

α 核種可視化検出器を用いた福島第一原子力発電所の核燃料起因 α 核種の検知



森下 祐樹
Morishita Yuki



宇佐美博士
Usami Hiroshi



鳥居 建男
Torii Tatsuo

1 はじめに

2011年3月11日に発生した東日本大震災に伴い、東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所(以下、「東京電力HD」、「福島第一原発」という)の事故が発生し、放射性物質が放出された。これまで着目されていたのは主に ^{137}Cs からの γ 線の検出及び方法であったが、近年、いくつかの論文で福島第一原発サイト内における α 線放出核種(以下、「 α 核種」という)の存在が示唆されていた。 α 線は飛程が短いため、 α 核種を吸入し体内に取り込むと、その近傍の細胞に集中的にエネルギーを付与し、重大な内部被ばくをもたらす。そのため現場における α 核種の汚染状況の把握は重要である。しかし、これまでの α 核種の測定は福島第一原発敷地外の環境中で採取された試料に対する測定であり、試料は実験室等に持ち込み、煩雑な前処理を行った後分析が行われていた¹⁻³⁾。そのため、実際の福島第一原発の現場で測定した例はほとんど報告されていなかった。

α 核種に汚染された現場での測定は一般に、 $\text{ZnS}(\text{Ag})$ サーベイメータと呼ばれる α 線用サーベイメータが用いられる。これは $\text{ZnS}(\text{Ag})$ シンチレータと光電子増倍管で構成されるサーベイメータであり、測定対象物から放出される α 線の計数率が測定できる。しかし、現場には α 線を放出する天然核種である Rn 及びその子孫核種も存在するため、測定した α 線

が Pu 等の核燃料の核種か Rn 等の天然核種かを弁別する必要がある。核燃料施設において、 Pu と Rn の弁別は、① α 線のエネルギーの差異による弁別、② α 線の2次元分布(面的な広がり)の差異による弁別、が行われている⁴⁾。著者らはこれまで、上記①②の情報が1度の測定で得られ、更に現場での使用が可能な α 核種可視化検出器の開発をしてきた⁵⁾。この検出器は元々核燃料施設における α 核種の汚染を検出するために開発したものであるが、この検出器を福島第一原発の α 核種の汚染測定に応用することで、 α 核種の種類の同定や性状を明らかにし、これは作業者の放射線防護策立案や内部被ばく評価に有用となるだけでなく、事故進展の解析に重要な情報を提供できる可能性がある。今回、我々は α 核種可視化検出器を用いた福島第一原発の α 核種の測定を行ったのでその結果について報告する。

2 α 核種可視化検出器の開発

図1に α 核種可視化検出器の構造を示す。 α 核種可視化検出器は、薄膜の Ce をドープした $\text{Gd}_3(\text{Ga},\text{Al})_5\text{O}_{12}$ (以下、「GAGG」という。)シンチレータとアクリルライトガイド、多列化したシリコン光電子増倍管(Silicon Photomultiplier, 以下 SiPM)で構成される。SiPMは浜松ホトニクス社のMulti-Pixel Photon Counter(以下、MPPC)を用いた。シンチレータは遮光のための、 α 線が透過できるだけ

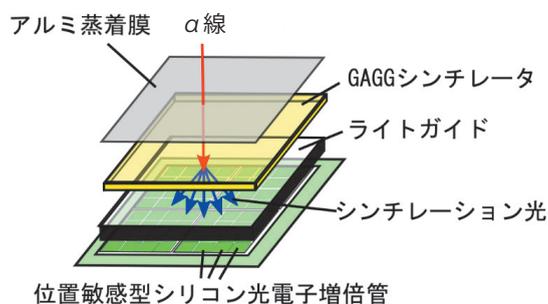


図1 α核種可視化検出器の構造

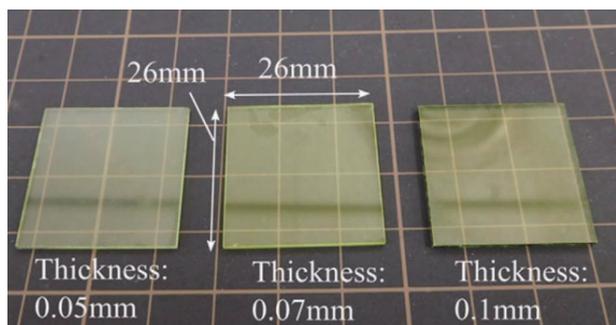


図2 異なる厚みのGAGGシンチレータ。厚みは、左から0.05mm, 0.07mm, 0.1mm

薄いアルミ蒸着膜に覆われている。α線がシンチレータに入射すると発光し、その光がアクリルライトガイドを介して多列のSiPMへと導かれる。多列のSiPMで光が電気信号に変換され、その出力電気信号が重み付け加算され、4つの信号(X+, X-, Y+, Y-)が出力される。その信号より位置情報とエネルギー情報がField programmable gate array (FPGA)により演算される⁶⁾。最終的には、パソコンにα線の位置情報とエネルギー情報が1度に収集される。

