

超高線量率でも測定可能な遠隔操作型線量計の開発



俊介*1,2 黒澤 Kurosawa Shunsuke



理*5 笹野 Sasano Makoto



小玉

牧田

翔平*3 森下 Kodama Shohei

泰介*5

Makita Taisuke



田中 浩基*6 Tanaka Hiroki

祐樹*4

Morishita Yuki



直照*5 林 Hayashi Masateru



Yamaji Akihiro

山路



哲中*5 東 Azuma Tetsushi

1 はじめに

2011年3月の東日本大震災での津波に端を発し た原子力発電所での事故対応・廃止措置等(以下、 廃炉作業)は、わが国の大きな課題である。廃炉に むけたロードマップ作成は、大まかなスケジュール は提示されたものの、廃炉作業の進展に伴って明ら かになってきた現場の状況等を踏まえる必要があ り、継続的な見直しがされるものである」。廃炉作 業の1つの工程であるデブリ取出しについても、炉 内の線量率分布を正確に把握することが、必須であ り、安全な下での作業のために線量率分布情報を得 て、再度スケジュールを見直すということになると 推察できる。

これらの作業を、安全に、かつ、時間的ロスを抑 えて、可能な限り迅速に進めるために、1~10 Sv/h を超える高い線量率場²⁾でも測定が可能な線量計の 開発が求められている。線量計としては、シンチレー タや半導体等を用いて放射線を最終的には電子(電 気信号)に変換してリアルタイムに測定する方法と、

ガラスバッチのように放射線によって電子等を準安 定状態に励起, 蓄積させて, ある程度の時間をため てから読み出す方法がある³⁾。当該目的のためには, 線量率分布を知る必要があり、前者のリアルタイム な測定が求められる。

ただし、既存の方法では、半導体検出器やシンチ レータからの光を電気信号に変える装置が、高線量 率場において機能しない恐れがあった(図1)4。

(国研)日本原子力研究開発機構 (JAEA) のグルー プは、光ファイバーを用いて、超高線量率下でのシ ンチレーション光を、検出器や回路が動作可能な低 線量率領域で読み出す方法(分離型)について提案 した⁵。この分離型では、リアルタイムに超高線量 率場の様子が分かるため、位置をモニタすることで、 炉内の線量率分布を把握することができる。

ここで,既存のシンチレータは,主に緑色~紫外 線の領域で発光する。一方で,分離型の応用では, 超高線量率場にて、光ファイバー自身が、γ線等に 起因したシンチレーション発光や、コンプトン散乱 等で生じた電子によるチェレンコフ発光を起こし,



図1 既存の放射線検出器を用いた場合の超高線量率下での 問題点(a),及び,光ファイバーを用いた分離型の概念図(b)⁴⁾

ノイズとして影響が出る可能性がある。更に, 光ファ イバー自身の伝送効率も赤色の方が良い。以上のこ とから,発光波長が赤色や近赤外線の領域にあるシ ンチレータが本分離型では有効である。

しかしながら、赤色や近赤外線で発光するシンチ レータの開発は未開拓であった。JAEAのグループ 等では、元来赤色で発光することが知られている Cr添加α-Al₂O₃(ルビー)の使用を提案していたが、 Cr³⁺のd-d遷移に由来するルビーの発光は、ラポル テ禁制遷移であり、その発光効率は低い。ほかにも、 レーザーや白色 LED の研究から Mn⁴⁺ や Nd³⁺ 等を 発光賦活剤として利用した赤色・近赤外線発光体は 数多く開発されているが、いずれも d-d ないしは 4f-4f遷移といった禁制遷移に該当する。

そのため,100 m 級の光ファイバーが必要で,そ のファイバーのコア径サイズも限られている廃炉作 業においては、より発光量の高い赤色シンチレータ の開発が求められていた。

2 高発光量赤色発光シンチレータの開拓

これまでに筆者らも医療応用等を前提に前述のように Cr³⁺ や Nd³⁺ 等を発光賦活剤として添加した材料の開発を行ってきたが⁶⁸⁾, このような既存の発

光中心に替わる発光機構が,本分離型に適した材料 開発を行う上では必要であると痛感した。

また, 求められるシンチレータのサイズは, 光ファ イバーの先に取り付けるために, 大きくても1辺が おおよそ3mmの立方体程度である。そのため, サ イズが小さくてもγ線に対する感度をある程度は持 つよう, 有効原子番号や密度の高い材料を使う必要 性がある。特に, 有効原子番号の4~5 乗に光電吸 収の断面積は比例することから, 有効原子番号の高 い材料が特に望ましい。

