

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3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)

-FY2021 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

March 2023

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3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

(2022年11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3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」の平成30年度から令和3年度の研究成果について取りまとめたものである。本課題は令和3年度が最終年度となるため4年度分の成果を取りまとめた。

本研究は、スミヤロ紙上に付着するより細かい $\alpha$ 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。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り、その工夫を行い、位置分解能10  $\mu\text{m}$ 以下を達成することができた。

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 $\alpha$ ダストモニタのみならず、多くの応用が期待できた。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、最大数 kSv/h 程度の線量率下の環境で実施することができた。

---

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)

— FY2021 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 November 15, 2022)

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 FY2021.

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 from FY2018 to FY2021. Since the final year of this proposal was FY2021, the results for four fiscal years were summarized.

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 with a position resolution of less than 10  $\mu\text{m}$ , and the measurement test for the energy spectra was operated using several alpha-ray sources with an unfolding method. In addition, we have also developed a high-dose-rate monitor system consisting of novel scintillators with red/infra-red emission bands and optical fiber, and demonstrated under high-dose rate condition up to a few kSv/h.

Keywords: Alpha Dust, Scintillator, Unfolding, Imaging, 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  |
| 5. 令和 3 年度 採択課題 .....               | 10 |
| 付録 成果報告書 .....                      | 13 |

## 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  |
| 5. Accepted Proposal in FY2021.....                                                            | 10 |
| Appendix Result Report .....                                                                   | 13 |

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<br>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<br>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<br>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<br>(～R2. 3. 31)<br>大曲 新矢<br>(R2. 4. 1～) | 産業技術総合<br>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 号機ペデスタル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<br>ニュークリ<br>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<br>(～R3. 6. 30)<br>塚原 剛彦<br>(R3. 7. 1～) | 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<br>(～R3. 3. 31)<br>岡山大学<br>(R3. 4. 1～) |

## 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ッ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<br>(～R2. 3. 31)<br>竹下 健二<br>(～R3. 6. 30)<br>塚原 剛彦<br>(R3. 7. 1～) | 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<br>(～R4. 7. 31)<br>村上 健太<br>(R4. 8. 1～) | 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<br>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 |
| $\alpha$ / $\beta$ / $\gamma$ 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          |
| $\beta$ 、 $\gamma$ 、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 |

## 5. 令和3年度 採択課題

令和3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3年3月16日～令和3年5月17日（課題解決型）  
令和3年4月13日～令和3年7月1日（国際協力型 日英共同研究）  
令和3年7月12日～令和3年8月18日（国際協力型 日露共同研究）

課題数：12 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 8 課題  
国際協力型廃炉研究プログラム 2 課題（日英）、2 課題（日露）

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・日露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）会議及びステアリングコミッティでの審議を経て、採択課題を決定した。

## 令和3年度 採択課題一覧

## 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  |
|----------------------------------------------------------------------------|-------|-------|
| 建屋応答モニタリングと損傷イメージング技術を活用したハイブリッド型の原子炉建屋長期健全性評価法の開発研究                       | 前田 匡樹 | 東北大学  |
| 燃料デブリ周辺物質の分析結果に基づく模擬デブリの合成による実機デブリ形成メカニズムの解明と事故進展解析結果の検証によるデブリ特性データベースの高度化 | 宇埜 正美 | 福井大学  |
| ジオポリマー等による PCV 下部の止水・補修及び安定化に関する研究                                         | 鈴木 俊一 | 東京大学  |
| 世界初の同位体分析装置による少量燃料デブリの性状把握分析手法の確立                                          | 坂本 哲夫 | 工学院大学 |
| アルファ微粒子の実測に向けた単一微粒子質量分析法の高度化                                               | 豊嶋 厚史 | 大阪大学  |

