

平成26年度  
千葉大学 大学院 理学研究科  
修士論文

# リアルタイム大面積 $^{90}\text{Sr}$ 検出器の開発

基盤理学専攻 物理学コース

13SM2101

飯島 周多郎



# 目次

第1章	序論	5
1.1	福島第一原子力発電所 事故	5
1.2	放射性物質	5
1.3	食品・汚染水問題	6
1.4	リアルタイム $^{90}\text{Sr}$ 検出器の必要性	7
1.5	本研究の目的	7
第2章	原理	9
2.1	チェレンコフ光	9
2.2	シリカエアロゲル	10
2.2.1	シリカエアロゲルの構造	10
2.2.2	シリカエアロゲルの製造法	11
2.3	波長変換ファイバー	15
2.4	検出器構想	15
2.4.1	シリカエアロゲルを用いた、チェレンコフ発光	15
2.4.2	検出方法	17
2.4.3	ノイズ	17
第3章	検出器の種類と使い分け	21
3.1	検出器 I 低汚染用	21
3.1.1	使用用途	21
3.1.2	構造 (図 3.2)	21
3.2	検出器 II (高汚染用)	22
3.2.1	使用用途	22
3.2.2	構造 (図 3.3)	22
3.3	検出器 III (排水用)	24
第4章	試作機	25
4.1	構造	25
4.2	外付け回路	27
4.3	性能	29

<b>第 5 章</b>	<b>大面積化に伴う検出効率の調査</b>	<b>31</b>
5.1	シンチレーションファイバー検出効率の測定	31
5.1.1	実験装置	31
5.1.2	結果 (ファイバーシート一層の場合)	32
5.1.3	結果 (ファイバーシート二層の場合)	35
5.2	波長変換ファイバー検出効率の測定	38
5.2.1	実験装置	38
5.2.2	結果	38
<b>第 6 章</b>	<b>TDC テスト</b>	<b>41</b>
6.1	シンチレーションファイバー内伝播速度の測定	41
6.1.1	実験装置	41
6.1.2	結果	41
6.2	二種類のファイバーの時間分解能の測定	42
6.2.1	実験装置	42
6.2.2	結果	43
<b>第 7 章</b>	<b>結論</b>	<b>47</b>
7.1	本研究のまとめ	47
7.2	課題と展望	48
7.2.1	バックグラウンドノイズの減少	48
7.2.2	波長変換ファイバーの並べ方	48
<b>付 録 A</b>	<b>使用した機材</b>	<b>53</b>
A.1	光電子増倍管 (PMT)	53
A.2	CAMAC	55
A.2.1	CAMAC とは	55
A.2.2	ADC	56
A.2.3	TDC	56
<b>付 録 B</b>	<b>放射性物質</b>	<b>57</b>
B.1	ストロンチウム $90(^{90}\text{Sr})$	57
B.2	ルテニウム $106(^{106}\text{Ru})$	58
B.3	ヨウ素 $131(^{131}\text{I})$	58
B.4	セシウム $134(^{134}\text{Cs})$ 、セシウム $137(^{137}\text{Cs})$	59
	<b>参考文献</b>	<b>61</b>

# 第1章 序論

福島原発事故により、我々は未だ放射性物質に怯え続けなければならない状況に置かれている。この章では、事故の概要からこの研究の目的までを述べる。

## 1.1 福島第一原子力発電所 事故

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震、そしてそれに起因する津波により、福島第一原子力発電所に事故が発生した。この事故は国際原子力事象評価尺度 (INES) で「レベル7」という深刻な評価をなされた。事故発生時、1～3号機は稼働しており、事故直後に緊急停止した。4～6号機は定期検査中であった。この地震で、東電新福島変電所から福島第一原発への送電設備が損傷し送電が停止、さらに用意されていた予備の送電線も接続ケーブルの不具合により使用できず、外部電源を失ってしまった。その後、津波の影響で非常用ディーゼル発電機や冷却用海水ポンプ、配電系統設備、1号機、2号機、4号機の直流電源などが水没して機能不全となり、6号機の空冷式非常用ディーゼル発電機1台を除くすべての電力供給機能が失われた。そして3月13日未明には、すべての電源が失われてしまった。

一方、災害の影響は電源のみに留まらず、がれきや土砂などを伴って発電所の建屋・設備を破壊した。主要建屋エリア全体に渡って大量の海水が流れ込んだ。津波が去った後も、漂流物が散乱し、道路の陥没・隆起も相まって、アクセス性が著しく低下した。また、継続的に発生する大規模な余震や津波により、作業は断続的に中止させられた。さらに、電源喪失によって、中央制御室での監視・制御や、発電所内の証明、通信手段を一挙に失ってしまった。そのため、有効なツールや手順書もない中、現場運転員たちによる臨機の判断、対応に依拠せざるをえず、まさに手探り状態での事故対応となった。電源喪失によって、適時かつ実効的な原子炉冷却も著しく困難になっていた。原子炉冷却、すなわち高圧注水や原子炉減圧、低圧注水、格納容器冷却と減圧、最終ヒートシンクへの崩壊熱除去といった、事故回避へ向けた各ステップの実行とその成否は、電源の存在に強く依存しているためである。

この事故により、ヨウ素換算でチェルノブイリ原発事故の約6分の1に相当するおよそ900PBqの放射性物質が放出された。<sup>[1]</sup>

## 1.2 放射性物質

原発事故により飛散した放射性物質の中でも危険である核種として<sup>131</sup>I (ヨウ素131) が挙げられる。これはチェルノブイリ事故の後も問題になった甲状腺がんを引き起こす核種であるが、半減期が8日と短いため、事故から4年近く経つ今では注目する必要が無いと考えられる。問題となる核種と

して、まず  $^{137}\text{Cs}$  がある。半減期は 30 年、水溶性であり、事故直後の大気中への放出や今も続く太平洋への流出など、日本へ脅威を与えつづけている。人間に取り込まれると筋肉、あるいは全身に蓄積され、白血病や不妊のリスクが高まる。しかし、ナトリウムと同じアルカリ金属に族しており、食塩の様に汗として人体から出ていくので、生物学的半減期は 70 日程である。これに対して  $^{90}\text{Sr}$  は、カルシウムと同じアルカリ土類金属であり、骨に堆積して残りつづけるため、生物学的半減期が 10 ~ 20 年と考えられる。水溶性であるので汚染水に含まれ、人体に取り込まれると骨腫瘍、白血病の原因となる。汚染水問題は未だ続いており、安全に生活するためにも即時性のある  $^{90}\text{Sr}$  検出器が必要である。(  $^{137}\text{Cs}$ 、 $^{90}\text{Sr}$  の崩壊については図を参照 )

また、 $^{106}\text{Ru}$ (ルテニウム 106) も考慮するべきである。これは半減期 368.2 日で 39keV の線を放出し娘核種の  $^{106}\text{Rh}$ (ロジウム 106) へと崩壊する。この  $^{106}\text{Rh}$  が、半減期 29.8 秒で 3.541MeV の非常に強い線を放出し  $^{106}\text{Pb}$  へと崩壊する。 $^{106}\text{Rh}$  は今も燃料デブリ(冷却材の喪失により原子炉燃料が溶融し、冷えて固まったもの)に多く含まれると考えられ、事故当地において  $^{106}\text{Rh}$  の位置情報を得ることがデブリの処理へと繋がることになる。

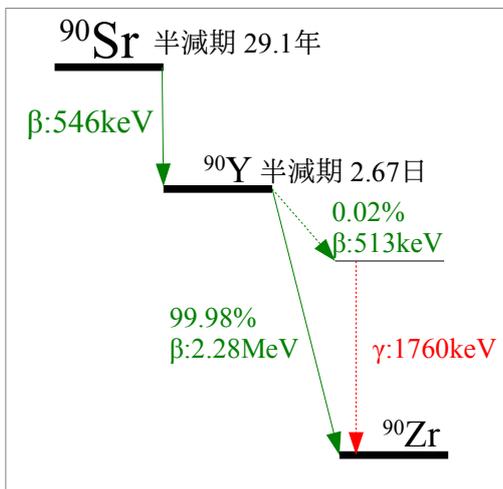


図 1.1:  $^{90}\text{Sr}$  崩壊モデル

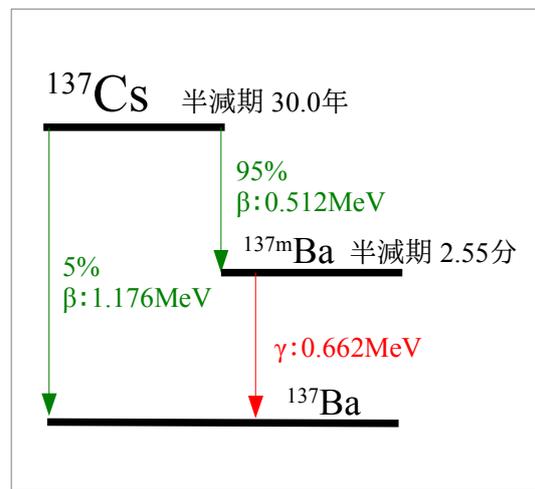


図 1.2:  $^{137}\text{Cs}$  崩壊モデル

### 1.3 食品・汚染水問題

事故当時稼働していた 1~3 号機では、核分裂の連鎖反応が止まった後も溶融燃料が崩壊熱を出し続けているため、注水による冷却を続けなければならない。冷却水は燃料に触れて高濃度の放射性物質を含んだあと、格納容器の損傷部分から漏れて地下などに溜まる。そこへ原子炉建屋の外から地下水が流れ込んで混ざるため、毎日 300 ~ 400 トンの汚染水が発生する。現在、原発タンクには高濃度汚染水が約 36 万トン保管されているが、これにより汚染水は毎日増え続けている。水溶性の  $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  は、この事故により膨大な量が太平洋へ流れ出てしまった。特に  $^{90}\text{Sr}$  は線の最大エネルギーが 2.28MeV と高く、さらに生物の骨に蓄積されるので、非常に危険である。

東京電力によると、事故発生直後に空气中に放出された放射線は数十 PBq、その中の  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$

の比率は  $^{137}\text{Cs}:$  $^{90}\text{Sr} = 100:1$  である。これは  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の沸点の差により、事故発生直後に蒸発していた  $^{137}\text{Cs}$  が飛散し、液体であった  $^{90}\text{Sr}$  は残存していたからである。このことから、農作物などの 線を計り  $^{137}\text{Cs}$  に対する安全性を確認することで、 $^{90}\text{Sr}$  からの被害も抑えられると考えられていた。この数値は 2011 年のもので、2015 年現在未だ放射線が空気中に飛散しているとは考え辛い。今なお問題になるのは汚染水問題であり、原子力発電所にある未処理のデブリは数 TBq/年の速さで水溶性の放射性物質を海に流しつづけている。汚染水に含まれる  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の比は、沸点の差に基づく大気中の割合 100:1 と同じとは限らず、1:1 であるかもしれない。これに関して東京電力は、今では  $^{90}\text{Sr}$  の方が多いと公表している。汚染水や、それを摂取した魚介類の  $^{90}\text{Sr}$  が重要になるのはそのためである。

## 1.4 リアルタイム $^{90}\text{Sr}$ 検出器の必要性

$^{131}\text{I}$  や  $^{137}\text{Cs}$  などは、原子炉のベントおよび水素爆発によって空気中に放出され、関東地方でも観測されている。また、原子炉への注水によりこれらの放射性同位元素は、海洋へ流れ出た。 $^{131}\text{I}$  については、半減期が短いため、事故から 3 年以上経過している現在での影響は低いと考えられる。今日考えられるのは、 $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  である。 $^{137}\text{Cs}$  は比較的良好に測定されるが、 $^{90}\text{Sr}$  の測定は非常に難しい。その原因のひとつに、現行の方法での  $^{90}\text{Sr}$  検出時間の長さがある。 $^{90}\text{Sr}$  は 線を放出しないため、その固有 線による測定が出来ない。そのため 線の直接測定をすることになるが、その際の化学的処理に 2~4 週間ほどの時間を要してしまう。これでは、食料としての魚の鮮度を保つこと、排水を常に監視し続けることが困難である。短時間（被験物質に含まれる濃度によるが、およそ一時間以内）で  $^{90}\text{Sr}$  を検出できる装置が必要である。

## 1.5 本研究の目的

本研究の目的は、 $^{90}\text{Sr}$  汚染量の低い物質の線量を測ることのできる検出器を作ることである。そのために、 $2\text{m} \times 50\text{cm}$  の感知領域を持つ大面積検出器が作成可能かどうかを調べる。大面積化の理由は、検出感度を上げるためである。我々はこれまでに  $10\text{cm} \times 30\text{cm}$  の感知領域を持つ試作機を製作し、その性能を評価した（第 4 章 参照）。この装置でも十分に実用可能なことが証明されたが、 $^{90}\text{Sr}$  の濃度が低くなると検出が難しくなる。濃度の低い被験物質は、薄くペースト状にされ、面積を大きくすることが望まれる。なぜなら、一度に多量の被験物質を測定することにより、含まれる  $^{90}\text{Sr}$  量の増加が見込まれ、薄くすることで  $\gamma$  線の影響を減少することが出来るからである。被験物質が厚さを持っていると、 $\beta$  線は内部でエネルギーを失ってしまうことから表面のものしか検出できないことに対し、 $\gamma$  線はどこからでも突き抜けてやって来てしまう。この問題の解決が、検出効率の上昇につながる。

	日本	ウクライナ	ベラルーシ
飲料水	10	2	0.37
乳幼児食品	50	5	1.85
牛乳	50	20	3.7
食品	100	5 ~ 35	3.7

表 1.1: 放射性物質の摂取限界値 [Bq/kg]  
 日本のものは  $^{137}\text{Cs}$  に対する基準、ウクライナ、ベラルーシは  $^{90}\text{Sr}$  に対するものである。  
 日本では明確な  $^{90}\text{Sr}$  に対する基準は設けられていない。

表 1.1 は、日本、ウクライナ、ベラルーシそれぞれの現在の  $^{90}\text{Sr}$  基準値である。日本の食品の基準値は 100Bq/kg であり、最低でもこの値の検出を可能としなければならない。また、日本の基準値は表にある他の国のものに比べて非常に高いことが分かる。1Bq/kg のオーダーの検出が可能になれば、世界レベルでの基準を満たすことが出来ていると言える。福島県沖の漁業は、現在も全面自粛の体制である。一刻も早く安全性を確認しなければならない。

## 第2章 原理

本研究の軸となるチェレンコフ光のメカニズム、使用した素材のシリカエアロゲルと波長変換ファイバーについて述べ、それらを利用した検出の方法を示す。

### 2.1 チェレンコフ光

チェレンコフ光とは、ある媒質 (屈折率  $n$ ) を通過した荷電粒子の速度 ( $v$ ) が、その媒質内での光の速度 ( $c/n$ ) を越えた場合に放出される光である (2.1)。

$$v > c/n \quad (2.1)$$

荷電粒子が媒質中を通過する際、その付近の電場が乱され、媒質中の電子が偏極する。それらの電子再び平衡状態に戻ろうとすると、電磁波が放出される。このとき、荷電粒子の速度が媒質中の光子の速度を越えていた場合、置いてきぼりとなった電磁波の波面が重なって衝撃波が生じ、チェレンコフ光として観測される。

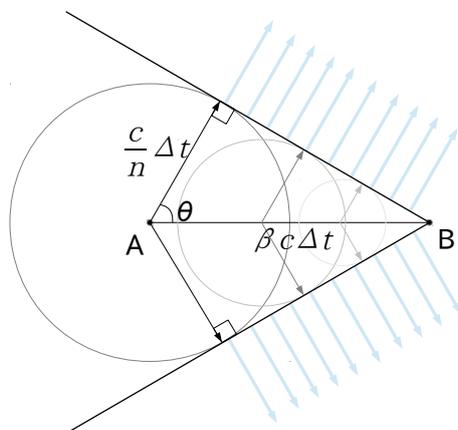


図 2.1: チェレンコフ光 放射角

図において、速度  $v$  の粒子が、点 A から点 B までを  $t$  の時間で移動したとする。粒子の速度と真空中の光速の比を  $\beta = v/c$  とすると、粒子の移動距離 AB は  $v\Delta t = \beta c\Delta t$  となり、電磁波の移動距離は  $(c/n)\Delta t$  となる。以上から、チェレンコフ光の放射角度は

$$\cos\theta = \frac{1}{n\beta} \quad (2.2)$$

であることが分かる。媒質通過時に発生するチェレンコフ光の光子数はフランク・タムによって証明された。媒質中を粒子が通過した距離  $L$ 、チェレンコフ光子の波長  $\lambda$ 、チェレンコフ放射角  $\theta$ 、微細構造定数  $\alpha$  を用い、次のように表される。

$$N = 2\pi\alpha L \int \frac{\sin^2\theta}{\lambda^2} d\lambda \quad (2.3)$$

## 2.2 シリカエアロゲル

### 2.2.1 シリカエアロゲルの構造

エアロゲルはゲル状の物質を乾燥することで作られる多孔性の固体であり、その体積の大部分が空気で占められている。そのうちシリカ ( $\text{SiO}_2$ ) を主成分とするものはシリカエアロゲルと呼ばれ、固体としては極めて低屈折率、低密度である。低い屈折率の輻射体は、通常の固体や気体で用意することが困難である。そこでシリカエアロゲルはその特異構造によりガスなどの気体物質より安定な個体であり、チェレンコフ光を観測する際に光に対して良い透明度を示す物質であることなどが上げられる。シリカエアロゲル中では主成分となる二酸化珪素 ( $\text{SiO}_2$ ) が直系 12nm の無孔性粒子を形成し、この 1 次粒子がさらに集合し最大で直径が 50nm の大きさの 2 次粒子が形成されている。この二酸化珪素 ( $\text{SiO}_2$ ) を基本構造とした 1 及び 2 次粒子の径の大きさがエアロゲルの光学的性能を特徴付ける重要な要因として考えられている。1,2 次粒子の中の  $\text{SiO}_2$  の密度は、ガラスと同定密度 2.4 ~ 2.6g/cm<sup>3</sup> 程度である。2 次粒子は互いに鎖上に結合し合い 3 次元ネットワークを形成し固体構造中の 90%以上が空孔から成る高多孔質構造を持つことにより、固体であるにもかかわらず低密度・低屈折率を可能にしている (表 2.1)。それにより単純固体では難しい領域において、低屈折率、低密度を実現している。図 (2.5) にシリカエアロゲルの特異構造をモデル化した図を示す。