原子番号の大きい元素として,筆者らはハフニウム(Hf,原子番号 72)に注目し,Hf 化合物の新規 シンチレータ開発を進めることとした。なお,Hf と同程度の有効原子番号を持つ材料としては,例え ば Lu 等があるが,これらは放射性同位体(例えば I^{ne}Lu)を自然に含む。超高線量率場での計測時には, 相対的に^{1ne}Lu からの内在γ線バックグラウンドは 無視できるが,応用上,測定後の管理の時に放射化 物との切分け判定等で,手間がかかる可能性がある。 そこで,Hf 化合物を第一候補とした。

一方で, Hf 酸化物は一般的にその融点が 2,000 ℃ 程度以上と高いため,結晶育成の困難さが課題で あった。特に,2,400 ℃程度を超える融点を持つ材 料では既存の金属ルツボを用いた結晶育成法では, 金属ルツボのほうが融点ないしは軟化点を超えてし まうために使用できない。現在,筆者らはルツボ不 使用で数時間以内に結晶合成できるコア・ヒーティ ング法を開発しているが⁹,まずは低融点の材料と して,Hf を含むハロゲン化物に注目した。

Hf を含むハロゲン化物としては、これまでに Cs₂HfCl₆という材料について、筆者らを含む複数グ ループが開発してきた^{10,11})。本材料の発光起源につ いては、自己束縛励起子発光¹²,ないしは、電荷遷 移発光⁹等の候補が挙がっているが、いずれにして も発光賦活剤を添加しない、母材発光であった。

この塩素の部分,言い換えると陰イオン(アニオン)部分を,よりイオン半径の大きいヨウ素等に置換すると,発光波長の変化が期待できた。そこで, Cs₂HfI₆ (CHI) について,垂直ブリッジマン法を用いて育成を試みた。

図2は、育成後の結晶について、切断時の端材の 写真であるが、UV ランプからの紫外線でオレンジ 色に帯びた光を出すことが分かった。



図2 CHI 結晶の写真(大きさは「小豆」程度)



図3 CHIのX線励起時の発光スペクトル¹²⁾

実際に,X線を照射時の発光スペクトルについて, CCD分光器を用いて観測すると図3のとおりになっ た。その発光は約700 nm をピークに持ち,非常に 広い波長域にわたる発光であることが分かった。 CCD や Si- アバランシェ・フォトダイオード (Si-APD)等の波長感度は,このCHIの発光バンドとマッ チングが良い。そして,既存のシンチレータよりも 長波長発光であり,分離型による超高線量率場での 線量モニタという応用にも適切である。

なお、CHI は蛍光寿命が $1.9 \pm 0.1 \mu s$ であり¹³、 既存の赤色・近赤外線蛍光体の典型的な蛍光寿命 (100 μs 以上)と比べて 2 桁程度以上も高速である。 また、高速蛍光寿命であることから、 γ 線を照射し たときには、光子 1 個ずつで計測が可能であり、シ ングルフォトン・カウンティング法によって、約 64,000 光子 /MeV の発光量、662 keV でのエネルギー 分解能(FWHM)が 4.2 ± 0.2%と求めることがで きた¹³⁾。これはルビー等と比べても明るい発光量を 示す材料であった。なお、その他の CHI の物性や、 結晶育成技術の進展・発光量の向上については、 13)、14)を参照されたい。

このように, CHI は廃炉に向けた, 分離型による線量 モニタの最有力候補のシンチレータ材料であった。

3 CHIを用いた分離型線量モニタの実証試験

京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 照 射施設にて, CHI を用いた分離型の線量モニタの実 証実験を行った。当該照射施設では,約100 TBqの ⁶⁰Co線源からの7線を照射でき,既知の空間線量位 置が複数点把握されている。それらの点に CHI を 置き,20 mの光ファイバー(コア径:600 µm)にて, シンチレーション発光を伝送させて,低線量率領域 にて,分光器付き CCD カメラで読み出した。そして, 発光スペクトルの発光強度(波長スペクトルの当該 ピークの積分値で定義)と線量の関係性を調べた。 また,比較例として,CHI サンプルと同じ大きさの ルビー結晶も評価した。

その結果, 図4のように, 1kGy/h までの幅広い 線量率の領域で測定でき,線量と発光強度が比例関 係にあることが分かった。すなわち,校正を行うこ とで,線量モニタとして使用可能であることを明ら かにできた。