福島第一原発の現場はβ線及びγ線の線量率が支配的であるため、そのような環境下でも微量のα線が計測できる必要がある。そこで、β・γ感度を下げたためのGAGGシンチレータ厚の最適化を行った。

図2に最適化に用いた異なる厚みのGAGGシンチレータを示す。厚みの異なる3つのGAGGシンチレータを比較し、各厚みは、0.05mm, 0.07mm, 0.1mmである。各シンチレータをSiPMに付け替えながら測定を行った。β線測定では、74kBqの⁹⁰Sr/⁹⁰Y β線源を検出器上に置き測定を行い、γ線測定では²⁴¹Am γ線源を用い検出器の点で1mSv/hの

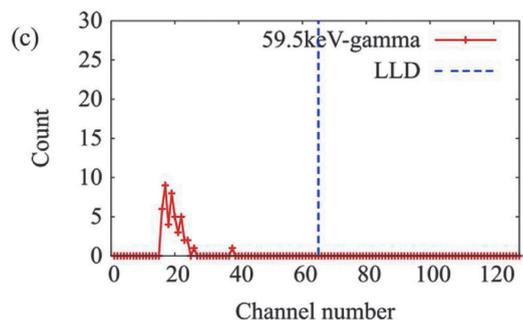
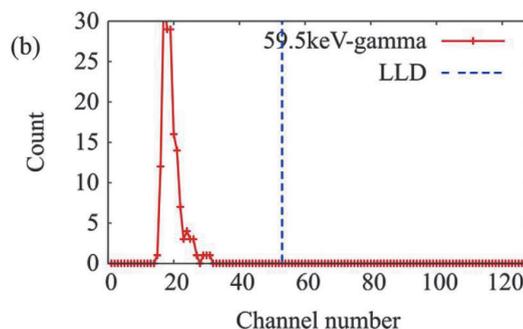
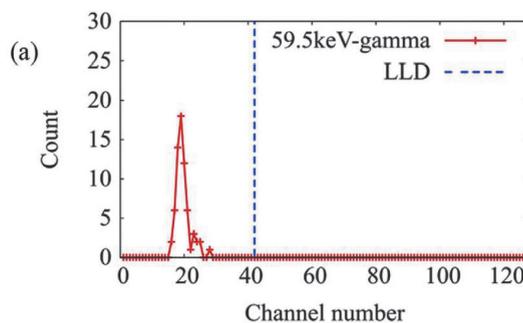


図3 異なる厚みのGAGGシンチレータに対するγ線照射結果。シンチレータ厚は(a)0.1mm, (b)0.07mm, (c)0.05mm。LLDはα線スペクトルのピークチャンネルのカウン트에に対し1%に相当する低エネルギー側のチャンネルに設定しており、γ線照射の結果はすべてLLD以下となっている

線量率になるように配置し照射を行った。

図3及び図4に照射試験の結果を示す。横軸が波高値で縦軸がチャンネル当たりのカウントを示している。β・γ線の弁別レベル(LLD)はα線スペクトルのピークチャンネルのカウン트에に対し1%に相当する低エネルギー側のチャンネルに設定している。γ線照射結果は、すべて弁別レベル以下であり影響はなかった(図3)。一方、β線照射結果は、γ線に比べ影響が大きいものの、シンチレータ厚を0.05mmにすることで、0.1mm厚に対し1/100にβ感度を下げること成功した(図4)。更に、0.05mm厚のシンチレータを用いてもα線スペクトルのエネルギー分解能は良好なままであった。上記

