

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2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)

-FY2020 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 2022

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。本レポートはクリエイティブ・コモンズ表示 4.0 国際 ライセンスの下に提供されています。本レポートの成果（データを含む）に著作権が発生しない場合でも、同ライセンスと同様の条件で利用してください。（<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.ja>）
なお、本レポートの全文は日本原子力研究開発機構ウェブサイト（<https://www.jaea.go.jp>）より発信されています。本レポートに関しては下記までお問合せください。

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 JAEA イノベーションハブ 研究成果利活用課
〒 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.
This work is licensed under a Creative Commons Attribution 4.0 International License (<https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/deed.en>).
Even if the results of this report (including data) are not copyrighted, they must be used under the same terms and conditions as CC-BY.
For inquiries regarding this report, please contact Institutional Repository and Utilization Section, JAEA Innovation Hub, 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

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2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

(2021年10月12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2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2年度の研究成果について取りまとめたものである。

本研究では、廃炉のある段階から作業員が実際に炉内に立ち入る際に、体内被曝の影響が指摘されるアルファ線を放出する核種を含むダストやデブリについての、形状や核種を観測するための装置や素材の開発を目的としている。さらに、作業員が立ち入る前の高線量率場での分布測定についても計測するための装置や素材についても、その開発を目的とする。令和2年度には、これらの目的に対して、前者は撮像カメラ、エネルギー測定部位、および、それらを統合したシステム開発と実証を行うことができた。また、後者についても、令和元年度に引き続き、新しい赤色・近赤外発光シンチレータ材料の開発と実証試験を行うことができた。

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王塚 790-1

Development of High-resolution Imaging Camera for Alpha Dust

(Contract Research)

— FY2020 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 12, 2021)

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 FY2020.

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 FY2020.

The present study aims to develop a novel alpha-ray camera consisting of imaging and an energy spectrometer to find the alpha dust to reduce the risk of health damage in Decommissioning. We have developed the camera in FY2020, and the measurement test for the energy spectra. Moreover, the imaging test has been operated. In addition, we have also developed a high-dose-rate monitor system using novel scintillators with red/infra-red emission.

Keywords: Scintillator, Alpha Dust, CMOS Camera, Red and Infrared Emission Band, Optical Fiber

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	2
3. 令和元年度 採択課題	5
4. 令和 2 年度 採択課題	8
付録 成果報告書	11

Contents

1. Outline of Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project	1
2. Accepted Proposal in FY2018.....	2
3. Accepted Proposal in FY2019.....	5
4. Accepted Proposal in FY2020.....	8
Appendix Result Report	11

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式会社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、従来のプログラムを、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

平成 30 年度採択課題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評価	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

令和元年度採択課題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 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

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 (令和元年度まで) 大曲 新矢	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 (令和2年度 まで) 岡山大学

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

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 (平成30年度まで) 竹下 健二	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

4. 令和2年度 採択課題

令和2年度は、2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：令和2年3月17日～令和2年5月14日（課題解決型）
令和2年5月13日～令和2年7月15日（国際協力型）

課題数：10 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題（若手研究2 課題、一般研究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）

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2年度 採択課題一覧

課題解決型廃炉研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
燃料デブリにおける特性の経年変化と環境劣化割れの調査	楊 会龍	東京大学
健全性崩壊をもたらす微生物による視認不可腐食の分子生物・電気化学的診断及び抑制技術の開発	岡本 章玄	物質・材料研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
遮蔽不要な臨界近接監視システム用ダイヤモンド中性子検出器の要素技術開発	田中 真伸	高エネルギー加速器研究機構
α / β / γ 線ラジオリシス影響下における格納容器系統内広域防食の実現：ナノバブルを用いた新規防食技術の開発	渡邊 豊	東北大学
β 、 γ 、X線同時解析による迅速・高感度放射性核種分析法の開発	篠原 宏文	日本分析センター
合理的な処分のための実機環境を考慮した汚染鉄筋コンクリート長期状態変化の定量評価	丸山 一平	東京大学
溶脱による変質を考慮した汚染コンクリート廃棄物の合理的処理・処分の検討	小崎 完	北海道大学
マイクロ波重畳 LIBS によるデブリ組成計測の高度化と同位体の直接計測への挑戦	池田 裕二	アイラボ

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
革新的水質浄化剤の開発による環境問題低減化技術の開拓	浅尾 直樹	信州大学
無人航走体を用いた燃料デブリサンプルリターン技術の研究開発	鎌田 創	海上・港湾・航空技術研究所

本報告書は、以下の課題の令和2年度の研究成果を取りまとめたものである。

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
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

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 2 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 R02I027-1)

成果報告書

令和 3 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2年度の研究成果を取りまとめたものです。

目次

概略	vi
1. はじめに	1
2. 業務計画	2
2.1 全体計画	
2.1.1 業務の全体計画	2
2.1.2 実施体制図	3
2.2 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法	4
3. 令和2年度の実施内容及び成果	6
3.1 α デブリ検出器の開発	6
3.1.1 イメージング検出器の開発	6
3.1.2 エネルギー取得部分の開発	11
3.1.3 実証試験	15
3.2 高線量下モニタなどへの展開	24
3.2.1 結晶育成	24
3.2.2 現場適用に向けた詳細検討	29
3.3 研究推進	32
4. 結言	35
参考文献	37

執筆者リスト

事業代表者	国立大学法人東北大学	准教授	黒澤 俊介
再委託先	三菱電機株式会社	グループマネージャー	林 真照
連携先	国立研究開発法人日本原子力研究開発機構	研究員	森下 祐樹

表一覧

表 3.1.2-1	実サンプルの線源データ.....	12
表 3.1.2-2	線源データとアンフォールディング結果の比較.....	14
表 3.2-1	光ファイバーとシンチレータの空間線量率の条件.....	29
表 3.2-2	条件ごとの SN 比一覧.....	29

図一覧

図 2.1-1	本業務の全体計画.....	2
図 2.1-2	本業務の全体.....	3
図 3.1.1-1	テストチャートの写真.....	6
図 3.1.1-2	位置分解能評価時のセットアップの概念図.....	7
図 3.1.1-3	テストチャートの影絵の結果.....	7
図 3.1.1-4	位置分解能評価時のセットアップ（発光と不発光の境界測定）の概念図.....	8
図 3.1.1-5	シンチレータの境界部分の α 線撮像結果.....	9
図 3.1.1-6	線源をずらしたときの様子.....	9
図 3.1.1-7	可動式にしたイメージング検出器の写真（JAEAにて）.....	10
図 3.1.2-1	改良したエネルギースペクトル測定装置でのセットアップ.....	11
図 3.1.2-2	実サンプルの写真.....	12
図 3.1.2-3	実サンプルのエネルギースペクトル測定結果.....	13
図 3.1.2-4	実サンプル測定に対するアンフォールディング結果.....	14
図 3.1.3-1	開発した超高位置分解能 α 線イメージング装置.....	15
図 3.1.3-2	β 線源測定の概念図.....	16
図 3.1.3-3	^{222}Rn 子孫核種測定の概念図.....	16
図 3.1.3-4	α 線スポットの例.....	17
図 3.1.3-5	シミュレーション計算体系.....	18
図 3.1.3-6	ノイズとなる β 線の撮像評価.....	19
図 3.1.3-7	α 線の撮像評価.....	20
図 3.1.3-8	30分測定で取得した ^{222}Rn 子孫核種の画像.....	20
図 3.1.3-9	α 線計数率から PuO_2 粒子の等価粒径への換算曲線.....	21
図 3.1.3-10	開発した α 線イメージング装置のモバイル電源での作動確認.....	22
図 3.1.4-1	開発した装置の写真.....	23
図 3.2-1	高線量率下ファイバー読み出しモニタの概念図.....	24
図 3.2-2	コア・ヒーティング法の概念図.....	25
図 3.2-3	Ce添加 $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ 結晶の写真.....	26
図 3.2-4	$\text{Yb}:\text{LHO}$ とルビーのX線励起発光スペクトル.....	27
図 3.2-5	$\text{Yb}:\text{LHO}$ とルビーのコバルト60照射施設でのファイバー読み出し試験の結果..	28
図 3.2-6	100 m長の光ファイバーの納品時の写真.....	30

略語一覧

JAEA	: Japan Atomic Energy Agency (国立研究開発法人日本原子力研究開発機構)
CLADS	: Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science (廃炉環境国際共同研究センター)
1F	: 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
東京電力	: 東京電力ホールディングス株式会社
Geant4	: GEometry ANd Tracking 4
Si-PD	: Silicon-Photo Diode (シリコンフォトダイオード)
核サ研	: 国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 核燃料サイクル工学研究所

概略

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（以下、「1F」と略す。）の廃炉を実現するなかで、作業員が α 線核種を含むダストの吸引による内部被ばく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、たとえ低線量率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 μm 程度以下であると考えられることから、少なくとも10 μm 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、スミヤロ紙上に付着するより細かい α 線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。 α 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 μm 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で、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 α ダストモニタのみならず、多くの応用が期待できる。特に当該研究に関連して、非常に高い線量率場における線量率の分布を、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率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）。

令和元年度までに、結晶材料の開発として、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。加えて、 α 線核種の撮像検出器の準備を進めた。また、三菱電機株式会社（以下、「三菱電機」と略す。）では、 α 線核種のエネルギー分別に関する装置開発を行い、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「JAEA」と略す。）では α 線核種の撮像検出器の評価を行ってきた。

令和2年度は、東北大学を中心に高線量率モニタなどを中心とした応用を目指し、高発光量・長波長発光シンチレータの高性能化を進めた。特に、潮解性が無視できる酸化物での材料探索を進め、そのための結晶育成方法も開発した。

イメージング検出器の開発についても、東北大学を中心に進め、エネルギー取得部分の開発についても三菱電機を中心に行った。特に三菱電機では、「エネルギー取得部分」を実現するため、イメージング取得部と組み合わせるためにエネルギースペクトル取得装置の小型化を実施。さらに実環境で想定される α ダストの実サンプルでのエネルギースペクトルを取得。その取得データに対してGeant4などのシミュレーションで作成した応答関数を用いて、アンフォールディング法を適用し複数の放射性核種が含まれる条件においても線源スペクトルを取得できることを確認。これにより α ダストに対してアンフォールディング法が適用できることを実証した。

① 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 α 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、実サンプルとなる ^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm の3核種を含む線源からの α 線スペクトルが検出できる装置にし、さらにイメージング装置と組み合わせできるサイズへと小型改良した。

② エネルギースペクトルへの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①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 ^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm の3核種を含む実サンプルからの α 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を確認し、アンフォールディング法が適用できることを実証した。

JAEAにおいては、 α 線の撮像とエネルギー取得部分の両者の実証試験を行った。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）。

イメージング検出器については、目標となる位置分解能を達成し、検出器として組み立て、目的その1に対する目標を達成した。また、目的2についても、目標を達成し、いち早く実用化させるために、発展的研究として、100 m長さのファイバーを購入でき、またその実現可能性や、曲げ半径などの考察もできた。さらには、目的2の解決をメインとして、新しい結晶育成方法であるコア・ヒーティング法（以下、「CH法」と略す。）の開発にも成功した。

令和2年度は、光ファイバーを用いた高線量モニタ及びCH法の開発の2点についてプレスリリース（2件）も行うことができ、一部は新聞報道された（本研究の成果（特に世界初、国内初等アピールすべき成果））。

今後は実用化を加速させるための研究開発を進める（令和3年度への見通し）。

1. はじめに

1Fの廃炉を迅速に行うために、まずは炉内のデブリなどに含まれる放射性物質の分布、言い換えれば線量分布を把握する必要がある。そして、作業員の立ち入りの際の安全の確保のための α 線核種を含むダスト（ α ダスト）の炉内の分布を明らかにする技術の実現が求められている。

ダストとして舞う放射線核種、特に体内被ばくの影響が高い α 線を放出する核種を含むダストやデブリの取り扱いが重要な問題である。仮に10 μm 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、体内被ばくのリスクが高まる。 α 線核種は、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 μm 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、本研究において、2つの検出器の開発に着手した。1つ目は、作業員の安全の確保のための α 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、スミヤク紙上に付着するより細かい α 線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である。東北大学では撮像にかかる部分の検出器を開発し、三菱電機ではその α 線のエネルギー情報を取得する部分の検出器を開発した。そして、試験をJAEAとともに行った。

撮像については、 α 線励起の発光体で10 μm 以下の位置分解能をもつような検出器を開発してきた。令和2年度は、その最終組み立てと評価について、東北大学を中心に行った。

一方で、「エネルギー取得部分」を実現するため、実環境で想定されるノイズ要因を考慮したエネルギースペクトル取得装置の開発が必要である。またエネルギースペクトル取得装置によるスペクトルに対して、より核種弁別性能を向上させるためにアンフォールディング法を適用できるかどうかを検証することが必要である。これらについて、三菱電機が担当した。

また、上記の撮像とエネルギー取得部分についての、より実用に近い環境での評価について、JAEAが担当した。

2つ目の検出器は、光ファイバーを用いた超高線量率場での線量率モニタの開発である。令和元年度までに、そのモニタに使用するシンチレータの候補材料は決まり、原理実証も行った。このように、予想以上の成果が上がったため、令和2年度は、東北大学を中心に、発展的研究として、より実用化に近づけるための作業を行った。具体的には、これまでの20 mのファイバーから、実用で使う可能性が高い、より長い100 mの光ファイバーを特注した。

また、当該候補材料以外の探索も進め、特に潮解性が無い材料での探索を1つのテーマとして進めた。

2. 業務計画

2.1 全体計画

2.1.1 業務の全体計画

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。令和元年度には、(3)高線量下モニタなどへの展開の前倒しを行い、また同じく(3)について、令和3年度にも発展的研究として半年間期間延長されることが、令和2年度に決定した。

