

アルファダストの検出を目指した  
超高位置分解能イメージング装置の開発  
(委託研究)

—令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

Development of High-resolution Imaging Camera for Alpha Dust  
(Contract Research)

-FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource  
Development Project-

福島研究開発部門 福島研究開発拠点  
廃炉環境国際共同研究センター  
東北大学

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science  
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development  
Tohoku University

January 2021

Japan Atomic Energy Agency

日本原子力研究開発機構

JAEA-Review

本レポートは国立研究開発法人日本原子力研究開発機構が不定期に発行する成果報告書です。  
本レポートの入手並びに著作権利用に関するお問い合わせは、下記あてにお問い合わせ下さい。  
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ホームページ (<https://www.jaea.go.jp>)  
より発信されています。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 研究連携成果展開部 研究成果管理課  
〒319-1195 茨城県那珂郡東海村大字白方2番地4  
電話 029-282-6387, Fax 029-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

This report is issued irregularly by Japan Atomic Energy Agency.  
Inquiries about availability and/or copyright of this report should be addressed to  
Institutional Repository Section,  
Intellectual Resources Management and R&D Collaboration Department,  
Japan Atomic Energy Agency.  
2-4 Shirakata, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195 Japan  
Tel +81-29-282-6387, Fax +81-29-282-5920, E-mail:ird-support@jaea.go.jp

© Japan Atomic Energy Agency, 2021

アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発  
(委託研究)

—令和元年度 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業—

日本原子力研究開発機構 福島研究開発部門 福島研究開発拠点  
廃炉環境国際共同研究センター

東北大学

(2020年10月15日受理)

日本原子力研究開発機構（JAEA）廃炉環境国際共同研究センター（CLADS）では、令和元年度英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業（以下、「本事業」という）を実施している。

本事業は、東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所の廃炉等をはじめとした原子力分野の課題解決に貢献するため、国内外の英知を結集し、様々な分野の知見や経験を、従前の機関や分野の壁を越えて緊密に融合・連携させた基礎的・基盤的研究及び人材育成を推進することを目的としている。平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築した。

本研究は、研究課題のうち、平成30年度に採択された「アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発」の令和元年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、福島第一原発の廃炉を進めるうえで、ある段階からは作業員が実際に炉内、ないしは、炉のがれき・破片を解体・撤去する際に、ダストとして舞う放射線核種、特に体内被曝の影響が高いアルファ線を放出する核種などの把握を目指した撮像カメラの開発を行うものである。ダストの把握に必要な10 μm程度以下の優れた位置分解能を達成するために、シンチレータの高性能化、カメラの最適化などに取り組んできた。また、ここで得られた技術をもとに、光ファイバーを用いた超高線量場でのリアルタイム線量モニタの開発も取り組んだ。

---

本報告書は、日本原子力研究開発機構の英知事業における委託業務として、東北大学が実施した成果を取りまとめたものである。

廃炉環境国際共同研究センター：〒979-1151 福島県双葉郡富岡町大字本岡字玉塚 790-1

Development of High-resolution Imaging Camera for Alpha Dust  
(Contract Research)

— FY2019 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science  
Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development  
Japan Atomic Energy Agency  
Tomioka-machi, Futaba-gun, Fukushima-ken

Tohoku University

(Received October 15, 2020)

The Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (CLADS), Japan Atomic Energy Agency (JAEA), had been conducting the Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project (hereafter referred to “the Project”) in FY2019.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, Tokyo Electric Power Company Holdings, Inc. (TEPCO). For this purpose, intelligence was collected from all over the world, and basic research and human resource development were promoted by closely integrating/collaborating knowledge and experiences in various fields beyond the barrier of conventional organizations and research fields. The sponsor of the Project was moved from the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology to JAEA since the newly adopted proposals in FY2018. On this occasion, JAEA constructed a new research system where JAEA-academia collaboration is reinforced and medium-to-long term research/development and human resource development contributing to the decommissioning are stably and consecutively implemented.

Among the adopted proposals in FY2018, this report summarizes the research results of the “Development of high-resolution imaging camera for alpha dust” conducted in FY2019.

We have developed an imaging camera with a position resolution of less than approximately 10  $\mu\text{m}$  to monitor alpha dust in the nuclear plant during the decommissioning process, because the operators avoid to drawing in such dusts. Moreover, we have developed real-time monitor system with optical fiber and scintillator under high dose-rate condition.

Keywords: Alpha Dust, High-resolution imaging, Lenses, Scintillator, Imaging, Red-emitter

---

This work was performed by Tohoku University under contract with Japan Atomic Energy Agency.

目次

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要.....	1
2. 平成30年度 採択課題（継続分） .....	2
3. 令和元年度 採択課題 .....	5
付録 成果報告書 .....	9

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project ....	1
2. Accepted Proposal in FY2018 ~Continued~ .....	2
3. Accepted Proposal in FY2019 .....	5
Appendix Result Report.....	9

This is a blank page.

## 1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

文部科学省では、「東京電力(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等研究開発の加速プラン(平成26年6月文部科学省)」等を踏まえ、平成27年度から「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」(以下、「本事業」という。)を立ち上げ、「戦略的原子力共同研究プログラム」、「廃炉加速化研究プログラム」及び「廃止措置研究・人材育成等強化プログラム」を推進している。

具体的には、国内外の英知を結集し、国内の原子力分野のみならず様々な分野の知見や経験を、機関や分野の壁を越え、国際共同研究も含めて緊密に融合・連携させることにより、原子力の課題解決に資する基礎的・基盤的研究や産学が連携した人材育成の取組を推進している。

一方、日本原子力研究開発機構(以下、「JAEA」という。)では、平成27年に廃炉国際共同研究センター(以下、「CLADS」という。現:廃炉環境国際共同研究センター)を組織し、「東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所の廃止措置等に向けた中長期ロードマップ」等を踏まえ、東京電力ホールディングス(株)福島第一原子力発電所廃炉(以下、「1F廃炉」という。)に係る研究開発を進めている。

また、平成29年4月にCLADSの中核拠点である「国際共同研究棟」の運用を開始したことを踏まえ、今後はCLADSを中核に、廃炉の現場ニーズを踏まえた国内外の大学、研究機関等との基礎的・基盤的な研究開発及び人材育成の取組を推進することにより、廃炉研究拠点の形成を目指すことが期待されている。

このため、本事業では平成30年度の新規採択課題から実施主体を文部科学省からJAEAに移行することで、JAEAとアカデミアとの連携を強化し、廃炉に資する中長期的な研究開発・人材育成をより安定的かつ継続的に実施する体制を構築することとし、従来プログラムを、①共通基盤型原子力研究プログラム、②課題解決型廃炉研究プログラム、③国際協力型廃炉研究プログラム、④研究人材育成型廃炉研究プログラム(令和元年度より新設)に再編した。

## 2. 平成 30 年度 採択課題（継続分）

平成 30 年度採択課題（継続分）については以下のとおりである。

課題数：19 課題

- 共通基盤型原子力研究プログラム 11 課題  
(若手研究 6 課題、一般研究 5 課題)
- 課題解決型廃炉研究プログラム 6 課題
- 国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題  
(日英共同研究)

### 平成 30 年度 採択課題一覧

#### 共通基盤型原子力研究プログラム

##### 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
被災地探査や原子力発電所建屋内情報収集のための半自律ロボットを用いたセマンティックサーベイマップ生成システムの開発	河野 仁	東京工芸大学
汚染土壌の減容を目的とした重液分離による放射性微粒子回収法の高度化	山崎 信哉	筑波大学
ラドンを代表としたアルファ核種の吸入による内部被ばくの横断的生体影響	片岡 隆浩	岡山大学
炉心溶融物の粘性及び表面張力同時測定技術の開発	大石 佑治	大阪大学
iPS 細胞由来組織細胞における放射線依存的突然変異計測系の確立	島田 幹男	東京工業大学
レーザー共鳴イオン化を用いた同位体存在度の低いストロンチウム 90 の迅速分析技術開発	岩田 圭弘	東京大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
放射性核種の長期安定化を指向した使用済みゼオライト焼結固化技術の開発	新井 剛	芝浦工業大学
燃料デブリ取り出しを容易にするゲル状充填材の開発	牟田 浩明	大阪大学
レーザー蛍光法を用いた燃料デブリ変質相の同定	斉藤 拓巳	東京大学
過酷炉心放射線環境における線量測定装置の開発	岡本 保	木更津工業 高等専門学校
レーザー加工により発生する微粒子の解析と核種同定手法の開発	長谷川 秀一	東京大学

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
合金相を含む燃料デブリの安定性評価のための基盤研究	桐島 陽	東北大学
ガンマ線画像スペクトル分光法による高放射線場環境の画像化による定量的放射能分布解析法	谷森 達	京都大学
燃料デブリ取出し時における放射性核種飛散防止技術の開発	鈴木 俊一	東京大学
アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発	黒澤 俊介	東北大学
ナノ粒子を用いた透明遮へい材の開発研究	渡邊 隆行	九州大学
先端計測技術の融合で実現する高耐放射線燃料デブリセンサーの研究開発	萩原 雅之	高エネルギー 加速器研究機構

## 国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
放射性微粒子の基礎物性解明による廃炉作業リスク低減への貢献	五十嵐 康人	茨城大学
放射線耐性の高い薄型 SiC 中性子検出器の開発	三澤 毅	京都大学

### 3. 令和元年度 採択課題

令和元年度は、4つのプログラムにおいて、研究課題の採択を決定した。  
公募の概要は以下のとおりである。

- ・ 公募期間：平成 31 年 4 月 24 日～令和元年 6 月 7 日  
令和元年 5 月 30 日～令和元年 7 月 18 日 ※日露共同研究のみ
- ・ 課題数：19 課題
  - 共通基盤型原子力研究プログラム 7 課題  
(若手研究 2 課題、一般研究 5 課題)
  - 課題解決型廃炉研究プログラム 4 課題
  - 国際協力型廃炉研究プログラム 4 課題  
(日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題)
  - 研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

これらの提案について、外部有識者から構成される審査委員会において、書面審査及び面接審査、日英共同研究については二国間の合同審査を実施し、採択候補課題を選定した。その後、PD（プログラムディレクター）・PO（プログラムオフィサー）会議での審議を経て、採択課題を決定した。

#### 令和元年度 採択課題一覧

##### 共通基盤型原子力研究プログラム

###### 【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一朗	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

## 共通基盤型原子力研究プログラム

### 【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁	産業技術総合 研究所

## 課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島2・3号機ペDESTAL燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立 GE ニュークリア・ エナジー
アパタイトセラミックスによる ALPS 沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二	東京工業大学
拡張型スーパードラゴン多関節ロボットアームによる圧力容器内燃料デブリ調査への挑戦	高橋 秀治	東京工業大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
高い流動性および陰イオン核種保持性を有するアルカリ刺激材料の探索と様々な放射性廃棄物の安全で効果的な固化	佐藤 努	北海道大学
再臨界前の中性子線増に即応可能な耐放射線 FPGA システムの開発	渡邊 実	静岡大学

国際協力型廃炉研究プログラム（日露共同研究）

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取出し臨界安全技術の高度化	小原 徹	東京工業大学
微生物生態系による原子炉内物体の腐食・変質に関する評価研究	金井 昭夫	慶應義塾大学

研究人材育成型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成	浅間 一	東京大学
化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発とタイアップ型人材育成	高貝 慶隆	福島大学
放射線・化学・生物的作用の複合効果による燃料デブリ劣化機構の解明	大貫 敏彦	東京工業大学
燃料デブリ分析のための超微量分析技術の開発	永井 康介	東北大学

本報告書は、採択課題のうち、課題解決型廃炉研究プログラム「アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発」の令和元年度の研究成果について記したものである。

研究成果を取りまとめた成果報告書を付録として添付する。

付録  
成果報告書

This is a blank page.

令和元年度

日本原子力研究開発機構

英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業

アルファダストの検出を目指した超高位置分

解能イメージング装置の開発

(契約番号 31I050)

成果報告書

令和2年3月

国立大学法人東北大学

本報告書は、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構の「英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業」による委託業務として、国立大学法人東北大学が実施した「アルファダストの検出を目指した超高位置分解能イメージング装置の開発」の令和元年度の研究成果をまとめたものです。

## 目次

概略	v
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2. 1-1
2.1 全体計画	2. 1-1
2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法	2. 2-1
3. 令和元年度の実施内容及び成果	3. 1-1
3.1 高機能シンチレータの開発	3. 1-1
3.1.1 機能的な構造をもつシンチレータ結晶の開発	3. 1-1
3.1.2 高発光量・長波長発光シンチレータ材料の開発	3. 1-6
3.2 アルファデブリ検出器の開発	3. 2-1
3.2.1 イメージング検出器の開発	3. 2-1
3.2.2 エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）	3. 2-3
3.2.3 実証試験（再委託先：JAEA）	3. 2-10
3.3 高線量モニタなどへの展開	3. 3-1
3.3.1 結晶育成	3. 3-1
3.4 研究推進	3. 4-1
4. 結言	4-1

表一覧

表 3.1.1-1	発光波長一覧	3.1-3
表 3.1.1-2	発光量のまとめ	3.1-5
表 3.2.2.1-1	光電子増倍管を用いた測定条件	3.2-3
表 3.2.2-1	シリコン半導体検出器を用いた測定条件	3.2-5
表 3.2.5.1-1	光学倍率と分解能、視野の関係	3.2-11

図一覧

図 2.1-1	本業務の全体図	2.1-1
図 2.1-2	本業務の工程表	2.1-1
図 3.1.1-1	マイクロ引き下げ法の概念図	3.1-1
図 3.1.1-2	合成した $(Y_{0.99} Ce_{0.01})_3 Mg_x Al_{5-2x} Si_x O_{12}$ 結晶	3.1-2
図 3.1.1-3	合成した $(Y_{0.99} Ce_{0.01})_3 Mg_x Al_{5-2x} Si_x O_{12}$ 結晶の発光スペクトル	3.1-2
図 3.1.1-4	発光量の測定のセットアップ (Si-APD)	3.1-3
図 3.1.1-5	YAMSG の波高値スペクトル	3.1-4
図 3.1.1-6	当初の形状の原案	3.1-5
図 3.1.2-1	ブリッジマン法の概念図	3.1-6
図 3.1.2-2	ブリッジマン法での結晶育成の様子の写真	3.1-7
図 3.1.2-3	合成した結晶の写真	3.1-7
図 3.1.2-4	M=Hf での発光スペクトル	3.1-8
図 3.1.2-5	M=Zr での発光スペクトル	3.1-8
図 3.1.2-6	RHI の波高値スペクトル	3.1-9
図 3.2.1-1	アルファデブリ検出器の設計概念図	3.2-1
図 3.2.1-2	アルファデブリ検出器の 3 次元立体図	3.2-1
図 3.2.1-3	アルファデブリ検出器の外観	3.2-2
図 3.2.1-4	位置分解能評価の様子	3.2-2
図 3.2.2.1-1	光電子増倍管を用いた測定装置のセットアップ	3.2-3
図 3.2.2.1-2	光電子増倍管を用いたエネルギースペクトル取得結果	3.2-4
図 3.2.2.2-1	シリコン半導体検出器を用いた測定装置構成	3.2-5
図 3.2.2.2-2	シリコン半導体検出器を用いたエネルギースペクトル取得結果	3.2-6

図 3.2.3.1-1	測定値とシミュレーション結果の比較	3.2-7
図 3.2.3.2-1	応答関数での線源エネルギーと検出器付与エネルギーの関係	3.2-8
図 3.2.3.3-1	測定（左）とアンフォールディング適用後のスペクトル（右）	3.2-9
図 3.2.4.1-1	超高位置分解能アルファ線イメージング装置	3.2-10
図 3.2.5.1-1	各倍率でのテストチャートの光学画像	3.2-11
図 3.2.5.2-1	各倍率でのアルファ線の画像	3.2-12
図 3.2.5.2-2	アルファ線の強度プロファイル	3.2-12
図 3.2.5.3-1	プルトニウム粒子から放出されるアルファ線の画像（光学倍率 5 倍）	3.2-13
図 3.2.5.3-2	プルトニウム粒子から放出されるアルファ線の画像	3.2-13
図 3.2.5.3-3	測定時間ごとの計数值変化	3.2-13
図 3.3.1-1	当該線量モニタの概念図	3.3-2
図 3.3.1-2	光ケーブルの伝送損失と波長の関係	3.3-3
図 3.3.2-1	準備したサンプル	3.3-3
図 3.3.2-2	CHI セメントサンプルの波高値スペクトル	3.3-4
図 3.3.2-3	ゾーンメルト法のための部材	3.3-5
図 3.3.3-1	京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 照射施設でのセットアップ概念図	3.3-5
図 3.3.3-2	京都大学複合原子力科学研究所のシンチレータの線源部分への配置の様子	3.3-6
図 3.3.4-1	単純積分型仕様での結果の一例	3.3-7
図 3.3.4-2	単純積分型仕様での線量と電流値の関係	3.3-7
図 3.3.4-3	分光型仕様で得られた発光スペクトル	3.3-8
図 3.3.4-4	分光型仕様での線量と電流値の関係	3.3-8

略語一覽

$\text{Na}_2\text{HfI}_6 = \text{NHI}$

$\text{K}_2\text{HfI}_6 = \text{KHI}$

$\text{Rb}_2\text{HfI}_6 = \text{RHI}$

$\text{Cs}_2\text{HfI}_6 = \text{CHI}$

$\text{Na}_2\text{ZrI}_6 = \text{NZI}$

$\text{K}_2\text{ZrI}_6 = \text{KZI}$

$\text{Rb}_2\text{ZrI}_6 = \text{RZI}$

$\text{Cs}_2\text{ZrI}_6 = \text{CZI}$

## 概略

福島第一原子力発電所の廃炉を実現するなかで、作業員がアルファ線核種を含むダストの吸引による内部被曝の可能性が指摘されており、ダストの性質が不明なままでは、たとえ低線量であっても作業員の立ち入りに制限がかけられる可能性がある。迅速な廃炉に向けて、いずれ必要になる作業員の立ち入りに際して、どのような核種で、どの程度の粒形のダストが存在するかは、把握すべき重要な課題である（研究の背景）。

ここで、ダストの大きさとしては、不明ではあるものの、これまでの核燃料施設・MOX 加工施設でのダストから推測として 10  $\mu\text{m}$  程度以下であると考えられることから、少なくとも 10  $\mu\text{m}$  程度以下の位置分解能を持つダストの観測ができる装置が必要である。しかしながら、これまでに、それらを満たすような検出器が開発されていない（解決すべき課題）。

そこで、本研究では、スミヤろ紙上に付着するより細かいアルファ線放出核種を含む微細なダストの詳細な分布を可視化することを可能にする技術の開発を目的の 1 つとする。アルファ線の撮像には、半導体による直接検出型も検討できるが、より簡便であるシンチレータを用いた方法が近道と考えている。これまでも、同様の撮像装置の開発は行われてきており、100  $\mu\text{m}$  程度の位置分解能であれば、先行研究として、研究代表者が開発しているからである。この目的を満たすためには、これまでの研究から、シンチレータ信号の効率化と、発光した信号の収集効率の向上が必要である。前者は、シンチレータの発光量を上げること、ないしは、発光波長を光検出器の波長感度をもっとも良い波長域に合わせることを行うことである。また、後者は、発光した光をいかに効率的に光検出器へ伝達させるか、そのためのシンチレータの形状やレンズの工夫を行うことである（本研究の目的その 1）。

