えば1年間摂取し、その後発覚して  $^{90}\text{Sr}$  の摂取をやめた場合を想定すると最初の年には放射セシウムやカリウム 40 の場合 0.18 mSv 以下に対して  $^{90}\text{Sr}$  は 12 mSv と計算できた（ $^{90}\text{Sr}$  を1年間摂取し続けると体内に約 75,000 Bq たまると計算された）。これは単純に体内の放射能だけでなく、ベータ線のエネルギーや、分布具合も関係する。

内部被曝を評価するひとつの目安として生涯被曝という考え方がある。長い目で見て体内に放射性核種が摂取された場合、排泄されるまでを考慮して計算される。ストロンチウム 90 は体内蓄積が長く、生涯被曝の係数が大きい。たとえ1年間摂取し続けた場合でも

生涯被曝は 500 mSv と計算される。この値は危険な数字で、生涯被曝が 200 mSv 増加することはガン死亡リスクを 1%増加させることに等しい。

従って、セシウム 134+137 は 100 Bq/kg で摂取しても問題はない一方、 $^{90}\text{Sr}$  は 1 Bq/kg で摂取しても危険である。そのため我々は  $^{40}\text{K}$  や  $^{137}\text{Cs}$  がたとえ 100 Bq 存在している試料でも  $^{90}\text{Sr}$  を下限値 1 Bq で放射能を即時に測定できる装置開発を目指している。

### **$^{90}\text{Sr}$ の放射能測定が困難な理由**

一般に放射能測定のメインはガンマ線測定である。ガンマ線スペクトロメータは検出したガンマ線のエネルギースペクトラムピークから原子核を特定し、そのピークの高さから放射能を評価する。これは原子核から放射されるガンマ線が一定のエネルギーを持つことから、原子核を特定することができるからだ。

しかしベータ線は連続的なエネルギー分布をもつため、エネルギースペクトラムで原子核を特定することができない。さらに他の原子核もベータ線を放出した場合や宇宙線ミュオンによって荷電粒子検出した場合など、バックグラウンドが大きいことも  $^{90}\text{Sr}$  放射能測定が困難な要因である。

図 2 に少し詳しく示した。 $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{40}\text{K}$  が 100 Bq 存在し、宇宙線があるなかで  $^{90}\text{Sr}$  が 1 Bq しか存在しない場合のそれぞれの運動エネルギー（宇宙線は厚さ 1 cm のプラスチックシンチレータで損失するエネルギー）分布を示す。 $^{137}\text{Cs}$  は最大運動エネルギー 0.51 MeV のベータ線と 0.661 MeV のガンマ線を放出（95.4%）、もしくは最大運動エネルギー 1.174 MeV のベータ線を放出する（5.6%）。 $^{40}\text{K}$  は最大運動エネルギー 1.31 MeV のベータ線を放出（89.3%）もしくは 1.46 MeV のガンマ線を

放出する（10.7%）。 $^{90}\text{Sr}$  は最大運動エネルギー0.51 MeV のベータ線を放出し、その娘核の  $^{90}\text{Y}$  が最大運動エネルギー2.28 MeV のベータ線を放出する。宇宙線のフラックスは天頂角  $\theta$  において、

$$\text{Flux}(\theta) = 8.3 \times 10^{-3} \cos^2\theta \text{ cm}^{-2} \text{ sec}^{-1} \text{ str}^{-1}$$

に依存して減っていく。厚さ 1 cm のプラスチックシンチレータを通過した場合、約 2 MeV のエネルギーを損失する。一方、入射角度が増加すると、シンチレータを通過する距離が  $1/\cos\theta$  に比例して増加する。図2のマゼンタ実線はこの理論値を示している。2 MeV 以下が記されていないのは、シンチレータの端を掠った場合などは実験セットアップに依存するため考えないものとした。実験データはマゼンタ実点で示す。サイズ  $100 \times 200 \times 10 \text{ mm}^3$  のプラスチックシンチレータの両端にアクリルライトガイドを通して光電子増倍管（PMT: H1161）が接続されている。2つの光電子数の和を  $^{90}\text{Sr}$  からのベータ線の結果からエネルギーに校正した。こうしてみると、従来のベータ線測定では  $^{90}\text{Sr}$  のベータ線を区別できず、つまり  $^{90}\text{Sr}$  放射能を測定できない。