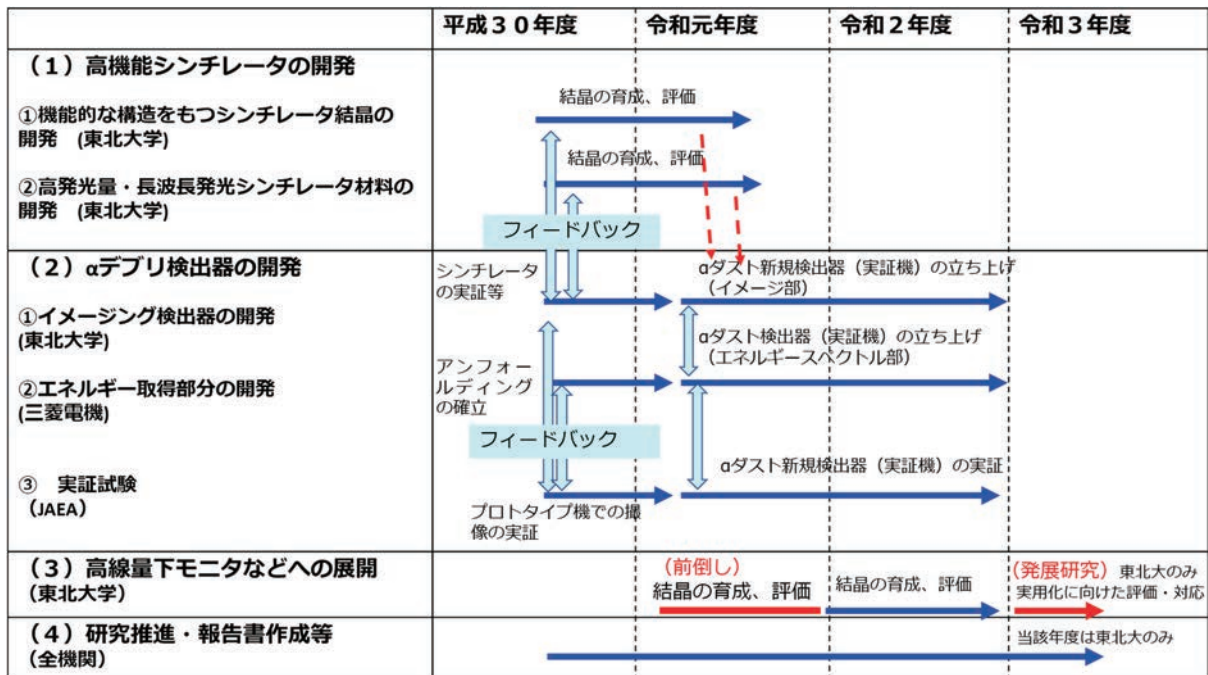


図 2.1-1 本業務の全体計画

2.1.2 実施体制図

図 2.1-2 のような体制で研究を進めた。

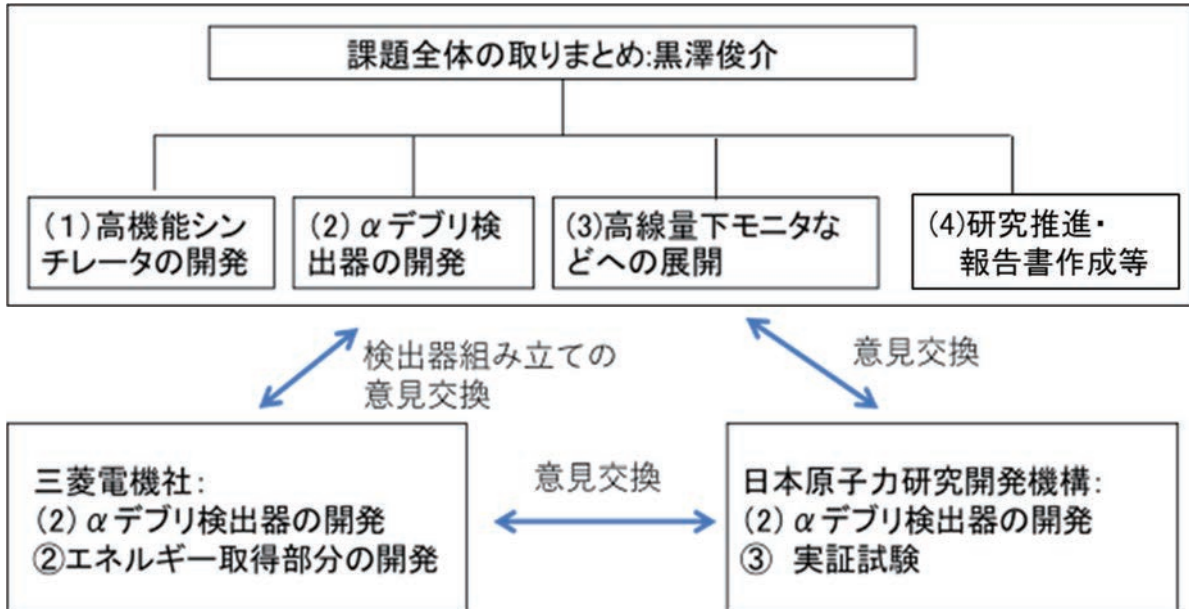


図 2.1-2 本業務の全体
([1]より引用)

2.2 令和2年度の成果の目標及び業務の実施方法

令和2年度の目標及び方法は下記のとおりである。なお、(1)高機能シンチレータの開発については、令和元年度までの実施内容であったため、省略し、全期間で番号を統一するために(2)からとする。

(2) α デブリ検出器の開発

① イメージング検出器の開発

令和元年度までの「高機能シンチレータの開発・機能的な構造をもつシンチレータ結晶の開発」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い、下記の条件を満たす撮像装置を開発する。

α 線イメージング：位置分解能 10 μm 以下

② エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）

α 線とノイズ要因（ β 、 γ 線）の識別、及び α 線のエネルギーを測定可能なアンフォールディング手法の実装・エネルギースペクトル取得装置の改良と、実サンプルによる性能確認を行う。具体的には次の1)及び2)である。

1) エネルギースペクトル取得装置の改良

実環境を想定した条件で測定対象となる α 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、実サンプルとなる ^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm の3核種を含む線源からの α 線スペクトルが検出できる装置にし、さらにイメージング装置と組み合わせできるサイズへと小型改良する。

2) エネルギースペクトルへの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1)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 ^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm の3核種を含む実サンプルからの α 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（連携先：JAEA）

令和元年度までの「高機能シンチレータの開発」などで得られた結晶をもとに、東北大学と実際のデブリないしは擬似的なデブリを用いたイメージングを行う。引き続き、得られたデータをもとに、位置分解能 10 μm 以下になるような方策（フィードバック）を東北大学と行う。また、測定した微粒子の粒子径の情報を用い、作業者の内部被ばく評価への影響や最適な防護具の検討を行う。

(3) 高線量下モニタなどへの展開（東北大学）

結晶育成

引き続き大強度 γ 線源（10 TBq 以上）などを用いて、モニタの実証試験を行う。 ^{60}Co 照射施設などで、線量率と信号量の線形性が、0.1 Sv/h 以上あるかを確認する。

(4) 研究推進

研究代表者の下で各研究項目間ならびに 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。

また、発展的研究として、下記が(3)高線量下モニタなどへの展開（東北大学）に追記された。

東京電力のニーズに対応するための課題

素子の小型化、光ファイバーの長尺化、耐放射線環境下での伝送性能、校正方法の検討を令和3年度に行う。

また、令和3年度には引き続き素子の小型化、光ファイバーの長尺化、耐放射線環境下での伝送性能、校正方法の検討を行いながら、東京電力への橋渡しとして当該研究とは別途（東京電力と東北大学との契約のもと）校正方法の実証試験、及び、現場利用に関する課題検討を実施する予定であり、令和3年度には橋渡しできる環境として、「長さ100 mのファイバーでの当該モニタの実現可能性を検証すること」、「モニタとして動作可能なときの最小曲げ半径を調査すること」を目標とする。

3. 令和2年度の実施内容及び成果

3.1 α デブリ検出器の開発

3.1.1 イメージング検出器の開発

3.1.1.1 イメージング検出器の開発概況

令和元年度までに、CMOS カメラ (ORCA-Flash4.0、浜松ホトニクス株式会社) から構成されるイメージング検出器の筐体などを製作し、令和2年度はレンズなどを組み込み、完成させて、システムの構築及び動作確認を行い、正しく動作することを確認した。なお、イメージング検出器の詳しい部品、セットアップについては令和元年度までの報告書に記載した。

その後、位置分解能をいくつかの方法で評価した。まずは、図 3.1.1-1 にあるような 1951 U.S. Air Force (USAF) resolution test chart という規格のテストチャートを用いて、図 3.1.1-2 のようなセットアップで撮像を行い、 α 線照射時の位置分解能を評価した。ただし、 α 線発生源として、約 1 MBq の ^{241}Am 線源を用いて、線源とテストチャートとの間にシート状のシンチレータをはさみ、生じた発光を光源として、テストチャートの影絵 (シャドウイメージ) を取得した。

ここで、レンズは倍率 1 倍から 2、5 及び 10 倍までを使い、倍率を上げながらピント合わせや位置合わせを行った。それぞれの測定時間は 10 秒とした。

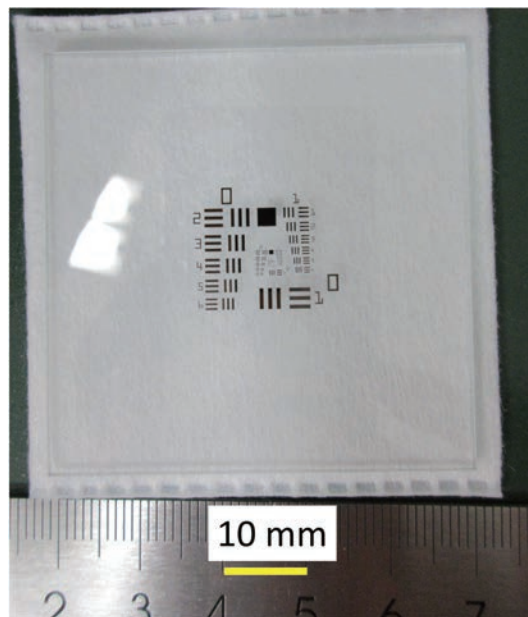


図 3.1.1-1 テストチャートの写真
中心部分のチャートの最小線幅は 2.19 μm である。

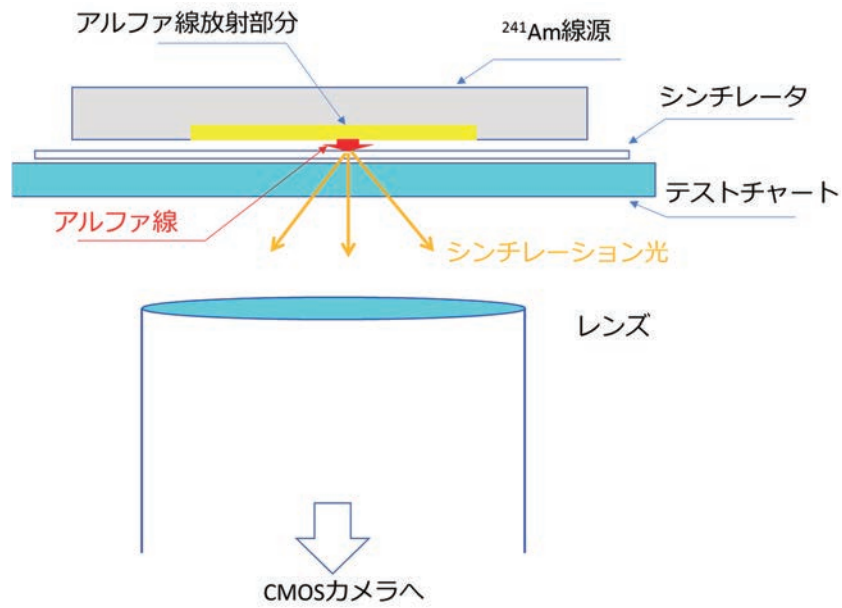


図 3.1.1-2 位置分解能評価時のセットアップの概念図

その結果、図 3.1.1-3 のように、最小線幅まで、分解することができ、例えば、図 3.1.1-3 に図示してあるように、線幅 $3.91\ \mu\text{m}$ の 3 本線も十分に分解することができた。この結果から、位置分解能 $10\ \mu\text{m}$ 以下は達成したと判断した。

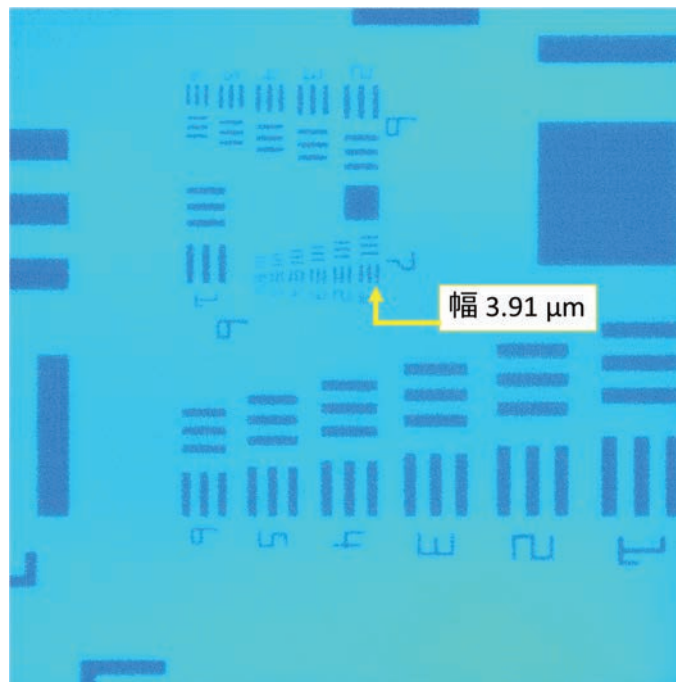


図 3.1.1-3 テストチャートの影絵の結果

さらに、図 3.1.1-4 のように、シンチレータ部分を一部 α 線放射部分からずらして、撮像をとったときも、図 3.1.1-5 のような結果になった。ここで、A の部分はシンチレータが ^{241}Am 線源とテストチャートの間にある場合で、B がそうでない場合である。その境界点について、位置分解能が理想的であれば、色の濃度（光強度の差）が直ちに变化するが、位置分解能をもつため、なだらかに变化する。この変化をみても、テストチャートを用いた実験と同様に、10 μm 以下の位置分解能を持つ事が分かった。なお、図 3.1.1-5 の赤点線部分 C の、シンチレータの境界部分で、2 重線のようにになっているのは、シンチレータ内部での発光した光が光ファイバーのように全反射して、シンチレータの部分の厚みの断面部分、すなわち縁で光っていることを占めていると考えられる。