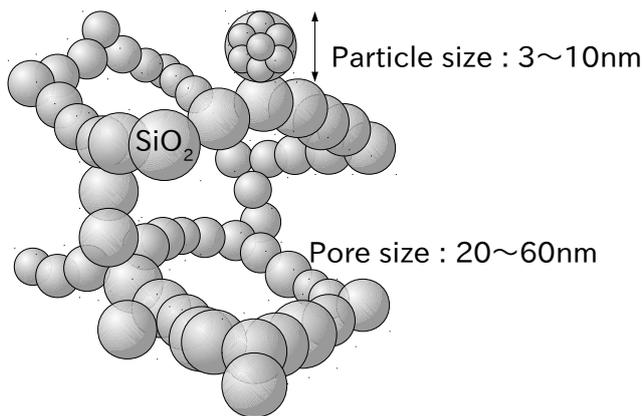


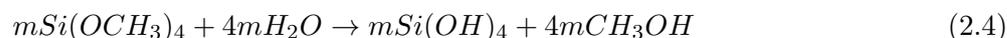
図 2.2: シリカエアロゲル 構造

	物質	屈折率
固体	シリカエアロゲル	1.003 ~ 1.26
	ガラス	1.48
	ポリエチレン	1.58
液体	水	1.38
	水素	1.11
	液化ヘリウム	1.024
気体	二酸化炭素	1.00045
	水素	1.000138
	ヘリウム	1.000035
	空気	1.000292

表 2.1: 様々な物質の屈折率

## 2.2.2 シリカエアロゲルの製造法

シリカエアロゲルの主原料はテトラメトキシシラン ( $Si(OCH_3)_4$ ) と蒸留水であり、アンモニアを触媒としてアルコール溶媒中で混合すると、加水分解して水酸化ケイ素 ( $Si(OH)_4$ ) を得る (2.4)。



同時に (2.4) の縮重合反応が進行 (ゾル生成) し、次第に粘度が大きくなってゲル化する。



我々がエアロゲルの標準製法としている KEK 法 (KEK・松下電工 (株) 共同開発) の第一の特徴は、テトラメトキシシランが平均して 3 個縮合したメチルシリケート 5 (MS51) と呼ばれる薬品を用いることである。MS51 はシリカ分 ( $SiO_2$ ) として 51 重量% 相当分を含有する無色透明の液体である。この MS51 を用いることにより、KEK 法以前の製法に比べて調合工程が簡素化されている。KEK 法の第 2 の特徴は疎水化処理である。疎水化をしていないエアロゲルは OH 基をもち親水性で吸湿性に富むため、空気中の水分を容易に吸収する。その結果エアロゲルは変色し、透明度が低下してしまう。そこで疎水化剤としてヘキサメチルジシラザンを使用し、アルコゲルの OH 基中の H を疎水性の  $Si(CH_3)_3$  基 (トリメチルシリル基: TMS) に置換している (図 2.4)。更に本来は反応で容易に混ざることのないメチルシリケート 51 と  $H_2O$  両者を溶す溶媒に対して、閾値型で要求される屈折率領域:1.01 ~ 1.03 ではメタノール ( $CH_3OH$ ) を使用することで高い透過長が得られている。しかし、RICH で要される屈折率 ~ 1.05 においてメタノールでは不十分である。そこで、2003 年にメタノール溶媒に変わる溶媒の候補として (N - ジメチルホルムアミド) ( $C_3H_7NO$ ) 溶液を使用しシリカエアロゲルの開発を行なった。(図 2.3)DMF を導入したことにより、大幅に透明度が向上した。

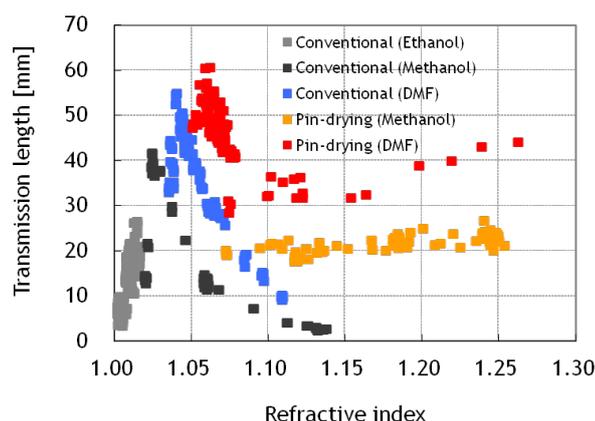


図 2.3: DMF ピンホール乾燥導入による透過長の構造

また、KEK 法の具体的な製作工程は以下のようになる。

調合 予め決定した調合比に従って薬品を 2 つの容器に取り分ける。片方の容器には MS51、溶媒を

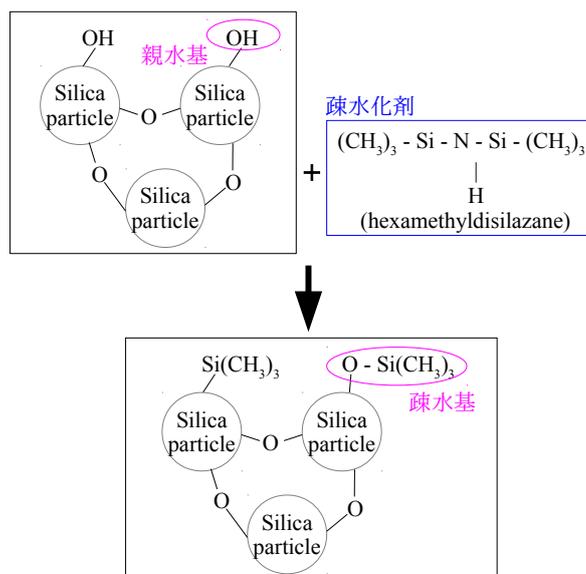


図 2.4: 疎水化過程

量り取って A 液とし、もう片方の容器には蒸留水、アンモニア水を量り取って B 液とする。B 液を A 液に注ぎ込み、30 秒～1 分間攪拌する。混合液を製作したい形状の型（ポリスチレン製）に流し込み、気泡をすばやく取り除く。型に蓋をしてゲル化が進行するのを待ち、表面が固まったら乾燥を防ぐために溶媒として使用した薬品を表面に静かに張る。各薬品の調合比はエアロゲルの屈折率を決定するばかりでなく、温度などとともにゲル化速度に寄与し、エアロゲルの透明度を左右する。ゲル化が速いほどゲル構造が細かく透明なエアロゲルになることが知られているが、型での成型操作を考慮して混合から数分で固化するように触媒であるアンモニア水の量を調節する。疎水化剤（ヘキサメチルジシラザン）を用いて、エアロゲルの親水基を疎水基に置換する。これで吸湿による透明度の悪化を予防できる。

熟成（一週間）ゲル構造を強固にするため、蓋をした型のまま熟成させる。この工程は乾燥を防ぐため、底にエタノールを張って蒸気で満たした保存缶（密閉缶）で行う。

ピンホール乾燥（2 週間～2 ヶ月） アルコゲルをエタノール中で網台に載せ、微小な間隙（ピンホール）を設けた半密閉容（ピンホール容器）にエタノールから出して網台ごと封入する。アルコゲルが必要な大きさまで収縮したら（2 週間～2 ヶ月）ピンホール容器ごとエタノール蒸気にさらす。ピンホール容器がエタノール蒸気で十分に満たされたら、ピンホール容器ごとエタノールに沈める。

洗浄 1（3 日間）型の蓋を取り、保存缶をエタノールで満たしてアルコゲルを型のままエタノールに沈める。これはゲル化反応後の不要なアンモニアや水を取り除くためである。

疎水化（3 日間）保存缶のエタノール中でアルコゲルを型から外し、パンチングメタル皿（多数の穴を開けたステンレス容器）に載せる。エタノール 9 の体積に比して 1 の疎水化剤を保存缶に注いで混ぜる。

洗浄 2（3 日間×3 回）疎水化反応で生成されたアンモニアを除去するため、アルコゲルを新しいエタノールに沈める。疎水化後 3 日ごとに 3 回エタノールを交換する（洗浄 2-1, 2, 3）。

	臨界温度 [ °C ]	臨界圧力 [atm]	臨界密度 [ $g/cm^3$ ]
エタノール	243.1	63.1	0.275
メタノール	239.43	79.9	0.272
二酸化炭素	31.1	73.0	0.46
水	374.1	218.5	0.324
アンモニア	132.4	112.0	0.234
窒素	-147.1	33.5	0.311

表 2.2: いろいろな物質の臨界点

超臨界乾燥（2～3 日間）アルコゲルを自然乾燥すると、溶媒が蒸発するときにアルコゲルの毛細管状の細孔中にメニスカスが生じ、その収縮方向に表面張力が働く（図 A.3）。さらに乾燥が進むとメニスカスがアルコゲル内部に入り込み、大きくなった表面張力でひび割れ（クラック）を起こしてしまう。（図 A.4）に示すように、物質の温度と圧力が臨界点を超え、アルコゲルの形状と構造を保ったまま溶媒を抽出するには、超臨界乾燥を行う。（図 A.4）に示すように、物質の温度と圧力が臨界点を超え、液相と気相の境界がなくなった状態が超臨界流体である。表 2.2 にいくつかの物質の臨界点データを示す。超臨界流体は、液体のような密度でありながら気体のような粘度をもち、拡散係数は液体と気体の中間である。圧力を上げて液体にならず、メニスカスも生じない。この状態でアルコ

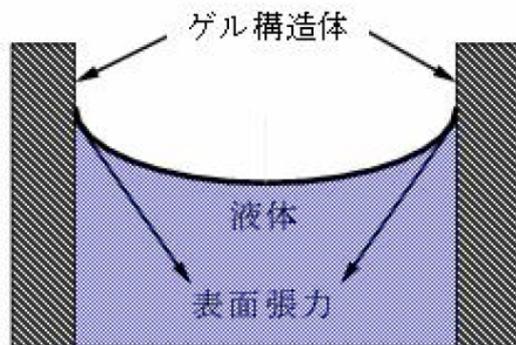


図 2.5: メニスカス

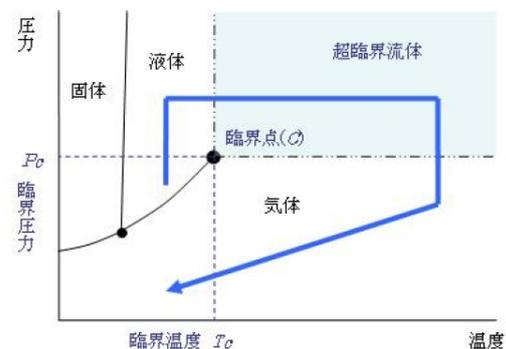


図 2.6: 超臨界過程

ゲルから溶媒を抽出すれば不必要な表面張力が働かないため、形状と構造を保ってエアロゲルを得ることができる。

（表 2-2）から分かるように可燃性のエタノールに高温・高圧を印加する必要がある。通常は、まず溶媒を臨界温度が比較的低い二酸化炭素に置換し、その後で二酸化炭素を超臨界状態にする二酸化炭素オートクレーブ（図 2-7）を使用する。こうしてアルコゲル中の溶媒を抽出後、常温・常圧に戻せば空气中で安定なエアロゲルが完成する。[2]



図 2.7:  $CO_2$  オートクレーブ

オートクレーブ内でアルコゲル中のエタノールを液化炭酸に置換後、二酸化炭素を超臨界流体（臨界温度 31.1、臨界圧力 7.30MPa）にし、アルコゲルから抽出する。内容積 7.6l

## 2.3 波長変換ファイバー

波長変換ファイバーは、コア部分に波長変換物質が混ぜ込まれた光ファイバーである。このファイバーに側面から入ってきた光は、波長変換物質により吸収され、より長い波長域の光が等方的に再発光される。このうち、全反射条件を満たすものがファイバー内を伝搬することができる。今回は、直径が0.2mm、コアの二重になっているマルチクラッドのファイバーを使用した。マルチクラッドの場合、再発光された光のうちおよそ5.4%が全反射条件を満たす。<sup>[3]</sup>

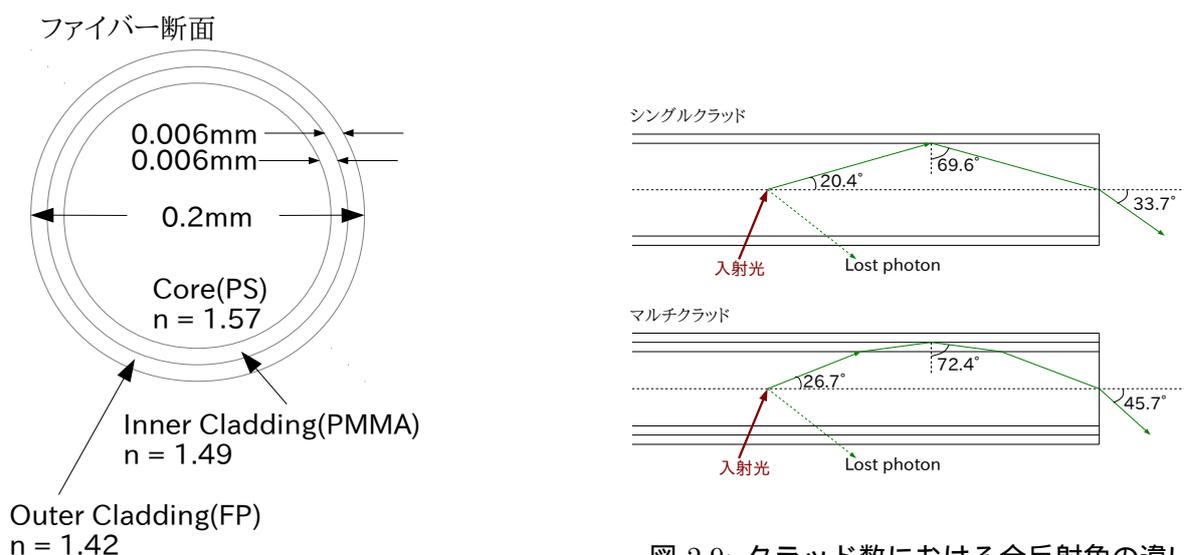


図 2.8: ファイバー断面図

図 2.9: クラッド数における全反射角の違い

## 2.4 検出器構想

### 2.4.1 シリカエアロゲルを用いた、チェレンコフ発光

$^{90}\text{Sr}$  からの  $\beta$  線がシリカエアロゲル内でチェレンコフ発光し、その光を検出するのが我々の検出器のメカニズムである。シリカエアロゲルは、 $^{90}\text{Sr}$  からの高エネルギーな  $\beta$  線のみを検出し、 $^{137}\text{Cs}$  などから放射される低エネルギーな  $\beta$  線を排除するために用いられる。 $^{90}\text{Sr}$  を検出する際に厄介なのが、バックグラウンドとしての  $^{137}\text{Cs}$ 、宇宙線の  $\mu$  粒子などであり、この二つのバックグラウンドノイズをいかに抑えられるかが重要になってくる。 $^{90}\text{Sr}$  は最大 0.54MeV の  $\beta$  線を放出し  $^{90}\text{Y}$  へと崩壊、その後最大 2.28MeV という強いエネルギーの  $\beta$  線を放出し、安定状態の  $^{90}\text{Zr}$  へと崩壊する。全体としての崩壊に掛かる時間は 28.8 年である。 $\beta$  線は連続したエネルギーの分布を持つので、 $\gamma$  線を放出する多核種のようにエネルギー測定で同定することが難しい。 $^{137}\text{Cs}$  はおよそ 95%の確率で最大 0.512MeV の  $\beta$  線を放出し励起状態の  $^{137}\text{Ba}$  になったあと、0.662MeV の  $\gamma$  線を放出し安定状態へ移行する。残りの  $^{137}\text{Cs}$  は、1.17MeV の  $\beta$  線を放出し直接安定状態の  $^{137}\text{Ba}$  へと崩壊する。そこで、屈

折率 1.048 のシリカエアロゲルを発光体として利用し、1.2MeV 以上のエネルギーを持つ  $\beta$  線にのみ感度のある検出器を作れば、 $^{137}\text{Cs}$  からの影響を受けないようにすることができる (図 2.11)。

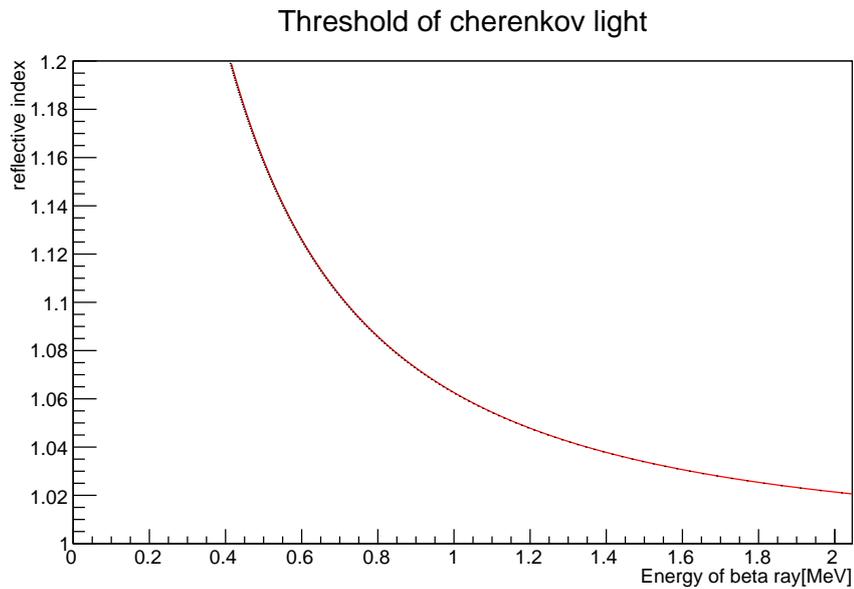


図 2.10: チェレンコフ光の閾値  
横軸は  $\beta$  線のエネルギー、縦軸は発光体の屈折率である。



図 2.11: チェレンコフ光の閾値  
 $^{137}\text{Cs}$  からの  $\beta$  線 (最大 1.17MeV) と  $^{90}\text{Sr}$  からの  $\beta$  線 (最大 2.28MeV) を識別するには、屈折率 1.048 のシリカエアロゲルを用いればよい。

## 2.4.2 検出方法

チェレンコフ光がシリカエアロゲル内で発生するメカニズムは、上の通りである。その後は、第3章で述べるように、二つのパターンに分かれる。一つは、シリカエアロゲルの上に2インチのPMTを置き、直接チェレンコフ光を観測する方法である。もう一つは、一度波長変換ファイバーを経由し、両端に繋がれた小型PMTへと光が経路されるものである。