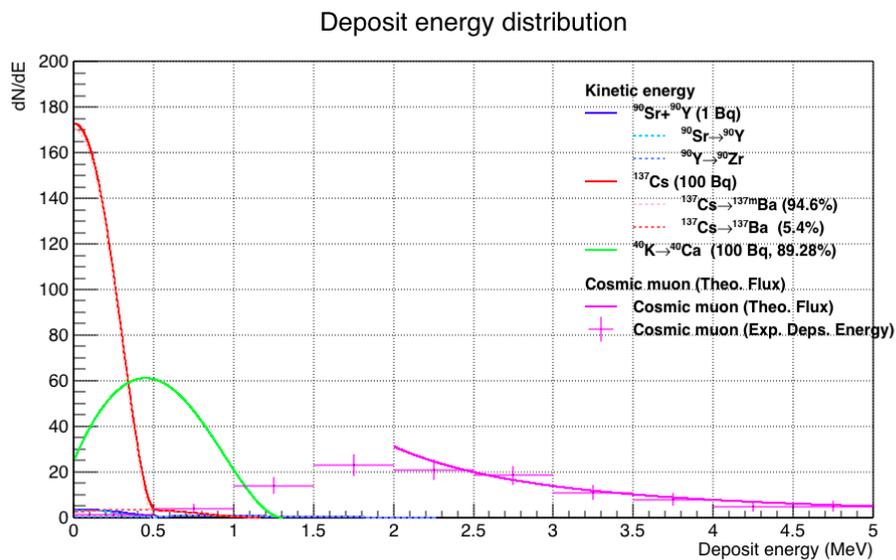


図2. 核種からのベータ線運動エネルギー分布と宇宙線ミュオン損失エネルギー分布

## 2. リアルタイムストロンチウム 90 カウンター

シリカエアロゲルを用いたチェレンコフ光検出を応用して、 $^{90}\text{Sr}$  からのベータ線には反応し、他の  $^{137}\text{Cs}$  からのベータ線や  $^{40}\text{K}$  からのベータ線、そして宇宙線ミュオンにさえも反応しない装置を開発する。

この装置はシンチレーションカウンターによる入射窓、チェレンコフカウンター、遮蔽ブロックで周りを囲み、その側面に宇宙線ベト用シンチレーションカウンターで構成される（図3）。