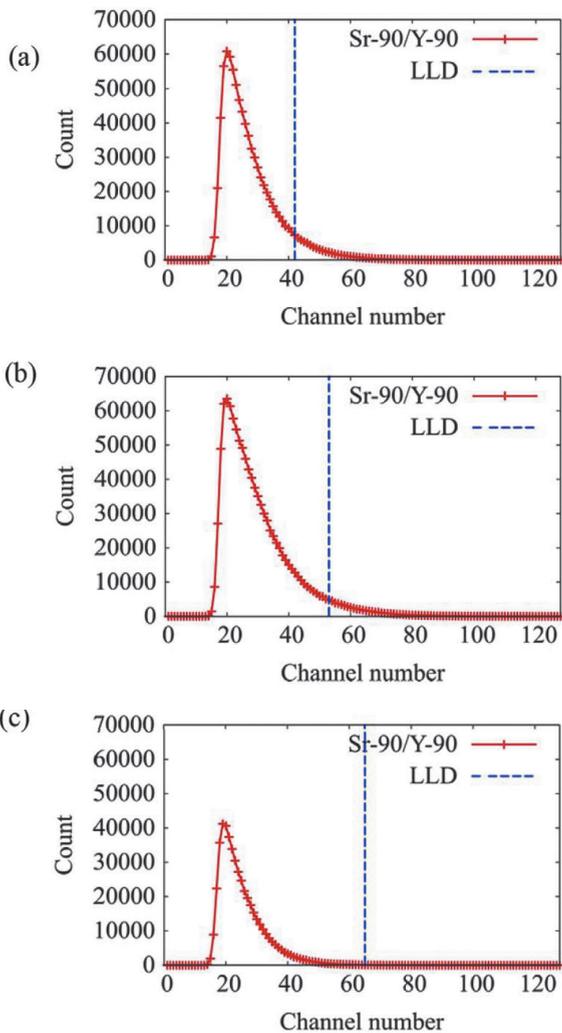


図4 異なる厚みのGAGGシンチレータに対するβ線照射結果。LLD以上のカウントが下がっている。シンチレータ厚は(a)0.1 mm, (b)0.07 mm, (c)0.05 mm。図3と同様に、LLDはα線スペクトルのピークチャンネルのカウントに対し1%に相当する低エネルギー側のチャンネルに設定している

の試験結果より、0.05 mm厚GAGGシンチレータを用いたα核種可視化検出器を用いて、福島第一原発での汚染測定を行うこととした。

3 福島第一原発での測定

α核種可視化検出器を福島第一原発の現場に持ち込み測定を実施した。福島第一原発の2号機及び3号機の床面のスミヤ試料を4試料採取し、汚染の防止のため、表面を薄いポリエチレンフィルムで養生した。このスミヤ試料を市販の測定器により行ったところ、最も高い計数のスミヤ試料はα線用サーベイメータの測定で約5000 cpm、β線用サーベイメー

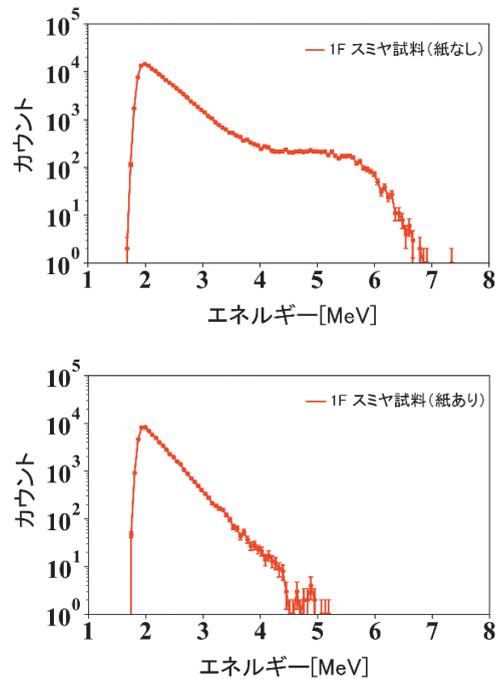


図5 紙を置かなかった場合(α線+β(γ)線)と紙を置いた場合(β線)のスミヤ試料のエネルギースペクトル。紙を置くことにより5MeV以上のスペクトルが消失している

タの測定では測定上限値(> 100,000 cpm)であった。α核種可視化検出器の上にこのスミヤ試料をセットし測定を行った。α線とβ・γ線の確実な弁別のため、検出器とスミヤ試料の間に紙を置き(紙を置いた場合α線は遮蔽され、β線のみ計数する)両者の差分を取った。更に、福島第一原発のスミヤ試料の結果と比較するため、MOX燃料施設のPu試料(²³⁸Puが主)も測定を行った。

図5に紙を置かなかった場合(α線+β(γ)線)と紙を置いた場合(β線)のスミヤ試料のエネルギースペクトルを示す。紙を置くことにより高エネルギー(5 MeV以上)スペクトルが消失しているのが分かる。したがって、低エネルギー領域の計数はβ・γ線によるものであり、高エネルギー領域の計数は、α線によるものである。

図6に紙ありなしで差分を取ったスミヤ試料のα線スペクトルとMOX燃料施設のPu試料α線スペクトルとの比較を示す。エネルギーが5~6.5 MeVの領域で両者のスペクトルがよく一致しているのが分かる。核燃料起因α核種のα線エネルギーは、例えば²³⁸Puは5.5 MeV、²³⁹Puは5.2 MeV、²⁴²Cmは6.1 MeVであり、今回測定したエネルギースペクト