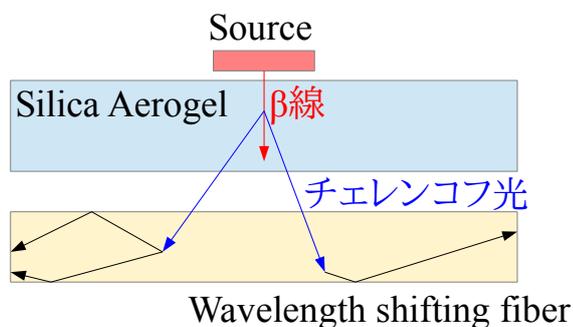


図 2.12: 検出原理

実際に使う際には、測定物質とエアロゲルとの間にシンチレーションファイバーを設置し、本当に測定物からの線なのかを調べる。

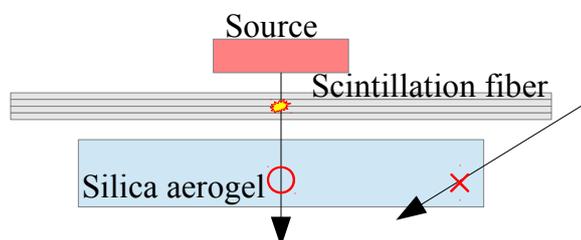


図 2.13: シンチレーションファイバーを挟む

## 2.4.3 ノイズ

$^{90}\text{Sr}$  への感度を上げることも重要だが、ノイズを削減することも、検出感度上昇への重要な要素となる。ノイズの大きな原因として、宇宙線（ミュオン）と  $^{137}\text{Cs}$  からの  $\gamma$  線が考えられる。 $^{137}\text{Cs}$  は半減期が約 30 年と長く水溶性なので、 $^{90}\text{Sr}$  と同様に魚の骨や排水に存在している。 $^{137}\text{Cs}$  の他に厄介な放射性物質として、 $^{134}\text{Cs}$  がある。 $^{134}\text{Cs}$  は半減期が約 2.1 年なので危険性を考慮されるべきだが、今回の研究では  $^{137}\text{Cs}$  の削減を図った。 $^{134}\text{Cs}$  については、第7章で取り扱う。

宇宙線による誤検知は、本来  $^{90}\text{Sr}$  からの  $\beta$  線が通るところを宇宙線が上から突き抜けた時に生じる。これを取り除くには、進路上にシンチレーターを一つ設置し、信号があった場合のカウントを回

避する方法がある。 $^{90}\text{Sr}$  からの  $\beta$  線がこのシンチレーターを通過しないように、アルミ板などで遮蔽をする (図 2.14)。

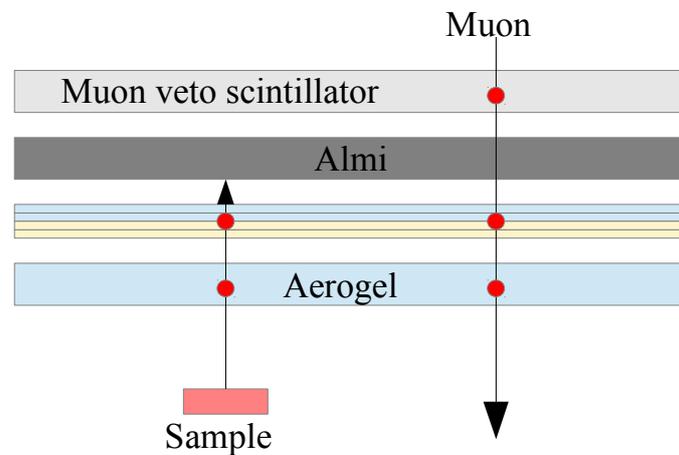


図 2.14: 宇宙線対策

$^{90}\text{Sr}$  からの  $\beta$  線はアルミ板で遮蔽されて、上のシンチレーター (Muon veto scintillator) まで届かない。宇宙線はシンチレーターで発光しつつ波長変換ファイバー、シリカエアロゲルでもチェレンコフ発光を起こす。そのため、シンチレーターが発光したイベントを取り除くことで、宇宙線の誤検知を防ぐことができる。

$^{137}\text{Cs}$  による誤検知は、 $\beta$  崩壊後に発生する  $\gamma$  線によるものである。 $\gamma$  線が、PMT のガラス面などでコンプトン散乱を起こし、発生した電子によってチェレンコフ発光を起こし、測定してしまう。これを防ぐために、まずサンプルを薄くする方法がある。これは第 1 章：本研究の目的で触れた通り、表面からしか出てこない  $^{90}\text{Sr}$  からの  $\beta$  線と、被験物質全体から出てくる  $^{137}\text{Cs}$  との比を減らすための方法である (図 2.15 参照)。魚の骨を使う場合、ミキサーでペースト状にしてから一様に敷き、煮沸させることで被験物質を薄くすることを考えている。次の方法として、コンプトン散乱が起こる可能性のある部分を可能な限り小さくすることで電子の発生を抑える。波長変換ファイバーを使用して一度ファイバーを介し、その両端を束ねて小型の PMT を使うことで、この誤検知を抑えている。

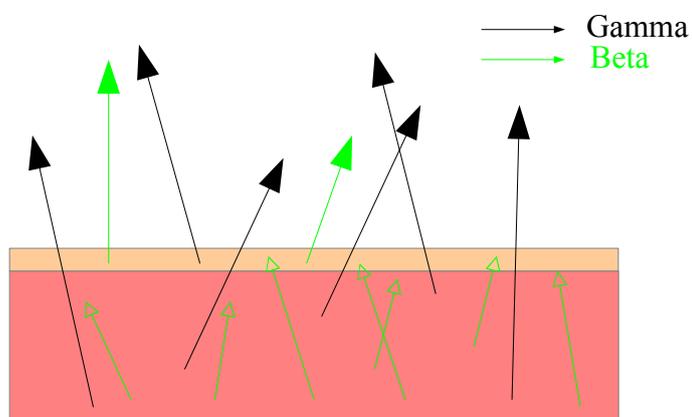


図 2.15: サンプルからの放射線

$\gamma$  線は被験物質内部のどこからでも突き抜けて来るが、 $\beta$  線はエネルギーを落として止まってしまうため、表面からのものしか検出できない。被験物質を沸騰させることで薄くし、 $\gamma$  線からの影響を減少させる。



## 第3章 検出器の種類と使い分け

用途に合わせて、三つのタイプの検出器を提案する。検出器 I については、現在作成に向けて設計をしている。検出器 II については、試作機を作り、性能評価をした(第4章)。検出器 II を大面積化したものが検出器 III である。第5章、第6章で、大面積化の可能性について述べる。

### 3.1 検出器 I 低汚染用

#### 3.1.1 使用用途

検出器 I は、新鮮な魚介類をなるべく速く測定するためのものである。実用化に当たっては使用への手軽さも必要なことから、簡単な作りでサイズも小さくなるように設計している。ただ、その小ささから感知領域が  $5\text{cm} \times 5\text{cm}$  となっており、一度に測ることのできる被験物質の量が少ない。さらに、魚介類の食べられる部分をなるべく使わないことが望まれる。例えばマグロを検査する場合、商品に影響の無いヒレの部分を使って測ることができる。背びれ、尾びれには骨が通っており、 $^{90}\text{Sr}$  が蓄積されているので、これらを切り取って使用する。検出器 I で異常が発見された場合、検出器 II を使ってさらに精密に検査する。なぜならこの検出器では、構造のシンプルさ故に  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を分別する能力が高くないからである(限界は  $^{137}\text{Cs}$  が  $^{90}\text{Sr}$  に対し 50 倍程度存在する場合まで)。

#### 3.1.2 構造(図3.2)

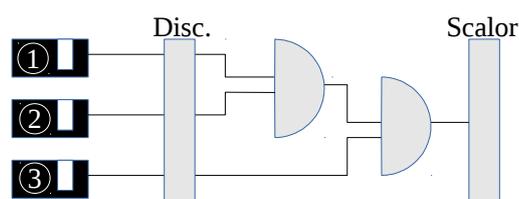


図 3.1: 検出器 I 回路

$^{90}\text{Sr}$  からの  $\beta$  線はトリガーを通過後、エアロゲルへと突入する。トリガーを設置することで、Sample からの  $\beta$  線を同定する。 $\beta$  線が  $1.2\text{MeV}$  以上のエネルギーを持つ場合チェレンコフ発光を起こし、 $45^\circ$  反射板によって 2inch の PMT に導かれる。波長変換ファイバーを介することが無いので、光量の損失が少ない。しかし大きな PMT を使うので、 $\gamma$  線が来た際にガラス受光面でのコンプトン散乱を起こす確率が(鉛である程度抑えても)高くなってしまふ。宇宙線対策も、検出器 I の構造では難しい。検出器 II では、これらが抑えられている。

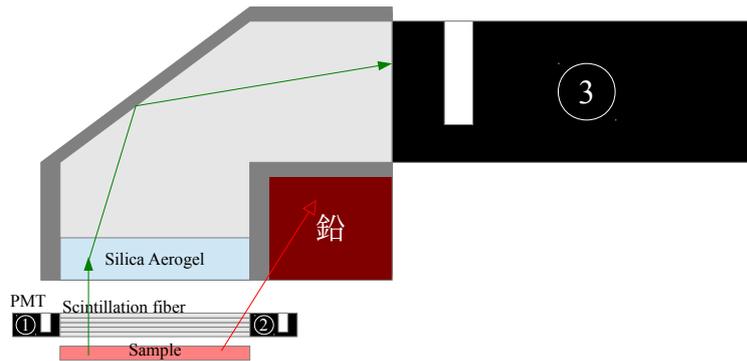


図 3.2: 検出器 I セットアップ

## 3.2 検出器 II (高汚染用)

### 3.2.1 使用用途

検出器 II は、検出器 I よりも性能が高くなるように、波長変換ファイバーを用いたものである。チェレンコフ光を直接測定せずに波長変換ファイバーを経由するのでその光量は約 10% になり、その分検出までに時間がかかってしまうが、バックグラウンドを減らすことができる (3.2.2 で後述)。なのでこのタイプは、検出器 I で測った際に異常が見つかった魚介類を詳しく検査するためなどに用いる。検出器 II に使うエアロゲルは面積が 10cm\*30cm、厚さが 2cm のもので、魚の尾ビレ背ビレではこの面積を賄うことができない。なので、エラも含めてペースト状にして測定する。

検出器 II は、既に試作機第一号を作って評価をした。その結果は、第 4 章にて述べている。

### 3.2.2 構造 (図 3.3)

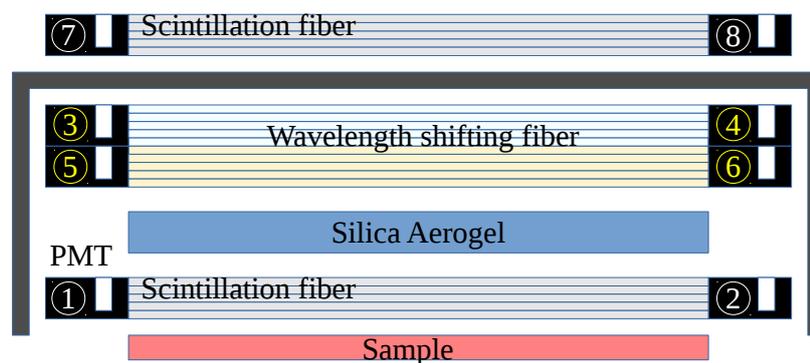


図 3.3: 検出器 II セットアップ

サンプルからの線はまずトリガーを通過、エアロゲルへと突入し、1.2MeV 以上のエネルギーを持つ場合チェレンコフ発光を起こす。チェレンコフ光は波長変換ファイバーに吸収・再発光され、両端の

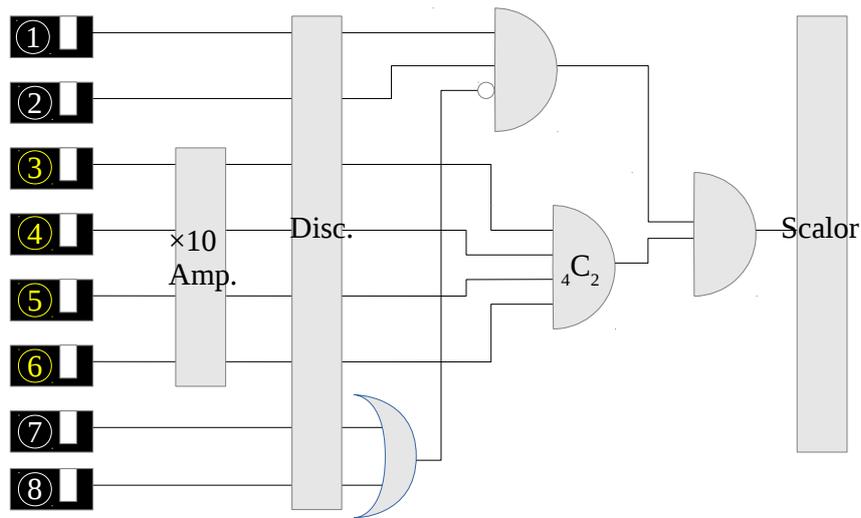


図 3.4: 検出器 II 回路

PMT へと伝播される。この PMT は左右 2 つずつ、計 4 つに分けられており、そのうちいくつに信号が来たときにカウントするかを自由に決められる様になっている。例えば汚染レベルが  $10^{-9}\text{Bq}/\text{cm}^2$  程度の低汚染サンプルの場合はコインシデンスのレベルを 1 に取り、およそ  $10^{-1}\text{Bq}/\text{cm}^2$  と比較的高汚染の場合は、コインシデンスレベルを 4 にとる。波長変換ファイバーを突き抜けるような高エネルギーの線は、アルミ板によって遮蔽される。このアルミ板の外側にシンチレーションファイバーを設置し、宇宙線が通過した際のイベントを除くようにする

主なバックグラウンドとしては宇宙線、 $^{137}\text{Cs}$  や  $^{134}\text{Cs}$  からの線がコンプトン散乱や光電効果を起こし発生した電子、PMT の電気的なノイズがある。宇宙線に関しては、図の一番上にあるシンチレーションファイバーからの信号を NAND 回路で繋ぐことで防ぐことができる。

波長変換ファイバーを用いた検出器を作る場合、 $^{137}\text{Cs}$  などからの線がエアロゲルを突き抜け、直接ファイバーに当たってチェレンコフ発光してしまう場合が考えられる。この危険は、 $1.2\text{MeV}$  以下の線をゲルまでの道のりで止めてしまうことで回避される。(式 3.1) は、エネルギーが  $0.8\text{MeV}$  以上の線が完全に止まる距離(飛程)を表したものである。

$$R = 0.542E - 0.133[\text{g}/\text{cm}^2] \quad (3.1)$$

この  $E$  に閾値の  $1.2\text{MeV}$  を代入すると  $R = 0.5174[\text{g}/\text{cm}^2]$  となり、これをエアロゲルの密度  $0.2[\text{g}/\text{cm}^3]$  で割ることで、エアロゲル内での飛程が  $2.587[\text{cm}]$  と求められる。また、線はシンチレーションファイバー  $1\text{mm}$  を突き抜けてきていると考える。シンチレーションファイバーの密度は  $1.05[\text{g}/\text{cm}^3]$  とエアロゲルの  $5.25$  倍なので、シンチレーションファイバー  $1\text{mm}$  を突き抜けることは、エアロゲル  $5.25\text{mm}$  を突き抜けることと同義である。よって、検出器 II には  $2\text{cm}$  のエアロゲルを使用することで  $1.2\text{MeV}$  の線を十分止められていると考える。

### 3.3 検出器 III (排水用)

検出器 III は大面積 (200cm\*50cm) のカウンターで、排水などを常に監視し続けるために用いられる。基本的な構造は検出器 II のままで、形を大きくする。大面積化の弊害は、(i) 発生したチェレンコフ光が波長変換ファイバーの端付近に入射した場合に、再発光した光が反対側の PMT に届くまでに減衰してしまう可能性が考えられることと、(ii) シンチレーションファイバー内を伝搬する時間が長くなることにより、コインシデンスを取る時の信号の幅を長くしなければならなくなり、その間にノイズを拾ってしまう可能性が高くなることが挙げられる。(i) については、回路部分で解決を図る ((図 3.3) で見た場合、PMT3 と PMT5、または PMT4 と PMT6 でコインシデンスを取る)。 (ii) については、信号の幅を可能な限り狭くする (第 6 章参照)。

## 第4章 試作機

Type2の検出器を、実際に使える形で自作した。外箱のためのアルミ工作など全て手作業で行ったため荒い部分があるが、いくつかの発表の場でデモンストレーションすることができた。



図 4.1: 試作機 全体写真

### 4.1 構造

サンプルから放出された $\beta$ 線は、まずシンチレーションファイバーを通過する。ここで発生したシンチレーション光が、両端のPMTへ伝播される。次にシリカエアロゲルに突入するが、ここで $\beta$ 線が1.2MeV以上のエネルギーを持っている場合、チェレンコフ光が発生する。ここで発生したチェレンコフ光が波長変換ファイバーに吸収、再発光され、両端のPMTへ伝播される。エネルギーが高くシリカエアロゲルを突き抜けた $\beta$ 線が直接波長変換ファイバー内でチェレンコフ発光したのもカウントする。線が最大エネルギー2.28MeVを持っていても止まるように、波長変換ファイバーの直ぐ下にアルミ板を置く。アルミ板の下には、宇宙線検知用のシンチレータを設置する。これにより、バックグラウンドの減少を図る。全体(上面以外)をアルミ板で覆い、遮光したものが(図4.2)である。試作機の感知面積は10cm\*30cmである。波長変換ファイバーからの信号は、繋いであるPMT4つのうちいくつか信号が来たときにカウントするかを自由に設定できる(回路図は4つ中2つでカウントする場合)。回路部分には、林栄精機株式会社に特注したものを使用している(次節)。これは必要