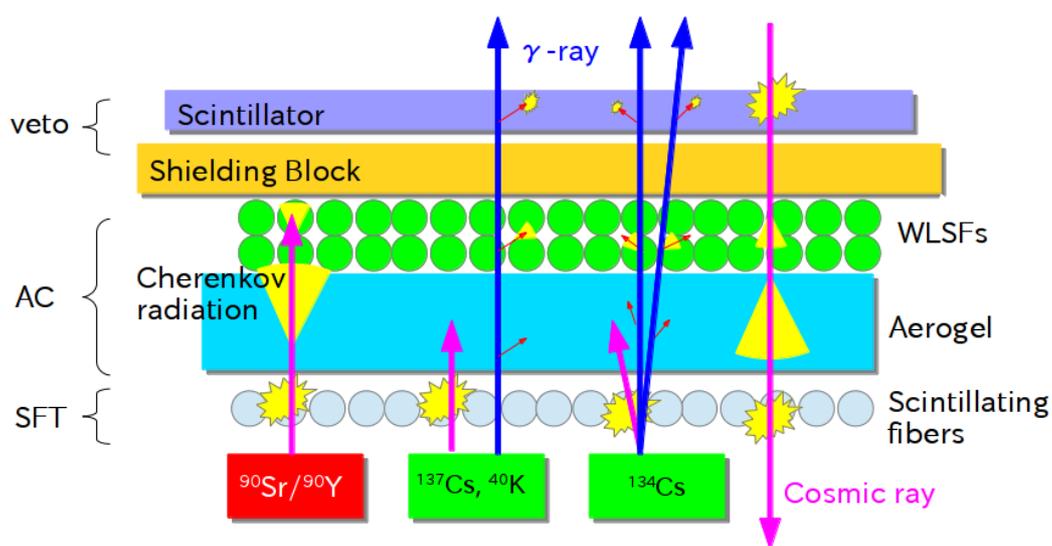


図3.  $^{90}\text{Sr}$  Counter の概観

入射窓（SFT: Scintillating Fibers Trigger）はチェレンコフ放射条件を妨げないように薄型でなければいけない要請があり、この検出器にはシンチレーションファイバーシートを採用した。クラレ社のプラスチック・シンチレーション・ファイバー（SCSF-78MJ）は直径 0.2 mm でダブルクラッド構造、トラッピング効率約 10.8%である。このファイバーを1列に敷き詰めて長さ 30 cm、幅 10 cm のシートを作成し、両端に PMT:R9880U-210 をそれぞれ接続した。ファイバーのコアとクラッドの比から理論的に検出効率は 88%と予想されたが、実験的には  $^{90}\text{Sr}$  からのベータ線で検出効率 54%が得られた。これは、コアに入射

する確率が 88%, そのうちシンチレーション光が平均 20 個出たとして、トラッピング効率約 10.8%、PMT の平均量子効率が 30% で計算すると、57% と計算でき測定結果を説明できる。

AC (Aerogel Cherenkov counter) のためのシリカエアロゲルは  $\text{SiO}_2$  と空気の混合体のような振る舞いをし、これらの体積比によって屈折率が決定される。千葉大では 1.003 - 1.26 の屈折率を製造することに成功し、さらに従来よりも透明度の高い、そして疎水化処理をしているおかげで経年劣化による変化が数十年単位で確認されていない。

$^{137}\text{Cs}$  からの最大 1.174 MeV のベータ線、そして  $^{40}\text{K}$  からの最大 1.31 MeV のベータ線でチェレンコフ放射しないために、必要な屈折率はそれぞれ 1.0492, 1.0418 である。 $^{40}\text{K}$  でもならないようにするので後者の 1.0418 以下の屈折率を使用する。ゲルの厚さは 1.31 MeV のベータ線が密度  $0.16 \text{ g/cm}^3$  で止まる厚さ 3 cm に設定して評価した (初号機的设计は 1 cm だ)。

波長変換ファイバーはクラレ社の B-3 (300) MJ, Y-11 (300) MJ の 2 種類を使用している。B-3 は 300 nm 程度の光を吸収して 400 nm の光を放射する。Y-11 は 430 nm 程度の光を吸収して 450 nm の光を放射する。このファイバーをシートにして 2 層ずつ重ねている。チェレンコフ光は波長の 2 乗に反比例した連続スペクトラムを持つので 1 種類よ