これらの研究課題の過程で、新たなシンチレータ材料の創成が期待でき、上記のアルファダストモニタのみならず、多くの応用が期待できる。特に当該事業に関連して、非常に高い線量場における線量の分布を、光ファイバーを用いて測定できるかもしれないとの着想を得た。そこで、光ファイバーを用いた高線量モニタの実証についても本研究の目的とした（本研究の目的その 2）。

前年度までに、結晶材料の開発として、既存の緑色発光系の材料の高性能化（機能的な構造をもつシンチレータ結晶の開発）および、高発光量・長波長発光シンチレータ材料の開発を東北大学にて行った。また、三菱電機社では、アルファ線核種のエネルギー分別に関する装置開発のための準備を行い、日本原子力研究開発機構（以下「JAEA」と呼ぶ）では評価に関する準備と東北大学は主に評価を行った。これらを受けて、本年度は、前年度に引き続いて、アルファ線を検出可能な光に変えるためのシンチレータの高性能化を進めた。また、イメージング検出器の開発について、東北大学を中心にすすめ、エネルギー取得部分の開発についても三菱電機社を中心に行った。JAEA においては、アルファ線の撮像といった実証試験を行った。以上は前述の目的その 1 に該当する実施内容であり、これに加えて、目的その 2 に対応する作業として、高線量下モニタなどへの展開を行った（本研究の実施内容）。

シンチレータの開発においては、目標を達成することができ、イメージング装置において、基本的な設計は終わり、また、前段階の実証試験として、JAEA での測定もできた。特に、世界初、国内初等アピールすべき成果としては、高線量下モニタなどへの展開において、世界で初めて、1 kSv/h 程度の空間線量率まで、光ファイバーを用いた線量モニタの開発が行えたことである（本研究の成果（特に世界初、国内初等アピールすべき成果））。

今後はダストのイメージングとエネルギー分別ができる検出器の開発において、運用をめざした検出器の合体、その実証試験を行う（来年度への見通し）。

## 1. はじめに

福島第一原子力発電所（以下「1F」と呼ぶ）の廃炉を進めるうえで、ある段階からは作業員が実際に炉内、ないしは、炉のがれき・破片を解体・撤去する必要がある。その際に、ダストとして舞う放射線核種、特に体内被曝の影響が高いアルファ線を放出する核種を含むダストやデブリの取り扱いである。仮に 10  $\mu\text{m}$  程度の直径をもつダストの場合、マスク等の防護では体内への取り込みを完全に防げない可能性があり、体内被曝のリスクが高まる。アルファ線放出核種は、その半減期が 100 年以上であり、どうしても無視できない問題である。

そもそも、どのようなダストやデブリが存在するかが分かっておらず、その核種、ダストサイズの形状の把握が、まずは喫緊かつ重要となっている。ダストの大きさとしては、不明ではあるものの、これまでの核燃料施設・MOX 加工施設でのダストから推測として 10  $\mu\text{m}$  程度以下であると考えられることから、まずはそのサイズを把握できるような撮像装置の開発が急がれている。そこで、作業員の安全の確保のためのアルファ線核種の炉内の分布を明らかにする技術の実現を目指し、スミヤロ紙上に付着するより細かいアルファ線放出核種を含む微細なダストの詳細な分布を可視化することを可能にする技術の開発を本研究の目的とする。

そこで、10  $\mu\text{m}$  程度以下の高い位置分解能（解像度）を達成するようなアルファ線核種撮像装置とその核種同定のためのエネルギー分別装置の開発を本研究では行う。装置実現のためには、放射線を検知するシンチレータ結晶の開発も必要であることから、材料の探索・開発も行う。そして、可搬型を想定として、実際に 1F、ないしは、それを模擬した環境での撮像試験に取り組む。本業務ではアルファ線用のシンチレータを東北大学が開発し、アンフォールディングによってノイズとなるガンマ線除去を三菱電機社が行うことを発展させて、アルファ線イメージングとエネルギー測定機器の開発を二者で協力して行う。また、JAEA では、これらの実証試験と開発サポートを行う。

加えて、シンチレータの開発の一環として、次の「原子力基盤技術の向上に寄与する効果」で述べるように発光容量が非常に大きい点でもある、可搬型モニタとしての実用化を見据えて高線量下での線量のモニタの具現化までを行うために新規シンチレータの開発を行う。本業務で開発する材料は、今までに開発実績がほとんどない緑色発光よりも長い発光波長を持つシンチレータである。

高線量領域では、光電子増倍管や半導体光検出器が動作しない恐れがあることから、高線量領域においたシンチレータの光について、光ファイバーを介して、低線量領域で読み出し（おもに電流モード読み出し）を行っている。この光ファイバーの伝達効率は波長が赤色のほうが汎用のシンチレータの白色領域である紫外から青色よりも良いため、Cr:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などの赤色発光シンチレータが用いられてきた。しかし光ファイバーの長さが数百メートルあると、信号が高線量下で光ファイバー自身もノイズとして発光してしまい、既存の Cr:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などの赤色発光シンチレータで

は発光量が小さいため、このノイズに埋もれてしまう。そこで、従来の赤色発光シンチレータに比べて 10 倍以上の発光量を持ち、さらに蛍光寿命も 100 分の 1 程度早い、単位時間当たりの信号の高さ（光量、ないしは光検出器後の電荷量）が 1000 倍程度以上高いため、光ファイバーからのノイズがあっても、信号を読み出せることが強く期待できる新しい素材の開発を行う。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。また、本年度のスケジュールは図 2.1-2 の通りである。

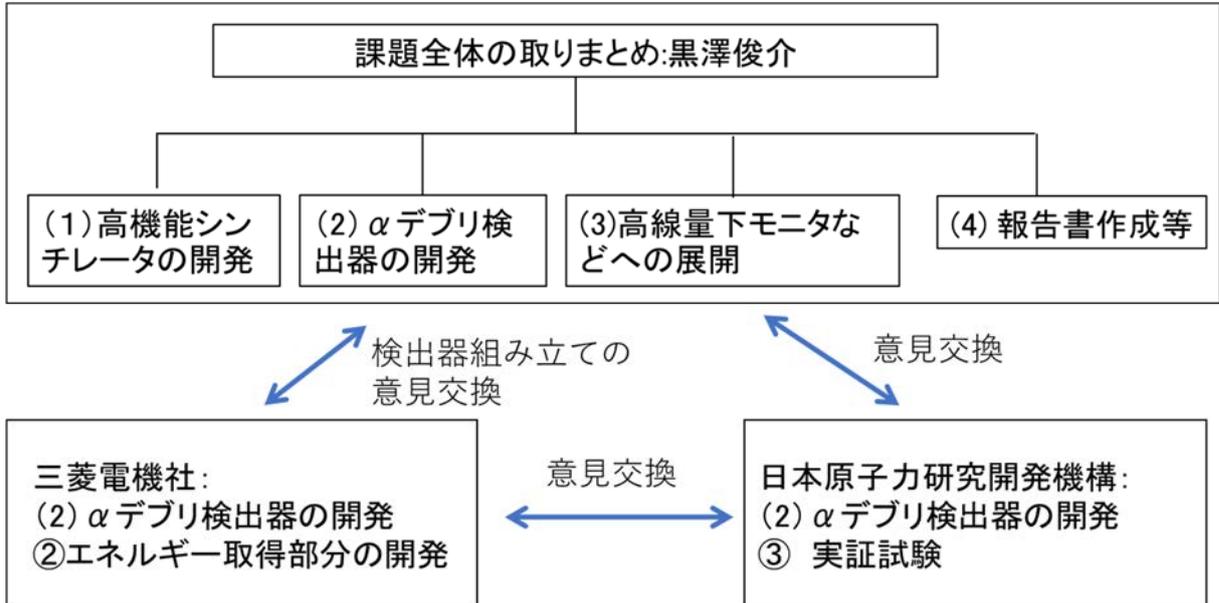


図 2.1-1 本業務の全体図

			第1四半期	第2四半期	第3四半期	第4四半期
(1) 高機能シンチレータの開発		東北大学	→			
(2) αデブリ検出器の開発	①イメージング検出器の開発	東北大学	→			
	②エネルギー取得部分の開発	三菱電機	エネルギースペクトル取得装置の開発		→	
			アンフォールディング法の適用性検証		→	
	③実証試験	JAEA	→			
(3) 高線量下モニタなどへの展開		東北大学	→			
(4) 研究推進		全機関	→			

図 2.1-2 本業務の工程表

## 2.2 令和元年度の成果の目標及び業務の実施方法

令和元年度の計画の概要は下記の通りである。

### (1) 高機能シンチレータの開発

#### ①機能的な構造をもつシンチレータ結晶の開発

前年度に引き続いて、アルファ線を検出可能な光に変えるためのシンチレータの改良が、微細なダストでも発見できるためのキーポイントになるので下記の特性を満たすような構造を持ったシンチレータの開発を行う。下記の構造のシンチレータはアルファ線から変換された光が、拡散せずに集光するために、イメージングを行ったときの解像度が向上できる。前年度に引き続いて、モノリシックな結晶（単結晶）の探索とともに、共晶体構造の可能性も探る。

- 5.5 MeVのアルファ線入射で発光量：60,000光子
- 発光波長：500-700 nm
- アルファ線（5.5 MeV）の検出効率（入射光子ないしは粒子数のうち、検出できる個数の割合）がガンマ線（662 keV）のその10倍程以上

#### ②高発光量・長波長発光シンチレータ材料の開発

前年度から引き続き、次の特性を満たすシンチレータ結晶の開発に取り組む。

- 5.5 MeVのアルファ線入射で発光量：60,000光子
- 発光波長：500-700 nm
- アルファ線（5.5 MeV）の検出効率（入射光子ないしは粒子数のうち、検出できる個数の割合）がガンマ線（662 keV）のその10倍程以上

### (2) アルファデブリ検出器の開発

#### ①イメージング検出器の開発

(1)の①で得られたシンチレータ結晶を、マウントして、位置分解能の評価を行う。ここではイメージングおよびエネルギースペクトルを取得するための新規検出器（実証機）の開発を三菱電機社と共同で進める。

#### ②エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）

前年度に引き続き、Geant4などのシミュレーションにより得られるデータ、さらに、簡易的なエネルギー測定装置を構築して取得する、（半）擬似的な生データからアンフォールディング法の道筋をつける。また、「エネルギースペクトル取得部分の開発」のハード部分についても取り組む。

そして、実環境において想定されるノイズ要因について補正方法を検討し、実環境における測定性能を評価する。より具体的な項目としては、次の通りである。

ア) エネルギースペクトル取得装置の開発

実環境を想定した条件で測定対象となるアルファ線のエネルギーを正しく取得するため検出器選定を行い、実環境でのノイズ要因となるベータ線の影響なくアルファ線の全吸収ピークを検出できる装置構成を検討・検証する。

イ) アンフォールディング法の適用性検証

粒子輸送計算によって作成した応答関数を用いて、逐次近似法によるアンフォールディング法を上記ア) で得られたデータへ適用する。適用の結果線源として用いた  $^{241}\text{Am}$  からのアルファ線エネルギーに対応する線源スペクトルを取得できることが確認し、アンフォールディング法が適用できることを検討する。

③実証試験（再委託先：JAEA）

本年度は、東北大学から開発した結晶の提供を受け、その結晶をCCDカメラ等にマウントしアルファ線イメージングの試験を行う。また、アルファ線イメージング装置を福島第一原子力発電所（1F）のフィールドに持ち込み、1Fで採取されたアルファダストのイメージング実証試験を試みる。

(3) 高線量下モニタなどへの展開（東北大学）

①結晶育成

当初計画から1年以上前倒しで実施する。大強度ガンマ線源（10 TBq以上）などを用いて、モニタの実証試験を行う。

(4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに廃炉国際共同研究センター（CLADS）等との連携を密にして、研究を進める。また、研究実施計画を推進するための打合せや会議等を開催する。

### 3. 令和元年度の実施内容及び成果

#### 3.1 高機能シンチレータの開発

##### 3.1.1 機能的な構造をもつシンチレータ結晶の開発

前年度までに、合成したシンチレータによって、本年度の目標も含めて、達成をしたことから、ほかの材料で、よりよい材料を求めた探索を行った。結晶合成方法としては、小型結晶ではあるものの、合成にかかる時間が1日以下と迅速な合成が可能なマイクロ引き下げ法（図 3.1.1-1）を用いて行った。

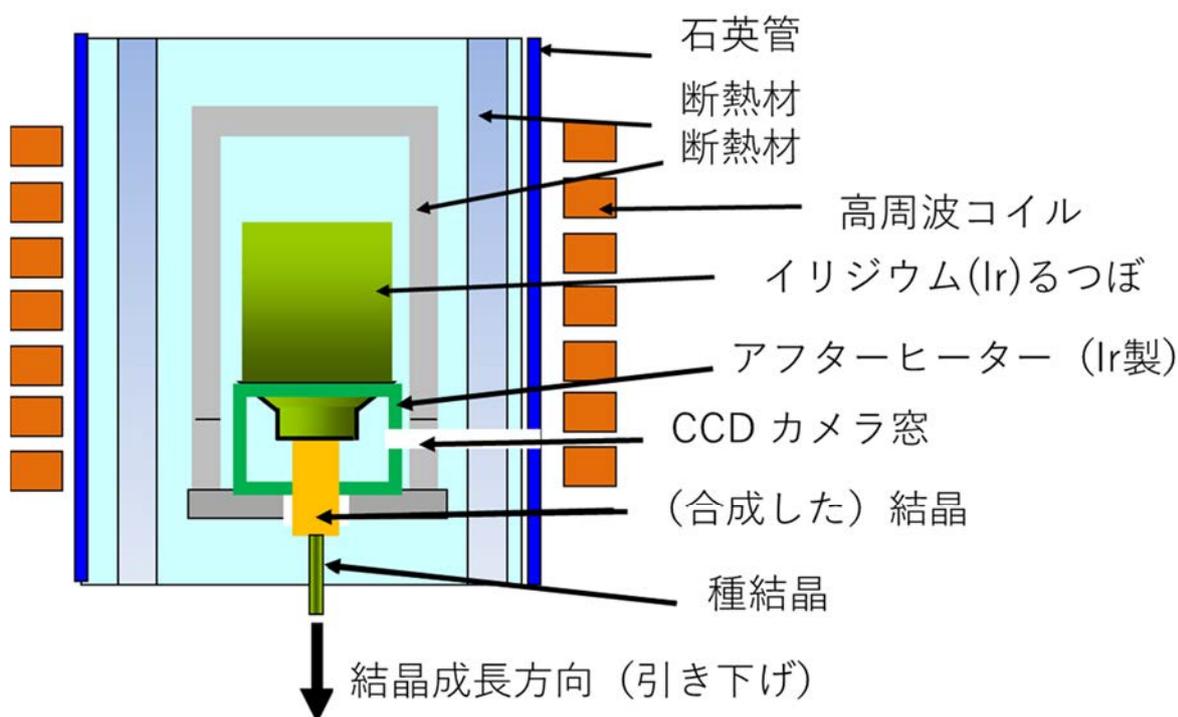
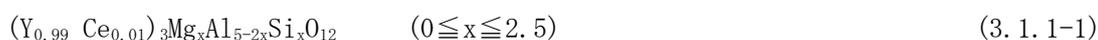


図 3.1.1-1 マイクロ引き下げ法の概念図

合成した結晶としては、例えば、次の材料である。



ただし、Ce の濃度は 1 %で、 $x=0.0, 0.5$  および  $2.0$  である。

前年度までに合成した次のガーネット型結晶



において、ガンマ線の検出効率の高い、すなわち、原子番号の大きいGd（ガドリニウム）を比較的軽い元素であるY（イットリウム）で100%置換（ $y=1$ の時）を出発点として、別のサイトを置換し、結晶場の調整による発光の変化を狙った点が、当該材料を選定した理由である。ただし、本年度は、結晶合成の容易さと解析の容易さから、Ga サイトもAlに置換した。より詳細な表現

では、ガーネット構造の Al が占める四面体、八面体を構成するサイトについて、元素置換による構造の変化をもたらすことで、Ce<sup>3+</sup>の発光中心周り結晶場を変更させて、発光特性の変化を見た。

図 3.1.1-2 には合成した結晶の一例を示す。また、これらの発光波長については、図 3.1.1-3 のように、(3.1.1-1)式の x が大きくなるにつれて、長波長側にずれることが分かった。なお、波長測定については、分光器として浜松ホトニクス社製の PMA-12 を用いており、より詳細は [3.1.1-1]を参照されたい。

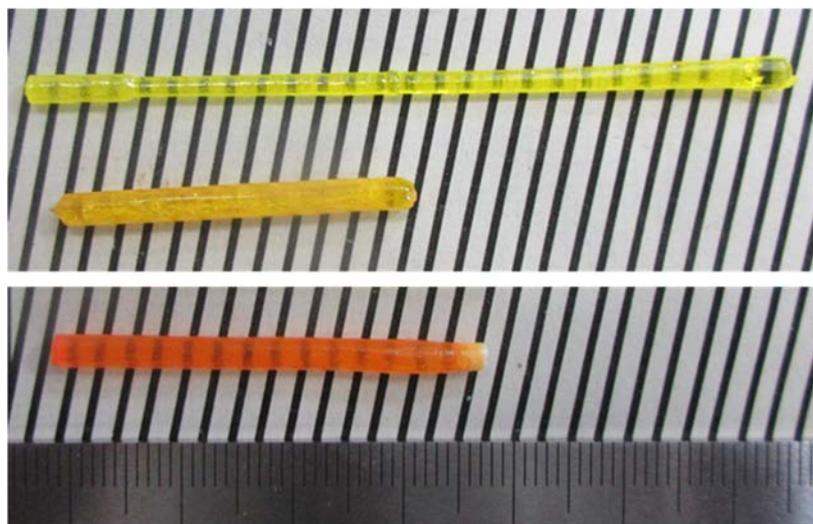


図 3.1.1-2 合成した  $(Y_{0.99} Ce_{0.01})_3 Mg_x Al_{5-2x} Si_x O_{12}$  結晶  
ただし、紙面向かって上から、 $x=0.0, 0.5$  および  $2.0$  である。