また、図 3.1.1-6 のように、 ^{241}Am 線源をずらしても、放射線部分に相当する位置に応じて発光が起きていることも確認した。

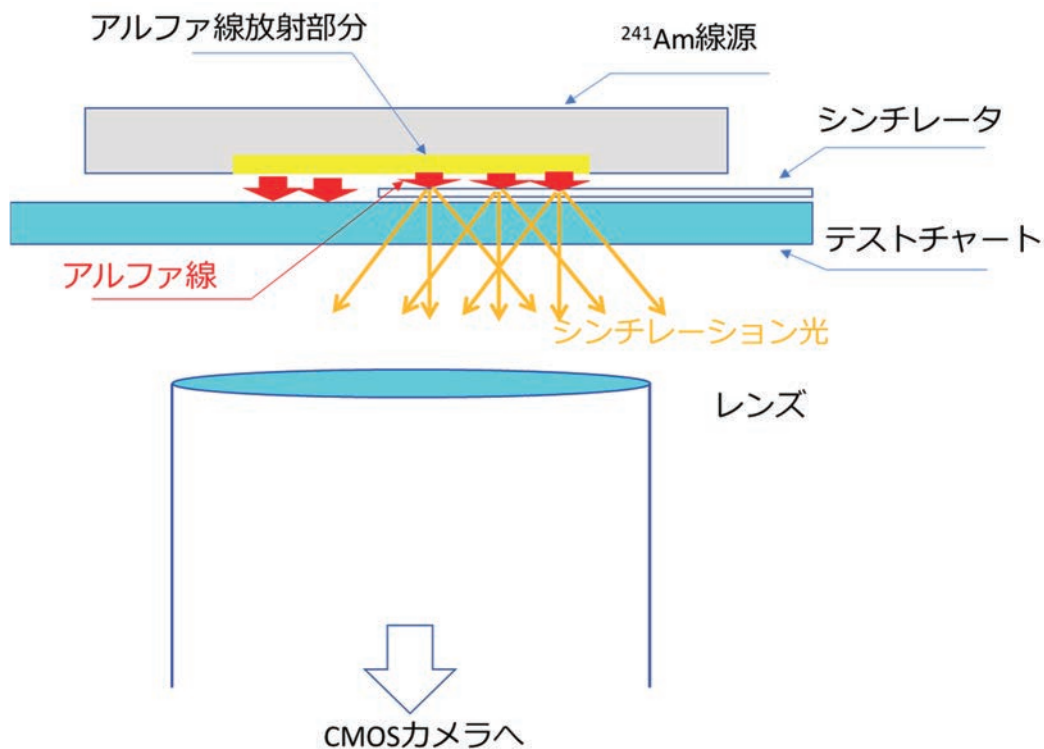


図 3.1.1-4 位置分解能評価時のセットアップ（発光と不発光の境界測定）の概念図

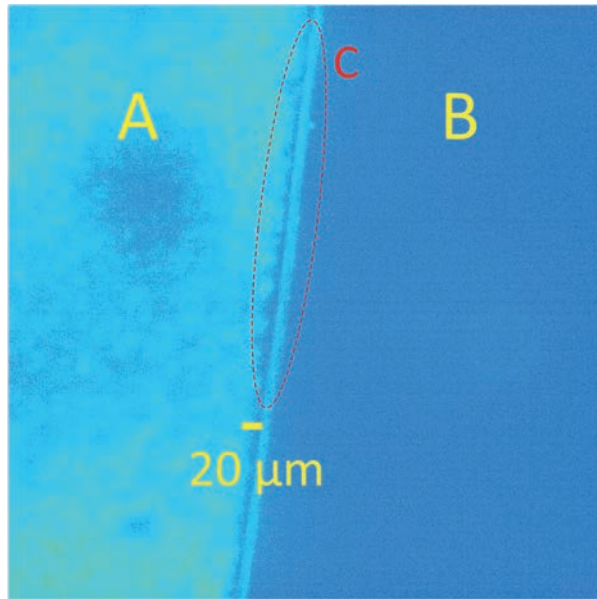


図 3.1.1-5 シンチレータの境界部分のα線撮像結果

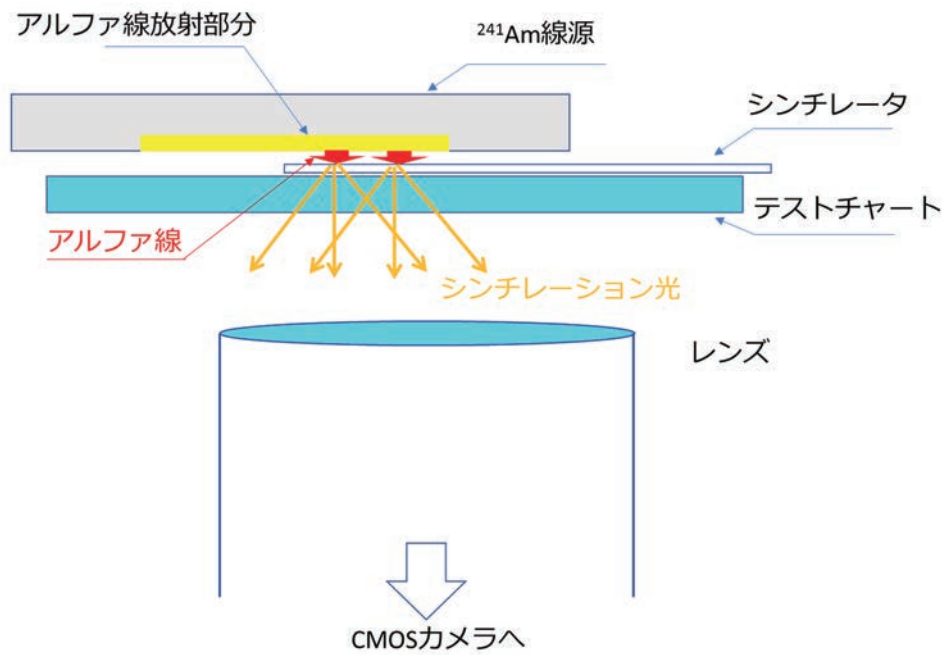


図 3.1.1-6 線源をずらしたときの様子

3.1.1.2 検出器の小型化・可搬化及び外部電源不要化

実際には、開発したイメージング検出器について、外部での実験となるため、可動式を想定して、データ制御・収集にかかわる部品（パソコン等）の小型化、及び、可搬型への組みなおしを行った。さらに、外部電源がなくとも動作可能にするために、蓄電池と太陽電

池を取り付けて、電源の無い環境でも動作可能なように改良を東北大学にて行った。なお、AC電源からも電源を取得できるようにした。

その後、実際に稼働するか、東北大学から JAEA に運び、テストを行い、動作を確認できた (図 3.1.1-7)。

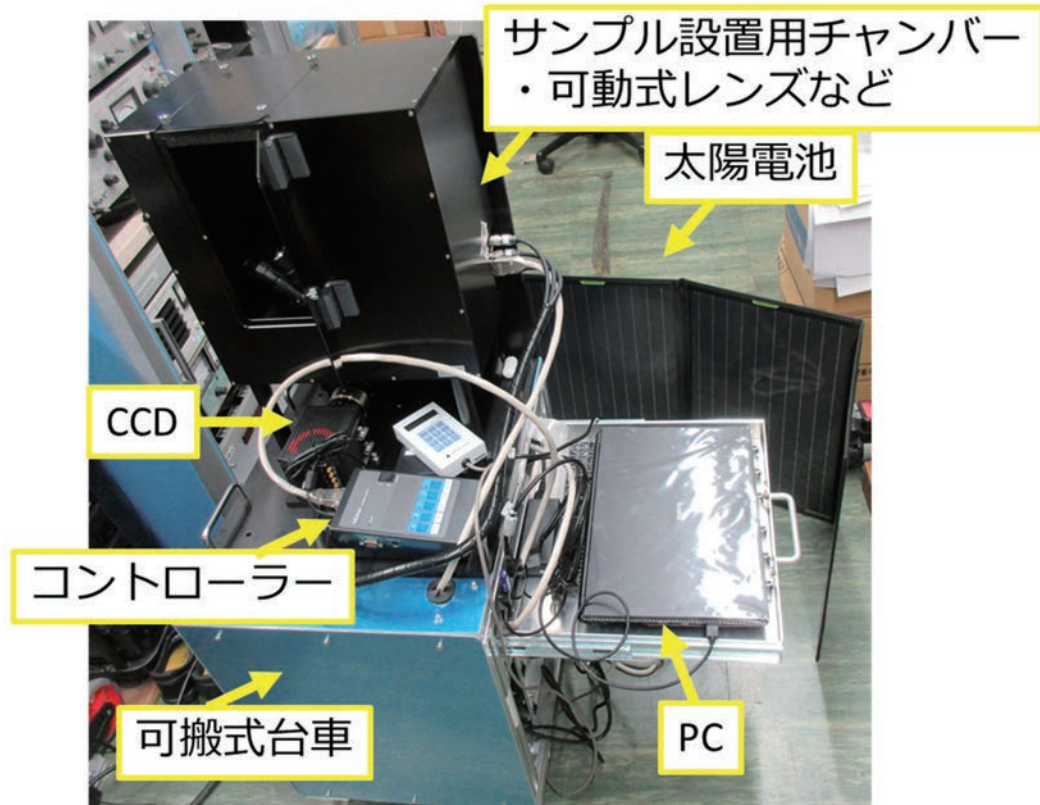


図 3.1.1-7 可動式にしたイメージング検出器の写真 (JAEA にて)

3.1.1.3 シートの開発

令和元年度までの研究から、ノイズとなる β 線の除去が無視できないことが指摘されるようになったため、その β 線を除去できるような形状について、検討を進めた。

ここで、予想される α ダストから出る α 線のエネルギーは 10 MeV 以下であり、数 MeV のエネルギーを持つ α 線の飛程が、シンチレータ内では、シンチレータの物質によるもの、おおよそ数 μm から 50 μm 程度の範囲である。一方で、 β 線を止めるためには、そのエネルギーやシンチレータの材料にもよるが、鉛などの金属で無い場合には、100 μm 程度以上は必要であるケースが多い。そこで、シンチレータの厚みを 100 μm 程度以下に抑えれば、ある程度の β 線の抑制が可能になると考え、シンチレータを粉体状にして、基盤もしくはシートに塗布等の作業で作成した「シート状シンチレータ」が有用であることを提案した。

現在、その塗布方法なども含めて最適化を行っている。

3.1.2 エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）

α デブリ検出器のエネルギー取得部分として装置に組み込むために、令和元年度まで実施していたモジュールを使用した測定システムから小型化のために信号処理回路を開発。開発したエネルギースペクトル測定装置の性能を α ダストの実サンプルにてデータ取得を行った。

3.1.2.1 エネルギースペクトル測定装置の小型化

α 線の検出器としてはSi-PD（浜松ホトニクス株式会社、S3590-09）を用い、周辺からの電磁ノイズ及び遮光のためアルミマイラ（10 μm 以下）を配し、 α 線の減衰を極力防ぎつつ低ノイズ環境を実現した。後段の信号処理回路を前置アンプ、メインアンプ、マルチチャンネルアナライザそれぞれを設計・開発を行い、さらに図 3.1.2-1 のように、小型化を行った。



図 3.1.2-1 改良したエネルギースペクトル測定装置でのセットアップ

3.1.2.2 核サ研での実サンプル測定結果

令和元年度までの検証では三菱電機が保有する ^{241}Am の α 線源でのみ評価を行っていたが、令和2年度の検証では現場で想定される複数の α 線核種がある条件での検証を行うため、核サ研に開発した装置を持ち込み、核サ研が保有する実サンプルにて試験を行った。実サンプルの写真を図 3.1.2-2 に示した。サンプルの線源範囲は7 mm のものを使用した。



図 3.1.2-2 実サンプルの写真

核サ研が保有する実サンプルには α 線核種として ^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm が含まれている。核サ研より提供いただいた線源データより、試験で測定対象とした α 線源の表面強度は $1.68 \times 10^5 \text{ min}^{-1}$ となっている。実サンプルのデータを表 3.1.2-1 に記載した。

表 3.1.2-1 実サンプルの線源データ

放射性核種	^{239}Pu (半減期 : 24,400 yr) ^{241}Am (半減期 : 433 yr) ^{244}Cm (半減期 : 17.8 yr)
強度	$1.68 \times 10^5 \text{ min}^{-1} (2\pi)$ $= 2.8 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$ $3.30 \times 10^5 \text{ min}^{-1} (4\pi, \text{推定値})$ $= 5.5 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$
強度測定日	1978/1/9

測定は令和 2 年 12 月 7~8 日の 2 日間で実施し、1 回 5 分間の測定を測定時間中に繰り返す方法でデータを取得した。取得したエネルギースペクトルを図 3.1.2-3 に示した。5 分間のデータであるが、3 種類の放射性核種に対応したピーク構造が測定できていることを確認し、改良したエネルギースペクトル測定装置が十分な性能であることを実証した。