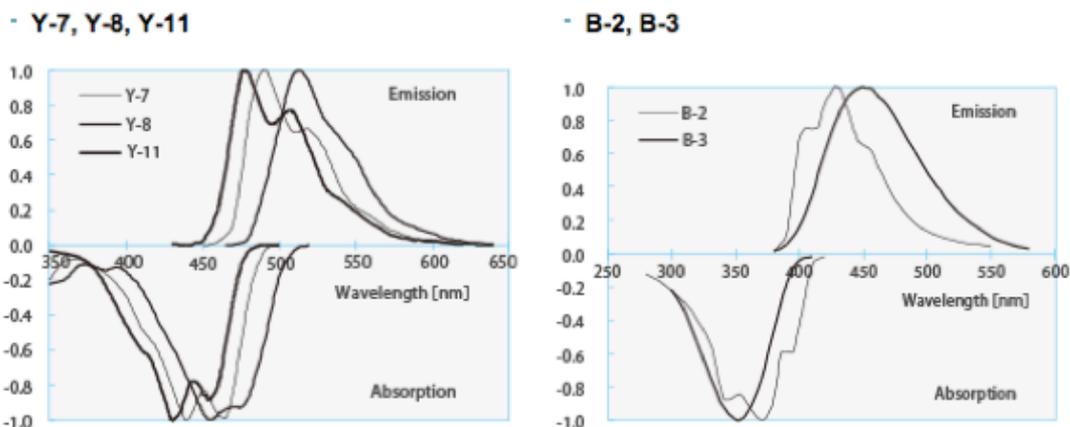


図 4. WLSF 吸収・発光波長スペクトラム

りも2種類使用しかつ、B-3 で吸収しきれなかった光を Y-11 で受けることで収集効率を稼ぐことができる設計をとった。

初号機に取り付けた WLSF ライトガイドは2分割されており両側読み出しで計4本のPMTが接続されている。東北大学電子光物理学研究センターのGeVガンマの300~500 MeV 電子ビーム（速度比  $\beta=(v/c)\sim 1$ ）において WLSF ライトガイドの性能評価を行った。エアロゲルをライトガイドの上流に置いた場合と、そうでない場合の得られた光電子数を比較し直接PMTで読み出した場合と比較してWLSF ライトガイドの収集効率を評価した。エアロゲルの屈折率  $1.050 \pm 0.001$ 、厚さ3 cm の時、平均光電子数の差は0.89 p.e.、最大8%の収集効率を達成した。



図5. エアロゲルとWLSF ライトガイドの写真

遮蔽体は厚さ1 cm のアルミ板を採用した。線源から約5 cm 離れており、2.28 MeV のベータ線が止まる厚さとしては十分であるとして採用している。

ベトーカーカウンターはサイズ 200×400×10 mm<sup>3</sup> のプラスチックシンチレータの4側面に波長変換ファイバーシートを4層巻き、両端を一つのPMTに接続して読み出している。中心に宇宙線ミュオンが入射したとき平均 7 p.e.の光電子数を確認している。この結果から、十分宇宙線の事象を除去することができるとして採用した。

### 3. 性能評価測定

今回は <sup>40</sup>K で反応しないかの検証を行った。<sup>40</sup>K 線源を作成する必要があり、林純薬工業株式会社から純粋な塩化カリウムを購入した。KCl 1 g あたり約 16.6 Bq の <sup>40</sup>K が含まれていることがわかっているので、質量を決定すれば放射能が決定する。

シンチレーションカウンターによって得られた実験的な質量とカウント頻度の関係を図4に示す。横軸が KCl の質量(g)、左縦軸がカウント頻度(cps)、右縦軸が <sup>90</sup>Sr によって校正された放射能(Bq)である。KCl の質量に比例した放射能が確認できた。1次関数でフィッティングした結果 1 g あたりの放射能 12.3 ± 1.8 Bq と評価できた。この値はおそ