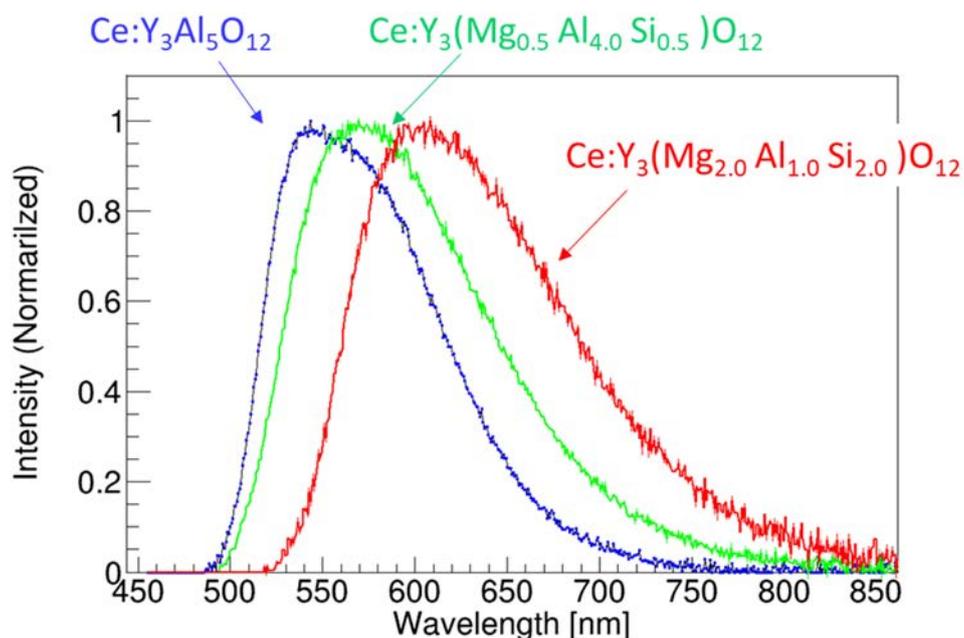


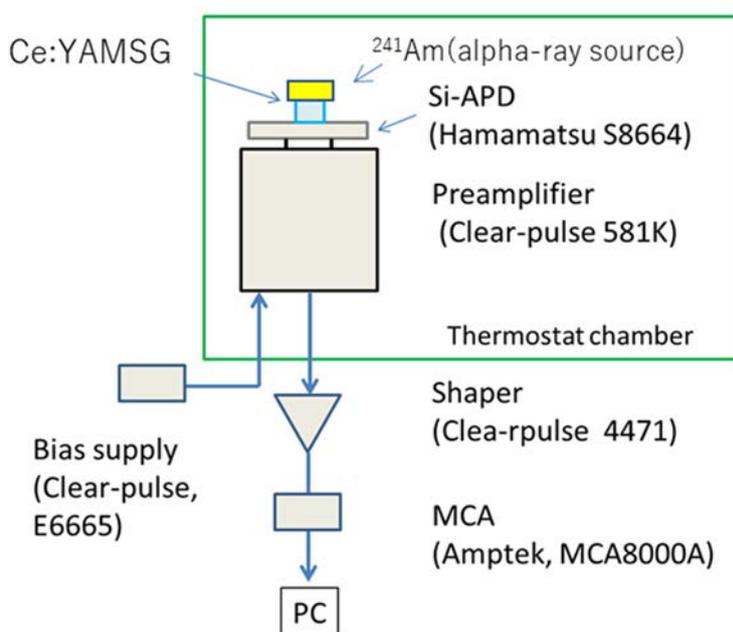
図 3.1.1-3 合成した  $(Y_{0.99} Ce_{0.01})_3 Mg_x Al_{5-2x} Si_x O_{12}$  結晶の発光スペクトル

これらの発光波長についてまとめると、表 3.1.1-1 の通りになり、目標とする発光波長（500-700 nm）を満たしていることが分かる。

**表 3.1.1-1 発光波長一覧**

$(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$	発光波長 [nm]
y=0.5/3	530
y=1.0/3	525
y=1.5/3	520
$(\text{Y}_{0.99} \text{Ce}_{0.01})_3\text{Mg}_x\text{Al}_{5-2x}\text{Si}_x\text{O}_{12}$	発光波長 [nm]
x=0.5	580
x=2.0	600

発光量については図 3.1.1-4 の通りにセットアップを組み、シングル・フォトン・カウンティング方式にて発光量の見積もりを行った。すなわち、 $^{241}\text{Am}$  線源からの 5.5 MeV アルファ線、ないしは、 $^{137}\text{Cs}$  線源からのガンマ線を、SI-アバランシェ・フォトダイオード (Si-APD, 浜松ホトニクス社, S8664) にセットしたサンプルに照射して、光電子増倍管からの信号を前置増幅器 (プリアンプ, クリアパルス社, 581K) および波形整形器 (クリアパルス社, 4471) を通したのちに、AMKTEK 社のマルチチャンネルアナライザー (MCA8000A) でデジタル化して、PC で記録した。



**図 3.1.1-4 発光量の測定のセットアップ (Si-APD)**

前年度と異なり、光電子増倍管ではなく、Si-APDを利用したのは、波長感度の問題である。つまり、600 nm程度の発光波長においては、光電子増倍管の感度がほとんどないため、正確な発光量の評価のため、Si-APDを用いた。

また、発光量の評価のために、Si-APDにシンチレータをつけずに、 $^{109}\text{Cd}$ 線源(22 keV X線)からのX線による直接励起による信号との比較から、発光量を求めた。図 3.1.1-5は(3.1.1-1)式で $x=2.0$ 、以降YAMSG、の波高値スペクトルと、 $^{109}\text{Cd}$ からのX線直接照射での比較である。

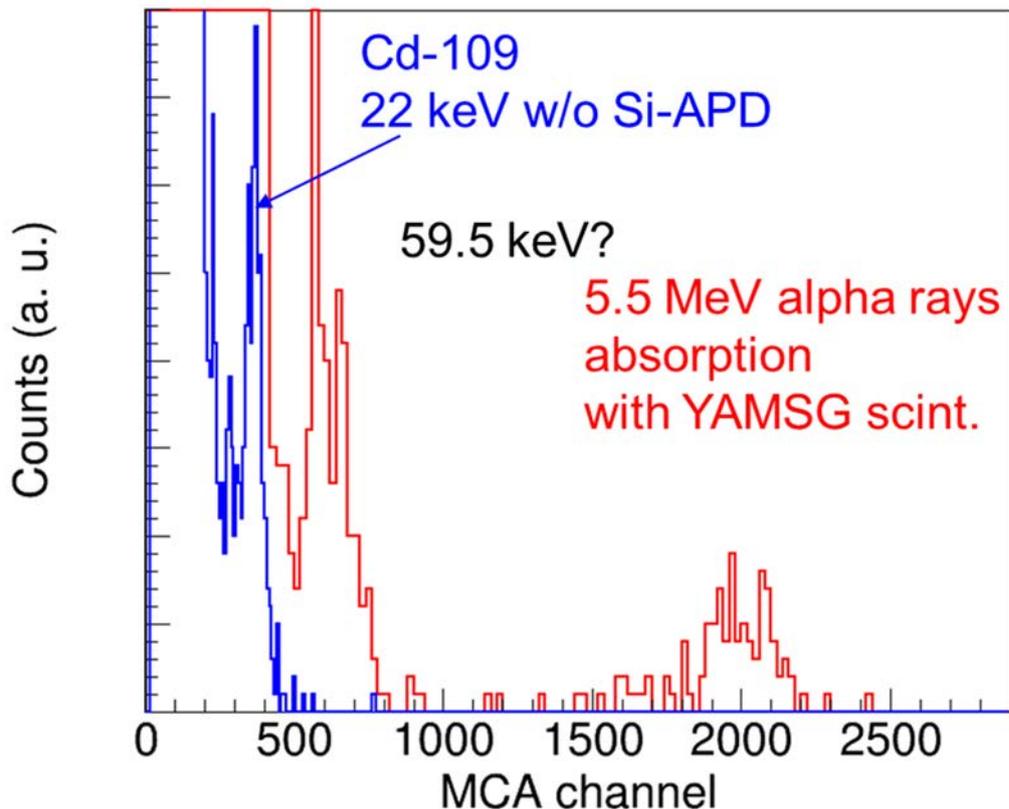


図 3.1.1-5 YAMSGの波高値スペクトル

この結果から、発光量は表 3.1.1-2の通り、求められたが、目標値の5.5 MeVのアルファ線入射で発光量が60,000光子という値を満たすことはできなかった。発光量については、結晶内に細かい気泡があるなどの原因も考えられるので、この結果のみから、当該材料は利用できないと結論付けることは難しいが、まずは前年度までに目標を達成している、 $(\text{Gd}_{1-0.01-y}\text{Ce}_{0.01}\text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ をベースとして、撮像にすすむ。

また、前述以外の酸化物(共晶体を含む)についても、合成、探索を行ったが、 $(\text{Gd}_{1-0.01-y}\text{Ce}_{0.01}\text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ をベースの材料を超える発光量は達成されなかった。

さて、本年度に、新たに生じた要求として、ベータ線の排除という問題がある。これまで  
はガンマ線の排除のみを検討しており、 $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ については目標値である  
アルファ線 (5.5 MeV) の検出効率 (入射光子ないしは粒子数のうち、検出できる個数の割合)  
がガンマ線 (662 keV) のその10倍程以上という点は達成したが、ベータ線については定量的  
な評価が難しいという状況である。

形状について、当初予定では、図 3.1.1-6 のような案で研究に臨んでいたが、前述のようなベ  
ータ線への対応について、CLADS の方とも相談し、極力ベータ線感度も落とすため、粉体の形状  
についても検討する方向性になった。来年度は、その点について (2) アルファデブリ検出器の  
開発の①イメージング検出器の開発の項目として研究を進めることとした。

表 3.1.1-2 発光量のまとめ

$(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$	発光量 [光子/5.5 MeV アルファ]
y=0.5/3	~79,000
y=1.0/3	~60,000
y=1.5/3	~70,000
$(\text{Y}_{0.99} \text{Ce}_{0.01})_3\text{Mg}_x\text{Al}_{5-2x}\text{Si}_x\text{O}_{12}$	発光量 [光子/5.5 MeV アルファ]
x=0.5	~50,000
x=2.0	~42,000

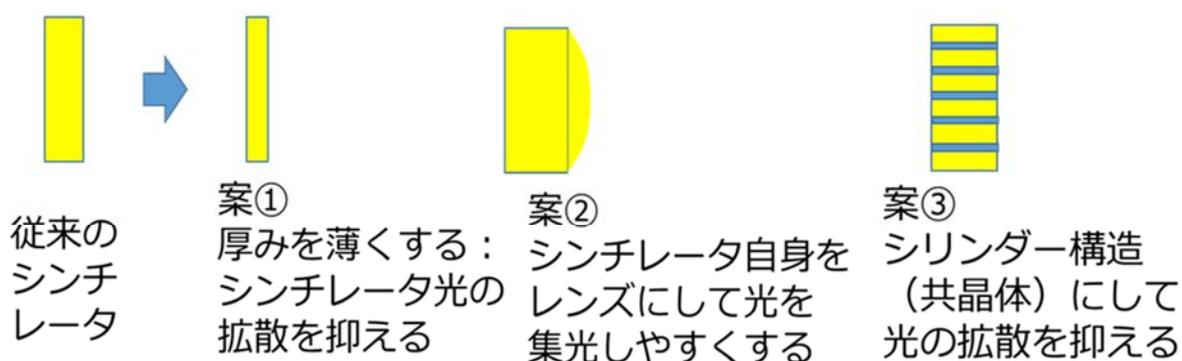


図 3.1.1-6 当初の形状の原案

参考文献

[3.1.1-1] S. Kurosawa *et al.*, “Optical properties of a Nd-doped  $\text{SrBr}_2$  crystal grown by the Bridgman technique”, *Journal of Crystal Growth*, 393 (2014) pp.163-166.

### 3.1.2 高発光量・長波長発光シンチレータ材料の開発

長波長発光シンチレータ材料として、本研究では臭化物、ヨウ化物に注目して結晶の育成を行った。これまでの研究から、 $\text{Cs}_2\text{HfCl}_6$  という塩化物材料が比較的高い発光量を持つことが分かっており [3.1.2-1]、“Cl”を“I”に置換、つまりこの塩化物をヨウ素化することで、発光機構として考えられる自己束縛励起子発光が長波長にシフトして、赤色になることを期待した。前年度に引き続き  $\text{Cs}_2\text{HfI}_6$  (以下、CHI) を中心に材料の探索を行った。具体的には、次の通りである。



ただし、 $\text{A}=\text{Na}, \text{K}, \text{Rb}, \text{Cs}$ 、および、 $\text{M}=\text{Hf}, \text{Zr}$  である。 $(\text{A}, \text{M}) = (\text{Cs}, \text{Hf})$  の組み合わせ以外が、本年度の新規部分となる。

結晶の育成には図 3.1.2-1 および図 3.1.2-2 のようなブリッジマン法を用いて実施した。ブリッジマン法では、原料粉末を入れたアンブルそのものを引き下げて、温度勾配をつけた空間を移動することで、融点を越えた空間で融液(メルト)になった原料粉末を、温度の低い空間にて固化させて結晶を得る方法である。

粉末原料としては、99%の純度の  $\text{HfI}_4$  および 同 99.999% の  $\text{CsI}$  などを用いた。CHI の融点は  $1000^\circ\text{C}$  に満たないため ( $820^\circ\text{C}$ )、アンブルにはイリジウムルツボに比べれば非常に安価な石英ガラスなどを用いることができ、コスト面での優位性が 3.1.1 で述べた材料に比べると大きい。

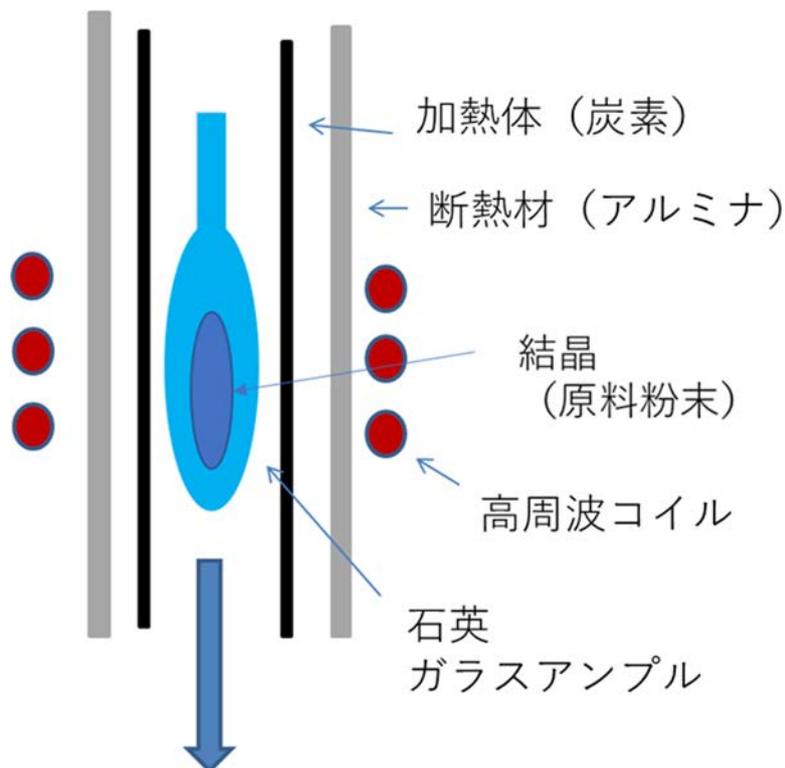


図 3.1.2-1 ブリッジマン法の概念図



図 3.1.2-2 ブリッジマン法での結晶育成の様子の写真

(3.1.2-1)式で表した組成については、図 3.1.2-3 のように、合成できた。ただし、 $K_2ZrI_6$  などは、バラバラな状態になってしまった。結晶合成のより最適な条件については、個々の材料で異なり、また、それぞれの最適化に時間がかかることから、本年度は、ある一定のバルク単結晶ができればそこで、終了とした。

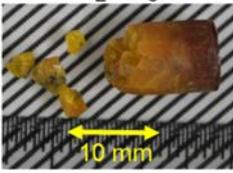
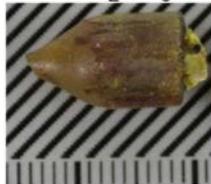
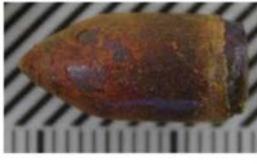
		A =			
		Na	K	Rb	Cs
M =	Hf	$Na_2HfI_6$ 	$K_2HfI_6$ 	$Rb_2HfI_6$ 	$Cs_2HfI_6$ 
	Zr	$Na_2ZrI_6$ 	$K_2ZrI_6$ 	$Rb_2ZrI_6$ 	$Cs_2ZrI_6$ 

図 3.1.2-3 合成した結晶の写真

また、原材料の中にはもともと不純物を含むものもあり、そのためのゾーンメルト法による高純度化については、高線量下モニタなどへの展開の結晶合成などのステップとして、部材の購入はすんでおり、来年度以降に対応する。

発光波長については、図 3.1.2-4 および図 3.1.2-5 のようになった。

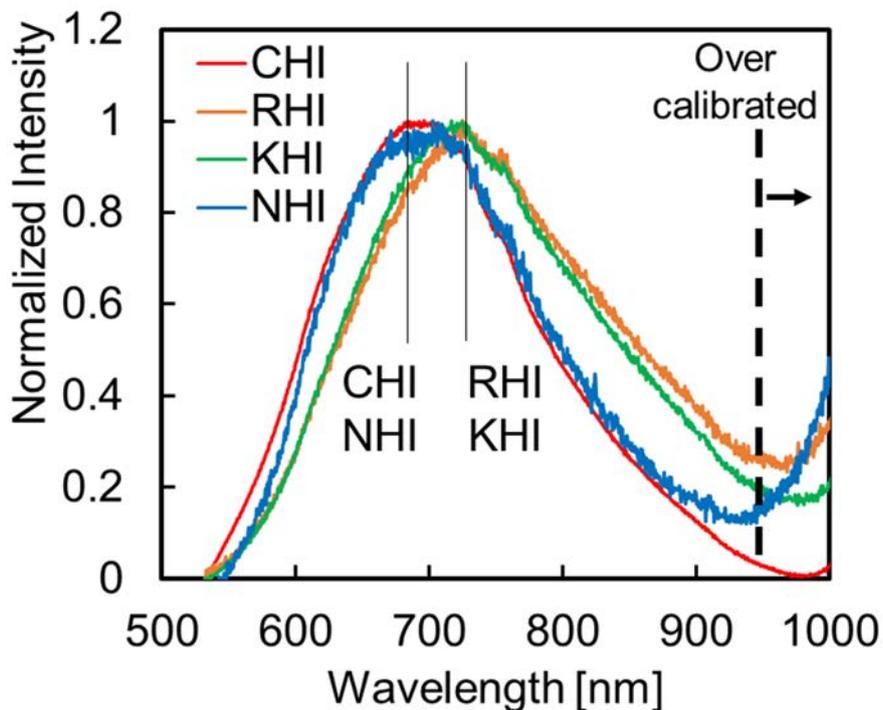


図 3.1.2-4 M=Hf での発光スペクトル

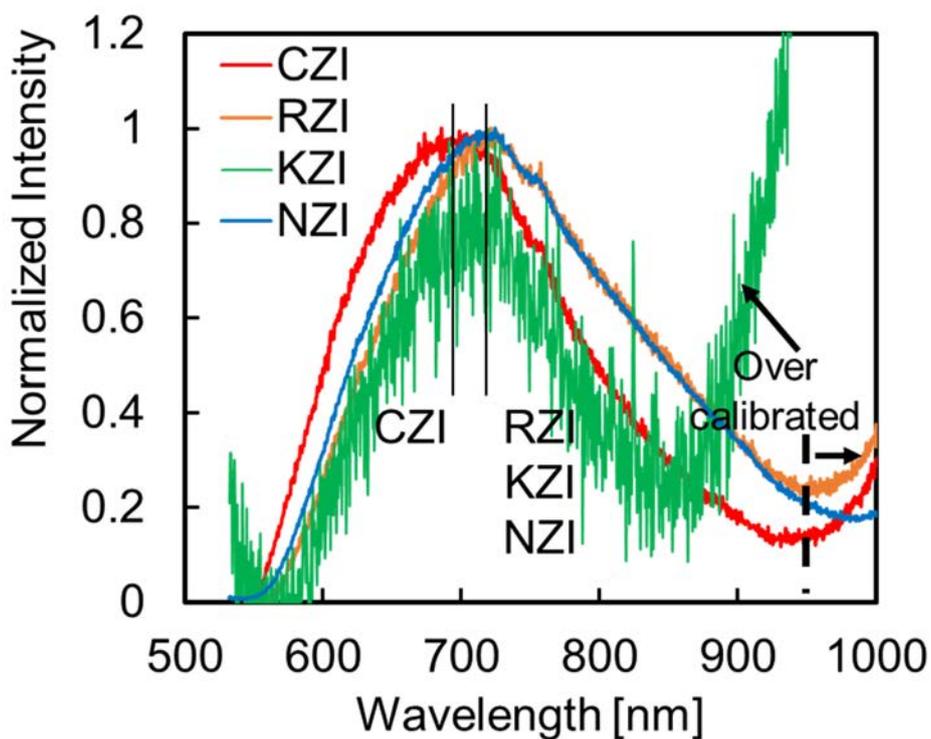


図 3.1.2-5 M=Zr での発光スペクトル

これらの発光量についても、図 3.1.1-4 と同様のセットアップで測定した。ただし図 3.1.1-4 と異なり、潮解性があるため、恒温槽(Thermostat chamber)ではなく乾燥気体(窒素)で満たしたグローブボックス内で行った。また、試しとしてより簡単なガンマ線による発光量の評価を行った。