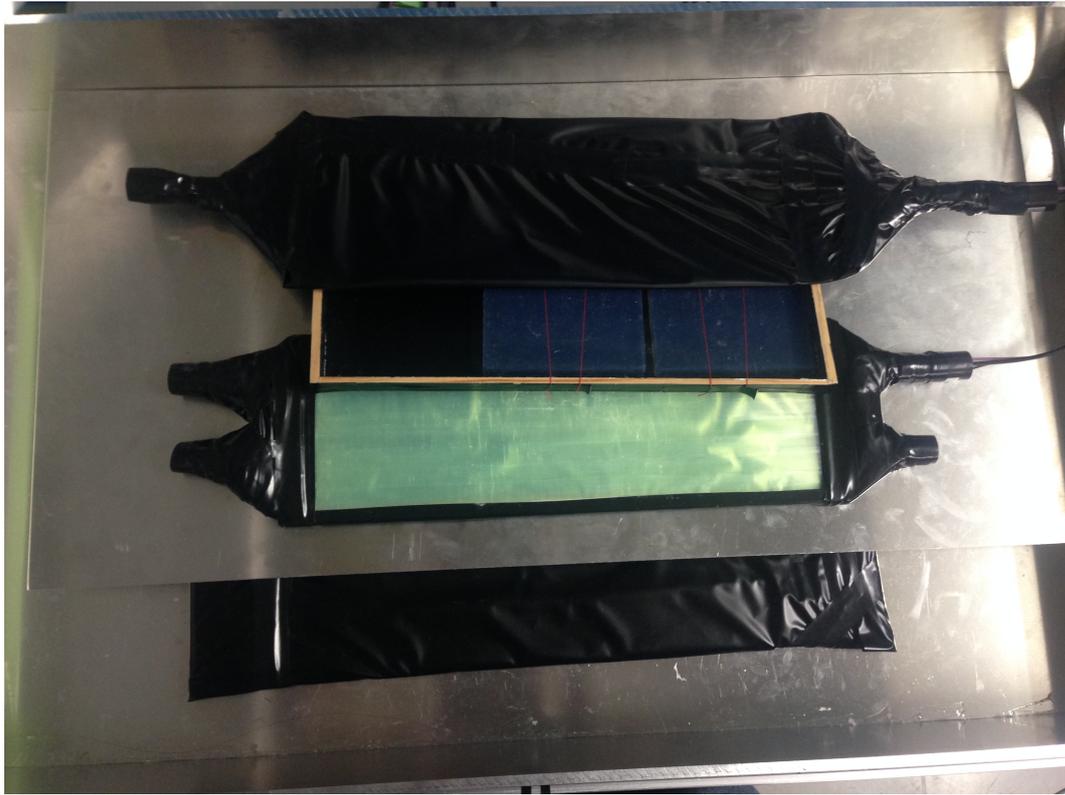


図 4.2: 試作機 中身 写真  
 上から順に、シンチレーショントリガー、シリカエアロゲル、  
 波長変換ファイバー、アルミ板、veto 用シンチレーターとなっている。

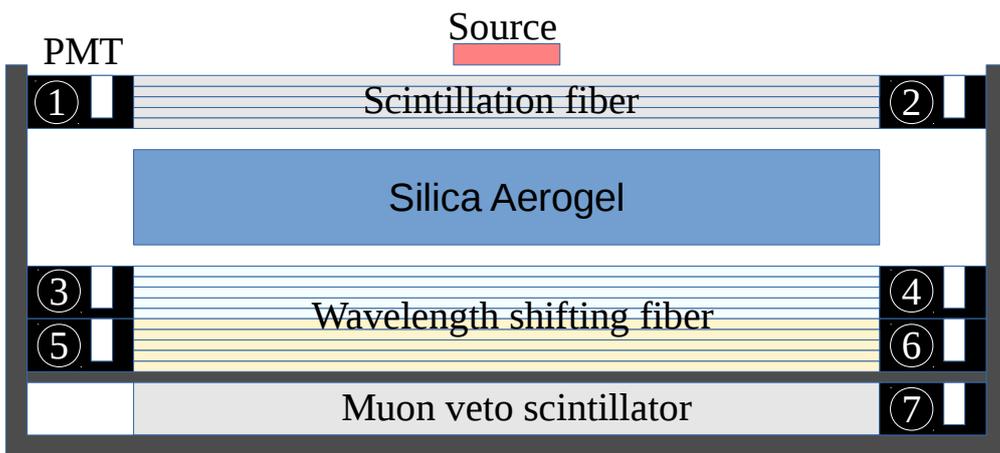


図 4.3: 試作機 構造

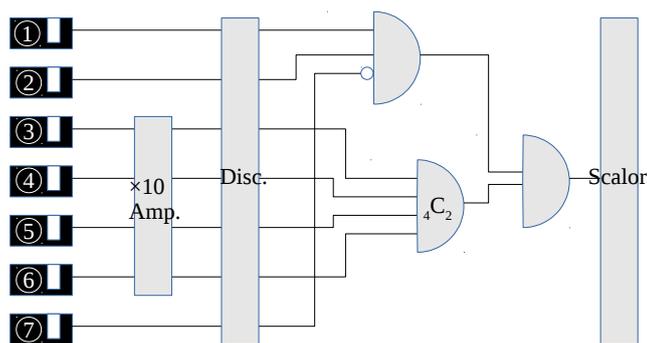


図 4.4: 試作機 回路

な回路と HV 電源、カウント用の scalor がついているもので、一般家庭用の電源と試作機本体、そしてこの回路があればどこでも  $^{90}\text{Sr}$  の検出を始めることができる。

## 4.2 外付け回路

回路部分、及び全ての PMT に繋ぐ HV は、一つの外付けハードウェアにまとめられている。今回の試作機では、REPIC 林栄精器株式会社に特注したものを使用した (図 4.5)。デジタル表示部分には、図 4.4 でスケーラーに繋がれているカウント数が表示される。左のつまみはチェレンコフ計測 PMT 用、右のつまみはトリガー PMT 用である。すべての信号線はこの BOX に繋がれ、測定される。デジタル表示部分には、図 4.4 でスケーラーに繋がれているカウント数が表示される。左のつまみはチェレンコフ計測 PMT 用、右のつまみはトリガー PMT 用である。すべての信号線はこの BOX に繋がれ、測定される。ディスクリミネーターの閾値は、内部にあるつまみにより任意に変更できる。また、コインシデンスのレベルも 1~4 まで設定可能である。



図 4.5: 外付け回路 上面から [4]



図 4.6: 外付け回路 側面から

### 4.3 性能

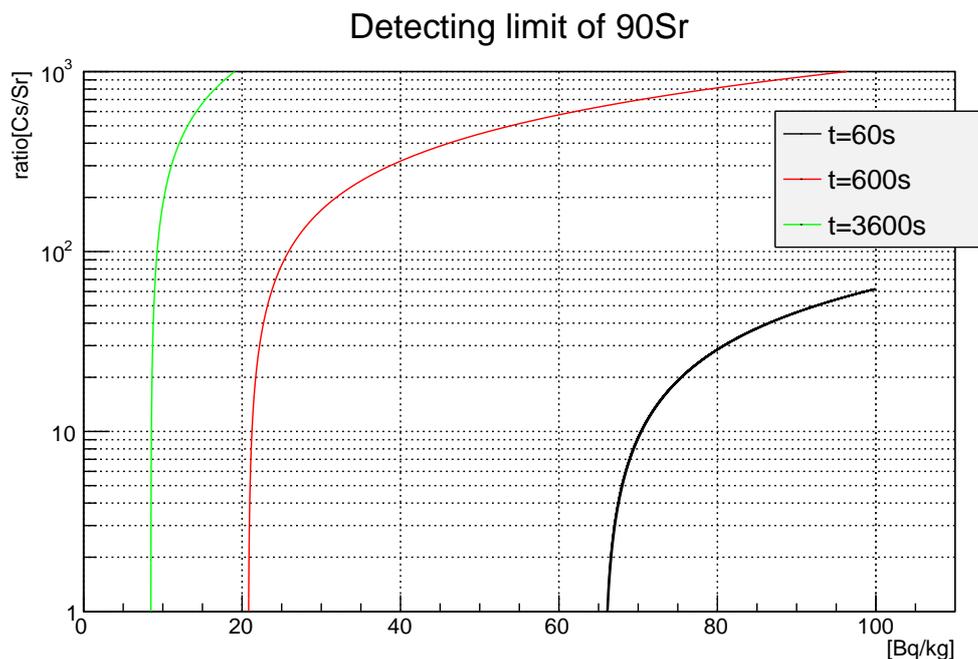


図 4.7: 試作機 検出限界

横軸はサンプル 1kg に含まれる  $^{90}\text{Sr}$  の線量、縦軸は  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の比である。

(図 4.7) は、試作機を作ってサンプルを測った場合の検出限界を示している (左から、1 時間、10 分、1 分測定した場合)。横軸はサンプル 1kg に含まれる  $^{90}\text{Sr}$  の線量、縦軸は  $^{137}\text{Cs}$  と  $^{90}\text{Sr}$  の比である。例えば 10 分間の測定では、 $^{90}\text{Sr}$  が  $50\text{Bq/kg}$  含まれているサンプルでは、 $^{137}\text{Cs}:\text{}^{90}\text{Sr}$  が  $937.7:1$  の場合まで検出することが出来る。

このグラフのを書くに当たって用いた方法は以下である。

まず、研究室において試作機を用いて  $^{90}\text{Sr}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ 、BG(線源を用いない場合) を測定したときのカウントは、

$$\text{Count}_{\text{Sr}} = 35.53[1/\text{s}] \quad (4.1)$$

$$\text{Count}_{\text{Cs}} = 0.182[1/\text{s}] \quad (4.2)$$

$$\text{Count}_{\text{BG}} = 0.047[1/\text{s}] \quad (4.3)$$

であり、用いた線源の線量はそれぞれ

$$\text{Source}_{\text{Sr}} = 25000\text{Bq}[1/\text{s}] \quad (4.4)$$

$$\text{Source}_{\text{Cs}} = 27000\text{Bq}[1/\text{s}] \quad (4.5)$$

であった。実際にサンプルをに含まれる  $^{90}\text{Sr}$  の線量を  $\text{Sample}_{\text{Sr}}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  の線量を  $\text{Sample}_{\text{Cs}}$  とすると、 $t$  秒間の測定を行った場合のそれぞれのカウント数は

$$N_{\text{Sr}} = \frac{\text{Count}_{\text{Sr}}}{\text{Source}_{\text{Sr}}} \times \text{Sample}_{\text{Sr}} \times t \quad (4.6)$$

$$N_{\text{Cs}} = \frac{\text{Count}_{\text{Cs}}}{\text{Source}_{\text{Cs}}} \times \text{Sample}_{\text{Cs}} \times t \quad (4.7)$$

$$N_{BG} = \text{Count}_{BG} \times t \quad (4.8)$$

となる。ここで、全てのカウント  $N$  から  $N_{Cs}$  と  $N_{BG}$  を引いたものが、 $N_{Cs}$  と  $N_{BG}$  を足して平方根をとったものの 2.58 倍以上であるなら、 $^{90}\text{Sr}$  検出の正当性が 99%あると考える (4.9)。

$$N - N_{Cs} - N_{BG} > 2.58\sqrt{N_{Cs} + N_{BG}} \quad (4.9)$$

(4.9) にこれまでの定数を代入し、それぞれの  $t$  について値を求めたものが (図 4.7) である。

実際の Bq として換算する場合、便宜的にすべてのカウントが  $^{90}\text{Sr}$  から来ているものと考え、計算する (今回の事故により放出され、現在も残っている放射性同位体の中で  $^{90}\text{Sr}$  が最も危険であると考えられるので、全てが  $^{90}\text{Sr}$  であるとした場合に基準をクリアしていれば、安全であるとみなすことが出来る)。 $^{90}\text{Sr}$  への絶対的な感度は  $\text{Count}_{Sr}/\text{Source}_{Sr}$  で与えられるので、 $m[\text{kg}]$  のサンプルを  $t$  秒間測定した場合のカウント数を  $N_t$  とすると、線量は

$$\frac{N_t}{t} \times \frac{1}{\text{Count}_{Sr}/\text{Source}_{Sr}} \times \frac{1}{m} [\text{Bq}/\text{kg}] \quad (4.10)$$

となる。実際に 10 分間の測定で 100Bq/kg 以下であることを調べる場合、(4.10) からカウント数は 85 以下であれば良いことが分かる。

## 第5章 大面積化に伴う検出効率の調査

2m\*50cm の検出器を作った場合に、シンチレーションファイバーと波長変換ファイバーからの光がPMTに届くのか、CAMAC/ADCを用いて調べた。実際に2m\*50cmの検出器を作るのは難しいので、2m\*1cmのファイバーシートをそれぞれ用意し、テストした。

### 5.1 シンチレーションファイバー検出効率の測定

#### 5.1.1 実験装置

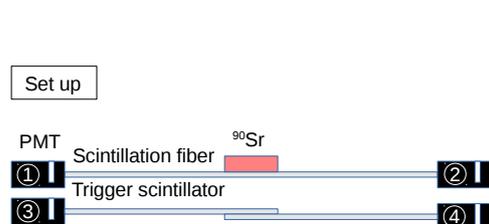


図 5.1: セットアップ  
PMT1 から PMT2 まで、 $^{90}\text{Sr}$  線源を 20cm ずつ動かして ADC データを取る。

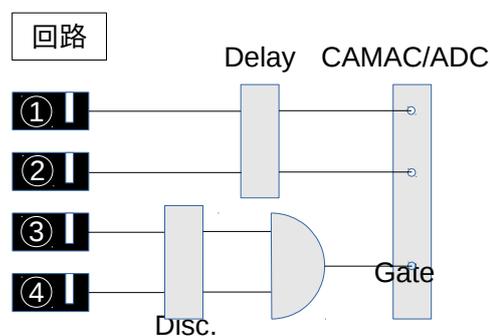


図 5.2: 回路

シンチレーションファイバーには直径 0.2mm のものを用い、幅が 1cm、長さが 2m になるように束ねる。このファイバーシートの両端に光量読み出し用の PMT1, 2 を取り付ける。その後ろにトリガー用シンチレーターを二つ、シンチレーター部分が重なるように置く。こうすることで、垂直方向からの  $\beta$  線のみトリガーをかけることが出来る。これらのシンチレーターからの信号は、ディスクリミネーターにより波形が整えられた後、コインシデンスを取り CAMAC/ADC の Gate へ接続する。PMT1, 2 からの信号が Gate 幅の中に入るよう、ディレイをかけて調整する。 $^{90}\text{Sr}$  線源を、PMT1 から PMT2 の 2m 間内で 20cm 毎に移動させて計測し、それぞれの検出効率を調べた。検出効率の求め方は以下に示す。

(i)ADC 分布のペダスタル位置と PMT のゲインから、0.5p.e の値を算出する

(ii)0.5p.e 以上のカウントを、全てのイベント数で割る

次節のグラフに、実際に 0cm ~ 200cm まで線源を 20cm おきに動かしたときの、PMT1 と PMT2 の ADC ヒストグラムを示す。

### 5.1.2 結果 (ファイバーシート一層の場合)

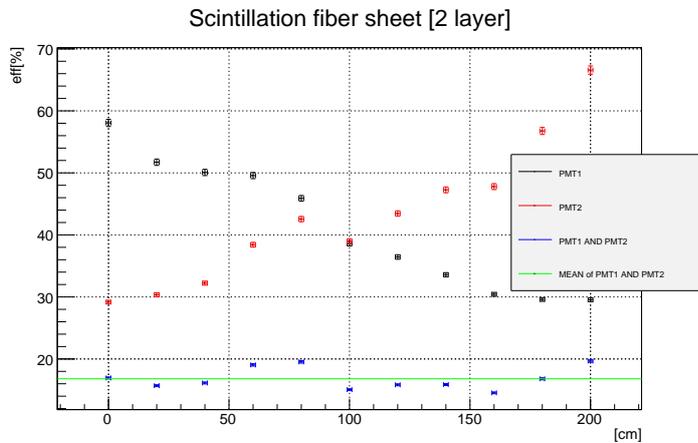


図 5.3: ファイバーが一層の場合の効率

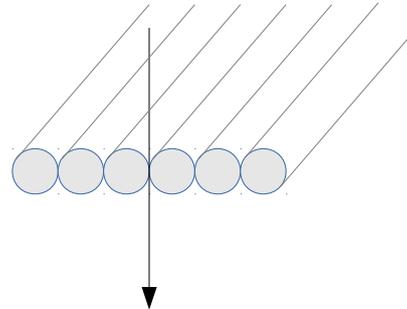


図 5.4: ファイバーの隙間を突き抜けてしまう

(図 5.3) の縦軸は検出効率、横軸は PMT1 から線源までの距離である。ここにプロットしたデータは (表 5.1、表 5.2) のものである。PMT1 (黒線) に BAC7245、PMT2 (赤線) に BAC7244 を用いた。それぞれの PMT に 1200V の HV を掛けたときのゲインは、BAC7245 :  $4.62 \times 10^6$ 、BAC7244 :  $4.09 \times 10^6$  である。大面積 (2m \* 50cm) の検出器を作った場合 2m のトリガーファイバーが必要になるが、グラフからばらつきの平均が 16.8%、最大誤差が -2.7%、RMS が 1.7% であることがわかる。ファイバーシート一層ではファイバー同士の隙間を線が通り抜けてしまうことが考えられるので、次にファイバーシートを二層重ねて隙間を埋めた場合を実験した。

BAC7245	distance	Np.e	eff
gain(1200V)	0cm	8.06	58.06%
$4.62 \times 10^6$	20cm	7.56	51.72%
	40cm	7.48	50.07%
	60cm	7.38	49.57%
	80cm	7.23	45.89%
	100cm	7.12	38.62%
	120cm	7.17	36.44%
	140cm	6.90	33.58%
	160cm	6.75	30.42%
	180cm	6.87	29.59%
	200cm	7.02	29.53%

表 5.1: PMT1(BAC7245)

BAC7244	distance	Np.e	eff
gain(1200V)	0cm	6.36	29.17%
$4.09 \times 10^6$	20cm	6.31	30.34%
	40cm	6.58	32.22%
	60cm	6.54	38.41%
	80cm	6.64	42.55%
	100cm	6.67	38.98%
	120cm	6.66	43.45%
	140cm	6.70	47.27%
	160cm	6.89	47.79%
	180cm	7.12	56.76%
	200cm	7.28	66.58%

表 5.2: PMT2(BAC7244)