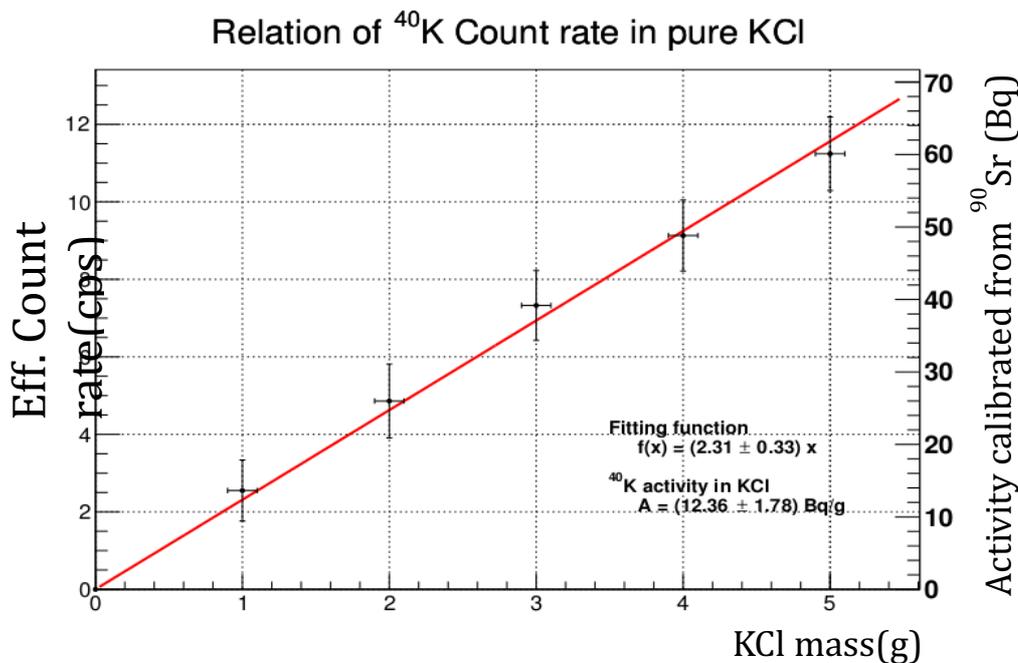


図 6. KCl の質量と放射能の関係

らくシンチレーション検出器の閾値が影響しているため、少なく見積もっている可能性がある。

シリカエアロゲルの屈折率  $1.03443 \pm 0.00006$ 、厚さ 30 mm のセットアップで  $^{40}\text{K}$  線源の放射能を変えながら 20 分間の測定を行った。バックグラウンド頻度  $7.00 \pm 0.34$  cps と比べて  $^{40}\text{K}$  のカウント頻度  $7.05 \pm 0.32$  は誤差の範囲内で同じと言え、つまり優位に  $^{40}\text{K}$  のベータ線には反応しなかったと言える結果が得られた。

ちなみに、REPIC 回路で性能評価測定を実施していると、おかしい挙動をしたので、次の章「バグ報告」に記し、NIM 回路で動作確認して原因を突き止めた。この章で実施したのはすべて、NIM 回路による性能評価測定である。

## 4. バグ報告

---

**2015.12.25 一度に十数カウントする。**これは宇宙線ミュオンによって信号が入力された時、REPIC 回路では PMT アナログ信号を AMP に通し、その後 Discriminator に通して演算処理する。Discr.がアップデーティングの場合、チャタリングが起こっている可能性がある。チャタリングが起こる原因が波長変換ファイバーと AMP にあると考えている。ファイバー内で光が行ったり来たりするとなんども PMT を応答させてしまうのではないか。しかし光の減衰があり、影響は無視できるのかもしれない。もう一つの可能性は Amplifier の反射的なノイズが Discr.の閾値を何度も越えてチャタリング現象を作るのかもしれない。

解決策としてはまず Discr.はノンアップデーティングを採用し、50 ns でロジック信号を作成し、その後もう一度 Discr.に通すべきである。これによって、チャタリング現象を回避できる。先に 50 ns 通し

ているので、これが Dead time を作り、本物の信号を区別できる。2 つ目の Discr. は幅 10 ns を作り演算処理される。

**2015.12.28 宇宙線ミュオン・ベトー信号が無意味?** というのも、REPIC 回路では一律 50 ns の幅で Discr. を構築している。Veto 信号もそうで、不理論で宇宙線を除去するのだが、設計的に見ても、もしタイミングがすこしでもずれたらベトー仕切れないことは明白。さらにチャタリング現象が起きていた場合は最悪で、ベトーするはずが大量にカウントさせてしまう原因につながる。