その結果、図 3.1.2-6 のような波高値スペクトルを得ることができた。そして、RHI については、CHI と比べて、本年度合成品の中では、より明るいシンチレータは無いことが分かった。CHI については、すでに目標値を超えていることから、当該項目についても、CHI を候補材料として、高線量下モニタなどへの展開などへつなげる。

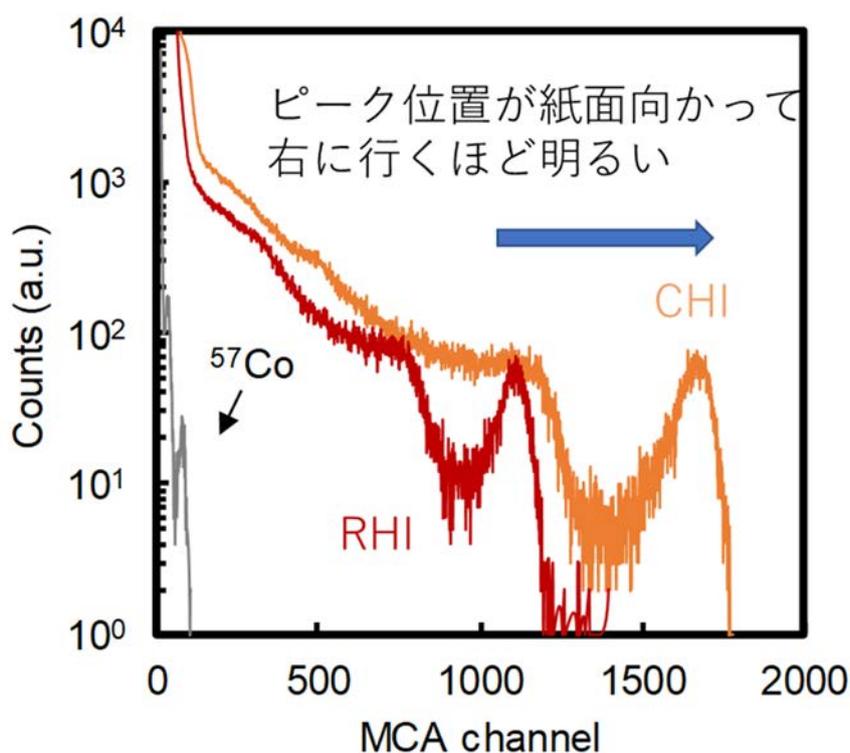


図 3.1.2-6 RHI の波高値スペクトル

なお、今回合成した単結晶のほとんどすべては、バルク単結晶合成が世界初であり、まだ単結晶構造解析も行われていない状態であった。結晶そのもののデータ(構造データ)などは、他分野への応用も含めて非常に重要であることから、本年度より構造解析にも着手しており、来年度以降に解析結果を発表していく予定である。

#### 参考文献

[3.1.2-1] S. Kurosawa *et al.*, “Cesium Hafnium Chloride Scintillator Coupled with an Avalanche Photodiode Photodetector” *Journal of Instrumentation*, 12, (2017) C02042.

### 3.2 アルファデブリ検出器の開発

#### 3.2.1 イメージング検出器の開発

前年度に購入したレンズなどを組み合わせて、図 3.2.1-1 および-2 のようにアルファデブリ検出器を設計して、構築した。

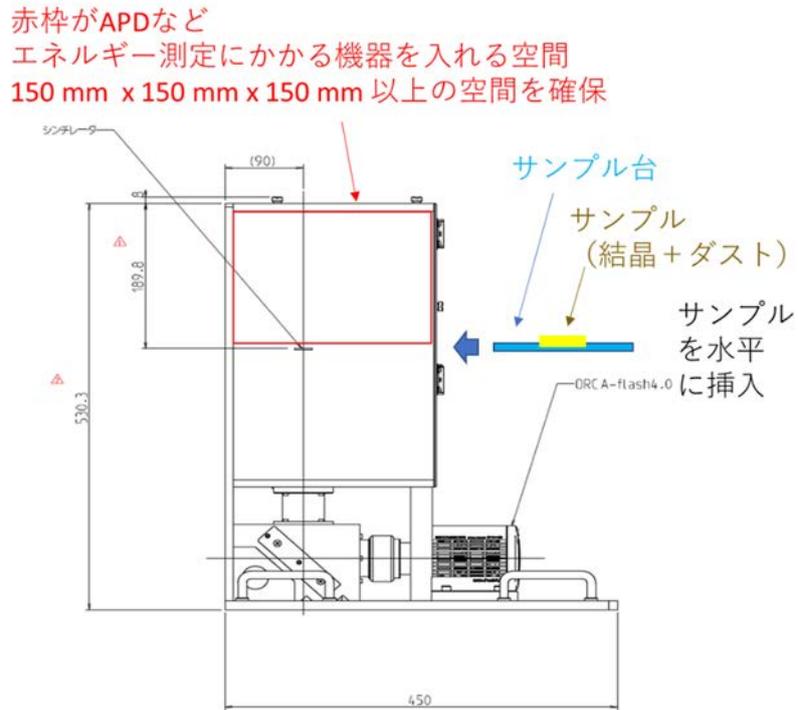


図 3.2.1-1 アルファデブリ検出器の設計概念図

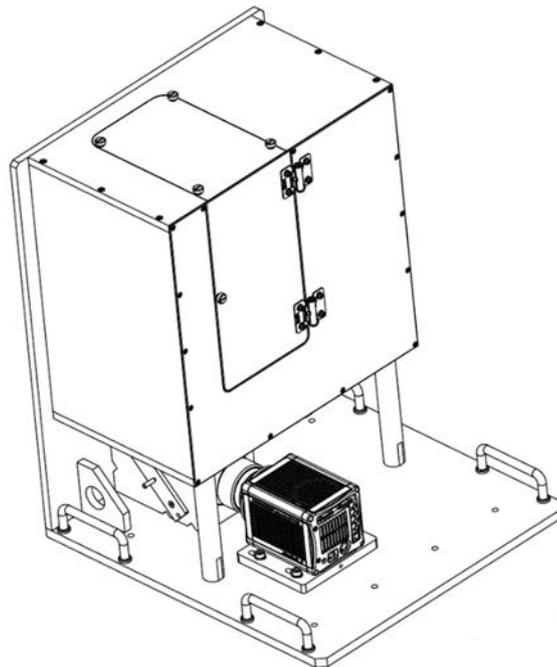


図 3.2.1-2 アルファデブリ検出器の3次元立体図

なお、アルファデブリ検出器の名称は、厳密には本研究に則ったデブリを測定するものであり、アルファダスト検出器のほうが適当な場合もある。また、当該検出器は、撮像を行う部分と、イメージングを行う部分からなる。図 3.2.1-3 には完成した一部の検出器（筐体など）を載せる。すでに撮像部分の動作確認は行っており、図 3.2.1-4 のように位置分解能の評価も実施した。来年度に、新規シンチレータの搭載、および、3.2.2 項で紹介する三菱電機社のイメージング装置をマウントする予定であり、それにより、検出器として完成する。



図 3.2.1-3 アルファデブリ検出器の外観

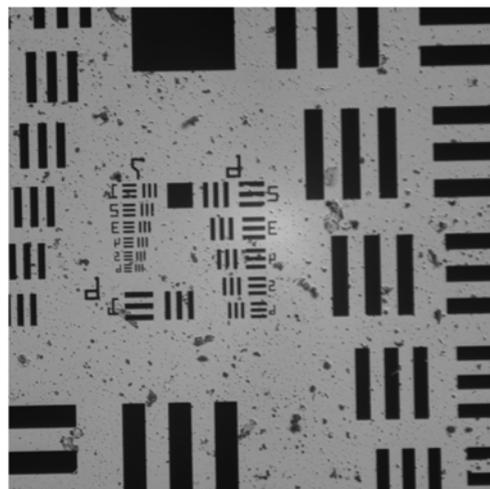


図 3.2.1-4 位置分解能評価の様子

### 3.2.2 エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）

汎用のシンチレータと光電子増倍管および放射線計測用信号処理回路、シリコン半導体検出器と放射線計測用信号処理回路を用いて簡易的なエネルギー測定装置を構築し、密封放射線源から放出される放射線のエネルギースペクトルを測定し、実環境でのノイズ要因も含めた環境で適した検出器での装置構成を選定し、エネルギー測定部分のデータを取得した。

#### (1) 光電子増倍管を用いたエネルギースペクトルの測定

汎用のシンチレータと光電子増倍管および放射線計測用信号処理回路を用いてアルファ線のエネルギーを測定した。測定装置の構成を図 3.2.2.1-1 におよび表 3.2.2.1-1 に示す。光電子増倍管は角型の R7600U を使い、厚さ 0.5 mm のプラスチックシンチレータを光電子増倍管の光学窓に合わせ 15 mm 角にカットした。

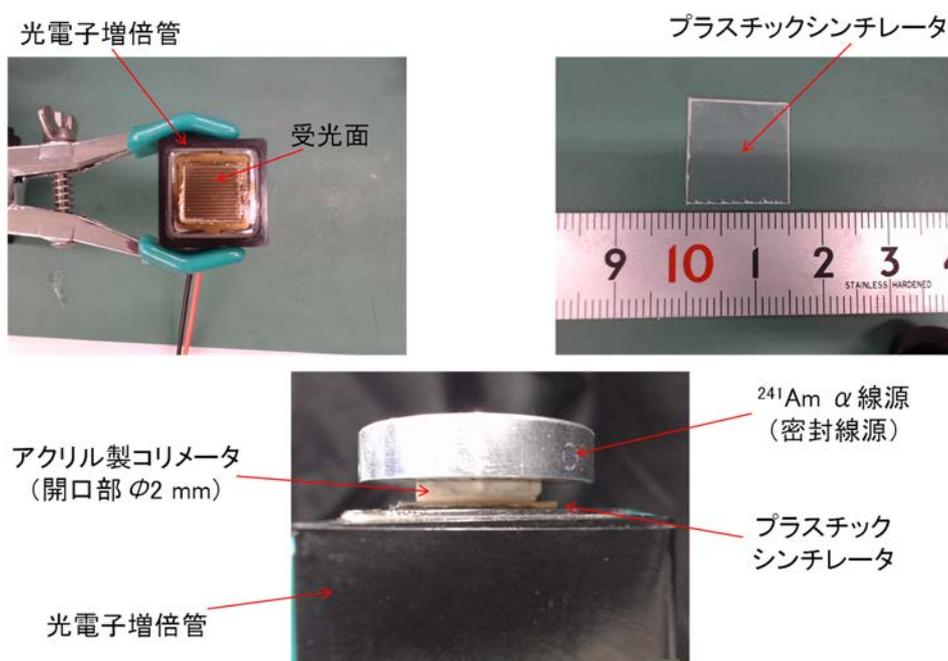


図 3.2.2.1-1 光電子増倍管を用いた測定装置のセットアップ

表 3.2.2.1-1 光電子増倍管を用いた測定条件

光電子増倍管	浜松ホトニクス製 R7600U
シンチレータ	プラスチックシンチレータ (厚さ: 0.5 mm、反射材なし)
コリメータ	アクリル (厚さ: 2 mm、開口部: Φ2 mm)
線源	<sup>241</sup> Am アルファ線源 <sup>90</sup> Sr ベータ線源

図 3.2.2.1-2 に光電子増倍管を用いたエネルギースペクトル取得結果を示す。図の横軸はアルファ線のエネルギーを示しており、エネルギー校正では  $^{241}\text{Am}$  のガンマ線 59.5 keV のピークを用いて校正を行った。 $^{241}\text{Am}$  からのアルファ線のエネルギー 5.5 MeV であるが、空気中での減衰に加えて、シンチレータの電子とアルファ線での発光効率の違いである  $\alpha/\beta$  比が 0.07 と小さい[3.2.2-1]ことによる影響で 0.3 MeV にアルファ線のピークが検出された。

実際の測定環境ではアルファ線核種だけではなく、ベータ線放出核種もスミヤロ紙に付着することが想定される。このためアルファ線源でのスペクトルに加えてベータ線源を使ったスペクトル計測を行いベータ線の影響も評価を実施した。図 3.2.2.1-2 にアルファ線スペクトルと比較用に  $^{90}\text{Sr}$  でのスペクトルも示した。その結果、ベータ線のスペクトルはアルファ線のピークと重なりベータ線の影響が大きいことが分かった。

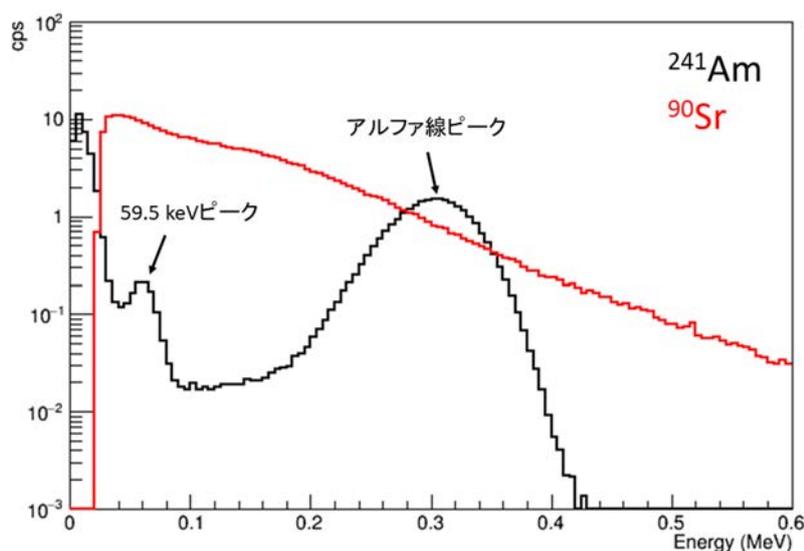


図 3.2.2.1-2 光電子増倍管を用いたエネルギースペクトル取得結果

## (2) シリコン半導体検出器を用いたエネルギースペクトルの測定

シリコン半導体検出器 (PD) および放射線計測用信号処理回路を用いてアルファ線のエネルギーを測定した。測定装置の構成を図 3.2.2.2-1 および表 3.2.2-1 に示す。シリコン半導体検出器としては PIN 型ダイオード型の S3590-09 を用いた。

シリコン半導体検出器として S3590-09 を選定した理由としては、検出器面の封止材が無くアルファ線への感度が高いこと。また印加電圧として 5 V 程度でアルファ線へ十分な検出感度を有するので、イメージング装置と組み合わせた際のサイズ制約へ大きな影響を与えないことが挙げられる。

線源配置は光電子増倍管での計測時と同じものにした。装置構成は図 3.2.2.2-1 に示したように、シリコン半導体検出器へのバイアス電圧印加用の電源 (菊水 401) と半導体検出器用の増幅率の大きいプリアンプ (580H) を用いた。プリアンプ以降の構成は光電子増倍管での測定と同じものを用いた。測定条件は表 3.2.2-1 のように検出器のみ変更してコリメータおよび線源は表 3.2.2.1-1 での測定と同等のものとした。

### 3.2-4

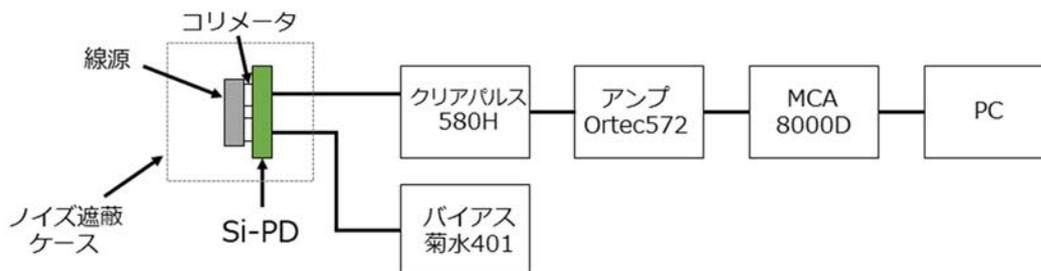


図 3.2.2.2-1 シリコン半導体検出器を用いた測定装置構成

表 3.2.2-1 シリコン半導体検出器を用いた測定条件

半導体検出器	浜松ホトニクス 3590-09
コリメータ	アクリル (厚さ: 2 mm、開口部: $\Phi 2$ mm)
線源	$^{241}\text{Am}$ アルファ線源 $^{90}\text{Sr}$ ベータ線源

図 3.2.2.2-2 にシリコン半導体検出器でのアルファ線スペクトルとベータ線スペクトルの測定結果を示した。光電子増倍管を使った測定と同様にアルファ線の全吸収ピークが検出された。またシリコン半導体検出器でのスペクトルでは 59.5 keV のピークで構成した際にアルファ線の全吸収ピークのエネルギーは 4.6 MeV となった。半導体検出器ではシンチレータのように電子とアルファ線での違いは無く、放射線の種類に関係なく付与エネルギーに比例して電子・正孔ペアが作られるので、シンチレータでの計測と異なり線源のエネルギー 5.5 MeV に近いエネルギーにピークが検出される。ベータ線のスペクトルは今回の測定では最大エネルギーは 1.5 MeV となり、アルファ線の全吸収ピークへの影響が無いことが確認された。また半導体検出器はエネルギー分解能に影響を与えるファノ因子がシンチレータよりも小さいためエネルギー分解能が向上している [3.2.2-2]。