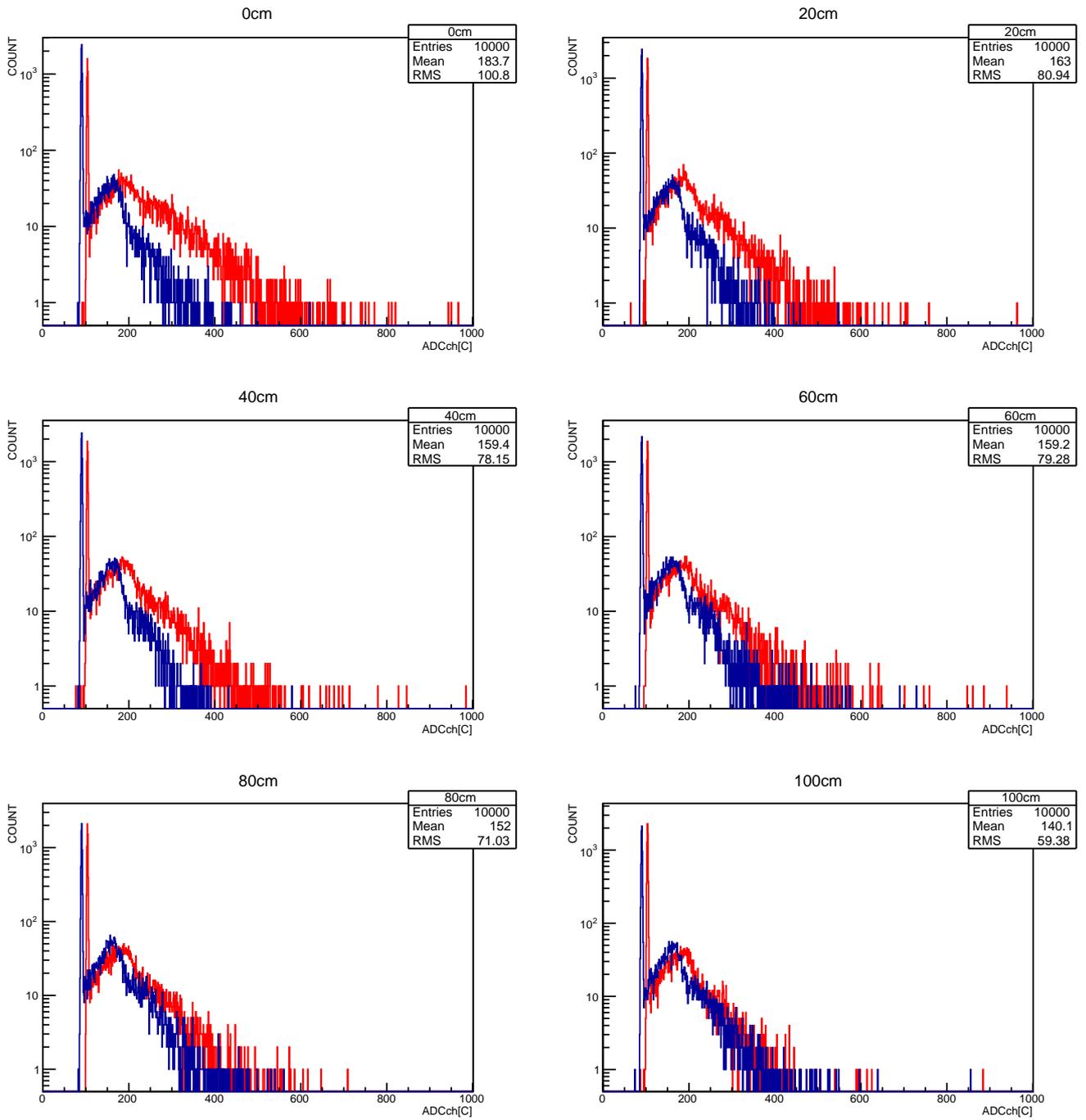


図 5.5: ADC ヒストグラム 1

縦軸はイベント数、横軸は ADC チャンネル (0.25pC) である。このページのグラフと次ページのグラフ合計 11 個に渡り、20cm 毎の変化を表している。赤色は PMT1、青色は PMT2 であり、線源が近いときに信号が多く、遠いときにペダスタルが多い様子が分かる。

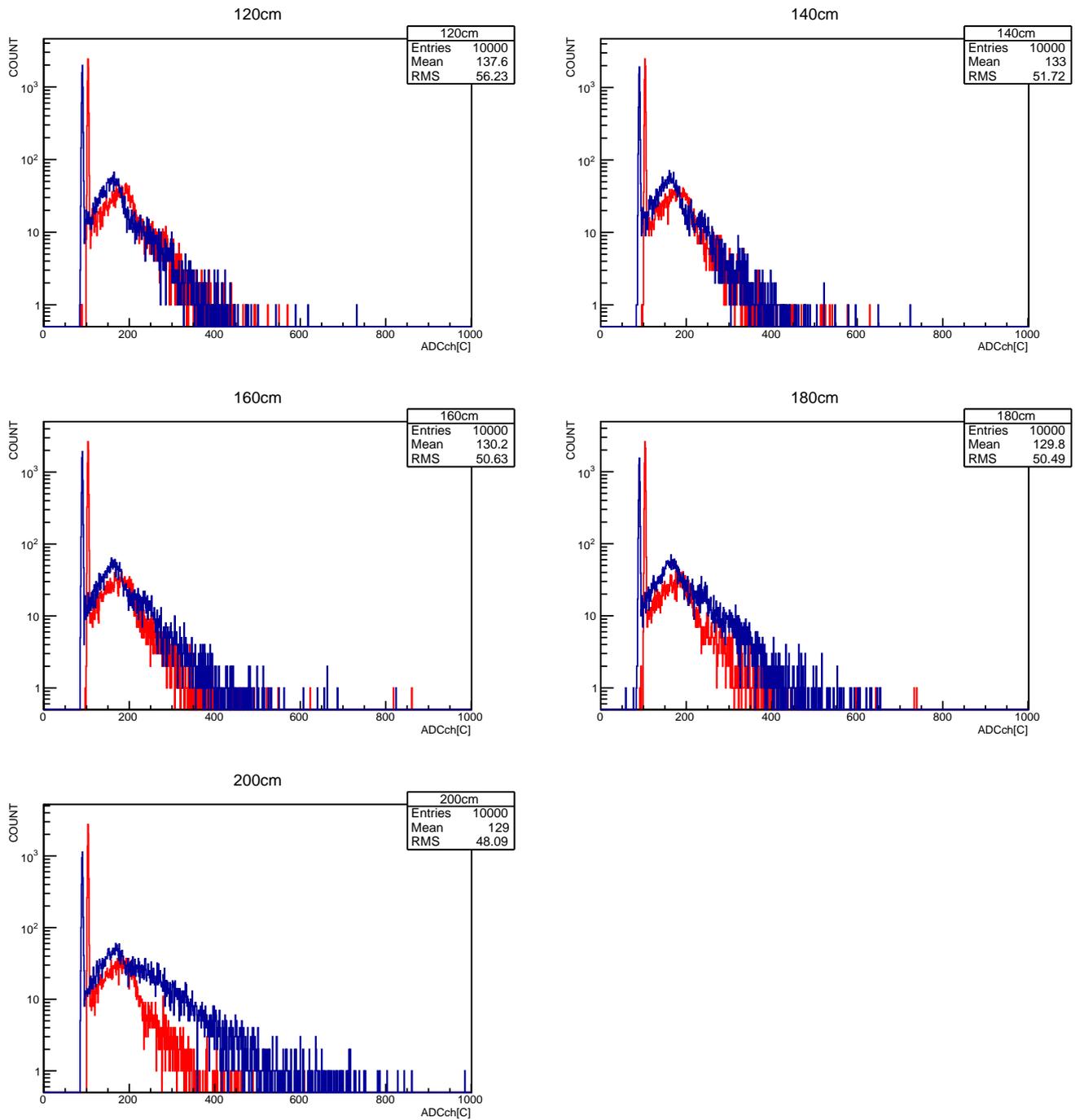


図 5.6: ADC ヒストグラム 2

### 5.1.3 結果 (ファイバーシート二層の場合)

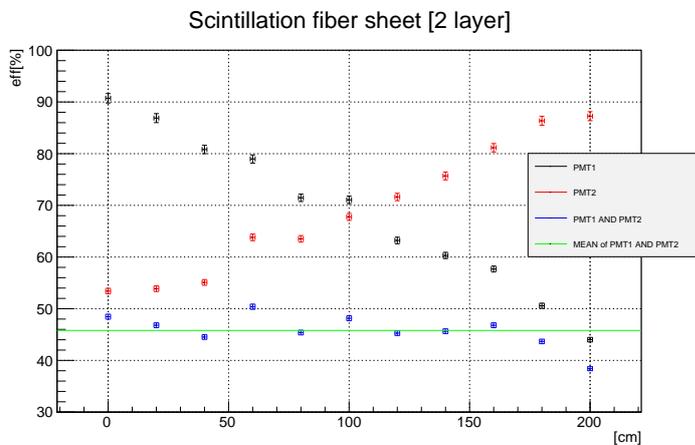


図 5.7: ファイバーが二層の場合の効率

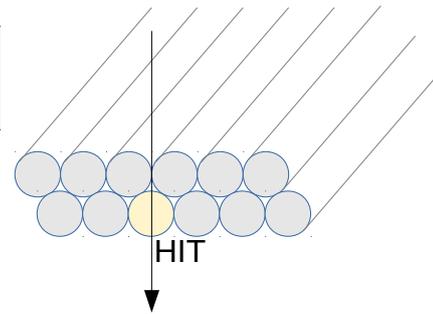


図 5.8: ファイバー二層では、一層目で突き抜けた光子が二層目に当たる

上で述べたように、一層目のファイバーをシンチレーション発光なしに通過した線もトリガーとして機能させるため、ファイバーを二層に重ねた。人の手で0.2mmのファイバーを俵状に重ねるのには限界があるが、性能は(図5.7)のようになった。ANDで得られる平均値は45.8%、最大誤差は7.40%、RMSは2.97%となった。

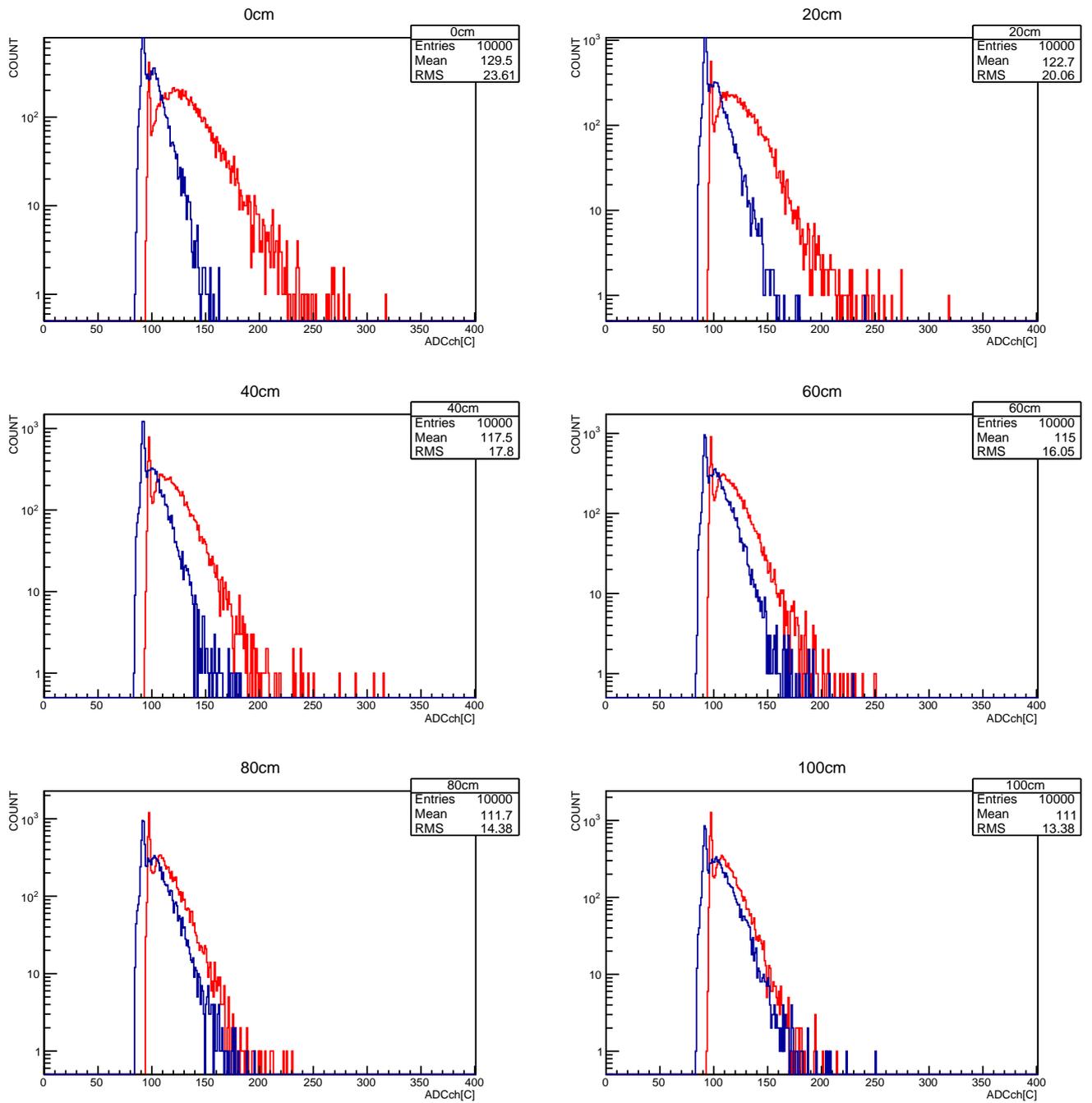


図 5.9: ADC ヒストグラム 1  
縦軸はイベント数、横軸は ADC チャンネル (0.25pC)。

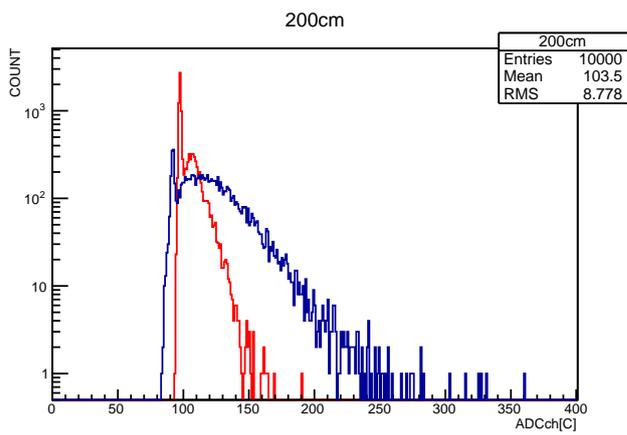
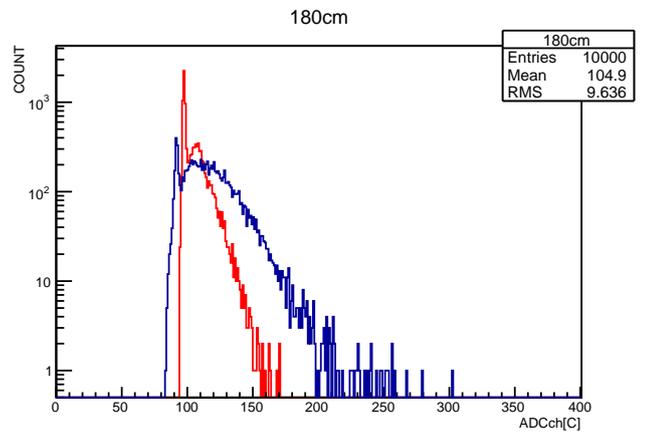
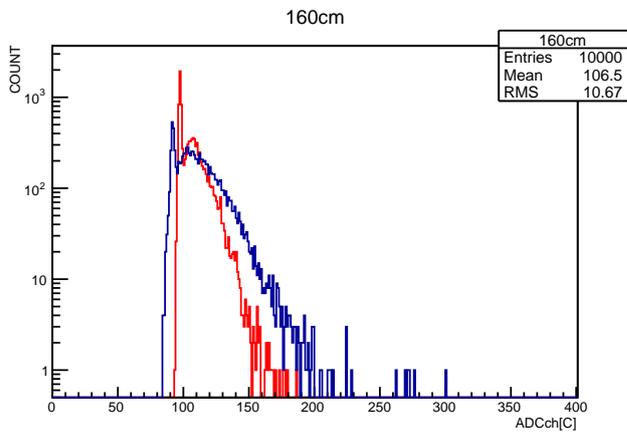
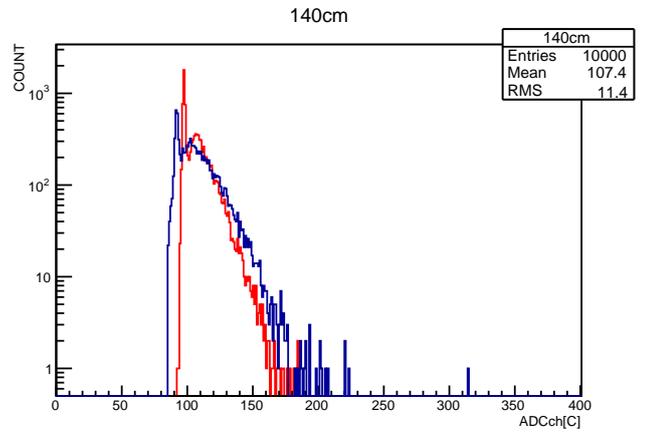
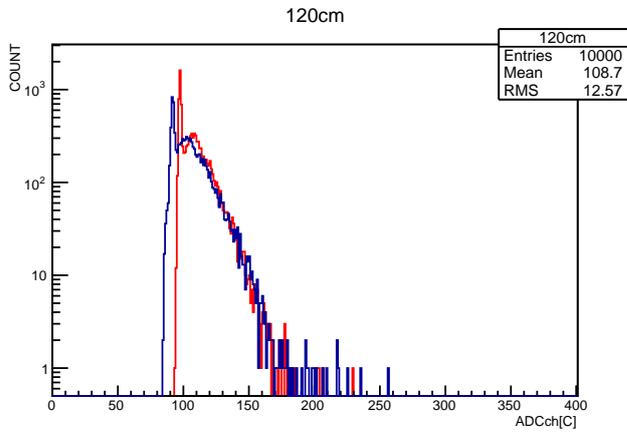


図 5.10: ADC ヒストグラム 2

## 5.2 波長変換ファイバー検出効率の測定

### 5.2.1 実験装置



図 5.11: セットアップ

こちらの実験では、実際に装置を使う際のセットアップに近づけるために、2m のシンチレーションファイバーをトリガーに使う波長変換ファイバーの効率を調べた。トリガー PMT が通るディスクリミネーターの幅は 50ns に設定した。このテストは ADC を使わず、スケーラーのカウンタから検出効率を求めた。

### 5.2.2 結果

それぞれの PMT のカウント、効率は (表 5.3) の通りである。(図 5.12) の縦軸は検出効率、横軸は PMT からの距離である。PMT1、PMT2 とともに線源が離れば効率は下がるが、その OR を取ったものは平均 0.22%、最大誤差 +0.035%、RMS 0.018% となる。2m\*50cm の検出器を作り、波長変換ファイバーの両端のコインシデンスではなく片側の二つの信号を読む場合、問題となるのは検出器の中心付近 (ファイバーの端から 1m の点) である。今回は 2m のファイバーでテストしたが、ファイバーの端に入射した場合と 1m の場所に入射した場合の検出効率がほぼ変わらないことが示されたので、この問題は解決される。