また取得した α 線スペクトルでのピーク構造は令和元年度検証したノイズ要因となる β 線エネルギーよりも高いエネルギーで検出できることを確認し、影響を受けないことが確認できた。同様に β 線と近いエネルギーを持つ γ 線に対しても同様に影響を受けない。

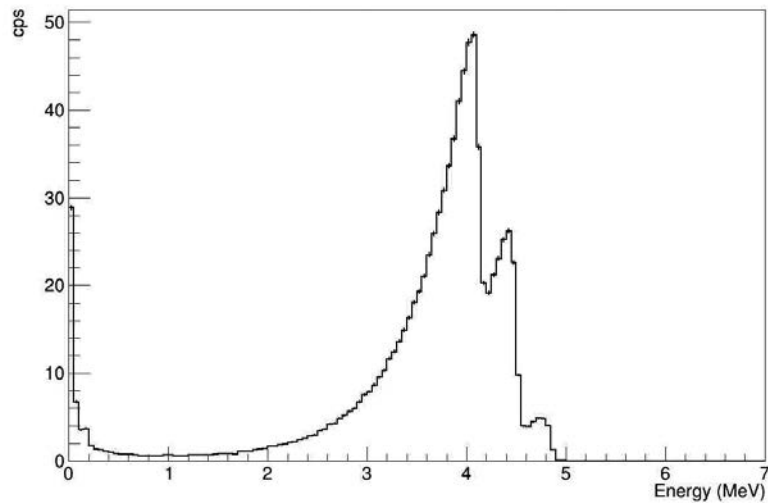


図 3.1.2-3 実サンプルのエネルギースペクトル測定結果

3.1.2.3 実サンプルデータへのアンフォールディング法の適用

令和元年度 ^{241}Am の α 線スペクトルで実証したアンフォールディング法を実サンプルで取得したエネルギースペクトルに対しても同様に適用し、複数種類の放射性核種がある条件での適用性を検証した。

3.1.2.4 実サンプルでのアンフォールディング適用結果

実サンプルデータでのアンフォールディング用応答関数は 0.05 MeV から 7.0 MeV までを 0.05 MeV ごとに合計 140 エネルギー分で作成した。応答関数を作成するための粒子輸送計算では Geant4[2] を用いた。応答関数作成時のモデル体型は線源情報や測定時の体系で再作成を行い高精度化させた。アンフォールディング法での演算は令和元年度適用性を検証した逐次近似法[3]での演算を実施。

図 3.1.2-4 に図 3.1.2-3 で示したエネルギースペクトルに対してアンフォールディング法を適用した結果を示した。アンフォールディング法適用の結果 ^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm 、3 核種が分析できていることが実証された。

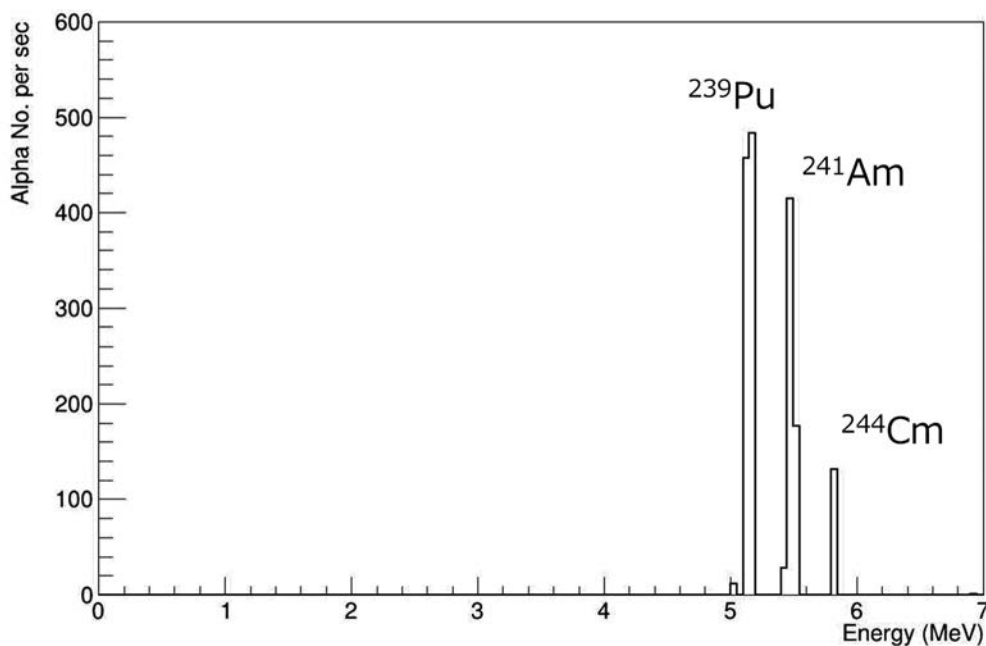


図 3. 1. 2-4 実サンプル測定に対するアンフォールディング結果

またアンフォールディング法によって得られたα線の強度を3核種それぞれが該当するエネルギー範囲で求めると表 3. 1. 2-2 のようになる。線源データでは含まれる核種それぞれの線源強度は記載がなかったため、未記入としている。

表 3. 1. 2-2 線源データとアンフォールディング結果の比較

	²³⁹ Pu	²⁴¹ Am	²⁴⁴ Cm	合計 (2π) @1978/1/9
線源データ	-	-	-	$2.8 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$
アンフォールディング結果	939 s^{-1}	618 s^{-1}	131 s^{-1} ↓半減期を考慮 672 s^{-1}	$2.23 \times 10^3 \text{ s}^{-1}$
比率	-	-	-	0.8

²⁴⁴Cm は ²³⁹Pu、²⁴¹Am よりも半減期が短いため線源データ取得時から大きく減衰しているため補正を行った。その結果表 3. 1. 2-2 のように線源データから想定される線源強度に対して 20 % の範囲内で測定できることを実証した。さらに線源データでは測定できていなかった核種ごとの線源強度を、アンフォールディング法を適用することで分析できることを実証した。

3.1.3 実証試験（連携先：JAEA）

3.1.3.1 超高位置分解能 α 線イメージング装置

令和元年度報告書に記載したとおり、JAEA では、高感度 CCD カメラ（電子増倍 EMCCD カメラ）と光学顕微鏡を組み合わせた超高位置分解能 α 線イメージング装置の開発を行った（図 3.1.3-1）。光学顕微鏡にはオリンパス株式会社の BX53MRF-S を用いた。 α 線源を X-Y-Z ステージ上に置き、ZnS(Ag)シンチレータ（EJ-440、Eljen Technology、TX、USA）を密接して置き撮像を行う。令和 2 年度は、 α 線計測の際に妨害となる、 β 線感度等の他の放射線による影響を調査するとともに、Pu 試料の測定結果をもとに、粒径分布を評価する手法の構築を行った。また、評価した粒子径情報を用い作業者の内部被ばく評価への影響や最適な防護具の検討を行った。

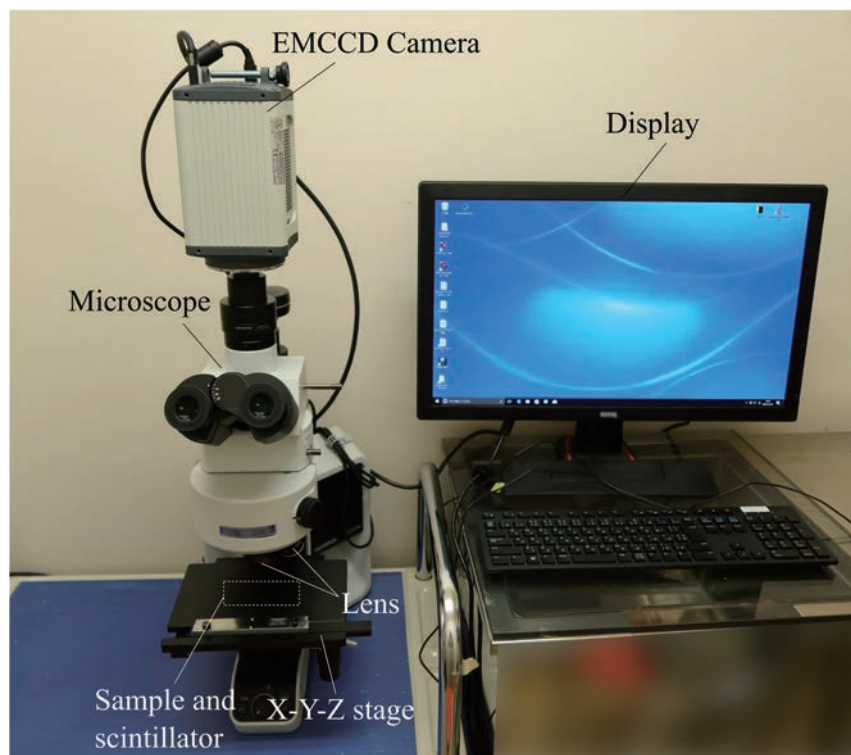


図 3.1.3-1 開発した超高位置分解能 α 線イメージング装置

3.1.3.2 β 線

1Fの廃炉現場において、 α 汚染と β 汚染が混在して存在していることが確認されている[4]。令和元年度報告において、開発した装置が α 感度を有することを確認したものの、 β 感度についても確認し、 α 線との弁別について確認することは重要である。図 3.1.3-2 に β 線測定概念図を示す。1 MBq ^{90}Sr - ^{90}Y β 線源をステージに乗せ、ZnS(Ag)シンチレータを β 線源上に置き測定を行った。結果については、後述の 3.1.3.7(1)を参照。

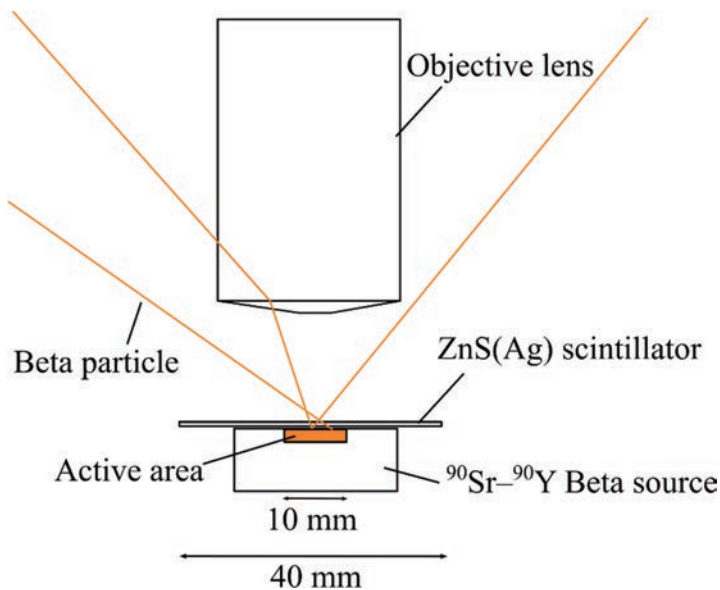


図 3. 1. 3-2 β線源測定のご概念図
 ([4]より許諾を得て転載)

3. 1. 3. 3 ²²²Rn 子孫核種

²²²Rn 子孫核種も α ダストを測定する際のバックグラウンドの原因となる。そこで、²²²Rn 子孫核種を α 線イメージング装置用いて測定した。図 3. 1. 3-3 に ²²²Rn 子孫核種の測定のご概念図を示す。²²²Rn 子孫核種は、エアサンプラー (DSM-361、日立アロカメディカル株式会社) を使用して、直径 47 mm のメンブレンフィルター (東洋濾紙株式会社) 上に収集された。空気サンプリングは、²²²Rn 濃度が約 200 Bq/m³ の環境で約 4 時間実行され、サンプリング後に濾紙を回収し測定を行った。メンブレンフィルターは直径 50 mm のガラス板上に固定し、ステージに乗せ、その上に ZnS(Ag) シンチレータを置き測定を行った。

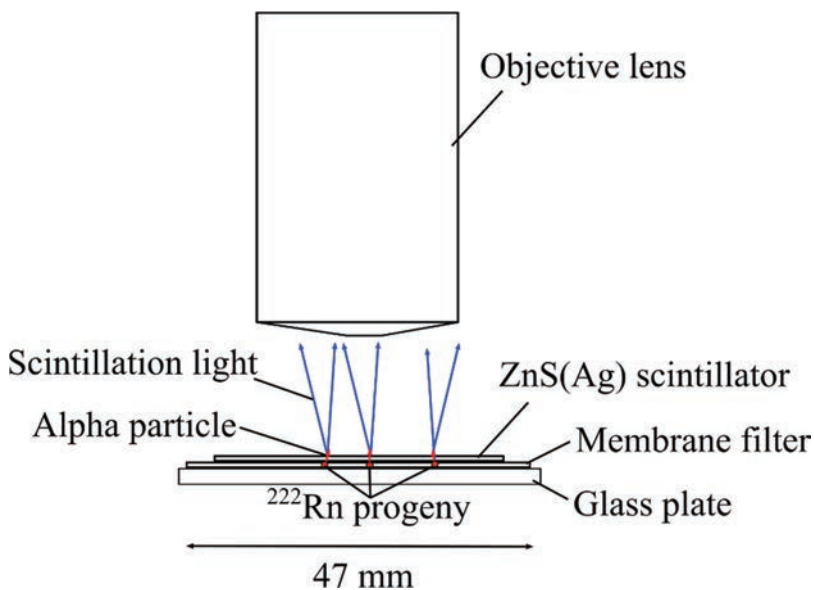


図 3. 1. 3-3 ²²²Rn 子孫核種測定のご概念図
 ([4]より許諾を得て転載)

3.1.3.4 α線スポットの自動識別方法

粒径分布を評価するにあたり、α線イメージング装置で測定した1つ1つのα線の位置（以下、「α線スポット」と呼ぶ。）を定量的に識別する必要がある。そこで、α線スポットの自動識別方法について検討した。自動識別は式(3.1.3-1)に示すように画像処理によって行った。