実際の環境ではベータ線の影響が大きいことが考えられることから、今回の測定結果から、アルファ線の全吸収ピークが影響を受けず、アンフォールディング法への適用が適しているシリコン半導体検出器によるエネルギー取得がより適していると考えられる。今後、シリコン半導体検出器によるエネルギー取得部の開発を進め、イメージ取得部と同時取得できる計測システムを検討する。

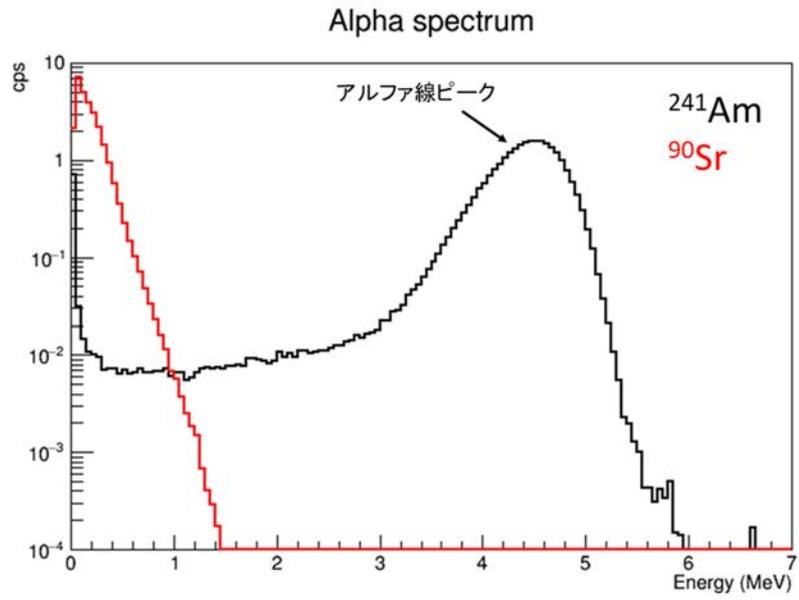


図 3.2.2.2-2 シリコン半導体検出器を用いたエネルギースペクトル取得結果

### (3) アンフォールディング法の適用性検証（再委託先：三菱電機）

アンフォールディング法には粒子輸送計算による応答関数の作成が必要である。この応答関数精度がアンフォールディング法の結果へ影響を及ぼす。そのため 3.1 でのアルファ線スペクトルと粒子輸送計算によるスペクトルの比較を行い再現性の確認。粒子輸送計算によって応答関数を作成し、作成した応答関数を用いて 3.1 でのアルファ線スペクトルに対して逐次近似法によるアンフォールディング法を適用。アンフォールディング法によって得られたエネルギースペクトルが  $^{241}\text{Am}$  から放出されるアルファ線のエネルギースペクトルと一致することからアンフォールディング法が適用できることを確認した。

#### ①粒子輸送計算によるアルファ線スペクトルの生成

本研究では、放射性物質の核種同定を精度良く行うために、測定したエネルギースペクトルに対しアンフォールディング法[3.2.3-1]を適用する。測定値に十分な統計精度が確保できている場合、アンフォールディングで得られる線源のエネルギースペクトルの精度は応答関数の精度に依存する。アルファダスト検出装置におけるアンフォールディング手法では、応答関数は単色エネルギーのアルファ線をシリコン半導体検出器測定した場合のエネルギースペクトルとなる。応答関数は粒子輸送計算と電荷収集シミュレーションによる解析で求めるため、アンフォールディングで得られる線源のエネルギースペクトルは、シミュレーションによる計算結果が測定結果をどの程度再現できているかに依存するため、測定条件に合った検出器の応答関数を精度良く計算する必要がある。

そこで、測定結果と、測定を模擬したシミュレーション結果(Geant4[3.2.3-2])との比較を行い、図 3.2.3.1-1 に、(2) に示した測定結果とシミュレーションによるアルファ線スペクトルとの比較を示す。図より、0.5 MeV から 5.5 MeV の範囲でシミュレーション結果がシリコン半導体検出器での測定結果をよく再現できしており、特にアルファ線の全吸収ピーク形状を 5 %以内の精度で再現できることが確認できた。このことから今回導入した粒子輸送計算による応答関数が十分な精度で作成できると考えられる。

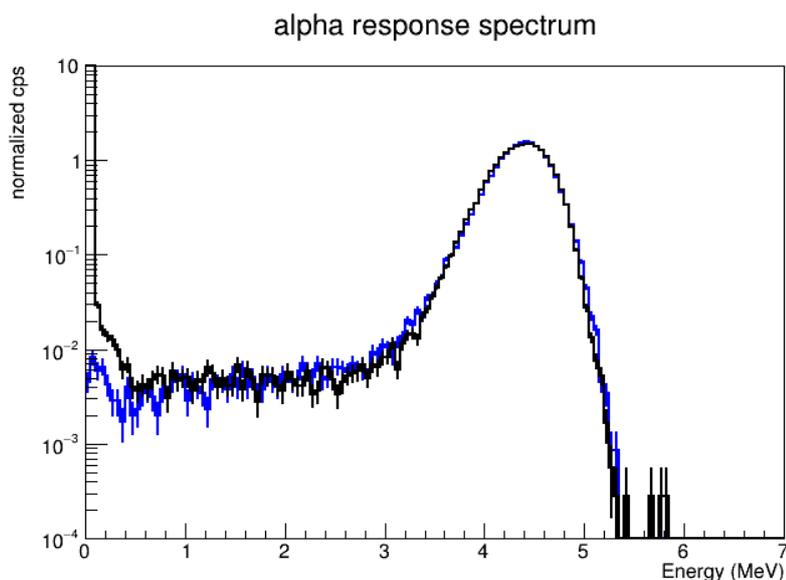


図 3.2.3.1-1 測定値とシミュレーション結果の比較

3.2-7

②粒子輸送計算による応答関数

応答関数は0.05 MeVから7.0 MeVまで0.05 MeVごとの合計140エネルギー分を用意した。応答関数でのアルファ線源のエネルギーと検出器での付与エネルギーを二次元で表した図が図3.2.3.2-1である。2.0 MeV以下のアルファ線は線源から検出器までの空気による減衰により検出器には到達できないことが分かる。2.0 MeV以上ではアルファ線の全吸収ピークが形成されていることが分かる。この応答関数を使って図3.2.3.1-1で得られたようなアルファ線スペクトルにアンフォールディング法を適用する。

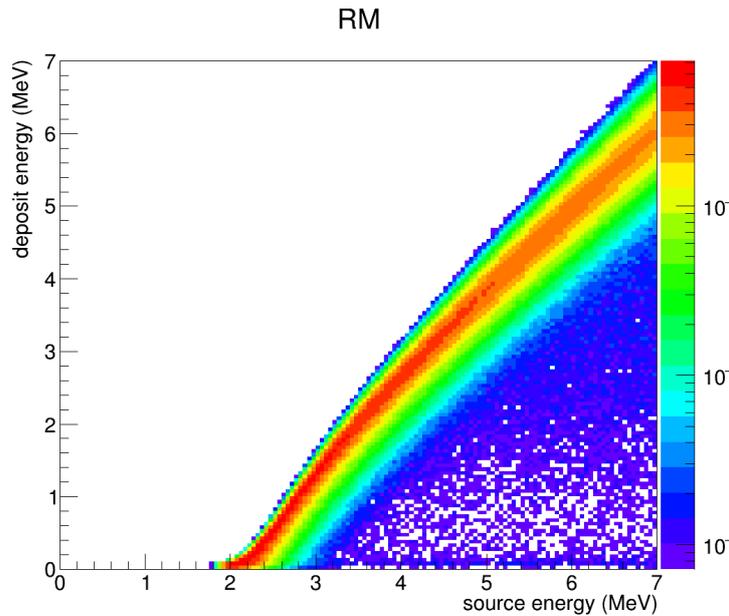


図 3.2.3.2-1 応答関数での線源エネルギーと検出器付与エネルギーの関係

③逐次近似法によるアンフォールディング法の適用

アンフォールディング法としては解の収束性が良い逐次近似法の適用性を評価した[3.6]。逐次近似法では初期の線源スペクトルとして測定スペクトルとして用いることで、アルファ線の吸収ピーク構造をより正確に捉えることができ解の収束性が良い。逐次近似法では測定結果の推定値  $M'$  を応答関数  $R$  と推定線源スペクトル  $S$  との掛け算で計算する。この計算結果を測定結果  $M$  と比較することで次の推定線源スペクトル  $S'$  を  $M/M' \times S$  として計算する。この  $S'$  を先の  $M'$  の計算の  $S$  として用いて、繰り返し計算をすることで逐次的に線源推定スペクトルを求める。測定結果の推定値と測定結果がほぼ一致する  $S$  を線源スペクトルとみなすことができる。

今回の逐次近似法では繰り返し回数は解が十分に収束する 10,000 回に設定した。計算に有する速度は1秒以下で現地でのリアルタイムで適用できることが確認された。アンフォールディング法を適用した時のスペクトルを図3.2.3.3-1に示した。5.5 MeVにピークが検出され、このピークはエネルギーから  $^{241}\text{Am}$  からのアルファ線、5.49 MeVと対応しており、正しく線源スペクトルを得られていることが確認された。今回のアンフォールディング法に用いた応答関数は50 keV幅で作っているため、核種弁別の性能としてはエネルギー幅に対応する50 keVとなる。

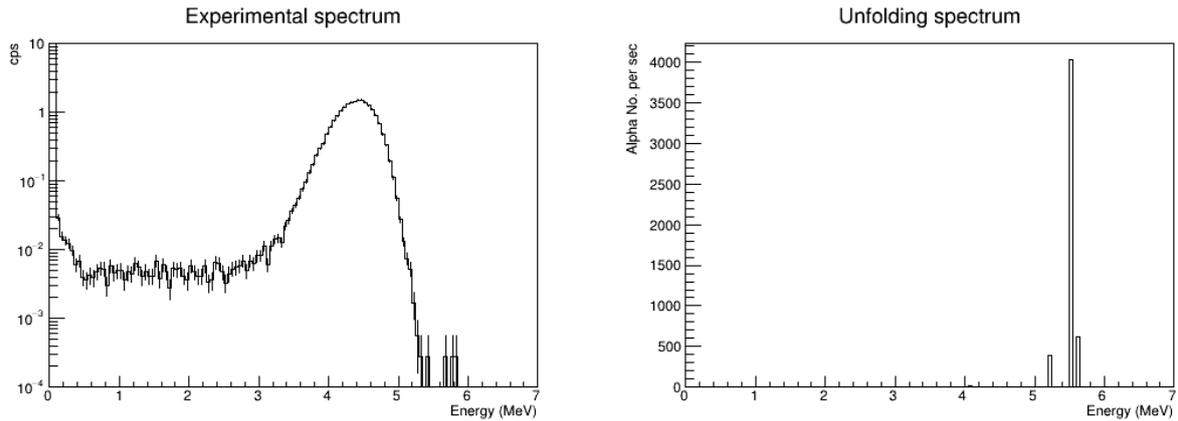


図 3.2.3.3-1 測定（左）とアンフォールディング適用後のスペクトル（右）

今回作成して適用した応答関数は（2）での測定系に合わせて作成したものである。現地でスミヤ法により取得したサンプルについては、測定系に合わせた応答関数が必要となるため、今後、プロトタイプ機での測定系に合わせた応答関数を作成する。

#### 参考文献

- [3.2.2-1] J. Czirr, “The  $\alpha/\beta$  ratio of several organic scintillators”, Nuclear Instruments and Methods 25, (1963) pp.106-108.
- [3.2.2-2] G. Knoll 著, 神野郁夫 他訳, “放射線計測ハンドブック 第4版”, オーム社, (2013). (ISBN 978-4274214493).
- [3.2.3-1] 林 真照, 他, “アンフォールディング手法を用いた NaI(Tl) シンチレーション式食品放射能分析装置の開発”, KEK Proceedings 2014-7, (2014) pp.352-360.
- [3.2.3-2] J. Allison, *et al.*, “Recent developments in Geant4”, Nuclear Instruments and Methods A 835, (2016) pp.186-225.

### 3.2.3 実証試験（再委託先：JAEA）

#### (1) 超高位置分解能アルファ線イメージング装置

JAEA では、CCD カメラと光学顕微鏡を組み合わせた超高位置分解能アルファ線イメージング装置の開発を行った（図 3.2.4.1-1）。光学顕微鏡にはオリンパス社の BX53MRF-S を用いた。光学倍率が 5 倍、10 倍、20 倍、50 倍の対物レンズを有している。この光学顕微鏡に CCD カメラをマウントして構成した。CCD カメラには浜松ホトニクス社の電子増倍 CCD カメラ（EMCCD カメラ）である ImagEM X2（Hamamatsu Photonics K.K., Shizuoka, Japan）を用いた。EMCCD カメラからの出力信号が IEEE1394 ケーブルを介して PC に伝送される。収集ソフトは、時間積算の画像取得のための“Acquire mode”と任意の時間毎の画像取得のための“Sequence mode”の機能を持っている。熱ノイズの低減のため、EMCCD カメラはスイッチを入れた後自動で $-65^{\circ}\text{C}$ まで冷却される。アルファ線源を X-Y-Z ステージ上に置き、ZnS(Ag)シンチレータシート（EJ-440, Eljen Technology, TX, USA）を密接して置く。暗幕は外部光の遮光のために用い、CCD カメラと光学顕微鏡を覆う。

なお、当初は 1F からサンプル採取を予定していたが、実際にサンプル採取を実施した結果、採取場所と時間が限られ、本測定のために適するサンプルが無かったため、代用サンプルを用いた。

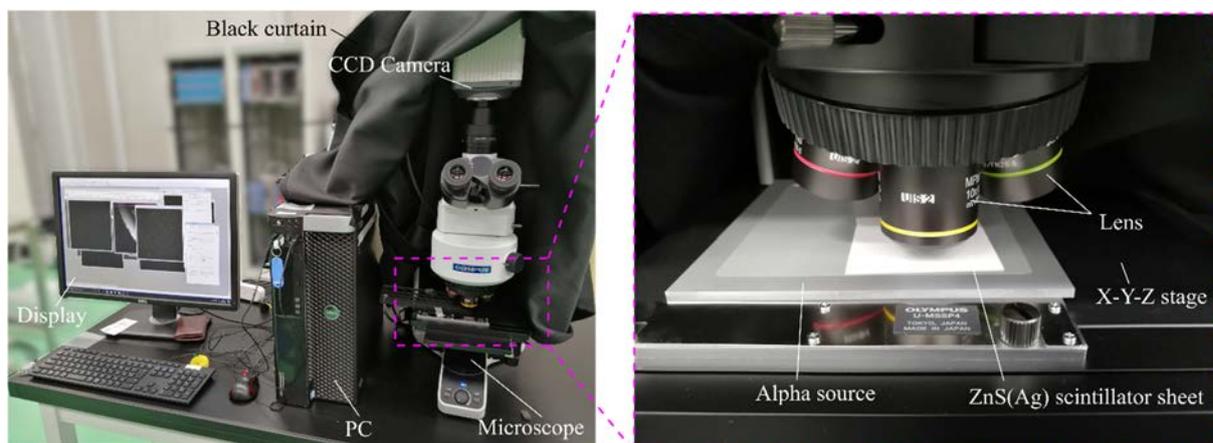


図 3.2.4.1-1 超高位置分解能アルファ線イメージング装置

#### (2) 光学画像の撮像

光学画像の撮像の際は、暗幕をあけ部屋の照明を点けた状態で測定を行った。ゲイン（EMゲイン）は 0 にセットした。焦点位置を合わせた後、キャリブレーションのためのテストチャートを用いて画像のピクセルと実際の距離の校正を行った。倍率を 5 倍、10 倍、20 倍を変えて撮像を行った。

#### (3) アルファ線のイメージング

光学画像の撮像の際は、暗幕を閉じ部屋の照明を消した状態で測定を行った。ゲイン（EMゲイン）は 255（最大）にセットした。100 mm×100 mm の 3.44 kBq の  $^{241}\text{Am}$  線源を使用し、その上に ZnS(Ag)シンチレータを置いた。焦点位置は ZnS(Ag)シンチレータの表面（シンチレータの粒子が見える位置）に合わせた。

(4) プルトニウム粒子の測定

単一のプルトニウム粒子が存在する試料を用い、測定を行った。試料を X-Y-Z ステージ上に置き、ZnS(Ag)シンチレータシート (EJ-440, Eljen Technology, TX, USA) を密接して置いた。“Acquire mode” と “Sequence mode” の両方で測定を行った。比較のため、ZnS(Ag)シンチレーション検出器を用いて同じ試料の測定を行った。“Sequence mode” での測定の際は 50 msec 間隔で測定を行った。

(5) 試験結果

① 光学画像の撮像

図 3.2.5.1-1 に光学倍率を 5 倍、10 倍、20 倍変えたときのテストチャートの光学画像を示す。スリット幅は 25  $\mu\text{m}$  である。表 3.2.5.1-1 に光学倍率と分解能、視野の関係を示す。分解能と視野はトレードオフの関係となっており、光学倍率を上げると分解能は良くなるが視野が狭くなる。逆もまた然りである。被曝評価に用いられるプルトニウム粒子の粒径は 1-5  $\mu\text{m}$  程度とされているため、20 倍の倍率でもその粒径に迫ることは可能である。

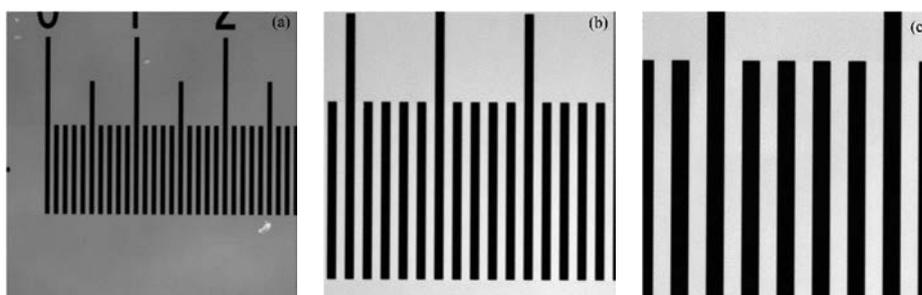


図 3.2.5.1-1 各倍率でのテストチャートの光学画像  
(a)5 倍, (b)10 倍, (c)20 倍, スリット幅は 25  $\mu\text{m}$

表 3.2.5.1-1 光学倍率と分解能、視野の関係

Zoom	Resolution (Distance / Pixel)	Field of View
5 x	3.28 $\mu\text{m}$	1679.4 $\mu\text{m}$ $\times$ 1679.4 $\mu\text{m}$
10 x	1.63 $\mu\text{m}$	835.0 $\mu\text{m}$ $\times$ 835.0 $\mu\text{m}$
20 x	0.81 $\mu\text{m}$	412.9 $\mu\text{m}$ $\times$ 412.9 $\mu\text{m}$