Distance	Count(Trigger)	Count(PMT1)	Count(PMT2)	Efficiency(PMT1)	Efficiency(PMT2)
20cm	407.71/s	0.632/s	0.275/s	0.155%	0.067%
40cm	386.03/s	0.556/s	0.315/s	0.144%	0.078%
60cm	493.53/s	0.665/s	0.585/s	0.132%	0.119%
80cm	483.32/s	0.503/s	0.485/s	0.104%	0.100%
100cm	423.42/s	0.423/s	0.439/s	0.098%	0.102%
120cm	404.13/s	0.422/s	0.471/s	0.103%	0.115%
140cm	471.53/s	0.372/s	0.530/s	0.077%	0.110%
160cm	470.52/s	0.305/s	0.708/s	0.063%	0.148%
180cm	561.55/s	0.373/s	0.943/s	0.065%	0.166%

表 5.3: 波長変換ファイバー 検出効率

トリガーは、シンチレーションファイバー両端の PMT のコインシデンスを取った。検出効率 (Efficiency) は、それぞれの PMT のカウント/s をトリガーのカウント/s で割ったもの。

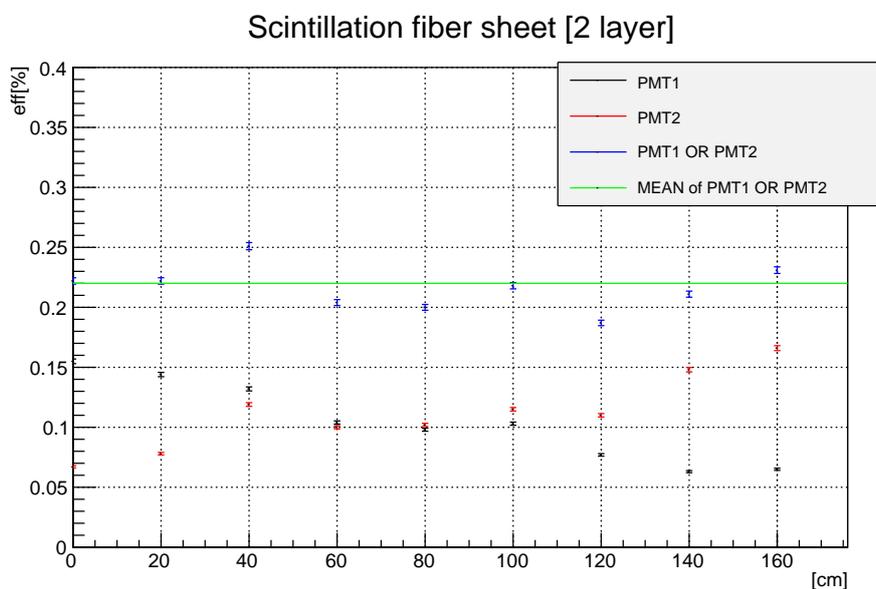


図 5.12: 効率



## 第6章 TDCテスト

光がファイバー内を伝播する速度、そして時間分解能が重要になる。

### 6.1 シンチレーションファイバー内伝播速度の測定

#### 6.1.1 実験装置

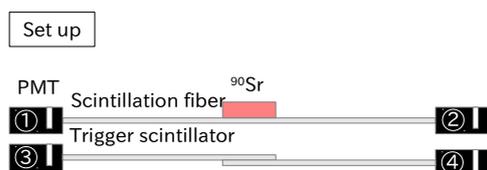


図 6.1: セットアップ

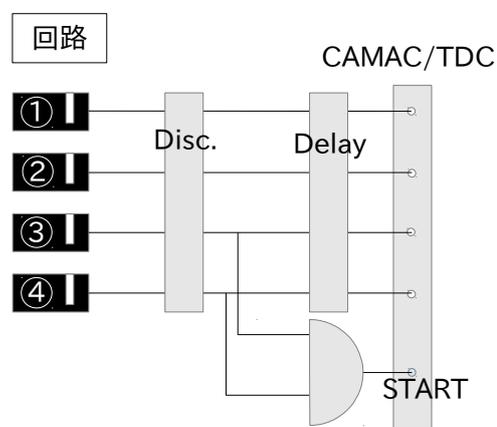


図 6.2: 回路

第5章と同じように、長さ 2m×幅 1cm×厚さ 0.2mm のシンチレーションファイバーシートを用いる。TDC のストップ信号には、二つのトリガーシンチレータのコインシデンスを使う。ストップ信号には PMT1~4 それぞれを繋ぎ、PMT1・2 の測定値を、PMT3・4 の測定値を足して 2 で割ったもので校正する。

#### 6.1.2 結果

(図 6.3) の縦軸は TDC により測定した時間、横軸は 線が当たった点から PMT までの距離である。線源を離れた距離と光の伝達時間がリニアであることが分かるよう、 $p_0x+p_1$  でフィッティングした (赤線)。線源が PMT1 に最も近いとき、PMT1 と PMT2 の間の時間差はおよそ 13ns であり、コインシデンスタイムの 10ns を足すことで、必要なディスクリミネーターの幅が 23ns であることが分かった。 $^{137}\text{Cs}$  などからの影響は、ディスクリミネーターの幅が大きければ大きいほど多くなってしまいうので、これによりバックグラウンドのノイズを削減することが出来る。

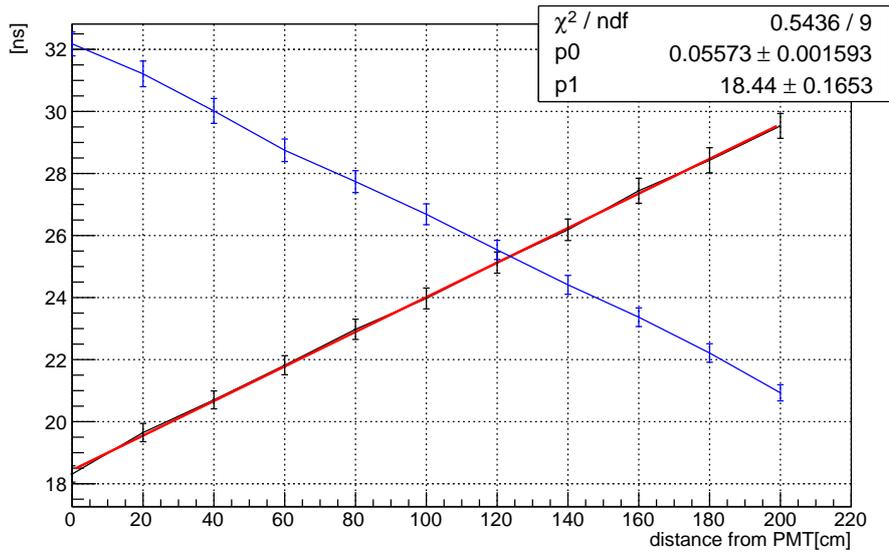


図 6.3: 伝播速度

## 6.2 二種類のファイバーの時間分解能の測定

### 6.2.1 実験装置

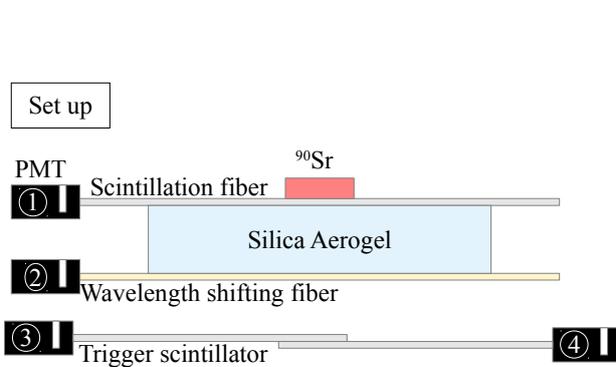


図 6.4: セットアップ

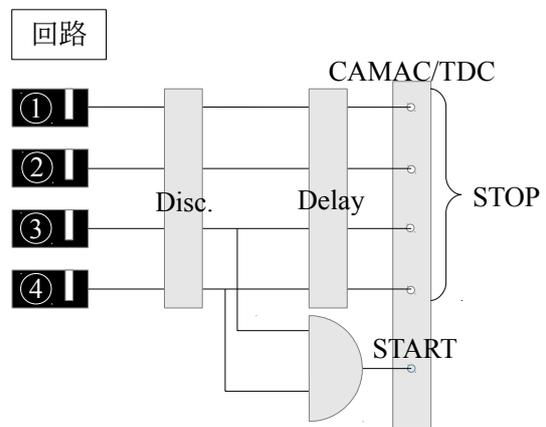


図 6.5: 回路

実際の実験と同様に、上から  $^{90}\text{Sr}$  線源、シンチレーションファイバー、シリカエアロゲル、波長変換ファイバーと並べ、その下にシンチレーターを二つ置いた。スタート信号はシンチレーションファイバー (PMT1) と波長変換ファイバー (PMT2) STOP 信号は二つのシンチレーター (PMT3 と PMT4) のコインシデンスである。 $^{90}\text{Sr}$  線源を PMT1 付近から 20cm 毎に離していき、それぞれの時間分解能を調べた。

## 6.2.2 結果

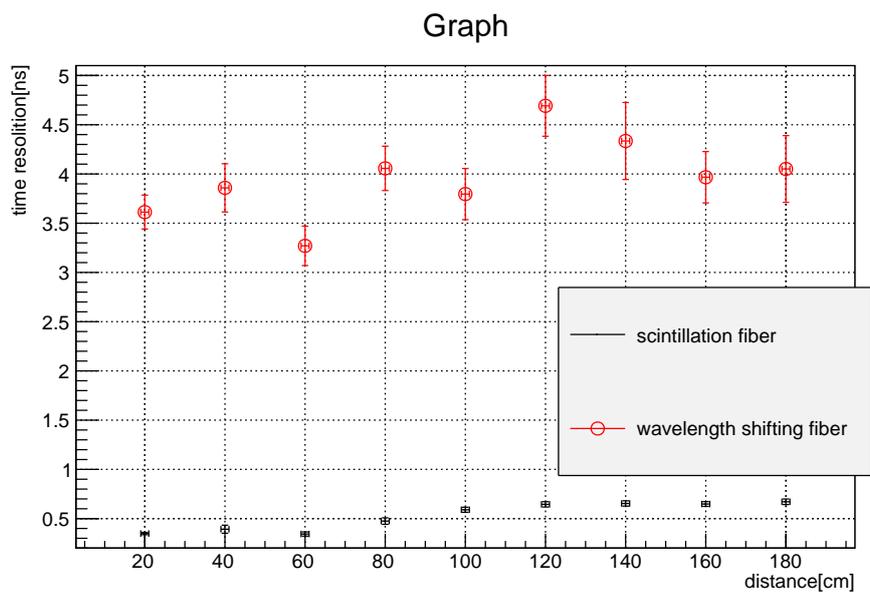


図 6.6: 位置毎の時間分解能

(図 6.6) の縦軸は時間分解能、横軸は PMT からの距離である。時間分解能は、得られた TDC データをランダウ分布で FIT し、その時の  $\sigma$  を用いている (この場合の  $\sigma$  は半値幅の 1/4 であり、 $\pm \sigma$  の範囲に分布の 89.1% が含まれる)。シンチレーションファイバー (黒線) は  $^{90}\text{Sr}$  線源と密接しており、時間分解能は 0.5 ns 付近でばらつきも少ない。波長変換ファイバー (赤線) はシリカエアロゲルからのチェレンコフ光を吸収・再発光するプロセスがあるため、ばらつきが大きく、最大で 5 ns 程度である。オフラインで解析する時に、この 5 ns 以外の範囲をカットすることで、ノイズを減らすことができる。それぞれの位置での TDC データは、次ページからの (図 6.7、図 6.8) に載せた。

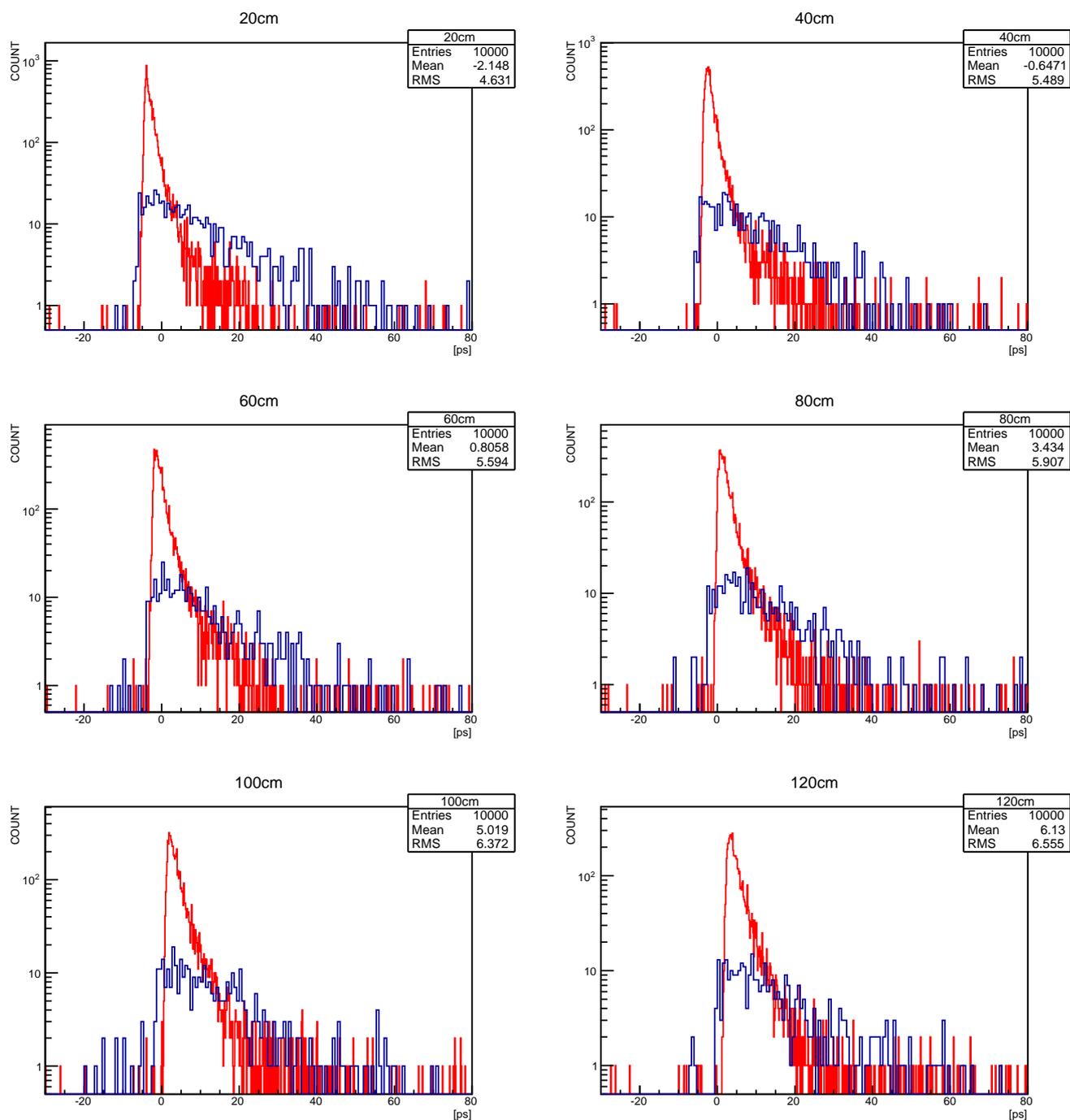


図 6.7: TDC データ 1

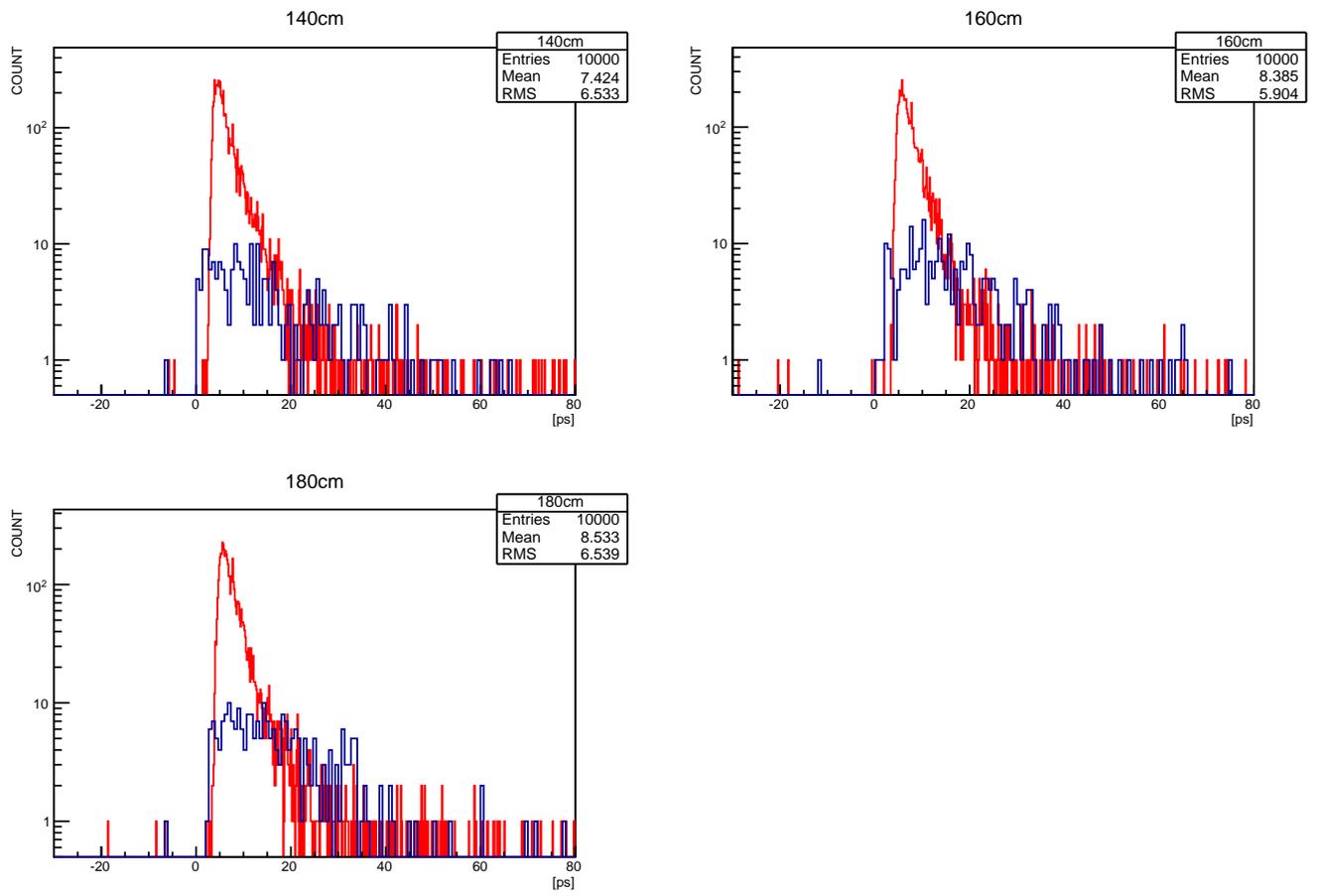


図 6.8: TDC データ 2

横軸は、1TDCch=54ps をかけて、1 目盛を 1ps に直したものである。縦軸はカウント数。



## 第7章 結論

### 7.1 本研究のまとめ

第5章の結果から、大面積化において、シンチレーションファイバートリガーと波長変換ファイバー共に効率が $\beta$ 線の入射位置に依存しないことが証明された。また、第6章の結果から、リアルタイム検出時のトリガーのディスクリミネーターの幅を22.3nsまで縮められることが分かった。試作機はこの幅を50nsにセットしているため、これによってノイズの介入する時間を半分以下にすることが出来る。面積を50cm × 200cmにしたときの計算結果を、図7.1に載せる。