まず、2D ガウシアンフィルタ（平滑化フィルタ）を適用して、イメージセンサーによって画像に分布するノイズ（宇宙線等に起因するノイズ等を含む）を除去した。このフィルタ適用では OpenCV ライブラリを使用して、以下に示す 5×5 ガウスフィルタのカーネルを画像に畳み込んだ。なお、メディアンフィルタ等の他の平滑化フィルタも適用・比較を行い、上記フィルタの S/N が優れていたことからこちらを用いている。

$$K = \frac{1}{25} \times \begin{bmatrix} 1 & 4 & 6 & 4 & 1 \\ 4 & 16 & 24 & 16 & 4 \\ 6 & 24 & 36 & 24 & 6 \\ 4 & 16 & 24 & 16 & 4 \\ 1 & 4 & 6 & 4 & 1 \end{bmatrix} \quad \text{式(3.1.3-1)}$$

画像にカーネルを適用しノイズを除去した後、画像にバイナリ処理（2値化処理）を適用して、α線スポットのエッジ（境界）を検出した。図 3.1.3-4 に画像処理前と処理後の画像を示す。最後に、コンター（輪郭線）を数えることによりα線スポットの数を取得した。これらの処理は、プログラミング言語 Python により記述した。

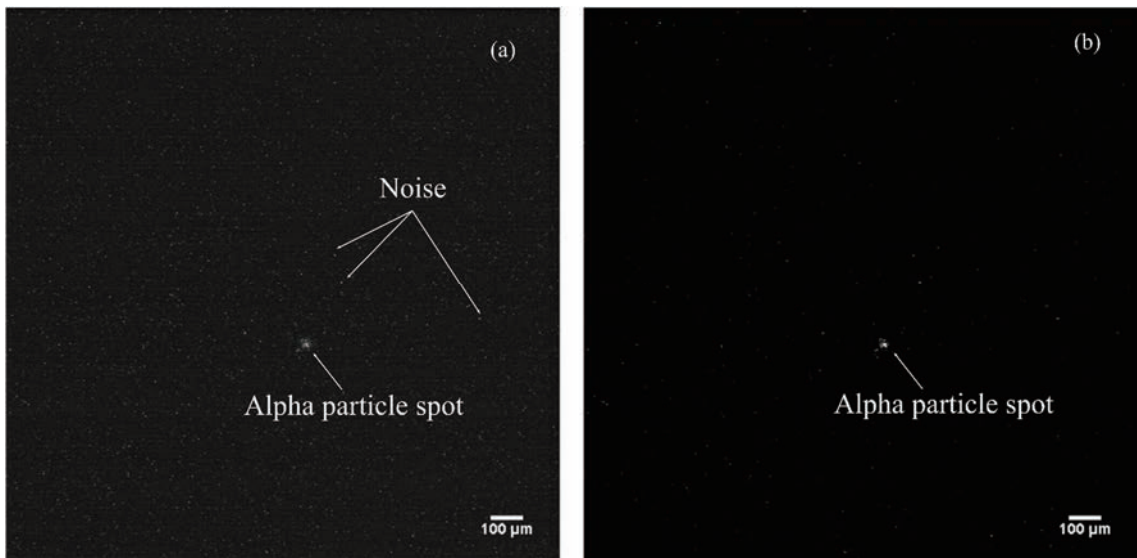


図 3.1.3-4 α線スポットの例

(a)画像処理前、(b)画像処理後

画像処理前にランダムに分布するノイズ信号が画像処理によって

除去されていることが分かる。

([4]より許諾を得て転載)

3.1.3.5 PuO₂ 粒子の粒子径分布の評価

PuO₂ 粒子の等価粒子径 (d_e) と空気力学的粒子径 (d_{ae}) の値は、内部被ばく線量計算に用いる粒子径である空気力学的放射能中央径 (AMAD) の値を評価するために必要になる [5]。この等価粒子径 d_e は、考慮される粒子と同じ体積の球形粒子の直径として定義されている。

まず、α線イメージング装置で測定されたα線の計数値から d_e を計算した。d_e の計算のため粒子・重イオン挙動解析コード (PHITS) によるシミュレーション計算により PuO₂ 粒子を再現し、検出された計数値を PuO₂ 粒子の d_e に変換する換算曲線を求めた。試料の養生のためのフィルム等を含む実測と同様のセットアップをシミュレーションで再現した。これにより、粒子や試料そのものの自己吸収の影響を含めることができた。図 3.1.3-5 にシミュレーションの計算体系を示す。α線は、PuO₂ 粒子から等方に放出させた。また、PuO₂ 粒子の Pu の同位体組成比については、同じ施設で代表的に用いられるものを用いた。Pu 同位体毎のα放射能は、各 Pu 同位体の比放射能に同位体組成比を掛けることによって決定される。シミュレーションでは、Pu 粒子の等価粒子径 d_e は 0.5~10.0 μm の範囲で変化させて計算を行った。PuO₂ 粒子の密度は 11.46 g/cm³ とした。

この d_e から、空気力学的粒子径である d_{ae} 値を計算する必要がある。d_{ae} は、以下の式 (3.1.3-2) と式 (3.1.3-3) を用いて d_e から数値的に解くことができる。これらの式は、ICRP Publication 66 [6] に記載されている。

$$d_{ae} = d_e \times \sqrt{\frac{\rho C(d_e)}{\chi \rho_0 C(d_{ae})}}; \quad \text{式(3.1.3-2)}$$

$$C(d) = 1 + \left(\frac{\lambda}{d}\right) \left\{ 2.54 + 0.800 \exp \left[-0.55 \left(\frac{d}{\lambda}\right) \right] \right\}, \quad \text{式(3.1.3-3)}$$

ここで、λ=0.0712 μm、χとρは、それぞれ粒子形状係数 (1.8) (実験データ [7] から引用) と質量密度である。ρ₀ は単位密度 (1 g/cm³) である。C(d) はすべりの補正係数 (カニングガムの補正係数とも呼ばれる) である。エアロゾル中の放射能の 50 % は、AMAD より大きい d_{ae} の粒子に関連する。

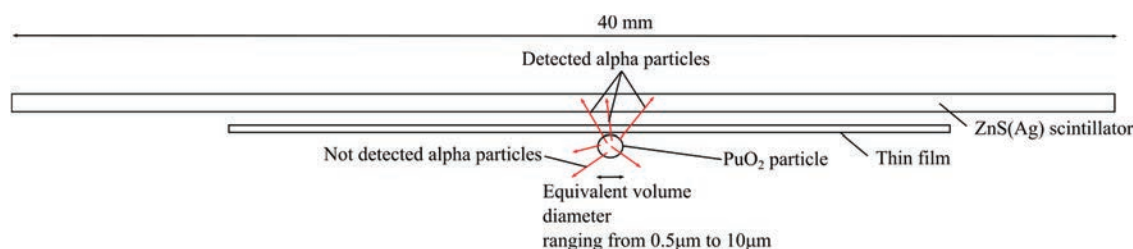


図 3.1.3-5 シミュレーション計算体系
PuO₂ 粒子の等価粒子径を 0.5~10 μm の範囲で変化させた。
([4] より許諾を得て転載)

3.1.3.6 作業者の内部被ばく評価への影響

内部被ばく評価に関して、ICRP Publication 68によると1 μmAMAD または5 μmAMAD に対して実効線量係数が与えられている。例えば、タイプM（呼吸気道から血液へ注意の速度で吸収される沈着物質）の場合、 ^{238}Pu では実効線量係数 (Sv/Bq) が $4.3\text{E-}05$ (1 μmAMAD)、 $3.0\text{E-}05$ (5 μmAMAD) となる[6]。今回の手法で、このAMADを評価できるかを確認した。また、最適な防護装備（呼吸保護具）の検討を行った。

3.1.3.7 試験結果

(1) β 線の影響

図3.1.3-6(a)は、50ミリ秒測定で取得した $^{90}\text{Sr-}^{90}\text{Y}$ β 線源の画像を示す。画像の全領域が $^{90}\text{Sr-}^{90}\text{Y}$ β 線源の領域であった。図3.1.3-4に示すような α 線のスポットが確認されていない。さらに、図3.1.3-6(b)は、10分間積算測定で取得した画像を示す。50ミリ秒の同様に、画像上に α 線スポットが確認されなかった。さらに、50ミリ秒測定の全測定画像に対し、3.1.3-4「 α 線スポットの自動識別方法」に示す判別にかけても α 線スポットが検出されないことを確認した。これらの結果は、 β 線の影響が無視でき、 α 線が明確に区別できることを示している。比較のため、 α 線源を同一の時間で測定した画像を図3.1.3-7に示す。

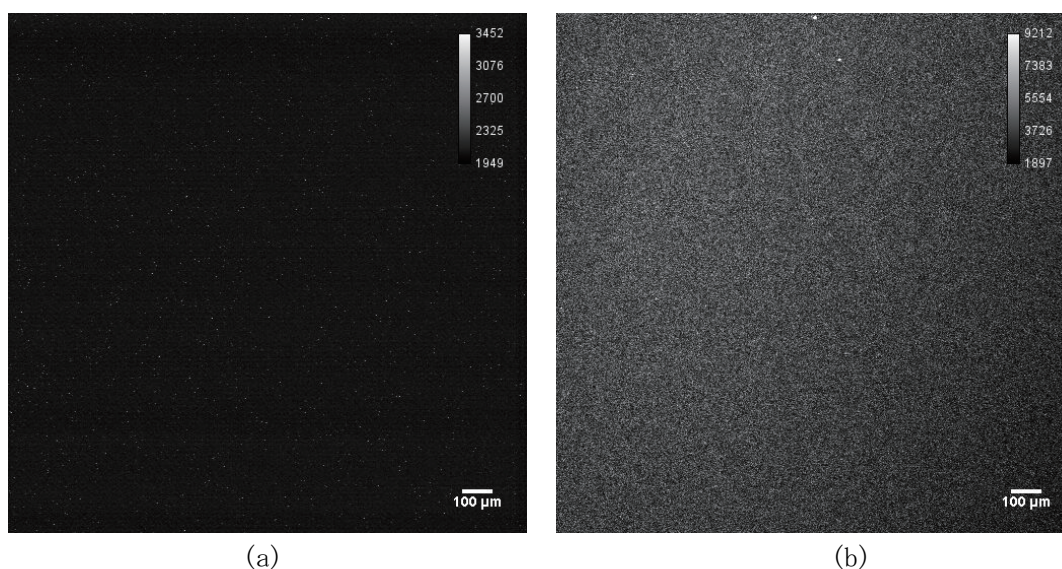


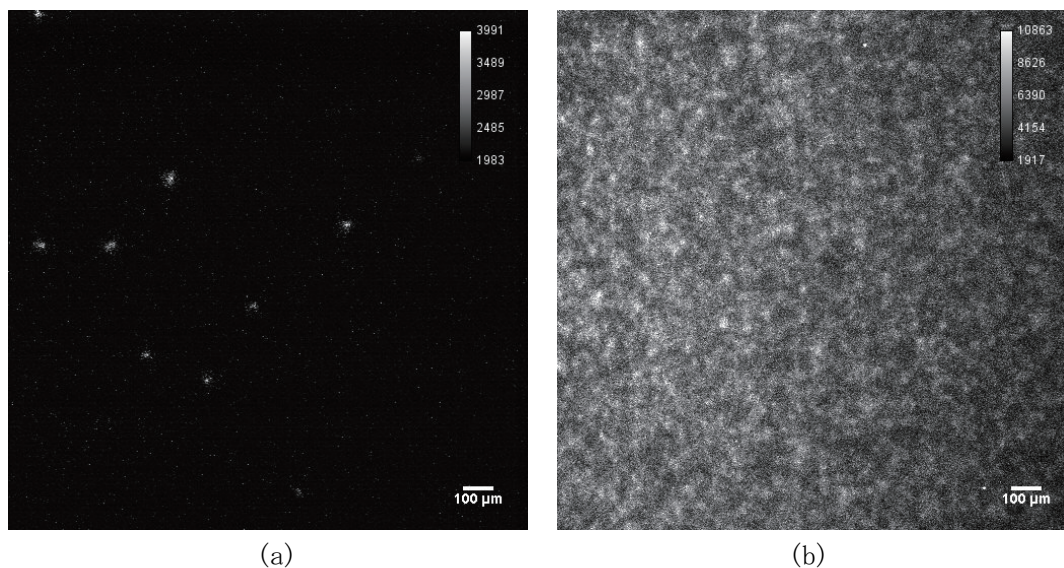
図3.1.3-6 ノイズとなる β 線の撮像評価

(a)50ミリ秒測定で取得した β 線源の画像、

(b)10分間積算測定で取得した β 線源の画像

どちらの画像とも、 α 線スポットは確認されず、 β 線と区別できることが分かる。

([4]より許諾を得て転載)



(a) (b)
 図 3.1.3-7 α線の撮像評価
 (a)50 ミリ秒測定で取得した α 線源の画像、
 (b)10 分間積算測定で取得した α 線源の画像
 どちらの画像とも、α線スポットが確認される。
 ([4]より許諾を得て転載)

(2) ^{222}Rn 子孫核種

図 3.1.3-8 に 30 分測定で取得した ^{222}Rn 子孫核種の画像を示す。α線が画像全体に分布しており、これは ^{222}Rn 子孫核種がメンブレンフィルター上に均一に捕集されるためと考えられる。 ^{222}Rn 子孫核種のうち ^{218}Po や ^{214}Po が α線を放出するが、 ^{218}Po は半減期が短いため、 ^{214}Po の 1 本の α線が主であると考えられる。PuO₂ 粒子の場合、1 つの粒子から α線が継続的に放出されるため、令和元年度報告書で示したように、クラスターとして撮像される。従って α線の分布の違いから、PuO₂ 粒子と ^{222}Rn 子孫核種は識別が可能である。