解決策はチャタリング処理をして、さらにベトー信号だけ幅 50 ns で演算するべきだろう。タイミング調整は PMT 信号ケーブル長で変更可能なはずだ。

**2015.12.30 チェレンコフカウンターよりレンジカウンター。** ストロニウム 90 カウンターのシリカエアロゲルはチェレンコフ光の輻射体と遮蔽体の 2 つの役割を持っていることはわかっていた。しかし、チェレンコフ輻射体としての寄与はどの程度か知る必要があった。テストはエアロゲルと波長変換ファイバーの間に白紙を挟んだ場合とそうでない場合で  $^{90}\text{Sr}$  のカウント数がどう変化するか調べた。結果は誤差の範囲で変化なしだった。つまり、チェレンコフ放射によって  $^{90}\text{Sr}$  を判断しているよりか、ベータ線のエネルギーと飛程の関係によって  $^{40}\text{K}$  からのベータ線と  $^{90}\text{Sr}$  からのベータ線とを判断していることになることが明らかになってしまった。

チェレンコフ光読み出しのスタイルにするためには、WLSF ライトガイドをストリップ状にしてベータ線が入射した場合は 1 本が、チェレンコフ放射で光が広がれば 2 ~ 3 本反応するだろうことから判断ができる仕様にすべきだ。

## 5. 国際学会 iSRD2016

上記に 2016 年 1 月 18～21 日に KEK で開催された第 1 回 iSRD2016 における私の発表内容の一部を紹介した。ここで発表の様子、出来具合などについて触れていこう。

### 第 1 日目

初日、13 時から開始された学会。高エネルギー加速器研究機構 (KEK) の小林ホールを会場に約 30 人程度集まったと思う。最初のセッションは宇宙 1、宇宙 2、福島だった。私はこの福島のセッションで口頭発表した。もちろん言語は英語である。PC にカンペを仕込んでいたけど、がつつり見ながら話しているとバレバレであった (写真)。今後のための口頭発表における課題が見つかった。スライドのサイズを考えるべきだったかもしれないな。



図 7. 学会発表の様子

この日の夜に welcome party が開催され、ワイン、チーズなどが提供された。その時の写真があったらよかったかも。そこで、この学会の目標が IEEE などの国際学会レベルに昇格することなど語られた。日本で恒例の国際学会というものが少ないというのがそもそもの始まりだったのだ。

久しぶりに山崎さん(元 E36 メンバー)に会い話した。うまく発表できていなかったと思っていたけど、社交辞令かな、「面白い内容だったよ」と言ってくれた。知り合いがいてくれて正直ホッとしている。他にも福島県飯舘村の汚染土壌の再生プロジェクトをしている東大の溝口教授は実際に使用した装置（発表で登場した）を持ち込んで話しのネタにしていた。ここには色々な人がいた。東北大学の方でシンチレータ結晶を作成している方もいた。核理研の方など。徳島大学の伏見さんとも話せた。シリカエアロゲルを用いて原子核識別する話をしたら、自然放射能の  $^{208}\text{Tl}$  や  $^{212}\text{Bi}$  からのベータ線はどうかなど、提案され、勉強になった。

## 第2日目

IEEE のように検出器開発をメインにただけあって、分野は医療用 X線検出器、PET 検出器などに渡っていた。今日はポスター発表で後輩が発表した。ここで気になった内容について記述しておこう。

九州大学：シンチレーションファイバーと MPPC を使って宇宙線ミューオン・トモグラフィーをしようと実際に試作してみました。という発表があった。ファイバーサイズは直径 2 mm、クラレ社のダブルクラッドファイバーだ。MPPC は従来型で読み出しは東北大学 + KEK 製の EASIROC モジュールだ。実際に建物の境目が分かる程度の結果が出ている。

東北大学：400-450 nm の発光波長領域をもち、発光量が 40,000 ph/MeV と多い結晶の温度依存性を測定していた。その結晶の発光量は摂氏 50 度で約 95%、100 度で約 90%と変化している結果を見せてもらった。しかも、ドーピングする Zr の量によって変化量に多少差があるらしい。ちょうど 500 ppm 混ぜた場合温度変化が少なかった。しかし、Zr を含ませていくほど発光量が減る割合と天秤に欠けるとあまりメリットが少ないような気がする。時間特性も Zr を含ませると良くなる傾向があるのだが、誤差の範囲で同じじゃね？ってレベルだった。