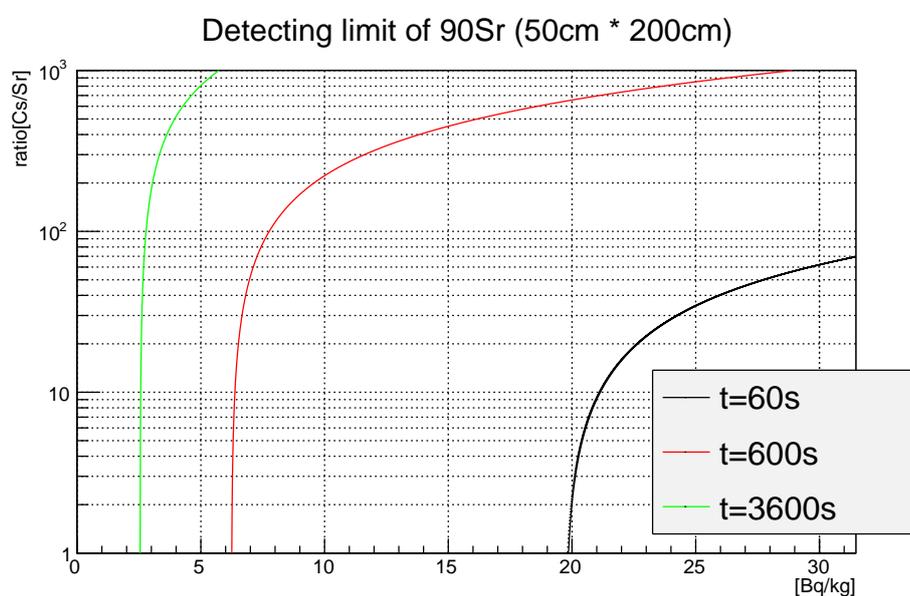


図 7.1: 50cm × 200cm、 $^{90}\text{Sr}$  検出限界

またノイズを減らす方法として、オフライン解析時に TDC データを使って 5ns の幅まで縮めること、サンプルを蒸発させて 1cm から 1mm まで薄くする方法が挙げられる。サンプルの蒸発については、中で止まっていた線も測るようになるためである。これら二つを反映させたときの検出限界の予測値を、(図 7.2) に示す。グラフは 10 分間の測定のものに対して、それぞれ TDC カット、蒸発、その両方を反映させたものである。

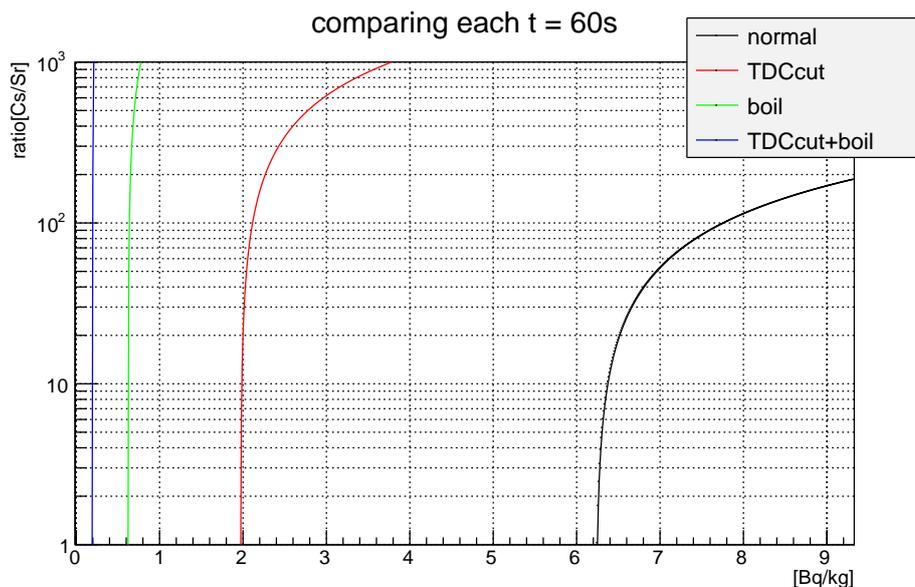


図 7.2: 10 分間の測定に対して、TDC カット、蒸発を施した場合

## 7.2 課題と展望

### 7.2.1 バックグラウンドノイズの減少

検出限界の数値を下げるために、バックグラウンドノイズへの感度を可能な限り下げる必要がある。今回の実験では  $^{137}\text{Cs}$  を用いたが、さらに厄介なものに  $^{134}\text{Cs}$  が挙げられる。 $^{134}\text{Cs}$  の崩壊は図 7.3 に示す通りであり、線を出した後に少なくとも二回  $\gamma$  崩壊することが分かる ( $^{137}\text{Cs}$  の  $\gamma$  崩壊は一度)。この二回の崩壊の間の時間は図に示す通り非常に短く、70%の崩壊モードで 0.82ps である。これでは、一回目の崩壊による  $\gamma$  線がトリガーシンチレーターでコンプトン散乱を起こして発光、二本目の  $\gamma$  線が波長変換ファイバーで発光してしまう可能性がある（または、それぞれのファイバーに取り付けられた PMT のガラス面で発光してしまう）。この誤検知を防ぐために、(図 7.4) の形の検出器を提案する。これは、第 3 章の Type2 の構造にアルミ板とシンチレーションファイバーを二つずつ追加したもので、PMT9 と PMT10 の繋がっているシンチレーションファイバーまで到達した  $\beta$  線のみイベントをカウントするものである。

### 7.2.2 波長変換ファイバーの並べ方

低汚染用から高汚染用までをひとつの検出器でカバーするために、波長変換ファイバーで感度を調整する。(図 7.5) のようにファイバーを四つのまとまりに分けてならべる。このうちのいくつのコイシデンスを取るか、自由に決められるようにする。

シリカエアロゲルで発生したチェレンコフ光は、波長変換ファイバーのシートに円形で入射する。その時の直径の求め方を以下に示す。

(図 7.6) のように、チェレンコフ光の発生点と波長変換ファイバーとの距離を  $d$ 、できる円の直径を

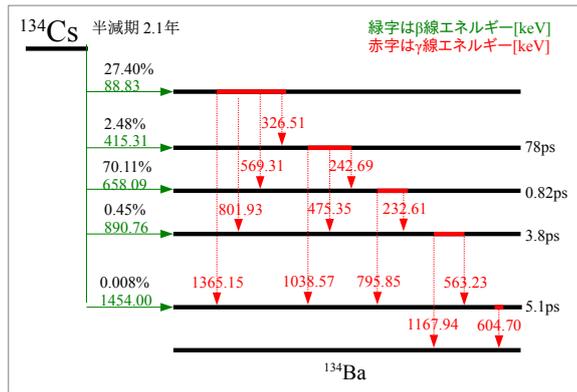


図 7.3:  $^{134}\text{Cs}$  の崩壊図

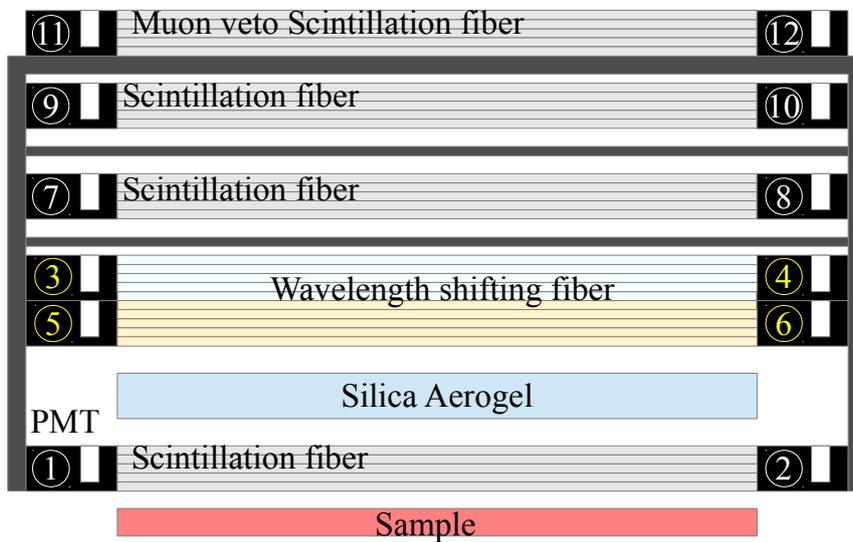


図 7.4: セットアップ

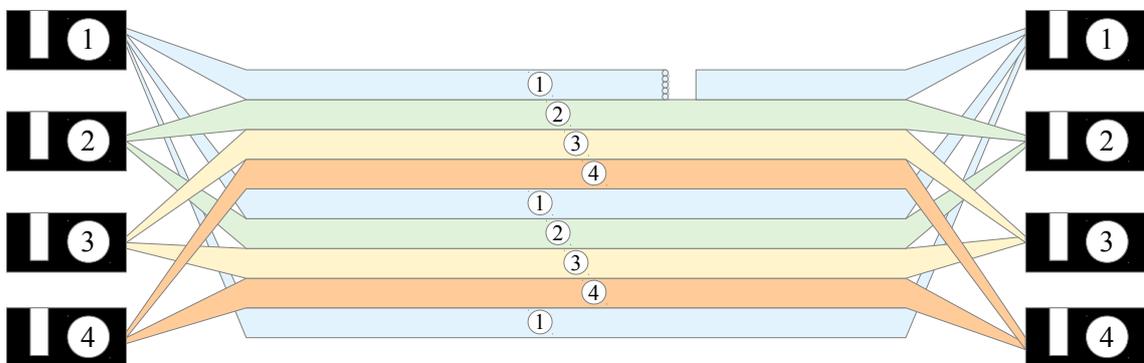


図 7.5: 波長変換ファイバーの並べ方

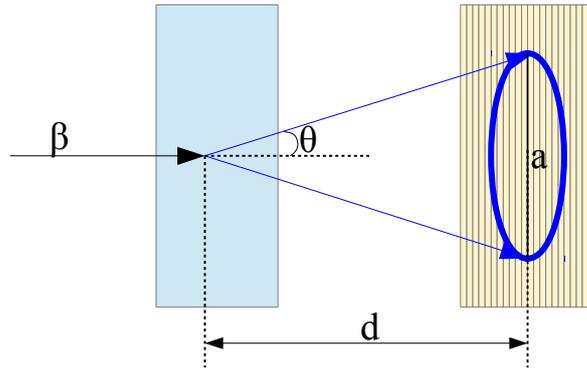


図 7.6:

$a$  とする。第 2 章の (式 2.2) から  $\cos\theta = 1/n\beta$  なので、

$$a = d \times \tan\theta \times 2\theta = 2d\sqrt{(n\beta)^2 - 1} \quad (7.1)$$

となる。次に  $\beta$  を求める。、静止状態とのローレンツ変換の式

$$E = E_0 \frac{1}{\sqrt{1 - \beta^2}} \quad (7.2)$$

から  $\beta$  を求めると、

$$\beta = \sqrt{1 - \left(\frac{E_0}{E}\right)^2} \quad (7.3)$$

となる。ここで  $E_0$  は  $\beta$  の静止エネルギー、 $E$  は  $\beta$  線の全エネルギー (静止エネルギー+運動エネルギー) である。 $\beta$  線の静止エネルギーは 511keV であり、 $E = 2280\text{keV}$  のとき

$$\beta = \sqrt{1 - \left(\frac{511}{2280 + 511}\right)^2} = 0.983 \quad (7.4)$$

となる。 $d = 10\text{mm}$ 、 $n = 1.048$  のとき、この  $\beta$  を (式 7.1) に代入して

$$a = 2 \times 10 \sqrt{(1.048 \times 0.983)^2 - 1} = 4.96[\text{mm}] \quad (7.5)$$

が得られる。波長変換ファイバーのコインシデンスレベルは、 $1\text{mm} \times 4$  つにすれば良いことが分かる。(図 7.7) は、 $\beta$  線エネルギーの値を変えていったときにできるチェレンコフ光の円の直径である。

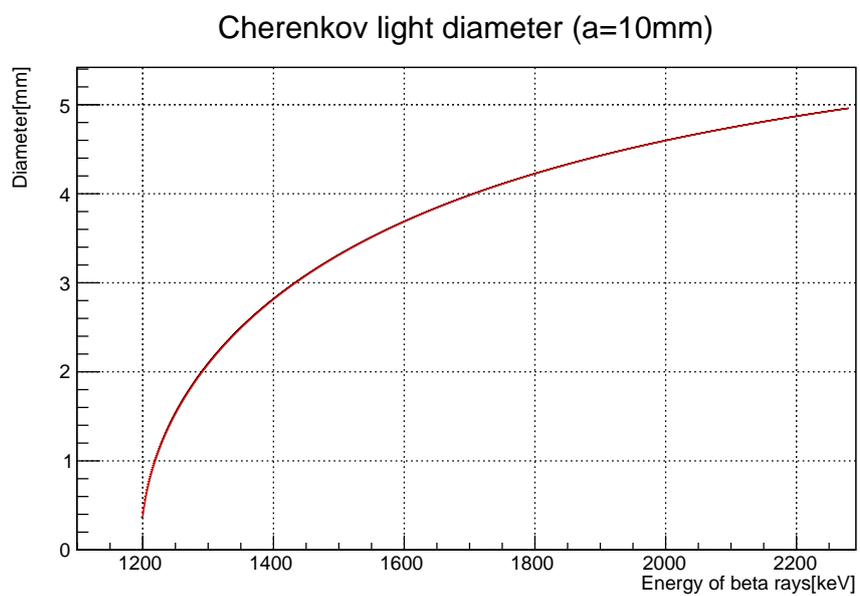


図 7.7: チェレンコフリング直径

横軸はエアロゲルに入射する  $\beta$  線のエネルギー、縦軸は 1cm 離れた場所に置かれた波長変換ファイバーのシート上に出来るチェレンコフ光の円の直径。屈折率 1.048 のエアロゲルによって発光する 1.2MeV から、 $^{90}\text{Sr}$  からの  $\beta$  線の最大エネルギー 2.28MeV までをプロットした。



## 付録 A 使用した機材

### A.1 光電子増倍管 (PMT)

今回の実験に用いた光検出器が、光電子増倍管 (PMT:Photo Multiplier Tube、以下 PMT) である。PMT の動作原理は次の通りである。PMT に入射した光子はまず光電面で光電効果を起こし、光電子 (p.e:photo-electron) と呼ばれる電子を叩き出す。この電子は集束電極によって導かれながら加速していき、一つ目の電子増倍部 (ダイノード) に衝突する。そこで叩き出された二次電子がさらに加速され第二ダイノードに衝突し、電子を叩き出す。これを繰り返して、光電子の数を倍増させていく。倍増された光電子は陽極に到達し、信号電流として取り出される。

PMT には大きく分けてラインフォース型をファインメッシュ型の二種類のタイプがある。ラインフォース型の PMT は無磁場中の電子の軌道が想定されてダイノードが決まっているため、磁場中では光電子の増幅が期待通り行われぬ。ファインメッシュ型の PMT ではこの点が改良されている。ダイノード部分が細かい網目状かつ、非常に接近して積み重ねた構造になっている。増幅された電子はメッシュの間隙を通り次の増幅段へと移動するため、直線的な軌道を描く。そのため増幅電子の軌道と磁場の向きを一致させた状態にして設置することで、高磁場中での使用が可能となっている。今回の実験では、磁場の影響を考慮する必要が無いため、ラインフォース型を使用している。

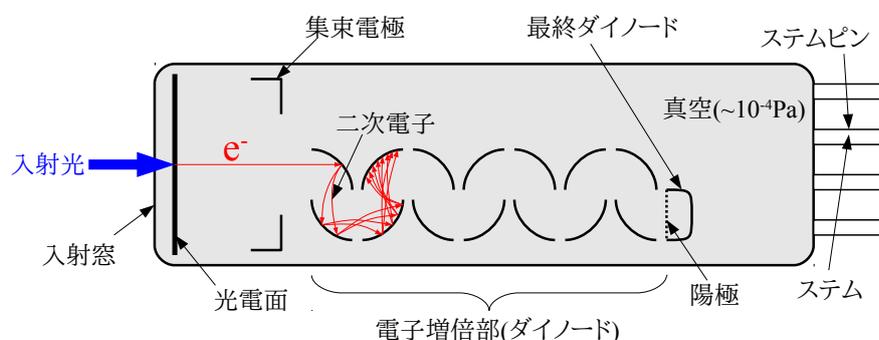


図 A.1: 光電子増倍管 ラインフォース型

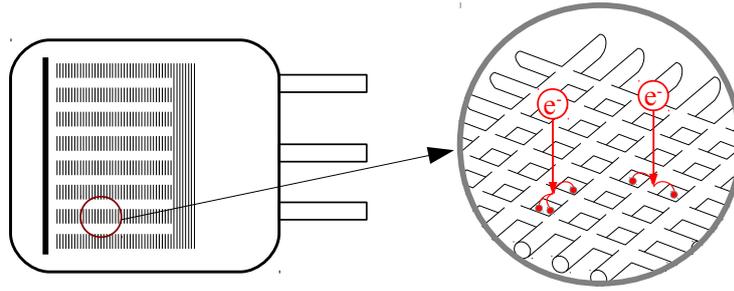


図 A.2: 光電子増倍管 ファインメッシュ型



図 A.3: PMT 上から

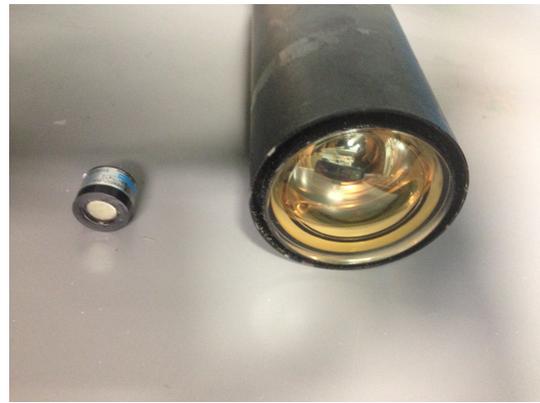


図 A.4: PMT 正面から

光電面から飛び出た光電子が何倍になって信号として取り出されるかを、ゲインと呼ぶ。印加電圧を大きくすると、ダイノードで叩き出される二次電子の数が増え、ゲインも大きくなる。本研究でのPMTの情報を(表 A.1)にまとめる。