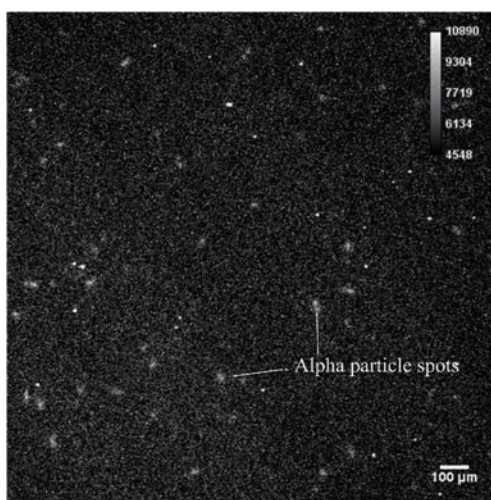


図 3.1.3-8 30 分測定で取得した ^{222}Rn 子孫核種の画像
 α線が画像全体に分布している。
 ([4]より許諾を得て転載)

(3) PuO₂ 粒子の粒子径分布の評価

図 3.1.3-9 は、シミュレーションを使用して計算された α 線計数率から PuO₂ 粒子の等価粒径 (d_e) への換算曲線を示す。この換算曲線は、 $y=3.84 \times d_e^{2.09}$ として近似できる。測定した α 線計数率が 214.3 ± 5.2 cpm であり、PuO₂ 粒子の d_e は $6.9 \mu\text{m}$ であると評価された。さらに、 d_{ae} は式(3.1.3-2)を解くことにより $17.4 \mu\text{m}$ であると評価された。今回は 1 個の PuO₂ 粒子のみの測定であるが、この評価方法を複数の PuO₂ 粒子に対して適用することにより、AMAD が評価できる。

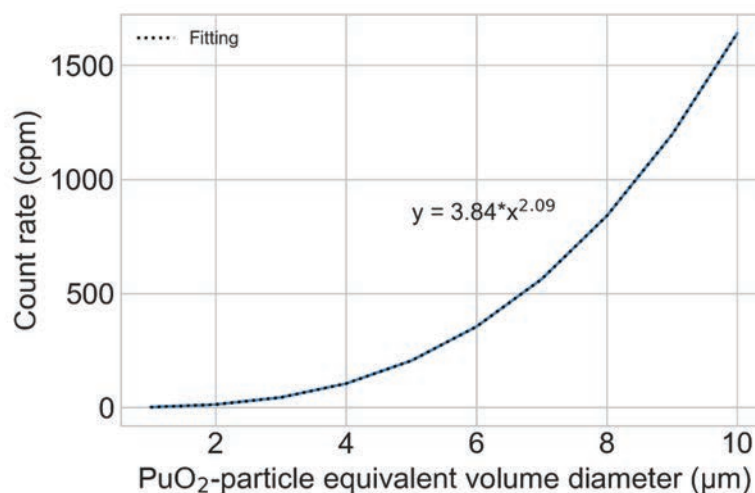


図 3.1.3-9 α 線計数率から PuO₂ 粒子の等価粒径への換算曲線
([4]より許諾を得て転載)

(4) 作業者の内部被ばく評価への影響

今回、図 3.1.3-9 に示すように d_e が $0.5 \sim 10 \mu\text{m}$ まで換算曲線を求めることができた。ここから d_{ae} を式(3.1.3-2)で評価すると $1.4 \sim 25.4 \mu\text{m}$ となる。実効線量係数は $1 \mu\text{mAMAD}$ または $5 \mu\text{mAMAD}$ に対して与えられているが、今回の手法で、 $1 \mu\text{mAMAD}$ または $5 \mu\text{mAMAD}$ かの判断は十分可能と考えられる。

また、呼吸保護具に関しては、電離則第 38 条及び令和 2 年 7 月 31 日付け基発 0731 第 1 号「防じんマスクの選択、使用等について」で定められるように、放射性物質がこぼれたとき等による汚染のおそれがある区域内の作業又は緊急作業において使用する場合は RS3、RL3 の性能を有する防じんマスクを選定する必要がある[8]。これに適合するマスクとしては、例えば株式会社重松製作所製の DR165N3 等が対応する。

3.1.3.8 まとめと考察

開発した超高位置分解能 α 線イメージング装置を用いて、内部被ばく評価に必要な粒子径を評価する手法を開発した。開発した手法により、定量的に α 線のスポットを抽出し、その後の粒子径評価ができるようになった。今回の手法は、従来手法（積分型の検出器）と比較して以下のような利点があると考えられる。

- 1) リアルタイムな測定が可能。
- 2) α 線のスポットの位置分解能が高い ($\sim 16 \mu\text{m}$ FWHM) ことから、隣接する PuO₂ 粒子が高精度に識別できる。(ここでは、PuO₂ 粒子とシンチレータ間の α 線の立体的な広がりがないと仮定する。)

- 3) シミュレーション計算により求めた換算曲線により、PuO₂ 粒子自体や試料そのもの（養生のフィルム等）のα線の自己吸収の影響を含めた換算が可能。
- 4) 光学画像とα線分布の重ね合わせが可能のため、PuO₂ 粒子の試料上の存在位置を正確に特定可能。

また、今回評価した d_0 が内部被ばく評価（実効線量係数）に必要な 1 μmAMAD または 5 μmAMAD の粒子径を評価可能であることも分かった。さらに、開発したα線イメージング装置がモバイル電源で動作し、電源のない現場でも使用可能であることも確認した（図 3. 1. 3-10）。これらのことから、今回開発した超高位置分解能α線イメージング装置及び粒子径評価の手法は、廃炉等の作業現場でリアルタイムに AMAD を決定するのに役立ち、労働者の内部被ばく線量評価に貢献できるものとする。



図 3. 1. 3-10 開発したα線イメージング装置のモバイル電源での作動確認

3.1.3.9 イメージング検出器の開発 II

3.1.1 項で開発したイメージング検出器（イメージ取得部分）と 3.1.2 項で開発したエネルギースペクトル測定装置（エネルギー取得部分）を組み合わせ、図 3.1.4-1 のような装置を開発した。性能は、3.1.1 項と 3.1.2 項の個々の性能のままである。

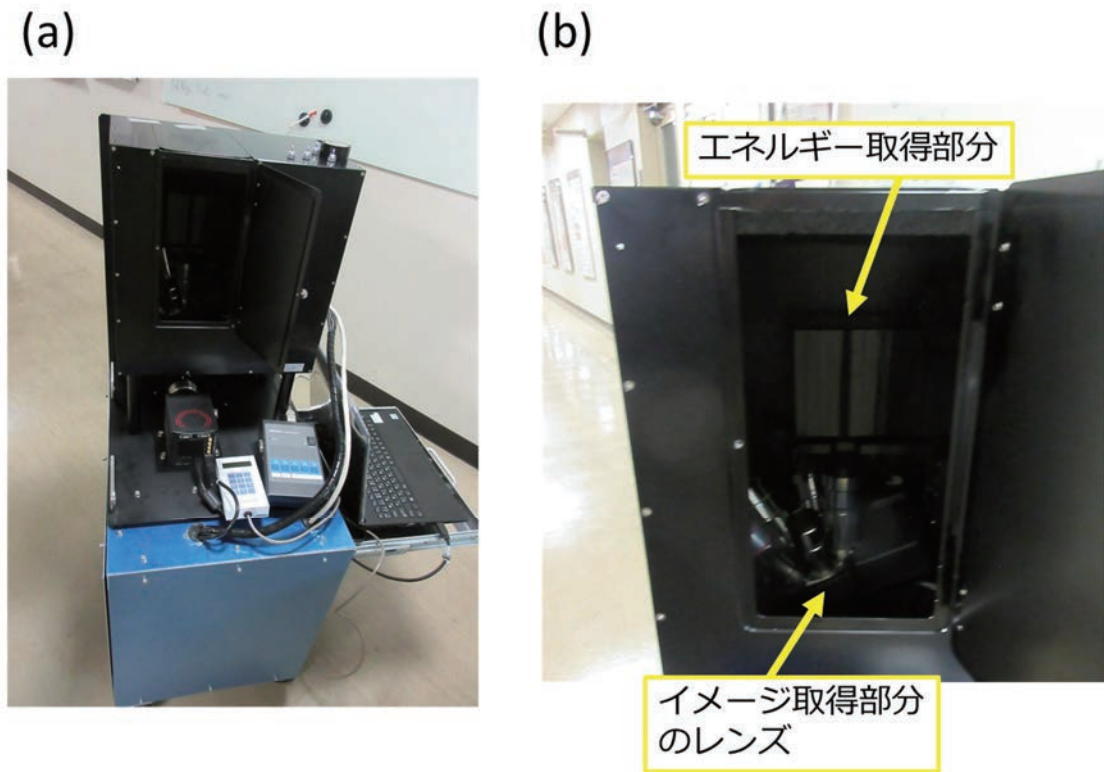


図 3.1.4-1 開発した装置の写真
 (a)開発した装置の全景、(b)サンプル設置用チャンバー部分の中身

3.2 高線量下モニタなどへの展開

3.2.1 結晶育成

3.2.1.1 高線量下ファイバー読み出しモニタの開発

令和元年度から引き続き、図 3.2-1 にあるように、1 Sv/h 程度以上の超高線量率場でも、線量率測定が可能のように、光ファイバーを用いて、超高線量率場の線量を測定するシステムを開発している。ここで、実用では、光ファイバーが 100 m 程度と長く、高線量率場の中を通る場合、光ファイバーによる自己吸収や、高線量場における光ファイバー自体のチェレンコフ発光やシンチレーション発光といったノイズが問題となる。このノイズとなる吸収や発光現象はおもに緑～青色程度以下で目立つため、ノイズを回避するために、赤色発光シンチレータを開発してきた。

このなかでも、 Cs_2HfI_6 (CHI) を主に用いた、ファイバー読み出しモニタを、令和元年度から引き続き進めた。また、令和元年度に引き続き CHI 以外のヨウ化物を中心とした材料の探索を実施した。加えて、CHI などの発光起源など光物性的な観点からの基礎研究も合わせて進め、材料探索の設計指針の確立を進めた。

さらに、令和 2 年度は、これらのモニタ開発をまとめて、プレスリリースも出すことができた。

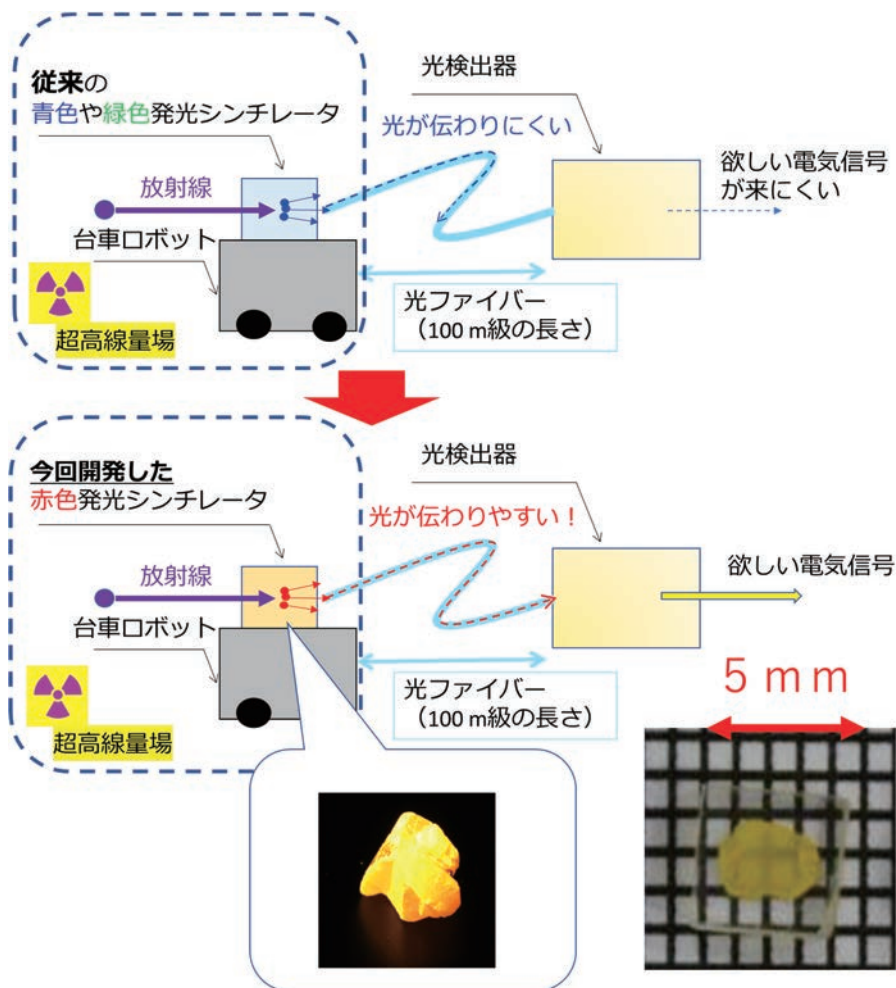


図 3.2-1 高線量率下ファイバー読み出しモニタの概念図[9]
吹き出し及び右下の写真はそれぞれ、 Cs_2HfI_6 の結晶及び研磨品

3.2.1.2 酸化物シンチレータの開発とそのための新しい結晶育成方法の開発

Cs_2HfI_6 やその他のヨウ化物シンチレータは、非常に明るく、かつ、発光波長も 700 nm 程度を中心とし、数秒以上の長くかつ明瞭な残光も無く、ファイバー読み出しモニタにとって、既存のシンチレータに比べて、条件の合うシンチレータではあったが、一点、潮解性がある点が、取り扱いのうえでネックとなっている。また、潮解性を防ぐためのパッケージによって、 α 線への感度は無い。