### ②アルファ線のイメージング

図 3.2.5.2-1 に光学倍率を 5 倍、10 倍、20 倍に変えたときのアルファ線の画像を示す。これは 1 発のアルファ線が入射した位置を示している。光学倍率を上げることで、アルファ線の形状がより精細に確認できる。図 3.2.5.2-2 にアルファ線の強度プロファイルを示す。アルファ線の強度プロファイルの半値幅をガウシアンフィッティングで評価すると、17.9  $\mu\text{m}$  FWHM であった。

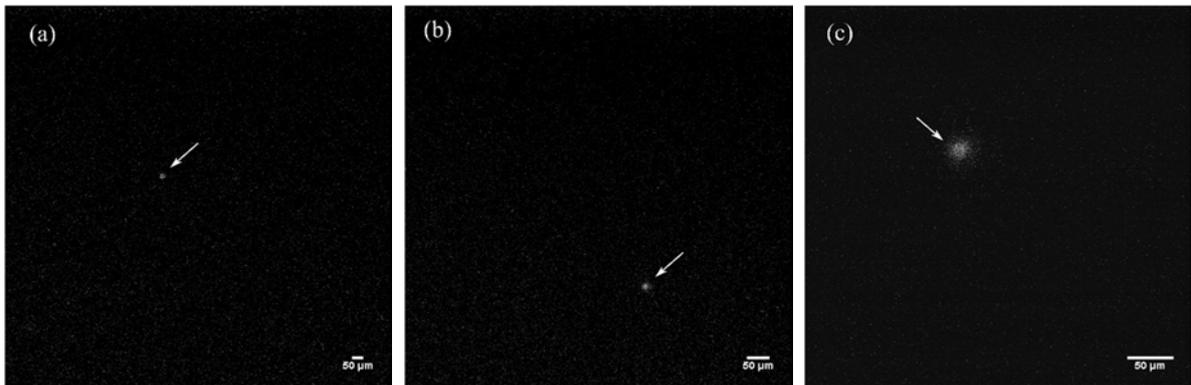


図 3.2.5.2-1 各倍率でのアルファ線の画像

(a)5 倍, (b)10 倍, (c)20 倍

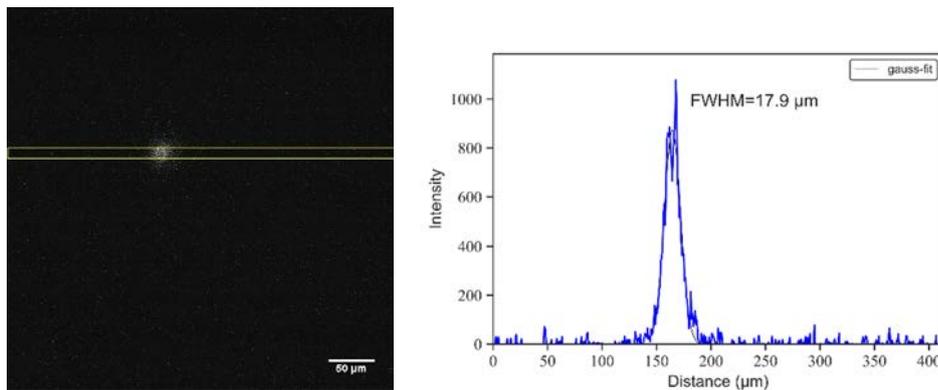


図 3.2.5.2-2 アルファ線の強度プロファイル 左は設定した関心領域

### ③プルトニウム粒子の測定

図 3.2.5.3-1 に単一のプルトニウム粒子から放出されるアルファ線の画像を示す。光学倍率 5 倍、測定時間はそれぞれ、1 分、2 分、3 分であった。また、図 3.2.5.3-2 に光学倍率 5 倍、30 分測定 of アルファ線画像および光学倍率 20 倍、1 時間測定 of アルファ線画像を示す。単一のプルトニウム粒子から放出される 1 つ 1 つのアルファ線が重なって 1 つの集合体を形成している。測定時間を長くするとより多くのアルファ線が重なっていた。50 msec 間隔の“Sequence mode”で測定すると、1 つ 1 つのアルファ線画像を取得することができる。このアルファ線の個数をカウントすることによって、計数率の測定が可能である。図 3.2.5.3-3 に測定時間ごとの計数値変化を示す。計数時間を増やすにつれて、計数値が直線的に増加していることが分かる。超高位置分解能アルファ線イメージング装置と ZnS(Ag)シンチレーション検出器の計数値の比は、0.91 であり、妥当な結果であった。

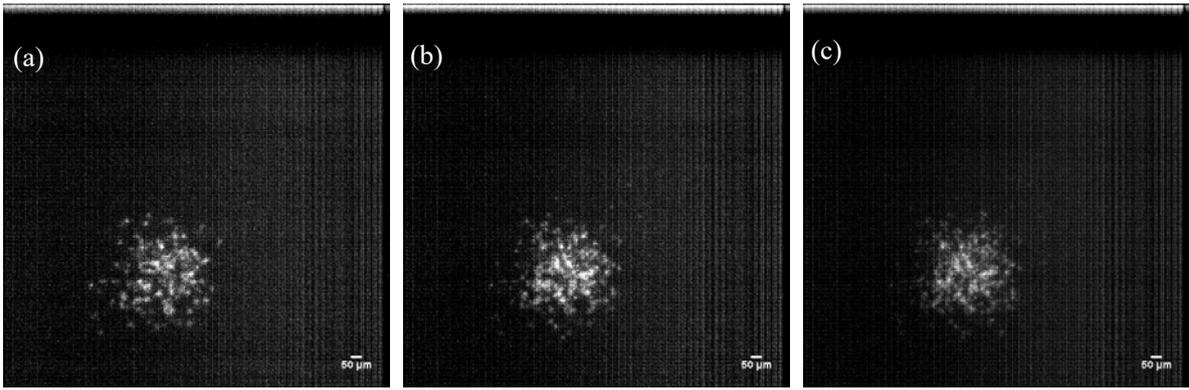


図 3.2.5.3-1 プルトニウム粒子から放出されるアルファ線の画像（光学倍率 5 倍）  
測定時間はそれぞれ、(a) 1 分、(b) 2 分、(c) 3 分

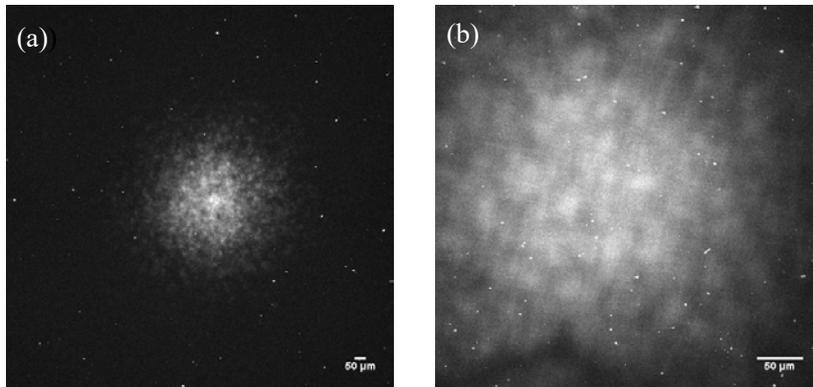


図 3.2.5.3-2 プルトニウム粒子から放出されるアルファ線の画像  
(a) 光学倍率 5 倍、30 分測定 (b) 光学倍率 20 倍、1 時間測定

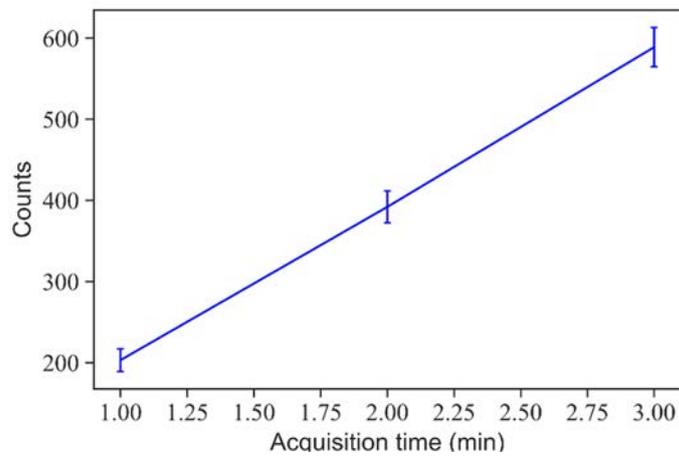


図 3.2.5.3-3 測定時間ごとの計数值変化

#### ④試験結果のまとめと考察

開発した超高位置分解能アルファ線イメージング装置を行い、その装置を用いたアルファ線源の測定とプルトニウム粒子の測定を行った。アルファ線の強度プロファイルの半値幅は17.9  $\mu\text{m}$  FWHM であり、過去の研究結果[3.2.5-1]を上回るものであった。今回使った EJ-440 の粒子径サイズは約8  $\mu\text{m}$  とされており、アルファ線が通過する際に複数個の EJ-440 粒子にエネルギーを付与し、それらが発光に寄与したものと考えられる。

本装置は従来のアルファ線イメージング装置と比べ幾つかの利点を有し、

- 1) 光学倍率を変えることができ、低倍率では広い視野での撮像が、高倍率では高い分解能での測定が可能である。高倍率にすることにより、アルファ線の形状とその分布がより精細に確認できる。
- 2) “Sequence mode” で測定することにより、アルファ線の計数率が測定できる。現場で放射能の測定に用いられている ZnS(Ag) シンチレーション検出器と比較しても妥当な計数値であった。

本装置を用いて測定した計数率から、プルトニウム粒子の放射能の評価が可能である。放射能の評価ができると、被曝評価に用いる粒子径である AMAD（空気力学的放射能中央径）の評価が可能になる。令和2年度以降この評価についても進めていく。

#### 参考文献

[3.2.5-1] S. Yamamoto, K. Kamada, A. Yoshikawa, “Ultrahigh resolution radiation imaging system using an optical fiber structure scintillator plate”, Scientific reports, 8(1), 3198, 1-10 (2018).

### 3.3 高線量モニタなどへの展開

#### 3.3.1 結晶育成

##### (1) 高線量モニタへの応用

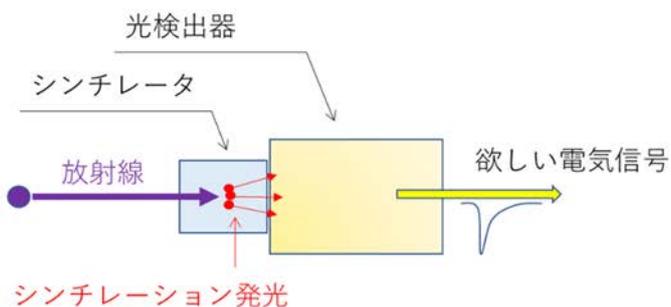
1F 1-3 号機では、廃炉手順の一つとして燃料デブリなど高線量放射性 “ごみ” の取り出しが、要求されており、これらの取り出しには、はじめに、「どのように “ごみ” が分布するか」を確認する必要がある。しかしながら、炉内の環境は非常に高い空間線量 (1 Sv/h 以上) を示すことから、数分以内などの比較的短期間で、その場の線量を知ることができるリアルタイムの線量計、サーベイメータといった放射線計測機器の利用は不可能である。これは、人が立ち入れない以外にも、放射線検出器が動作しないという問題のためである。

図 3.3.1-1 の②のように、高い線量の環境下では放射線によるノイズや、光検出器への損傷により正常な動作が保証できない。そこで、シンチレータは高い線量の炉内に入れるものの、光ファイバーを使ってシンチレータからの光を比較的線量の低いエリアまで取り出して、そこで光検出器で読み出すという方法が考えられている (図 3.3.1-1、③を参照、以下「分離型」)。この分離型の長所は、高線量場でも測定可能である点に加えて、光ファイバーを取り付けたシンチレータのみを、ロボット (台車) に載せて高線量場に運び、測定することができるため、システムとしては単純になる点である。

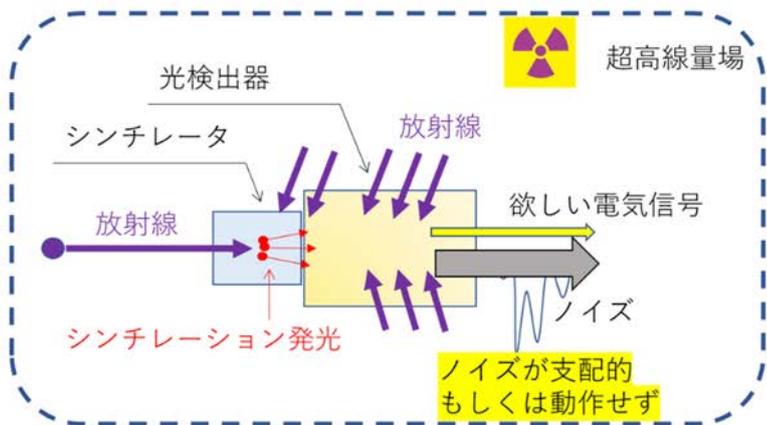
ただし、炉の外側の線量の低いエリアまでシンチレータの光を伝搬させる必要があるため、光ファイバーの長さは 100 m 程度、もしくは、それ以上の長さになる可能性がある。つまり、非常に明るいシンチレータである必要があるが、図 3.3.1-2 のように、既存のシンチレータの発光波長領域である 550 nm 以下では、伝達効率が低いという問題点があった。

そこで、3.1 節で開発している長波長シンチレータが、当該応用分野へも適用できることに気づき、実際に光ファイバーを利用して、分離型のプロトタイプ機器を立ち上げることにした。

① 低線量下でのシンチレータを用いた線量測定（一般的な測定）



② 超高線量下での測定の問題点



③ 光ファイバーを用いてシンチレータと光検出器を分離した方法（分離型）

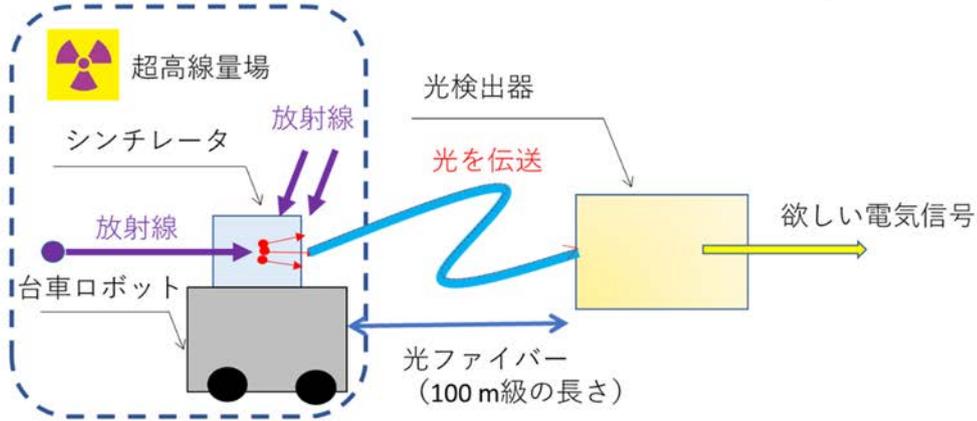


図 3.3.1-1 当該線量モニタの概念図

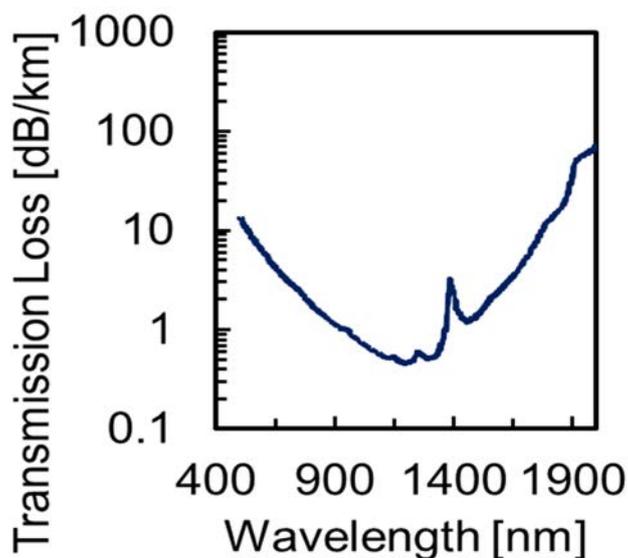


図 3.3.1-2 光ケーブルの伝送損失と波長の関係  
値が低いほど、透過率が良い。[3.3]をもとに作図

(2) サンプルの準備

これまでの結果から、一番発光量の明るいCHIを利用して、図 3.3.2-1のように、サンプルを準備した。CHI サンプルの厚みは約 1.0 mm で、潮解性があるために、透明なセメントで固めた。このセメントで固めた状態にあっても、図 3.3.2-2 のようにガンマ線 ( $^{137}\text{Cs}$  からの 662 keV) の照射で、図 3.1.1-4 に準拠したセットアップで、波高値スペクトルを取得して、発光量を求めると、約 63,000 光子/MeV と、セメントでパッケージする前 (約 64,000 光子/MeV) とほぼ同じ発光量が得られていることが分かった。ただし、 $^{57}\text{Co}$  からの X 線直接照射によって生じた Si-APD での光電子の数から、発光量を求めている。

また、分離型では、電流モードでの読み出しであるので、重要な指標ではないものの、当該測定 (シングル・フォトン・カウンティング法) エネルギー分解能も おおよそ 4.4 % (FWHM at 662 keV) と非常に良い値であった。

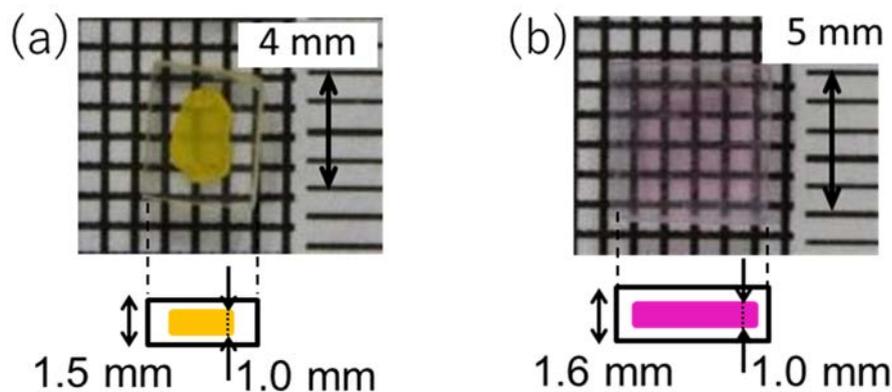


図 3.3.2-1 準備したサンプル  
(a)CHI, (b)ルビー

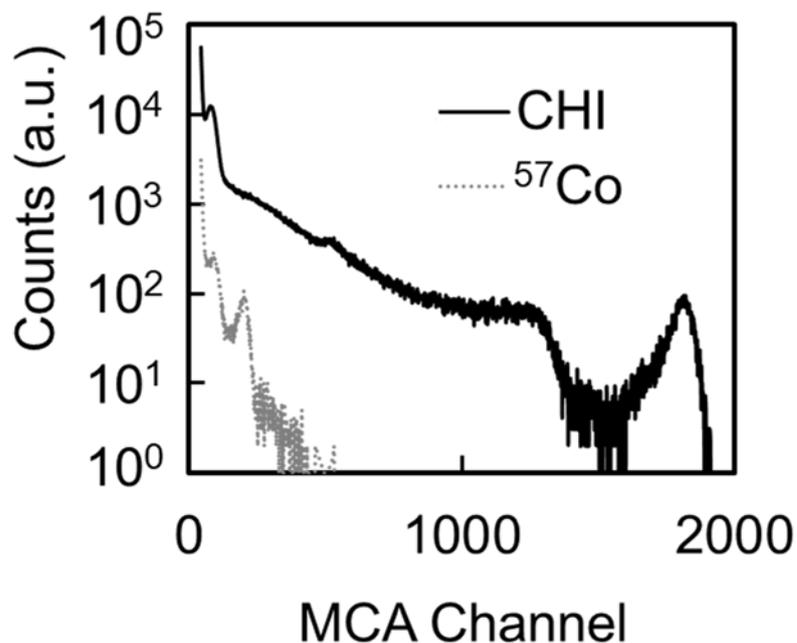


図 3.3.2-2 CHI セメントサンプルの波高値スペクトル

また、比較として、Cr 添加  $\alpha$ - $\text{Al}_2\text{O}_3$  結晶、いわゆるルビー結晶(Ruby)、も潮解性はないものの、セメントでパッケージした(図 3.3.2-1, (b))。ルビー結晶は、シンチレータとしての応用例はまれであるが、長波長(赤色)発光体として、よく知られた材料であり、レーザーなどの分野は汎用材料の一つである。ただし、ルビーについては、蛍光寿命が 100 マイクロ秒以上であることから、シングル・フォトン・カウンティング法による発光量評価ができないため、図 3.3.2-1 のような波高値スペクトルは得られない。そのため、正確な発光量の評価は難しい状態であるが、CHI に比べて発光量が劣っていることは、半定量的にも分かるレベルである。