### 第 3 日目

セッションはシンチレータ、メディカル、中性子検出器、エレクトロニクスだった。SOI ピクセルによる X 線検出器は迫力のあるプレゼンだった。実際に魚や植物の CT 画像を見せ、良い分解能があることをデモンストレーションした。

夕食は晩餐会があった。そこで、ポスターアワードの表彰があった。4 人、おそらく X 線検出器開発の人たちだろうと感じた。河合さんは、この晩餐会には参加したが泊まりではないため飲まずに帰ってしまった。

### 第 4 日目

半導体ガンマ線検出器のセッションだ。自分たちの分野としては手が出せない領域だった。内容から察するに、SDD と GSDD の 2 種類がピクセル構成の主流らしく、GSDD のほうが MOS を使用せずシンプルな設計が可能だという。X 線、 $\gamma$  線検出のピクセルとなるのだと。研究の内容やどこに向かっているのかなど理解ができなかった。

## 発表内容構成の反省点

セッション: Fukushima, Oral No. 9。著者の発表に関して、いくつか反省点がある。始まりは農林水産の生産量比の年代推移を見せ、水産のダメージが多く、まだ回復していないことを強調した。その後、 $^{90}\text{Sr}$  が危険であることを話し、そして  $^{90}\text{Sr}$  放射能測定が困難であることを示した。その後チェレンコフカウンターの説明をして、これなら  $^{90}\text{Sr}$  の放射能が測定できることを説明したのだが、あまり伝わっていなかったと感じた。特に  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  の崩壊分岐比や  $\beta$  線、 $\gamma$  線のエネルギーを紹介すべきだった。1枚のスライドに対する説明が少ないと感じた。装置の説明も結構雑だったなと反省しよう。波長変換ファイバーをなぜ使ったのか、他の部品の性能についても示す必要があった。結果についてもインパクトが弱かった。

## 6. 今後の展望

---

ストロンチウム 90 カウンターも 2 号機作成を視野に入れていく予定だ。また、初号機の改善も同時並行にしていかなければいけない。

### 初号機改善

- ① 初号機の仕様書を作成する必要がある。装置に使用している PMT の型番は、そして校正した増幅率と HV の関係は、ノイズの HV 依存は、波長変換ファイバーの束ね方、層数、ファイバー種類、シリカエアロゲルの屈折率、透明度、厚さ、シンチファイバー検出効率、ベトーカーカウンター検出効率、ADC 読み出しによる解析結果とスケーラーによるカウント数との関係、エレキ回路の設計など  
...。

- ② 宇宙線ベトーカーカウンターの拡張。初号機のバックグラウンド頻度を減らし、性能を向上する唯一手を加えられる箇所がここだけだと考えている。上部だけでなく、側面、つまり、あと2面シンチ板を追加する予定だ。ということは、現在のシンチ板についている波長変換ファイバーを剥がして、新しく付け直す必要が出てくる。

## 2号機作成

- ① 有効面積  $500 \times 200 \text{ mm}^2$ 。シリカエアロゲル屈折率 1.041。使用 PMT 数は 12 個(R9880U-210)[内訳：トリガー×2, AC×8, veto×2]
- ② シンチファイバーシートは完成している。
- ③ 波長変換ファイバーシート作成（担当：伊藤）：読み出しのための束ね方をストリップ状にする。切り出し 80 cm, 1000 本。
- ④ シリカエアロゲル（担当：田端）：屈折率  $n < 1.041$ 、体積は厚さ適正の測定をしないと判断できないが、 $200 \times 500 \times T \text{ mm}^3$  が要求される。T はゲルの厚さ
- ⑤ 回路作成は林英精器株式会社に委託するが、設計を見直す必要がある。初号機のバグを教訓に、HV は共通でいくついるのか、設定変更が可能な設計にするのか、外部出力可能かどうかなど決めておこう。

## 7. おわりに

---

今月は  $^{90}\text{Sr}/^{40}\text{K}$  識別測定について調べ、REPIC 回路バグ発見と NIM 回路で原因究明、学会発表を行ってきた。初号機の改善とそして2号機作成に向けて来月から作業を進めていく。