そこで、潮解性を示すことが非常にまれである、酸化物での赤色発光シンチレータについても、令和元年度に引き続き開発を続けた。ここで、本ファイバー読み出しモニタで使用するファイバーのコア径が 600 μm 程度であることから、光ファイバーの先にとりつけるシンチレータの大きさは、3 mm 角程度以下になる。そのため、小さい結晶ながらも、 γ 線に対しての感度を可能な限り持たせるために、有効原子番号や密度が高い材料を選択する必要がある。ここで、 γ 線が物質に当たり光電吸収という相互作用で、 γ 線の全エネルギーが物質中の電子にわたる現象での断面積（起こりやすさ）は、有効原子番号の 4~5 乗程度に、また密度に比例する。

有効原子番号の大きいもので、かつ、自身が放射性同位元素の影響で γ 線を放出しない元素として、これまで Hf に注目して、ヨウ化物などの探索も行っており、その結果として Cs_2HfI_6 など開発した。

酸化物の場合、Hf を含む材料では融点が 2400 $^{\circ}\text{C}$ を超えるケースが多く、結晶育成が困難である点がネックであった。これは、結晶育成時に使うルツボの金属（イリジウムや白金など）が、2400 $^{\circ}\text{C}$ 程度より低い温度に、融点や軟化点を持つからであり、原料粉末を融解させる前に、ルツボ材が耐えられなくなる。

これまでも 2400 $^{\circ}\text{C}$ を超えるような融点を持つ材料に対して、粉末原料自体をルツボとしたスカルメルト法や、局所的に光などによって加熱して、表面張力の効果で融液の流出を抑えながら結晶化させるフローティングゾーン法（FZ）などがあった。しかし、これらの方法には、育成に長い時間や大量の原料が必要、準備に手間がかかるといった問題があった。そのため、特に、材料探索のフェーズなど、結晶育成の時間を短くしたいような場合に適用できる方法が求められていた。

そこで、図 3.2-2 のように、既存の金属用のアーク溶解炉を転用し、アーク放電を加熱源として利用した新しい結晶育成方法を開発した。

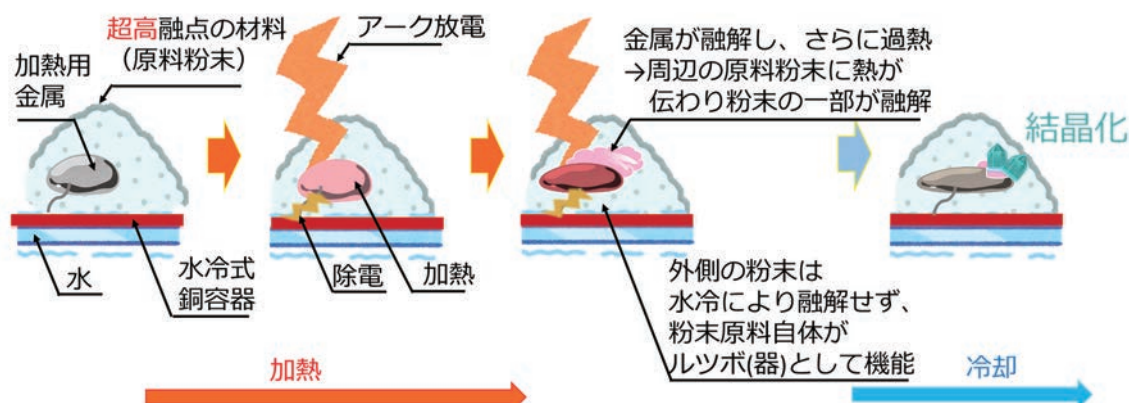


図 3.2-2 コア・ヒーティング法の概念図[10]

本方法では、加熱用の金属と原料粉末を水冷式銅容器（銅ハース）の容器の中に入れて、アーク放電によって金属を加熱してその熱で周りの原料粉末を融解させたのちに、冷却して結晶を得る。本方法は、CH法と名付けた。本方法では、2時間以内に本育成は終わる。また、銅ハースは「たこ焼き」のようにいくつもの粉体を入れる部位（くぼみ）があるため、連続して結晶育成が可能である。

CH法の開発では初めに、既存の育成方法でも結晶育成が可能なCe添加 $Y_3Al_5O_{12}$ 結晶（融点1970℃程度）について、検証を進めた。このCe添加 $Y_3Al_5O_{12}$ 結晶はレーザーなどにも使われる $Y_3Al_5O_{12}$ 結晶にCeを添加した光学材料であり、白色LED用の材料や、実用例は少ないものの一部はシンチレータとして使われた実績がある。今回、材料探索で多用され、既存の結晶育成方法であるマイクロ引き下げ法が適用できる結晶としては融点が比較的高いこと、結晶に欠陥などがあると発光特性に影響が出やすい結晶構造であることなどから、本結晶をサンプルとして利用した。

CH法とマイクロ引き下げ法で育成して（図3.2-3）、結晶としての性能、及び、光学特性を比較した。その結果、見た目では図3.2-3のように、CH法のほうがやや気泡が出やすい点、その他欠陥に起因すると思われる蛍光寿命の差が生じたが、発光量など、材料探索に重要は光学特性に差が無いことが分かった。

これらの結果については、詳細も含めて論文にまとめて出版した[11]。また、プレスリリースもできた[9]。

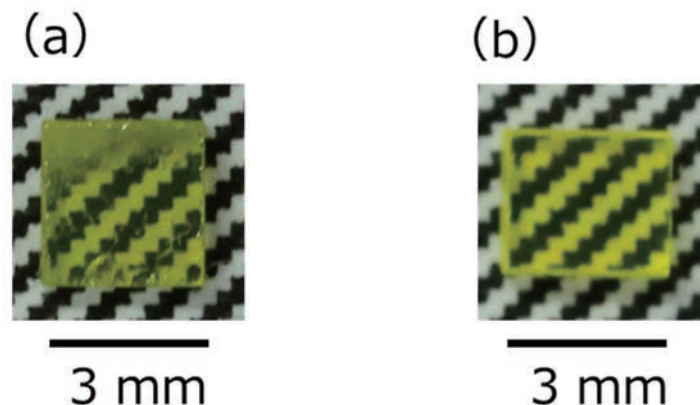


図 3.2-3 Ce 添加 $Y_3Al_5O_{12}$ 結晶の写真
(a)CH法、(b)マイクロ引き下げ法、で育成
（[11]より引用、加工、[11]より許諾を得て転載）

CH法を用いて、融点2418℃のYb添加 $La_2Hf_2O_7$ （Yb:LHO）などを開発した。Yb:LHOについては、十分に透明な結晶を得ることができ、粉末X線回折で目的の結晶相も確認ができた。その後、育成した結晶については、ファイバー読み出しモニタ用のために切断、研磨を行い、2mm角程度に整形した。また、モニタの比較例として、Cr添加 α - Al_2O_3 （ルビー）結晶についても同様に、同じサイズで準備した。

透過率も測定し、CH法はあくまで材料探索用の結晶育成方法であるため、ルビー結晶と比べても若干透過率は低いものであったが、発光波長領域（974nm付近）で、約50%程度

の透過率を持ち、十分に利用できる試料を得ることができた。また、X線励起による発光について調査したところ、 Yb^{3+} の4f-4f遷移に起因する974 nm程度の鋭い発光ピークを確認することができた(図3.2-4)。

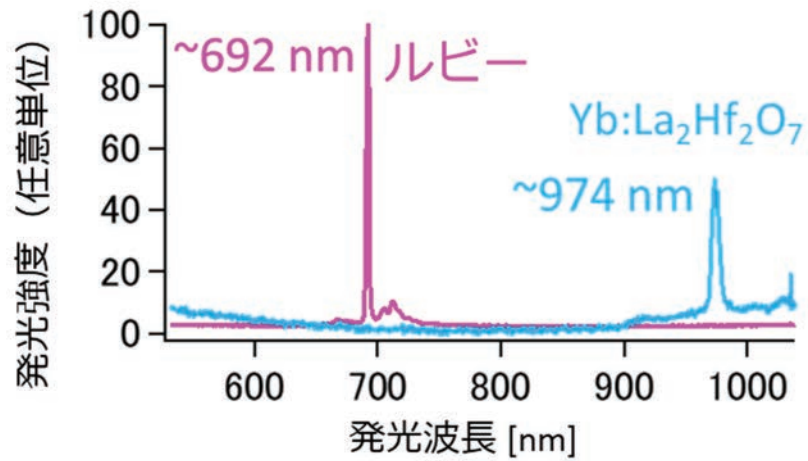


図 3.2-4 Yb:LHO とルビーの X線励起発光スペクトル

開発した Yb:LHO と比較のルビーについては、京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 照射施設（線源強度は 10 TBq 以上）にて、照射試験を行った。照射のセットアップなど詳細については、令和元年度のレポートに記載してあるため[1]、割愛するが、20 m の長さの光ファイバーと CCD 分光器を用いて、各線量率ポイントでの発光強度を測定した。

図 3.2-5 は当該コバルト 60 照射施設での照射結果を示す。CCD 分光器の中の分光器（回折格子）がルビーや CHI などの発光領域で感度が良くなるような設定になっていたため、ルビーや CHI よりも長波長である Yb:LHO には不利な結果となり、発光強度もルビーの 10 分の 1 程度（感度補正無の場合）であった。また、令和 2 年度は 0.1 Sv/h よりも高い線量率領域での動作、計測が目標であったが、Yb:LHO において、0.1–1 kSv/h 以上の範囲、つまり目標領域よりも高い線量率での範囲での計測に成功した。

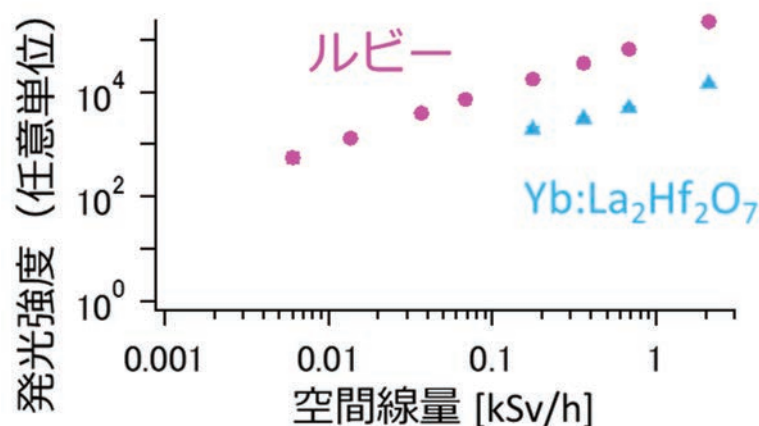


図 3.2-5 Yb:LHO とルビーのコバルト 60 照射施設でのファイバー読み出し試験の結果

ここで、予め光ファイバーからの発光スペクトルを取得してあり、これをノイズと捉え、発光バンド（信号）の中にとどの程度ノイズが紛れ込むか、以下の式(3.2-1)に示すように SN 比で評価を進めた。SN 比の定義は

$$SN := I_{\text{signal}} / I_{\text{noise}} \quad \text{式(3.2-1)}$$

とし、 I_{signal} 及び I_{noise} それぞれ、波長スペクトル上で、発光スペクトルの当該ピーク（最大値）に比べて 10 % まで落ちる範囲での、信号及びノイズの積分値とした。ただし、ノイズのスペクトルは取得済みではあるが、この絶対強度は、高線量率場の環境に強く依存するため、絶対的な値として SN 比を求めることはできない。

そこで、コバルト 60 照射施設にて、シンチレータを取り付けず、光ファイバー約 10 m を、おおよそ 0.9 kSv/h の線量率の場所において、その発光スペクトルデータを取り、これをノイズデータとした。そして、そのノイズデータに対して、シンチレータがおおよそ同じような線量率（約 0.72 kSv/h）のとき、その半分、及びさらにその半分のときというように、表 3.2-1 のとおり、いくつかの条件に場合分けして、評価した。また、シンチレータとしては、CHI、ルビーも考察に入れた。

表 3.2-1 光ファイバーとシンチレータの空間線量率の条件（単位は kSv/h）

	光ファイバー (ノイズ成分)	シンチレータ
条件 1	~0.9	~0.72
条件 2	~0.9	~0.36
条件 3	~0.9	~0.18

その結果、SN 比は表 3.2-2 のようになり、Yb:LHO がどの条件でも SN 比としてみれば、他の材料よりも優れていることが分かった。もちろん本評価方法には、仮定がいくつもあることから、一概に CHI を棄却するものではないが、少なくとも潮解性が無い点は有利に働くと考えている。また、ルビーは発光強度 (I_{signal}) としては Yb:LHO のそれに比べて大きいものの、ノイズ成分 (I_{noise}) がルビーの発光波長領域では、Yb:LHO の発光領域よりも大きいため、SN としても Yb:LHO が勝った。さらに、ルビーに比べて、残光特性が無いことなども Yb:LHO の強みである。今後は、発光強度 (信号強度) を大きくするため材料探索について、CH 法などを利用しながら進める。また、Yb:LHO については、今後投稿論文としてまとめる予定である。

表 3.2-2 条件ごとの SN 比一覧

	条件 1	条件 2	条件 3
Yb:LHO	6.5	1.3	32
CHI	1.7	0.96	24
ルビー	4.8	0.34	8.6

3.2.2 現場適用に向けた詳細検討

3.2.2.1 シミュレーション研究

当初計画には無かったものの、高線量率下ファイバー読み出しモニタの開発が、期待以上に進んだことから、発展的研究として、線量率校正にかかる研究を開始した。本モニタで得られる値は、各波長での発光強度、すなわち波高スペクトルであり、これは電流モードと呼ばれるデータ取得方法に相当する。そして、個々の γ 線からのエネルギー情報を得られることはできないため、測定環境に複数の核種がある場合には、正確な線量率を測定することは困難である。

ただし、実用上、まずは大雑把な線量率把握が目的であり、ある程度の線量率のエラー幅は許容できる。そこで、シミュレーションによるエラー評価、すなわち生データから推定される最大と最小の線量率値についての評価を行う。