	本研究での印加電圧 [V]	ゲイン
BAC7244	1200	$4.62 \times 10^6$
BAC7245	1200	$4.09 \times 10^6$

表 A.1: 使用した PMT、印加電圧、ゲイン

## A.2 CAMAC

### A.2.1 CAMACとは

本研究では、データ収集の為に使用する ADC や TDC に、CAMAC(Computer Automated Measurement and Control) 規格のものを用いた。これは、コンピュータと電子装置との通信を行う規格の一つである。クレートと呼ばれる箱に、様々な機能を持ったモジュールを差し込んで使う。モジュールを差し込む部分をステーションと呼ぶ。複数あるステーションのうち一番右端には、クレートコントローラーと呼ばれるものを設置する。クレートコントローラーにより、CAMAC と接続したコンピュータとの通信、またモジュールの制御が行われる。

CAMAC を用いることで、独立したハードウェアの集合体ではなく、モジュールの組み合わせで計測や制御を行えるようになる。高エネルギー素粒子実験のデータ取得 (DAQ:Data Acquisition) で広く用いられている。

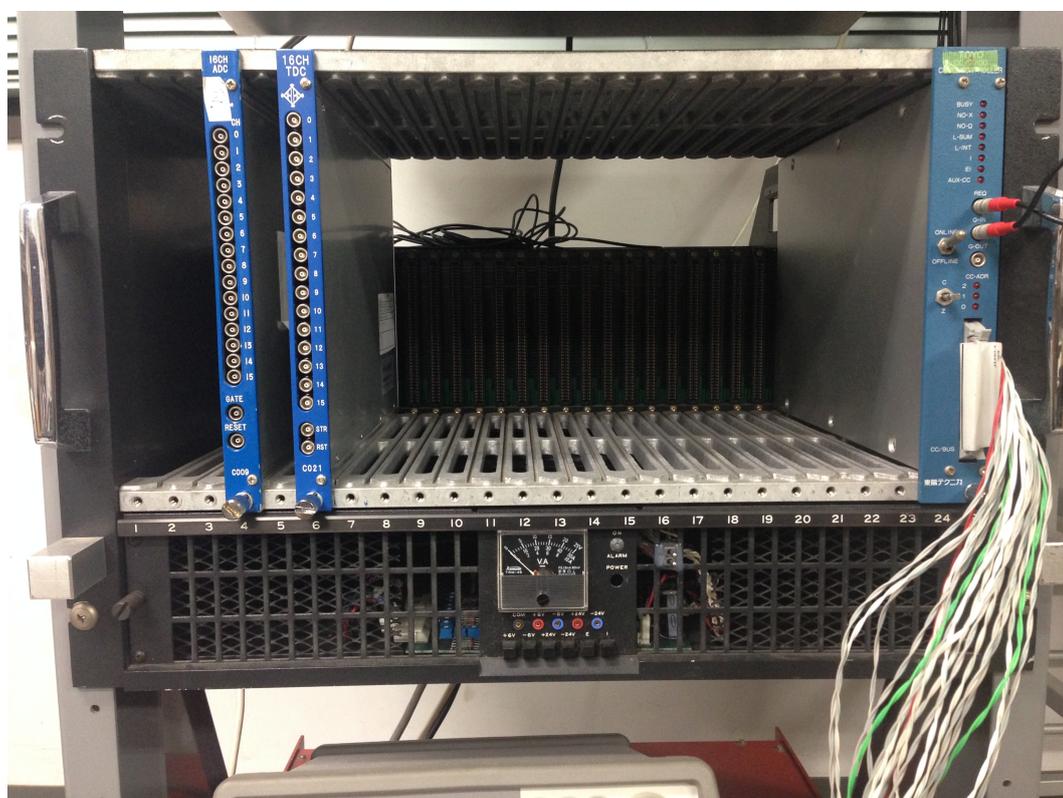


図 A.5: CAMAC

今回の実験に用いた CAMAC。モジュールは、ステーション番号 4 番に差し込まれているものが ADC、6 番のものが TDC、24 番のものがクレートコントローラーである。

### A.2.2 ADC

ADCとは、アナログ信号をデジタル信号に変換する装置である。ADCに入力された信号は、コンデンサに電荷として蓄えられる。コンデンサは一定の割合で放電され、その間の発振器のパルス数を数えることで、入力電荷に比例する時間を与える(ウィルキンソン型)。

このモジュールには、信号読み出しのチャンネルとは別にゲートのチャンネルが存在する。ゲートチャンネルに信号が入ると、そのパルス幅のゲートが開く。その間、信号読み出しチャンネルに入ってきた信号の電流を積分し、それに対応した値を返す。この数値は整数で与えられ、 $0.25 * 10^{-12}$  を掛けることでクーロン [C] へと変換される(つまり、 $1\text{ADCch}=0.25\text{pC}$ )。

### A.2.3 TDC

TDCは、スタート信号が入ってからストップ信号が来るまでの時間を計測するものである。ADCと同じく、ウィルキンソン型の時間計測をする。TDCデータを取ることで、信号の来たタイミングを正確に把握し、ADCデータを補正することが出来る。今回使用したTDCは、 $1\text{TDCch}=54\text{ps}$  で読み出される。

## 付録B 放射性物質

本研究で触れたものや、原発事故で問題になった放射性元素について、その性質をまとめる。

### B.1 ストロンチウム 90( $^{90}\text{Sr}$ )

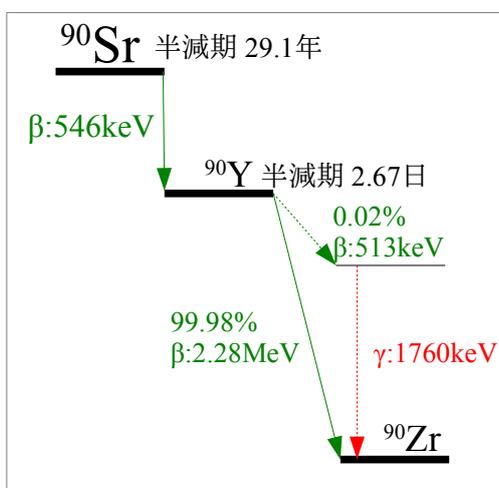
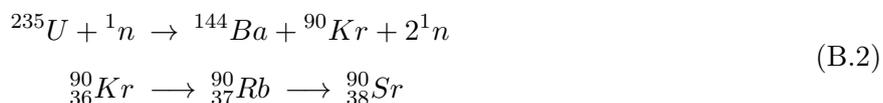
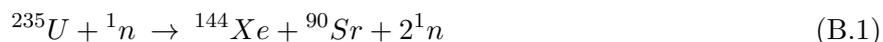


図 B.1:  $^{90}\text{Sr}$  崩壊モデル

$^{90}\text{Sr}$  は、ウラン (U) やプルトニウム (Pu) の核分裂生成物として数%生成される (B.1、B.2)。



$^{90}\text{Sr}$  は  $\beta$  崩壊によってイットリウム 90( $^{90}\text{Y}$ ) を生成し、さらに  $\beta$  崩壊して安定なジルコニウム 90( $^{90}\text{Zr}$ ) になる。純粋な  $^{90}\text{Sr}$  は約一ヶ月で放射平衡に達し、約 3900 分の 1 の  $^{90}\text{Y}$  を定常的に含むようになる。

$^{90}\text{Sr}$  はカルシウムと同じアルカリ土類金属の一種であり、その化学的性質が類似している。動物体内では摂取されると一部は排泄されるものの、大部分は骨に取り込まれて体内で  $^{90}\text{Sr}$  (または娘核種の  $^{90}\text{Y}$ ) が  $\beta$  線を放出し続ける。骨癌や白血病の要因になる。体内から放射性物質が半減する時間は生物学的半減期と呼ばれ、 $^{90}\text{Sr}$  についてはおよそ 10~20 年である。 $\beta$  崩壊後の  $^{90}\text{Y}$  はすい臓に蓄積され、膵臓がんの要因となる。

## B.2 ルテニウム 106( $^{106}\text{Ru}$ )

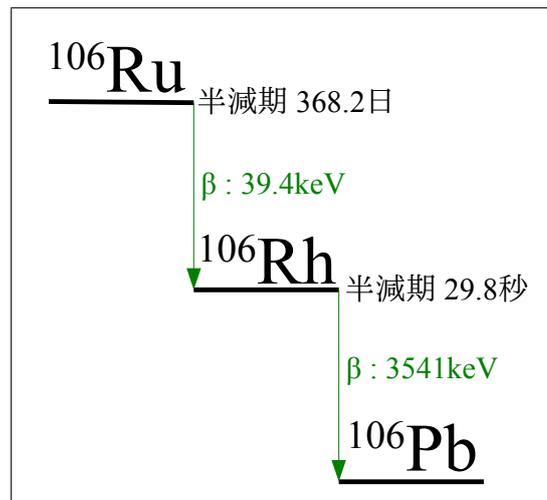


図 B.2:  $^{106}\text{Ru}$  崩壊モデル

$^{106}\text{Ru}$  は、34 種類の放射性同位体が存在するルテニウムのうち、最も安定なもの (半減期 368.2 日) なるものである。 $^{106}\text{Ru}$  からの  $\beta$  線の最大エネルギーは 39.4keV と低いが、娘各種の  $^{106}\text{Rh}$  が問題となる。 $^{106}\text{Rh}$  の放射する  $\beta$  線の最大エネルギーは 3541keV と非常に強力であり、 $^{90}\text{Sr}$  からの 2280keV よりも高い。体内に取り込まれると肺に取り込まれ、生物学的半減期は約 2000 日である。

$^{106}\text{Ru}$  は、原発事故後にできたデブリ (溶け落ちた燃料) に含まれていると考えられる。事故現場における  $^{106}\text{Ru}$  の検出が、デブリの特定につながる。本研究で用いたシリカエアロゲルは  $^{90}\text{Sr}$  と  $^{137}\text{Cs}$  の間に閾値のあるものを使用したが、屈折率をより低いものに置き換えることで、閾値をあげ、 $^{106}\text{Ru}$  のみに感度を持たせることが出来る。

## B.3 ヨウ素 131( $^{131}\text{I}$ )

核分裂生成物のうち放射能汚染の原因となる主要三核種 ( $^{131}\text{I}$ 、 $^{134}\text{Cs}$ 、 $^{137}\text{Cs}$ ) のひとつである。全ての核分裂生成物の合計重量のおよそ 3% を占める。 $^{131}\text{I}$  は、 $^{235}\text{U}$  の核分裂により生成される (B.3)。



体内に取り込んだ  $^{131}\text{I}$  は、ほとんどが甲状腺に蓄積される。これは、甲状腺が機能維持の為にヨウ素を必要としているためである。 $^{131}\text{I}$  からの放射線を浴びつづけることで、甲状腺がんのリスクが高まる。チェルノブイリ原発事故の影響で、事故当時 18 才未満だった約 6000 人に甲状腺がんが発生したといわれる。

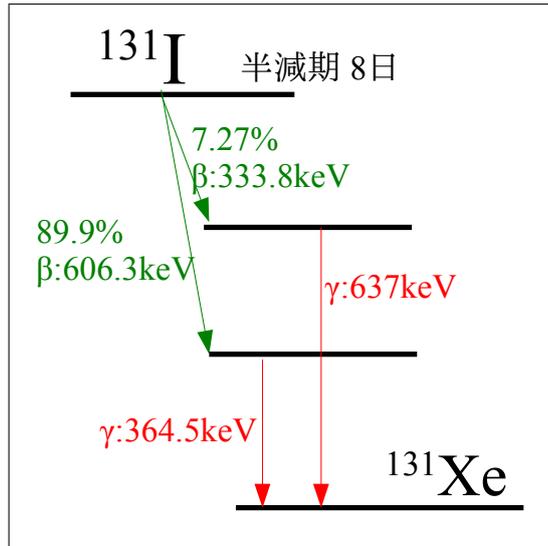


図 B.3:  $^{131}\text{I}$  崩壊モデル

#### B.4 セシウム 134( $^{134}\text{Cs}$ )、セシウム 137( $^{137}\text{Cs}$ )

セシウムはナトリウム (Na) と同じアルカリ金属の一種であり、体内に入ると全身に分布する。生物学的半減期は、およそ 90 日である。以下、それぞれの特徴を述べる。

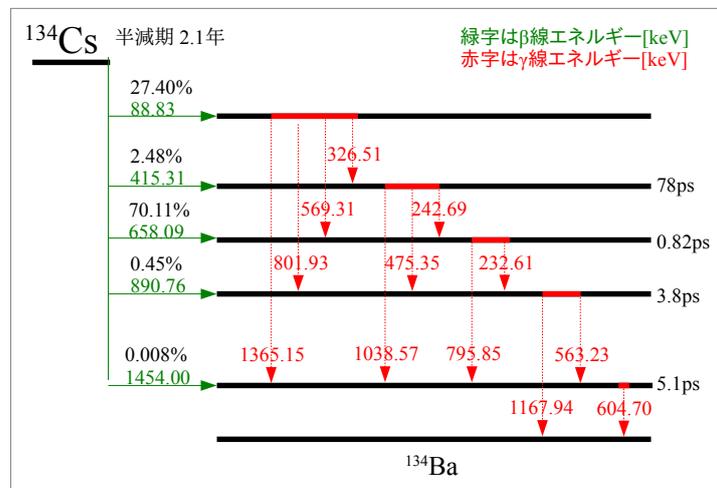


図 B.4:  $^{134}\text{Cs}$  崩壊モデル

$^{134}\text{Cs}$  は、人工的に作られる放射能である。天然では、大気中で宇宙線とキセノンの反応で生成するが、生成量は極めて少ない。原子炉の運転では、キセノン 133( $^{133}\text{Xe}$ ) の  $\beta$  崩壊で生じる  $^{133}\text{Cs}$  が中性子を捕獲して生成される。

およそ 70.% の  $^{134}\text{Cs}$  は 658.09keV の  $\beta$  線放出後、0.82ps で 795.85keV の  $\gamma$  線を出し、続けて 5.1ps 後に 604.70keV の  $\gamma$  線を放出し基底状態への  $^{134}\text{Ba}$  を生成する。およそ 6ps の間に  $\beta$ 、 $\gamma$ 、 $\gamma$  と放出

するので、コンプトン散乱、光電効果による誤カウントに原因になりやすい。

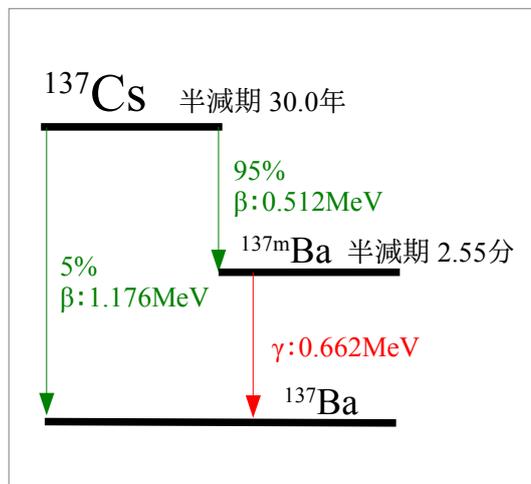
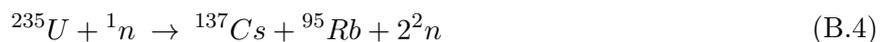


図 B.5:  $^{137}\text{Cs}$  崩壊モデル

$^{137}\text{Cs}$  は、 $^{235}\text{U}$  の核分裂により生成される (B.4)。



今回の実験に用いた  $n=1.048$  のエアロゲルは、 $^{137}\text{Cs}$  が 5% の確率で放出する最大エネルギー 1176keV の  $\beta$  線を取り除く為である。

## 参考文献

- [1] 東京電力福島原子力発電所事故調査委員会（国会事故調）報告書
- [2] 田端誠、千葉大学、修士論文 (2009)
- [3] *Kuraray's Scintillation Materials*. Product catalog. Kuraray Co.,Ltd.
- [4] ストロンチウムカウンター読み出し回路取り扱い説明書、REPIC 林栄精機株式会社
- [5] 原子力資料情報室、<http://www.cnic.jp/>



## 謝辞

本研究を行うにあたり多くの方々に御協力、御指導頂きました。河合秀幸準教授には、本研究に参加する機会を与えてくださったこと、そして研究以外の諸方面に渡り様々な経験(水)を与えて頂いたこと、深く感謝致します。吉田滋教授、間瀬圭一助教には、研究に関わる様々な助言を頂き深く感謝いたします。千葉大学での学生生活にてお世話になりました、新田宗隆氏、児玉諭士氏、伊藤博士氏、大和久耕平氏、雲越大輔氏、韓樹林氏、上山俊佑氏、小林篤史氏、兼子菜緒見氏、井尻寛人氏、磯辺晃氏には、有意義な研究生生活を送ることが出来たことを深く感謝致します。特に上山俊佑氏と雲越大輔氏には、研究にそれほど関係の無い部分でお世話になったことを重ねて感謝致します。吉田研究室のRomainさん、Matthewさん、Takaoさん、Hansさん、Luさんには、英語の会話練習を手伝って下さったことを深く感謝致します。他、物理学を共に学んだ友人を含め多くの方々の支えがあり、本研究を行うことができました。皆様、本当にありがとうございました。最後に、大学院生としての研究生生活を支えてくれた父、母、妹、そして犬と猫に心より感謝致します。