一方で、既存の赤色発光体であるルビーでも、同 じように幅広い線量率の領域で測定を行うことがで きたが、ルビーに比べて CHI は 10 倍程度の発光強 度があることが分かった。なおここでの強度は観測 された値であり、CCD 等の波長感度補正等は行っ ていない。これは、実際の用途でも、CCD 等の感 度補正ではなく、観測された値が、材料そのものの 発光強度よりも、重要であると考えたからである。 CHI とルビーの間での発光量比は、CCD 分光器の 回折格子等に依存するが、ルビーと CHI の発光波 長は近いため、大きな変化は無く CHI は発光量で 有利であると言える。

観測された発光強度が大きい点は、100m級の長





図 5 CHI(a), ルビー(b) での "Co 照射開始時からの時間応 答性 "

い光ファイバーを用いた時に懸念されるノイズとの 切分けや,光の伝送量低下の観点からも,大変有利 である。

更に,ルビー結晶は図5のように,同じ空間線量 率においても,明るさが一定になるのに30分以上 かかった。つまり,時間応答性が非常に遅く,リア ルタイムで線量を測定することがルビーでは困難で ある。一方で,今回開発したCHIはリアルタイム で正確な線量を測定することが可能であることが分 かった¹⁵。

4 まとめと今後の展望

新しく開発した赤色発光シンチレータである CHI を用いることで,超高線量率場での計測が可能な分 離型の線量モニタの開発ができた。

CHIを含む赤色・近赤外発光シンチレータの開発 は未だフロンティア領域であり,現在,他のハロゲ ン化物の材料についての探索,発光起源の特定等を 行っている。更には,酸化物での赤色・近赤外発光 シンチレータの開発も実施中である。

線量モニタの開発においては、長さ100mの光 ファイバーでの実証試験、高い線量率場での光ファ イバーからのノイズの評価を行っている。加えて、 実用化を行う際には、様々な環境が想定されること から、例えば曲げ半径が小さく可動性の良い光ファ イバーでのモニタの実現可能性についても今後検討 する。更には、今回の実証試験では "Co単一であっ たが、複数の核種が存在すると予想されている現場 に対応する必要もある。そこで、シミュレーション を含めた校正方法等についても、現在検討中である。 これらの対応を早急に行い、可及的速やかに実用 化の段階に進める。

参考文献

- 1) 例えば東京電力ホームページ https://www.tepco. co.jp/decommission/project/roadmap/
- 福島第一原子力発電所2号機原子炉格納容器内部 調査実施結果,東京電力ホールディングス(株), (2019) https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/ decommissioning/committee/osensuitaisakute am/2019/02/3-3-3.pdf
- S. W. S. McKeever, et al., Radiation Protection Dosimetry, 109, 269-276 (2004)
- 4)「廃炉の迅速化を可能にする高線量環境の炉内線量 計測の開発—革新的な発光体材料の開発と高線量 下での放射線計測への応用—」東北大学 プレス リリース(2020年6月18日)
- 5) TOPICS Fukushima No.70, Japan Atomic Energy Agency (2015) https://fukushima.jaea.go.jp/en/ pamphlet/topics/pdf/topics-fukushima070e.pdf
- 6) A. Suzuki, et al., Opt. Mat., **36**, 1484-1487 (2014)
- 7) S. Kurosawa, et al., IEEE TNS, 61, 316-319 (2014)
- 8) A. Yamaji, et al., IEEE TNS, **61**, 320-322 (2014)
- 9) Y. Kurashima, et al., Cryst. Growth Des., 21, 572-578 (2020)
- 10) A. Burger, et. al., APL., 107, 143505 (2015)
- 11) S. Kurosawa, et al., JINST., 12, C02042 (2017)
- 12) B. Kang, et al., J. Phys. Chem., C120, 12187 (2016)
- 13) S. Kodama, et al., J. Cryst. Growth., 492, 1-5 (2018)
- 14) S. Kodama, et al., Rad. Meas., **124**, 54-58 (2019)
- 15) S. Kodama, et al., APEX., 13, 047002 (2020)

(*1 東北大学 未来科学技術共同研究センター,*2 東北大学 金属材料研究所,*3 埼玉大学理工学研究 科,*4(国研)日本原子力研究開発機構,*5 三菱電 機(株),*6 京都大学 複合原子力科学研究所)