令和 2 年度は、それらの準備を行い、令和 3 年度も引き続き実施する。

3.2.2.2 100 m ファイバーへの展開

これまでの高線量下ファイバー読み出しモニタの開発では、20 m の長さの光ファイバーを用いてきた。しかしながら、実用上、100 m 程度の光ファイバーが必要である。そこで、発展的研究として、100 m 長の光ファイバーを特注することができた（図 3.2-6）。

また、20 m から 100 m になった時の光の減光などを考察し、十分に使えることが分かった。

さて、曲げ半径の関係から、これまで使用していたコア径が 600 μm の光ファイバーでは対応できないケースがあることも想定する必要性が出てきた。600 μm より小さければ曲げ半径を小さくできる反面、伝達できる光量が減るため、SN 比や測定可能な線量のダイナミックレンジが狭まる可能性が十分に考えられる。そこで、コア径が 400 μm や 200 μm のファイバー（20 m）も取得した。さらに、CCD 分光器について、実用化を念頭に購入し、令和 3 年度、測定可能な線量のダイナミックレンジの評価をすぐに実施できる環境を整えた。



図 3.2-6 100 m 長の光ファイバーの納品時の写真

3.2.2.3 高線量率下ファイバー読み出しモニタの開発のまとめと今後の課題

これまでに、CHI をメインとして当該モニタの開発を進め、検出器自体の開発はおおむね終了し、100 m の長さでの線量率校正、コア径の違いによる線量率のダイナミックレンジを令和 3 年度早々に行う計画である。線量率校正では、対象区域の核種が特定できていないため、シミュレーションの構築を進める。CHI は潮解性があるため、今後、エンドユーザーから α 線に感度を持つ線量計の開発需要があった場合などに備えて、酸化物での赤色及び近赤外発光シンチレータの開発も進めていく。

3.3 研究推進

本研究を推進するにあたり、令和元年度から引き続き、3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。その中では、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のみでは知りえない情報の提供をいただいた。さらには、CLADSの協力なしでは不可能であった実験もいくつかあった。

本研究を通じて下記の発表を行うことができたとともに、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。加えて、修士号1名及び博士号を1名取得することができ、内、博士号取得者については、国内の国立大学法人の助教として令和2年度より赴任できた。このように、若手の育成についても成果を上げることができた。

論文（査読付）

- (1) Kodama Shohei, Kurosawa Shunsuke, Fujii Kotaro, Murakami Taito, Yashima Masatomo, Pejchal Jan, Kral Robert, Nikl Martin, Yamaji Akihiro, Yoshino Masao, Toyoda Satoshi, Sato Hiroki, Ohashi Yuji, Kamada Kei, Yokota Yuui, Yoshikawa Akira, Single-crystal Growth, Structure and Luminescence Properties of $\text{Cs}_2\text{HfCl}_3\text{Br}_3$, *Opt. Mat.*, vol. 106, no. 109942, 2020.
- (2) Kurashima Yutaro, Kurosawa Shunsuke, Murakami Rikito, Yamaji Akihiro, Ishikawa Shiori, Pejchal Jan, Kamada Kei, Yoshino Masao, Toyoda Satoshi, Sato Hiroki, Yokota Yuui, Ohashi Yuji, Yoshikawa Akira, Novel Method of Search for Transparent Optical Materials with Extremely High Melting Point, *Cryst. Growth Des.*, vol. 21, no. 1, pp. 572-578, 2021.
- (3) Morishita Yuki, Kurosawa Shunsuke, Yamaji Akihiro, Hayashi Masateru, Sasano Makoto, Makita Taisuke, and Azuma Tetsushi, Plutonium Dioxide Particle Imaging Using a High-resolution Alpha Imager for Radiation Protection, *Sci. Rep.*, vol. 11, no. 5948, 2021.

国際学会

- (1) Kurashima Yutaro, Kurosawa Shunsuke, Murakami Rikito, Yamaji Akihiro, Kamada Kei, Yoshino Masao, Toyoda Satoshi, Sato Hiroki, Yokota Yuui, Ohashi Yuji, Hanada Takashi, Yoshikawa Akira, Synthesis of Transparent CaHfO_3 Crystals by the CH Method and its Optical Properties, 2020 International Conference on Solid State Devices and Materials, Online, Oral (invited), September 30, 2020.
- (2) Kurosawa, S., Sone, H., Ujiie, H., Kurashima, Y., Yamaji, A., Kamada, K., Yoshino, M., Toyoda, S., Sato, H., Yokota, Y., Ohashi, Y., Yoshikawa, A., Evaluation of Defect Sites for $\text{Gd}_3(\text{Ga},\text{Al})_5\text{O}_{12}$ Based Transparent Ceramics Prepared by the Spark Plasma Sintering Process, 20th International Conference on Defects in Insulating Materials (ICDIM2020), Online, Oral (invited), November 23-27, 2020. (オンライン上でビデオ公開) .

国内学会

- (1) 小玉翔平, 黒澤俊介, 森下祐樹, 宇佐美博士, 鳥居建男, 林真照, 東哲史, 笹野理, 牧田泰介, 田中浩基, 花田貴, 山路晃広, 吉野将生, 豊田智史, 佐藤浩樹, 大橋雄二, 鎌田圭, 横田有為, 吉川彰, リモートガンマ線量モニタの実現を目指した新規赤色発光ヨウ化物シンチレータの開発と放射線応答特性, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 口頭発表, 2020.
- (2) 倉嶋佑太郎, 黒澤俊介, 村上力輝斗, 山路晃広, 鎌田圭, 吉野将生, 豊田智史, 佐藤浩樹, 横田有為, 大橋雄二, 花田貴, 吉川彰, Core Heating 法を用いて育成された透明 CaHfO_3 結晶の特性評価, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 口頭発表, 2020.
- (3) 黒澤俊介, 森下祐樹, 林真照, 小玉翔平, 山路晃広, 宇佐美博士, 牧田泰介, 東哲史, 笹野理, 鳥居建男, α ダスト検出に向けた撮像機器の開発, 第 81 回応用物理学会秋季学術講演会, オンライン, 口頭発表, 2020.
- (4) 黒澤俊介, 小玉翔平, 倉嶋佑太郎, 上中あい, 大野真紀, 山路晃広, Development of Novel Scintillation Materials with High Light-output Using UVSOR Beams UVSOR を利用した新規高輝度シンチレータの探索, UVSOR シンポジウム 2020, オンライン, 口頭発表, 2020.
- (5) 黒澤俊介, 山路晃広, 石川志緒利, 小玉翔平, 倉嶋佑太郎, 上中あい, 工藤真紀, シンチレータの最前線 (2020 年度版), 第 35 回研究会「放射線検出器とその応用」, オンライン, 口頭発表, 2021.
- (6) 黒澤俊介, 倉嶋佑太郎, 村上力輝斗, 石川志緒利, 山路晃広, 庄子育宏, 鎌田圭, 吉川彰, コア・ヒーティング法の開発と高融点材料への展開, 第 21 回レーザー学会東京支部研究会電気学会 光・量子デバイス技術研究会, オンライン, 口頭発表 (招待講演), 2021.

プレスリリース

- (1) 2020 年 6 月 18 日, 東北大学, 「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-」.
- (2) 2020 年 6 月 18 日, 日経新聞 (web 版), 「東北大・京大・三菱電機、廃炉の迅速化を可能にする高線量環境の炉内線量計測を開発」.
- (3) 2020 年 6 月 19 日, 電気新聞 (2 面), 「東北大が新技術、高線量下で放射線計測／福島第一廃炉に貢献」.
- (4) 2020 年 6 月 30 日, 河北新報 (3 面), 「超高線量の計測成功、福島廃炉に活用へ 東北大など」.

- (5) 2020年7月2日, 毎日新聞(14面:東京朝刊13版), 「高線量下のセンサーに 東北大など素材開発」.
- (6) 2020年7月22日, 日経産業新聞(6面), 「超高線量でも測定、廃炉に活用」.
- (7) 2021年1月22日, 東北大学, 「コア・ヒーティング法の開発 -革新的な超高融点材料の探索の迅速化-」.
- (8) 2021年1月22日, 日経新聞(web版), 「東北大とC&A、2300℃程度以上の融点をもつ材料でも結晶合成できる「コア・ヒーティング法」の開発に成功」.
- (9) 2021年1月25日, 鉄鋼新聞(4面), 「東北大など/新たな「結晶育成法」開発/高融点の材料開発加速へ」.

受賞

- (1) 黒澤俊介, 公益社団法人日本アイソトープ協会 日本アイソトープ協会奨励賞, 「医用、資源探査, 非破壊検査などの放射線応用を目指したシンチレータの開発と応用」, 2020年6月26日.
- (2) 小玉翔平, 黒澤俊介, 森下祐樹, 宇佐美博士, 鳥居建男, 林真照, 東哲史, 笹野理, 牧田泰介, 田中浩基, 花田貴, 山路晃広, 吉野将生, 豊田智史, 佐藤浩樹, 大橋雄二, 鎌田圭, 横田有為, 吉川彰, 応用物理学会放射線分科会 2020年秋季 放射線分科会学生優秀講演賞, 「リモートガンマ線量モニタの実現を目指した新規赤色発光ヨウ化物シンチレータの開発と放射線応答特性」, 2021年1月6日.

4. 結言

1Fの廃炉を実現するなかで、作業員の安全の確保のための α 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、スミヤろ紙上に付着するより細かい α 線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。

「 α デブリ検出器の開発」の「イメージング検出器の開発」については、令和元年度までに開発・選定した筐体、CMOSカメラ及びレンズを組み合わせ、10 μm 以下の像を α 線励起で判別することができた。また、検出器の小型化、可搬型及び外部実験で電源の無い所でも動作可能なように太陽電池も付した。動作試験もJAEAで行い、正常に動作した。

「 α デブリ検出器の開発」の「エネルギー取得部分の開発」では、イメージング取得部と組み合わせるためにエネルギースペクトル取得装置の小型化を実施。さらに実環境で想定される α ダストの実サンプルでのエネルギースペクトルを取得。その取得データに対してGeant4などのシミュレーションで作成した応答関数を用いて、アンフォールディング法を適用し複数の放射性核種が含まれる条件においても線源スペクトルを取得できることを確認。これによりアンフォールディング法の道筋をつけた。

1) 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 α 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、実サンプルとなる ^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm の3核種を含む線源からの α 線スペクトルが検出できる装置にし、さらにイメージング装置と組み合わせできるサイズへと小型改良した。

2) 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1)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 ^{239}Pu 、 ^{241}Am 、 ^{244}Cm の3核種を含む実サンプルからの α 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を確認し、アンフォールディング法が適用できることを実証した。

「 α デブリ検出器の開発」の「実証試験」では、上記の「イメージング検出器の開発」及び「エネルギー取得部分の開発」それぞれに対応して試験を行い、その実証を十分にできた。

「高線量下モニタなどへの展開」については、次のとおり進めることができた。

3) 高線量下ファイバー読み出しモニタの開発

令和元年度に、ほぼ原理実証を行うことができ、令和2年度は周辺材料の探索、モニタ開発における詳細な点などについて確認を行った。また、令和元年度までの結果をまとめてプレスリリースも行え、いくつかの報道もされた。

4) 酸化物シンチレータの開発とそのための新しい結晶育成方法の開発

モニタ用のシンチレータ材料として潮解性が無い材料の開発も進め、Hf酸化物に注目して、材料開発を進めた。その過程で、Hf酸化物の融点が高いために、短時間で結晶育成が可能で材料開発に最適なCH法を新たに開発した。このCH法については、プレスリリースも行え、いくつかの報道もされた。

5) 発展的研究：シミュレーション研究・100 m ファイバーへの展開

発展的研究として、校正方法の最適化の準備、100 m ファイバーの特注、曲げ半径を小さくするためのコア径の異なるファイバーの購入などを行った。

以上のとおり、令和 2 年度は、新型コロナウイルスの影響で、特に外部実験を含む、実験実施の制限があったものの、発展的研究も含めて、計画どおりに実施することができた。

参考文献

- [1] 日本原子力研究開発機構, 東北大学, 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(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, JAEA-Review 2020-039, 2021, 59p.
- [2] Allison, J., et al., Recent Developments in Geant4, Nuclear Instruments and Methods A, vol. 835, 2016, pp. 186-225.
- [3] 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.
- [4] Morishita, Y. et al., Plutonium dioxide particle imaging using a high-resolution alpha imager for radiation protection, Scientific Reports 11, no. 5948, 2021.
- [5] ICRP, Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers. A Report of a Task Group of Committee 2 of the International Commission on Radiological Protection, Ann ICRP, vol. 24, no. 4, 1994, 83p.
- [6] ICRP, Human Respiratory Tract Model for Radiological Protection. A Report of a Task Group of the International Commission on Radiological Protection, Ann ICRP, vol. 24, no. 1-3, 1994, 482p.
- [7] Kotrappa, P., Sundararajan A. R., Bhanti, D. P., Menon, V. B., Dynamic Shape Factors for PuO₂ Aerosols Useful in Autoradiographic Particle Size Analysis, Health Physics, vol. 29, no. 5, 1975, pp. 701-704.
- [8] 厚生労働省労働基準局長, 金属アーク溶接等作業を継続して行う屋内作業場に係る溶接ヒュームの濃度の測定の方法等の施行について, 基発 0731 第 1 号令和 2 年 7 月 31 日, 2020.
- [9] 東北大学プレスリリース, 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ー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ー, 2020 年 6 月 18 日.
- [10] 東北大学プレスリリース, コア・ヒーティング法の開発ー革新的な超高融点材料の探索の迅速化ー, 2021 年 1 月 22 日.
- [11] Kurashima Yutaro, Kurosawa Shunsuke, et al., Novel Method of Search for Transparent Optical Materials with Extremely High Melting Point, Cryst. Growth Des., vol. 21, no. 1, 2020, pp. 572-578.