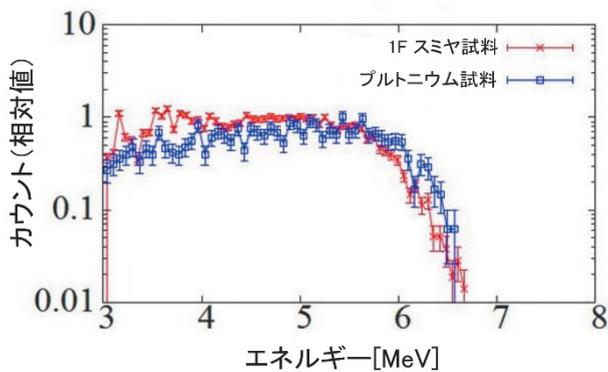


図6 福島第一原発のスミヤ試料と MOX 燃料施設の Pu 試料の α 線エネルギースペクトルの比較

ルのエネルギー領域と一致している。このことからスミヤ試料の α 核種は核燃料起因の α 核種であることが明らかとなった。

図7にMOX燃料施設のPu試料と福島第一原発のスミヤ試料の α 線の2次元分布の比較を示す。図中の赤枠は強度プロファイル測定のための関心領域を、右図は強度プロファイルを示している。MOX燃料施設のPu試料は強度の高いスポットのみが点在しているのに対し、福島第一原発のスミヤ試料はスポットと一様な分布が混在しているのが分かる。MOX燃料施設のPu試料の粒子の粒径は一般に数 μm ⁷⁾であるが、福島第一原発のスミヤ試料はPu試料とは異なる粒径分布をしている可能性があることが示唆された。

4 結論と今後の研究

今回、開発した α 核種位置検出器を用いて、福島第一原発に核燃料由来の α 核種が存在することを、実際の現場での測定により初めて明らかにした⁸⁾。福島第一原発内の α 核種を含む放射性物質の性質はまだ未解明の部分が多く、さらなる装置開発、及び現場での測定を行っていくことでこれを明らかにしていきたい。今回の測定で明らかとなった粒径分布の違いを解明するための装置開発も既に進めている。これらの研究結果が、現場での放射線防護や事故進展の解明に役立てられるよう研究を進めていき

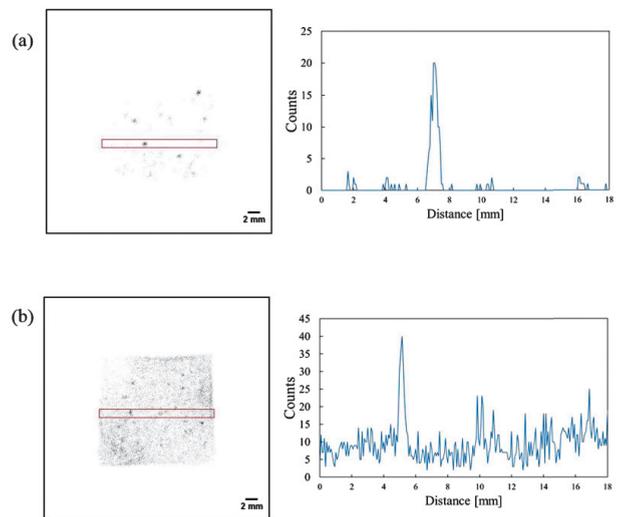


図7 α 線の2次元分布と強度プロファイルの比較: (a)MOX燃料施設のPu試料, (b)福島第一原発のスミヤ試料

たい。

謝辞

本研究は東京電力HDの高平史郎氏、菊池弘幸氏、宇津木弥氏らのご協力を得て共同で実施したものです。また、本研究は科研費の若手研究(B)研究課題15K21618より助成を頂いております。

参考資料

- 1) K. Shozugawa, *et al.*, *Environmental pollution*, **163**, 243-247 (2012)
- 2) S. Schneider, *et al.*, *Scientific reports*, **3**, 2988 (2013)
- 3) J. Zheng, *et al.*, *Geochemical Journal*, **46**, 4, 361-369 (2012)
- 4) K. Endo, *et al.*, *Radiation protection dosimetry*, **146**, 1-3, 119-122 (2011)
- 5) Y. Morishita, *et al.*, *Radiation Measurements*, **103**, 33-38 (2017)
- 6) S. Yamamoto, *et al.*, *Physics in Medicine & Biology*, **56**, 23, 7555 (2011)
- 7) M. D. Dorrian, *et al.*, *Radiation Protection Dosimetry*, **60**, 2, 119-133 (1995)
- 8) Y. Morishita, *et al.*, *Scientific reports*, **9**, 1, 581 (2019)

((国研)日本原子力研究開発機構)