今回、CHI については、図 3.3.2-1 の写真の目視からも分かるように半透明である。これについては、結晶合成の最適化が必要であり、最適化作業の一つとして、不純物を取り除く作業が挙げられる。ヨウ化物などは、特に  $\text{HfI}_4$  などで、もともと需要が無いこともあり、高純度の原料粉末の入手が困難である。そこで、図 3.3.2-3 のように、ゾーンメルト法による原料の高純度化のための部材を購入した。これらをもって、来年度は結晶の品質の向上について、検討する。



図 3.3.2-3 ゾーンメルト法のための部材

(3) 実証試験のセットアップ

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、光ファイバーを用いた分離型の実証試験を実施した。セットアップは図 3.3.3-1 および-2 の通りである。

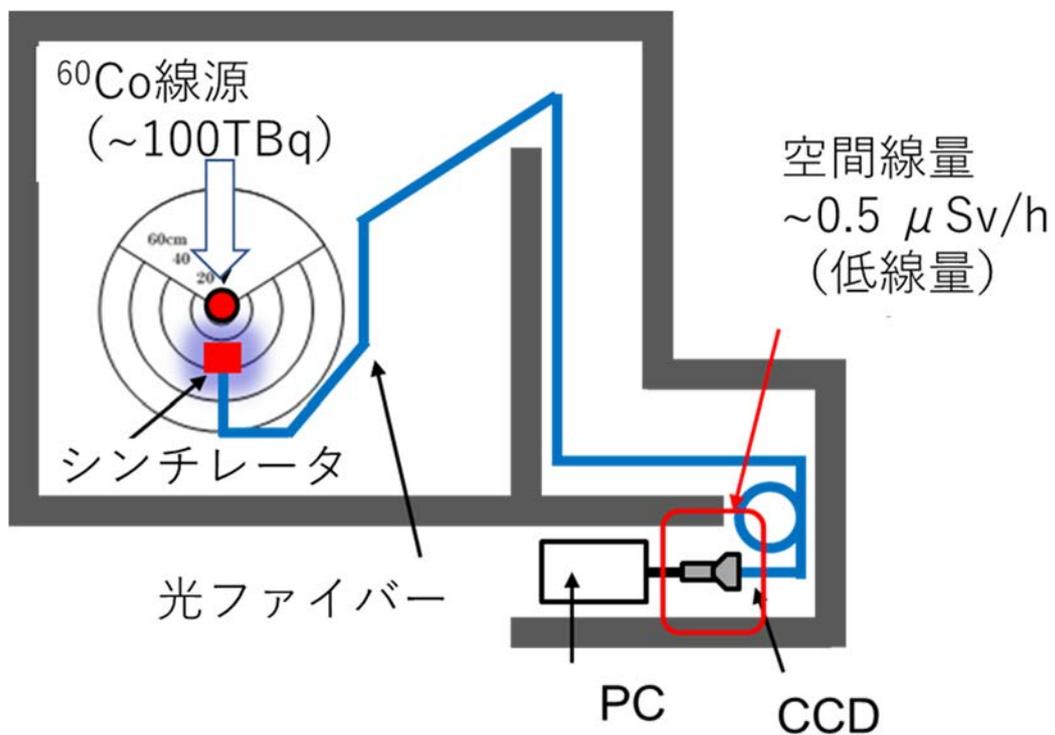


図 3.3.3-1 京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 照射施設での  
セットアップ概念図

ここで、シンチレータの光を読み出す光ファイバーには、フジクラ製の 20 m 長のファイバー (S. 600/600B) を利用した。なお、組成としては、純 SiO<sub>2</sub> 低 OH<sup>-</sup> タイプと呼ばれるもので、コアの直径は 600±30 μm のものを選択した。当然、コアを大きくしたほうが、より多い光を伝達できるが、曲げ半径の制限や、現在入手できるファイバーの種類などの制限から、当該ファイバーを選択した。また、長さについても同様である。

今回のプロトタイプ機器では、<1>フォトダイオード (Si-PD) を用いた単純積分型仕様と <2>分光器を用いた分光型仕様を提案した。<1>については、シンチレータを取り付けた光ファイバーの反対側に、Si-PD (SM1PD1A, THORLABS 社) を取り付け、信号はソースメータ (2441, Keithley 社) で読みだし、PC で記録した。<2>については、分光器付きポータブル CCD (Black Comet XR-SR-TEC, StellarNet 社) を用いて、光を読み出し、PC にて記録した。

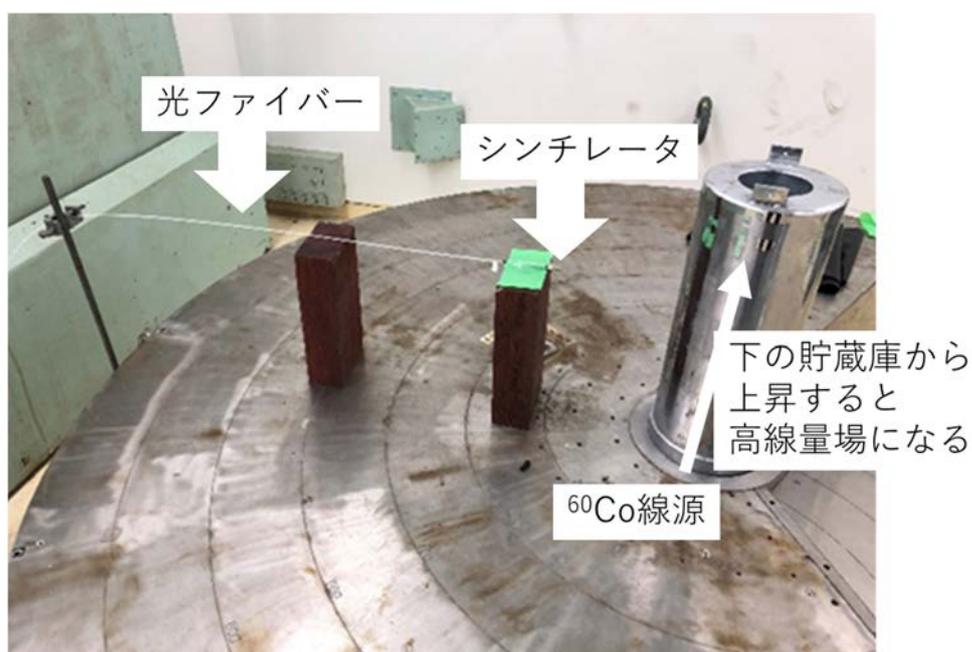


図 3.3.3-2 京都大学複合原子力科学研究所のシンチレータの線源部分への配置の様子

#### (4) 実証試験の結果

図 3.3.4-1 のように、単純積分型仕様では、<sup>60</sup>Co 線源が下の貯蔵庫から上昇し、高線量場環境になる (オン) と、それまでのオフの状態に比べて、信号強度が上がっていることが分かった。この値について線量との関係をプロットしたものが図 3.3.4-2 である。ここで、線量の調整は、あらかじめ、空間線量について <sup>60</sup>Co 線源まわりで測定してあるデータを用いて、シンチレータの場所を移動させることで、空間線量 (図 3.3.4-2 の横軸) を調整した。CHI については、発光量が高いこともあり、ルビー結晶よりも低い線量から、正確な測定ができることが分かった。

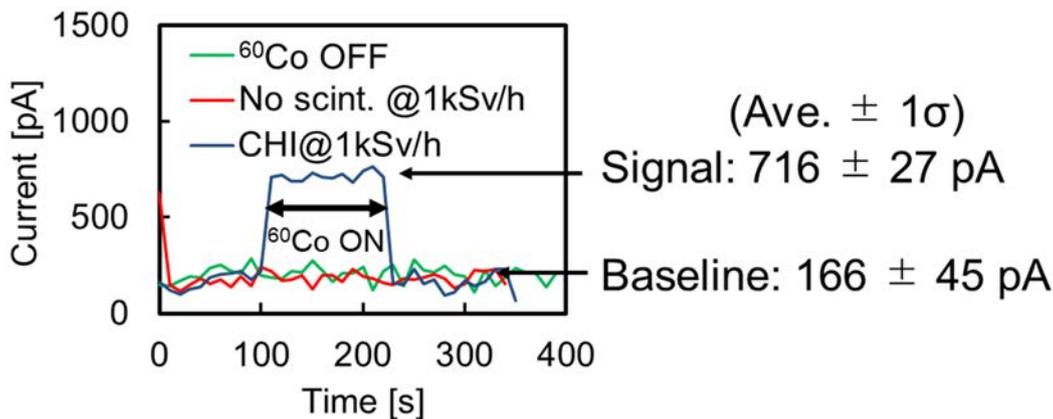


図 3.3.4-1 単純積分型仕様での結果の一例

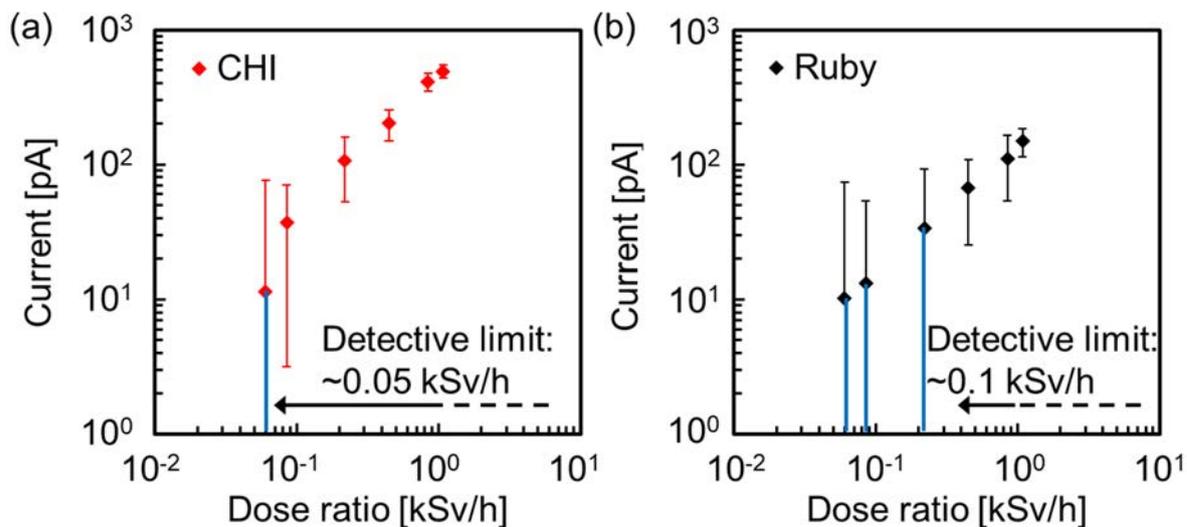


図 3.3.4-2 単純積分型仕様での線量と電流値の関係

(a)CHI, (b)ルビーでの実験結果

一方、分光型仕様においては、図 3.3.4-3 のようなスペクトルを各線量で得られることができた。CHI もルビーも、先行文献と同様の発光波長を観測することができた。また、このスペクトルについて、発光スペクトルの発光部分について積分して空間線量との関係性を示すと、図 3.3.4-4 のようになった。やはり、CHI のほうが明るいという結果になった。単純積分型にくらべて、ルビー結晶でも、より低い線量領域での測定が可能になり、分光仕様のほうがシステムとして感度が良いことが分かった。

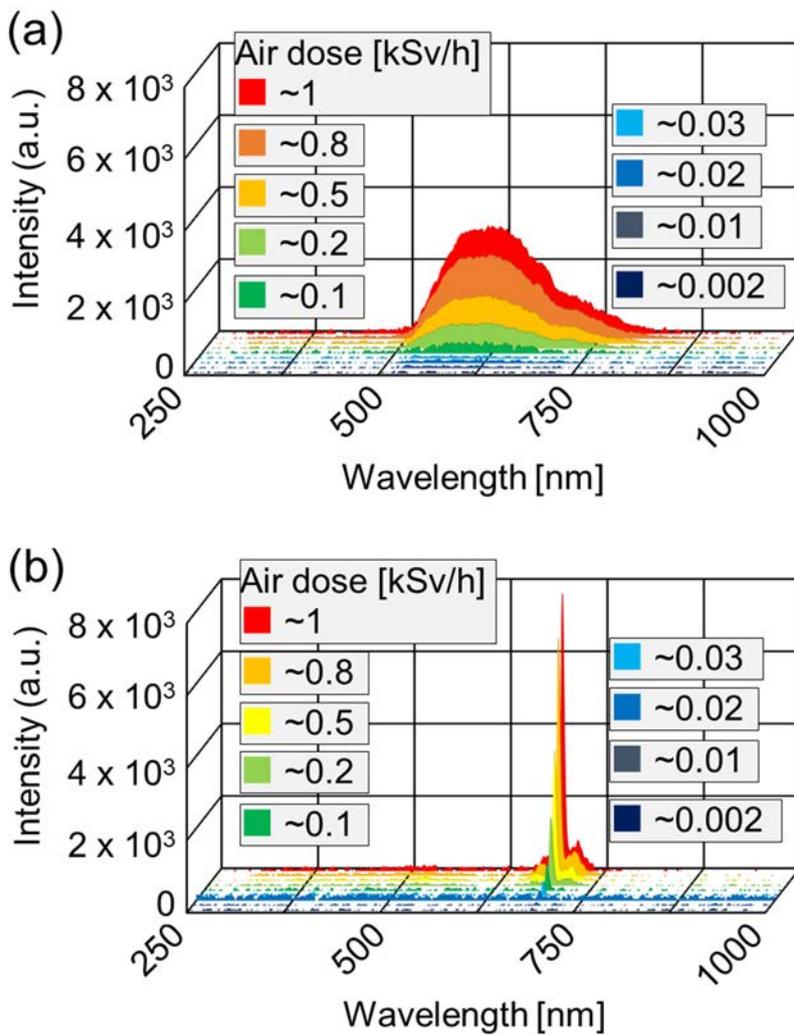


図 3.3.4-3 分光型仕様で得られた発光スペクトル  
(a)CHI, (b)ルビーでの実験結果

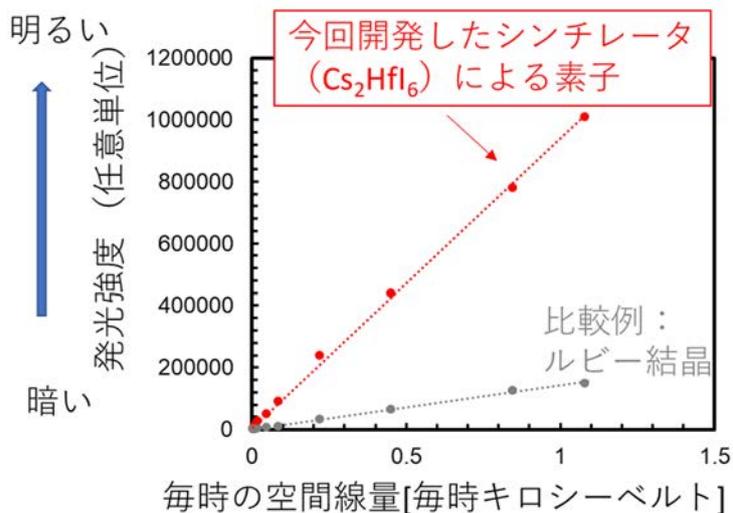


図 3.3.4-4 分光型仕様での線量と電流値の関係

3.3-8

### (5) 実証試験の結論と今後の方針

今回、世界で初めて、CHI を用いて、分離型の線量測定を非常に線量の高い空間で実施することができた。そして、CHI の高い発光量によって、20 m の長いファイバーでも十分に信号を読み出すことができた。なお、当初目標の 10 TBq 以上の線源 (100 TBq) を用いて、動作を確認することができた。

今後は、シンチレータと光ファイバーのコンタクト面の改良、分光仕様に加えて時間分解を追加できるか、検討したい。時間分解できれば、1 Sv/h 以上などの非常に高い線量に比べて、ある程度の低い線量下では、シングル・フォトン・カウンティング法が可能になり、ガンマ線のエネルギーについて評価できるため、デブリに含まれる放射性同位元素の特定が可能になる。

また、アルファ線検出にも応用することを考えた場合には、潮解性のないシンチレータで、パッケージフリーの状態を使用する必要がある。そこで、3.1 節で開発した酸化物、たとえば (表 3.1.1-1) で表される材料、などについても、試験していきたい。

謝辞：

京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 照射施設での実験にあたっては、同研究所の田中浩基准教授をはじめとするスタッフの皆様のご協力をいただきましたので、この場を借りて厚く御礼申し上げます。

### 参考文献

[3.3] 電子情報通信学会, 極低損失長波長帯光ファイバの伝送損失特性,  
[https://dbnst.nii.ac.jp/view\\_image/1879/3969?height=785&width=475](https://dbnst.nii.ac.jp/view_image/1879/3969?height=785&width=475) (参照日: 2019年5月15日) .

### 3.4 研究推進

本研究を推進するにあたり、これまでに再委託先を含めた三者による定例ミーティングを定期的に行うとともに、CLADS 等との連携を密にして、研究を進めた。具体的には、早期の検出器の実用化を目指すための障害点など、東北大学や三菱電機社のみでは知りえない情報の提供をいただいた。たとえば、ベータ線がアルファ線測定バックグラウンドとして無視できない点などを教示いただき、今後の開発として、波形分別ないしは極力ベータ線に対する感度を低くするようなシンチレータ検出器の開発が重要であることを認識した。この点については、来年度の課題とする。

また、本研究を通じて下記の発表を行うことができた。また、本研究を通じて、博士学生、修士学生の研究能力の向上も図られ、学会における当該学生の受賞も複数いただいた。

論文（査読付）：

1.

Shohei Kodama, Shunsuke Kurosawa, Maki Ohno, Akihiro Yamaji, Masao Yoshino, Jan Pejchal, Robert Kral, Yuji Ohashi, Kei Kamada, Yuui Yokota, Martin Nikl, Akira Yoshikawa,  
 “Development of a novel red-emitting cesium hafnium iodide scintillator”  
 Rad. Mes., 124 (2019) pp.54-58.

2.

Shohei Kodama, Shunsuke Kurosawa, Maki Ohno, Yuki Morishita, Hiroshi Usami, Masateru Hayashi, Makoto Sasano, Tetsushi Azuma, Hiroki Tanaka, Vladimir Kochurikhin, Akihiro Yamaji, Masao Yoshino, Satoshi Toyoda, Hiroki Sato, Yuji OHASHI, Kei Kamada, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa, Tatsuo Torii  
 “Fiber-reading radiation monitoring system using an optical fiber and red-emitting scintillator for ultra-high dose condition” Applied Physics Express  
 APEX 13(4), (2020) 047002.

3.

Shohei Kodama, Shunsuke Kurosawa, Yuki Morishita, Hiroshi Usami, Tatsuo Torii, Masateru Hayashi, Makoto Sasano, Tetsushi Azuma, Hiroki Tanaka, Vladimir Kochurikhin, Jan Pejchal, Robert Kral, Masao Yoshino, Akihiro Yamaji, Satoshi Toyoda, Hiroki Sato, Yuji Ohashi, Yuui Yokota, Kei Kamada, Martin Nikl, Akira Yoshikawa  
 “Growth and scintillation properties of a new red-emitting scintillator  $Rb_2HfI_6$  for the fiber-reading radiation monitor”  
 IEEE TNS. 受理済み

国際学会発表（招待）

1.

Shunsuke Kurosawa

Development of Novel Red/Near-Infrared Scintillation Materials with Fast Decay Time  
8th International Symposium on Optical Materials (IS-OM 8)

Wroclaw, Poland.

2019年6月13日.

2.

Shunsuke Kurosawa, Yutaro Kurashima, Akihiro Yamaji, Shohei Kodama, Masao Yoshino,  
Satoshi Toyoda, Hiroki Sato, Yuui Yokota, Kei Kamada, Yuji Ohashi, Akira Yoshikawa  
Study on Red-Emission Scintillation Materials ~Crystals & powders~

The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13)

Okinawa Convention Center, Japan

2019年10月31日.

国際学会発表（口頭）

1.

Shunsuke Kurosawa, Shohei Kodama, Takahiko Horiai, Akihiro Yamaji, Rikito Murakami,  
Yasuhiro Shoji, Masao Yoshino, Yuji Ohashi, Kei Kamada, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa  
Development of the new radiation monitor system using a novel scintillator

International Topical Workshop on Fukushima Decommissioning Research (FDR2019)

J-village, Naraha, Fukushima, Japan

2019年5月25日.

2.

Shunsuke KUROSAWA, Akihiro YAMAJI, Shohei KODAMA, Shinnosuke YAMATO, Yutaro KURASHIMA,  
Kei KAMADA, Masao YOSHINO, Satoshi TOYODA, Hiroki SATO, Yuui YOKOTA, Yuji Ohashi, Akira  
YOSHIKAWA

Optical Study on Garnet-Type Scintillator with Longer-Wave-Emitting

8th International Workshop on Photoluminescence in Rare Earths: Photonic Materials and  
Devices (PRE'19)

Nice, France

2019年9月6日.

3.

S. Kodama, S. Kurosawa, M. Ohno, A. Yamaji, M. Yoshino, S. Toyoda, H. Sato, Y. Ohashi,  
K. Kamada, Y. Yokota, R. Kral, J. Pejchal, M. Nikl, A. Yoshikawa

Self-Trapped Exciton Luminescence of Anion-Substituted Cesium Hafnium Chloride

International Conference on Excited States of Transitions Elements

Kudowa Zdroj, Poland

2019年9月9日.

国際学会発表 (ポスター)

1.

Shohei Kodama, Shunsuke Kurosawa, Maki Ohno, Ai Makabe, Yuki Morishita, Hiroshi Usami, Masateru Hayashi, Hiroki Tanaka, Vladimir Kochurikhin, Akihiro Yamaji, Masao Yoshino, Hiroki Sato, Yuji Ohashi, Kei Kamada, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa

Development of the Fiber-reading Scintillation Detector under Ultra-high Dose Rate  
15th International conference on Scintillating Materials and their Applications  
(SCINT2019)

Tohoku Univ. (Katahira Campus), Sendai, Japan

2019年10月2日.

2.

Shohei Kodama, Shunsuke Kurosawa, Maki Ohno, Akihiro Yamaji, Masao Yoshino, Hiroki Sato, Yuji Ohashi, Kei Kamada, Yuui Yokota, Akira Yoshikawa

Synthesis and optical properties of red-emitting A2MI6 scintillators (A = K, Rb and Cs, M = Zr and Hf)

The 13th Pacific Rim Conference of Ceramic Societies (PACRIM13)

Okinawa Convention Center, Japan

2019年10月28日.

#### 4. 結言

福島第一原子力発電所の廃炉を実現するなかで、作業員の安全の確保のためのアルファ線核種の炉内の分布を明らかにする技術の実現を目指し、スミヤロ紙上に付着するより細かいアルファ線放出核種を含む微細なダストの詳細な分布を可視化することを可能にする技術の開発を目的とする。

本年度については、下記の点について実行し明らかにできた。

##### ア) シンチレータの開発

新規シンチレータの開発を進めることができ、これまでに目標数値を達成することができた。

##### イ) エネルギースペクトル取得装置の開発

実環境を想定した条件で測定対象となるアルファ線のエネルギーを正しく取得するため検出器選定を行い、シリコン半導体検出器を用いることでノイズ要因となるベータ線の影響なくアルファ線の全吸収ピークを検出できる見通しが得られた。

##### ウ) エネルギースペクトルへのアンフォールディング法適用

粒子輸送計算によって作成した応答関数を用いて、逐次近似法によるアンフォールディング法を上記ア) で得られたデータへ適用した。適用の結果線源として用いた  $^{241}\text{Am}$  からのアルファ線エネルギーに対応する線源スペクトルを取得できることが確認でき、アンフォールディング法が適用できることを確認した。

##### エ) プロトタイプ機器での撮像

アルファ線の強度プロファイルの半値幅は  $17.9 \mu\text{m}$  (FWHM) であり、過去の研究結果を上回る結果を得ることができた。

##### オ) 光ファイバーを用いた高線量場モニタの開発

プロトタイプ機器の開発に取り組み、開発した CHI シンチレータを用いて、幅広い線量でのダイナミクスレンジと、線量と発光強度の関係性を明らかにすることができ、動作試験に成功した。

This is a blank page.

# 国際単位系 (SI)

表1. SI 基本単位

基本量	SI 基本単位	
	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質량	モル	mol
光度	カンデラ	cd

表2. 基本単位を用いて表されるSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位	
	名称	記号
面積	平方メートル	m <sup>2</sup>
体積	立方メートル	m <sup>3</sup>
速度	メートル毎秒	m/s
加速度	メートル毎秒毎秒	m/s <sup>2</sup>
波数	毎メートル	m <sup>-1</sup>
密度, 質量密度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
面積密度	キログラム毎平方メートル	kg/m <sup>2</sup>
比体積	立方メートル毎キログラム	m <sup>3</sup> /kg
電流密度	アンペア毎平方メートル	A/m <sup>2</sup>
磁界の強さ	アンペア毎メートル	A/m
量濃度 <sup>(a)</sup> , 濃度	モル毎立方メートル	mol/m <sup>3</sup>
質量濃度	キログラム毎立方メートル	kg/m <sup>3</sup>
輝度	カンデラ毎平方メートル	cd/m <sup>2</sup>
屈折率 <sup>(b)</sup>	(数字の)	1
比透磁率 <sup>(b)</sup>	(数字の)	1

(a) 量濃度 (amount concentration) は臨床化学の分野では物質濃度 (substance concentration) ともよばれる。  
 (b) これらは無次元量あるいは次元1をもつ量であるが、そのことを表す単位記号である数字の1は通常は表記しない。

表3. 固有の名称と記号で表されるSI組立単位

組立量	SI 組立単位			
	名称	記号	他のSI単位による表し方	SI基本単位による表し方
平面角	ラジアン <sup>(b)</sup>	rad	1 <sup>(b)</sup>	m/m
立体角	ステラジアン <sup>(b)</sup>	sr <sup>(c)</sup>	1 <sup>(b)</sup>	m <sup>2</sup> /m <sup>2</sup>
周波数	ヘルツ <sup>(d)</sup>	Hz		s <sup>-1</sup>
力	ニュートン	N		m kg s <sup>-2</sup>
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m <sup>2</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
仕事率, 工率, 放射束	ワット	W	J/s	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
電荷, 電気量	クーロン	C		s A
電位差 (電圧), 起電力	ボルト	V	W/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
静電容量	ファラド	F	C/V	m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
電気抵抗	オーム	Ω	V/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup> A <sup>-2</sup>
コンダクタンス	ジーメン	S	A/V	m <sup>2</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>3</sup> A <sup>2</sup>
磁束	ウェーバ	Wb	Vs	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
磁束密度	テスラ	T	Wb/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-2</sup> A <sup>-1</sup>
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
セルシウス温度	セルシウス度 <sup>(e)</sup>	°C		K
光照射量	ルーメン	lm	cd sr <sup>(c)</sup>	cd
放射線量	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
放射性核種の放射能 <sup>(f)</sup>	ベクレル <sup>(d)</sup>	Bq		s <sup>-1</sup>
吸収線量, 比エネルギー分与, カーマ	グレイ	Gy	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
線量当量, 周辺線量当量, 方向性線量当量, 個人線量当量	シーベルト <sup>(g)</sup>	Sv	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
酸素活性化	カタール	kat		s <sup>-1</sup> mol

(a) SI接頭語は固有の名称と記号を持つ組立単位と組み合わせても使用できる。しかし接頭語を付した単位はもはやコヒーレントではない。  
 (b) ラジアンとステラジアンは数字の1に対する単位の特別な名称で、量についての情報をつたえるために使われる。実際には、使用する時には記号rad及びsrが用いられるが、習慣として組立単位としての記号である数字の1は明示されない。  
 (c) 測光学ではステラジアンという名称と記号srを単位の表し方の中に、そのまま維持している。  
 (d) ヘルツは周期現象についてのみ、ベクレルは放射性核種の統計的過程についてのみ使用される。  
 (e) セルシウス度はケルビンの特別な名称で、セルシウス温度を表すために使用される。セルシウス度とケルビンの単位の間には1:1の関係がある。したがって、温度差や温度間隔を表す数値はどちらの単位で表しても同じである。  
 (f) 放射性核種の放射能 (activity referred to a radionuclide) は、しばしば誤った用語で"radioactivity"と記される。  
 (g) 単位シーベルト (PV, 2002, 70, 205) についてはCIPM勧告2 (CI-2002) を参照。

表4. 単位の中に固有の名称と記号を含むSI組立単位の例

組立量	SI 組立単位		
	名称	記号	SI基本単位による表し方
粘力のモーメント	パスカル秒	Pa s	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-1</sup>
表面張力	ニュートンメートル	N m	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup>
角加速度	ラジアン毎秒	rad/s	m m <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> = s <sup>-1</sup>
角加減	ラジアン毎秒毎秒	rad/s <sup>2</sup>	m m <sup>-1</sup> s <sup>-2</sup> = s <sup>-2</sup>
熱流密度, 放射照度	ワット毎平方メートル	W/m <sup>2</sup>	kg s <sup>-3</sup>
熱容量, エントロピー	ジュール毎ケルビン	J/K	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比熱容量, 比エントロピー	ジュール毎キログラム毎ケルビン	J/(kg K)	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup>
比エネルギー	ジュール毎キログラム	J/kg	m <sup>2</sup> s <sup>-2</sup>
熱伝導率	ワット毎メートル毎ケルビン	W/(m K)	m kg s <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup>
体積エネルギー	ジュール毎立方メートル	J/m <sup>3</sup>	m <sup>-1</sup> kg s <sup>-2</sup>
電界の強さ	ボルト毎メートル	V/m	m kg s <sup>-3</sup> A <sup>-1</sup>
電荷密度	クーロン毎立方メートル	C/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> s A
電表面積	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> s A
電束密度, 電気変位	クーロン毎平方メートル	C/m <sup>2</sup>	m <sup>-2</sup> s A
誘電率	ファラド毎メートル	F/m	m <sup>3</sup> kg <sup>-1</sup> s <sup>4</sup> A <sup>2</sup>
透磁率	ヘンリー毎メートル	H/m	m kg s <sup>-2</sup> A <sup>-2</sup>
モルエネルギー	ジュール毎モル	J/mol	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> mol <sup>-1</sup>
モルエントロピー, モル熱容量	ジュール毎モル毎ケルビン	J/(mol K)	m <sup>2</sup> kg s <sup>-2</sup> K <sup>-1</sup> mol <sup>-1</sup>
照射線量 (X線及びγ線)	クーロン毎キログラム	C/kg	kg <sup>-1</sup> s A
吸収線量率	グレイ毎秒	Gy/s	m <sup>2</sup> s <sup>-3</sup>
放射線強度	ワット毎ステラジアン	W/sr	m <sup>4</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> = m <sup>2</sup> kg s <sup>-3</sup>
放射輝度	ワット毎平方メートル毎ステラジアン	W/(m <sup>2</sup> sr)	m <sup>2</sup> m <sup>-2</sup> kg s <sup>-3</sup> = kg s <sup>-3</sup>
酵素活性濃度	カタール毎立方メートル	kat/m <sup>3</sup>	m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> mol

表5. SI 接頭語

乗数	名称	記号	乗数	名称	記号
10 <sup>24</sup>	ヨタ	Y	10 <sup>1</sup>	デシ	d
10 <sup>21</sup>	ゼタ	Z	10 <sup>2</sup>	センチ	c
10 <sup>18</sup>	エクサ	E	10 <sup>3</sup>	ミリ	m
10 <sup>15</sup>	ペタ	P	10 <sup>6</sup>	マイクロ	μ
10 <sup>12</sup>	テラ	T	10 <sup>9</sup>	ナノ	n
10 <sup>9</sup>	ギガ	G	10 <sup>12</sup>	ピコ	p
10 <sup>6</sup>	メガ	M	10 <sup>-15</sup>	フェムト	f
10 <sup>3</sup>	キロ	k	10 <sup>-18</sup>	アト	a
10 <sup>2</sup>	ヘクト	h	10 <sup>-21</sup>	ゼプト	z
10 <sup>1</sup>	デカ	da	10 <sup>-24</sup>	ヨクト	y

表6. SIに属さないが、SIと併用される単位

名称	記号	SI単位による値
分	min	1 min=60 s
時	h	1 h=60 min=3600 s
日	d	1 d=24 h=86 400 s
度	°	1°=(π/180) rad
分	'	1'=(1/60)°=(π/10 800) rad
秒	"	1"=(1/60)'=(π/648 000) rad
ヘクタール	ha	1 ha=1 hm <sup>2</sup> =10 <sup>4</sup> m <sup>2</sup>
リットル	L, l	1 L=1 l=1 dm <sup>3</sup> =10 <sup>3</sup> cm <sup>3</sup> =10 <sup>-3</sup> m <sup>3</sup>
トン	t	1 t=10 <sup>3</sup> kg

表7. SIに属さないが、SIと併用される単位で、SI単位で表される数値が実験的に得られるもの

名称	記号	SI単位で表される数値
電子ボルト	eV	1 eV=1.602 176 53(14)×10 <sup>-19</sup> J
ダルトン	Da	1 Da=1.660 538 86(28)×10 <sup>-27</sup> kg
統一原子質量単位	u	1 u=1 Da
天文単位	ua	1 ua=1.495 978 706 91(6)×10 <sup>11</sup> m

表8. SIに属さないが、SIと併用されるその他の単位

名称	記号	SI単位で表される数値
バール	bar	1 bar=0.1MPa=100 kPa=10 <sup>5</sup> Pa
水銀柱ミリメートル	mmHg	1 mmHg=133.322Pa
オングストローム	Å	1 Å=0.1nm=100pm=10 <sup>-10</sup> m
海里	M	1 M=1852m
バイン	b	1 b=100fm <sup>2</sup> =(10 <sup>12</sup> cm <sup>2</sup> ) <sup>2</sup> =10 <sup>-28</sup> m <sup>2</sup>
ノット	kn	1 kn=(1852/3600)m/s
ネーパ	Np	SI単位との数値的関係は、 対数量の定義に依存。
ベレル	B	
デシベル	dB	

表9. 固有の名称をもつCGS組立単位

名称	記号	SI単位で表される数値
エルグ	erg	1 erg=10 <sup>-7</sup> J
ダイン	dyn	1 dyn=10 <sup>-5</sup> N
ポアズ	P	1 P=1 dyn s cm <sup>-2</sup> =0.1Pa s
ストークス	St	1 St=1cm <sup>2</sup> s <sup>-1</sup> =10 <sup>-4</sup> m <sup>2</sup> s <sup>-1</sup>
スチルブ	sb	1 sb=1cd cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> cd m <sup>-2</sup>
フォト	ph	1 ph=1cd sr cm <sup>-2</sup> =10 <sup>4</sup> lx
ガリ	Gal	1 Gal=1cm s <sup>-2</sup> =10 <sup>-2</sup> ms <sup>-2</sup>
マクスウェル	Mx	1 Mx=1 G cm <sup>2</sup> =10 <sup>-8</sup> Wb
ガウス	G	1 G=1Mx cm <sup>-2</sup> =10 <sup>-4</sup> T
エルステッド <sup>(a)</sup>	Oe	1 Oe <sub>e</sub> =(10 <sup>3</sup> /4π)A m <sup>-1</sup>

(a) 3元系のCGS単位系とSIでは直接比較できないため、等号「△」は対応関係を示すものである。

表10. SIに属さないその他の単位の例

名称	記号	SI単位で表される数値
キュリー	Ci	1 Ci=3.7×10 <sup>10</sup> Bq
レントゲン	R	1 R=2.58×10 <sup>-4</sup> C/kg
ラド	rad	1 rad=1cGy=10 <sup>-2</sup> Gy
レム	rem	1 rem=1 cSv=10 <sup>-2</sup> Sv
ガンマ	γ	1 γ=1 nT=10 <sup>-9</sup> T
フェルミ	f	1 フェルミ=1 fm=10 <sup>-15</sup> m
メートル系カラット		1 メートル系カラット=0.2 g=2×10 <sup>-4</sup> kg
トル	Torr	1 Torr=(101 325/760) Pa
標準大気圧	atm	1 atm=101 325 Pa
カロリ	cal	1 cal=4.1858 J (「15°C」カロリ), 4.1868 J (「IT」カロリ), 4.184 J (「熱化学」カロリ)
マイクロン	μ	1 μ=1μm=10 <sup>-6</sup> m