| 課題名                                                | 研究代表者  | 所属機関     |
|----------------------------------------------------|--------|----------|
| 連携計測による線源探査ロボットシステムの開発研究                           | 人見 啓太郎 | 東北大学     |
| 中赤外レーザー分光によるトリチウム水連続モニタリング手法の開発                    | 安原 亮   | 自然科学研究機構 |
| 福島原子力発電所事故由来の難固定核種の新規ハイブリッド固化への挑戦と合理的な処分概念の構築・安全評価 | 中瀬 正彦  | 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 |
|-----------------------------------------|----------------------------------------------------------|------|
| 福島第一原子力発電所の廃止措置における放射性エアロゾル制御及び除染に関する研究 | Erkan<br>Nejdet<br>(～R4. 1. 31)<br>三輪 修一郎<br>(R4. 2. 1～) | 東京大学 |
| 燃料デブリ取り出しのための機械式マニピュレータのナビゲーションおよび制御    | 浅間 一                                                     | 東京大学 |

## 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   |
|-------------------------------------------------------------|-------|--------|
| 福島第一発電所 2、3 号機の事故進展シナリオに基づく FP・デブリ挙動の不確かさ低減と炉内汚染状況・デブリ性状の把握 | 小林 能直 | 東京工業大学 |
| 非接触測定法を用いた燃料デブリ臨界解析技術の高度化                                   | 小原 徹  | 東京工業大学 |

本報告書は、以下の課題の平成 30 年度から令和 3 年度の研究成果について取りまとめたものである。本課題は令和 3 年度が最終年度となるため 4 年度分の成果を取りまとめた。

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 3 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 R03I104-1)

成果報告書

令和 4 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」の平成30年度から令和3年度の研究成果を取りまとめたものです。

## 目次

|                                                               |         |
|---------------------------------------------------------------|---------|
| 概略 .....                                                      | viii    |
| 1. はじめに .....                                                 | 1. 1-1  |
| 2. 業務計画 .....                                                 | 2. 1-1  |
| 2.1 全体計画 .....                                                | 2. 1-1  |
| 2.1.1 計画表 .....                                               | 2. 1-1  |
| 2.1.2 実施体制図 .....                                             | 2. 1-2  |
| 2.2 各年度の成果の目標及び業務の実施方法 .....                                  | 2. 2-1  |
| 2.2.1 平成 30 年度 .....                                          | 2. 2-1  |
| 2.2.2 令和元年度 .....                                             | 2. 2-2  |
| 2.2.3 令和 2 年度 .....                                           | 2. 2-3  |
| 2.2.4 令和 3 年度 .....                                           | 2. 2-4  |
| 3. 業務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【平成 30 年度～令和元年度】 .....                        | 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. 1-7  |
| 3.2 $\alpha$ デブリ ( $\alpha$ ダスト) 検出器の開発【平成 30 年度～令和元年度】 ..... | 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（連携先：JAEA） .....                                    | 3. 2-19 |
| 3.2.4 イメージング検出器の開発 .....                                      | 3. 2-39 |
| 3.3 高線量下モニタなどへの展開【令和元年度～令和 3 年度】 .....                        | 3. 3-1  |
| 3.3.1 結晶育成 .....                                              | 3. 3-1  |
| 3.3.2 現場適用に向けた詳細検討 .....                                      | 3. 3-12 |
| 3.3.3 現場利用を見据えた革新的な検出器の研究開発 .....                             | 3. 3-15 |
| 3.4 研究推進 .....                                                | 3. 4-1  |
| 4. 結言 .....                                                   | 4-1     |
| 参考文献 .....                                                    | 5-1     |

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 3.1.1-1 | $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ の発光波長 ..... | 3.1-4  |
| 表 3.1.1-2 | $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ の発光量 .....  | 3.1-4  |
| 表 3.2.2-1 | シミュレーションモデルの構成部材 .....                                                                                | 3.2-4  |
| 表 3.2.2-2 | 光電子増倍管を用いた測定条件 .....                                                                                  | 3.2-6  |
| 表 3.2.2-3 | CMOS カメラを用いた測定条件 .....                                                                                | 3.2-8  |
| 表 3.2.2-4 | 光電子増倍管を用いた測定条件 .....                                                                                  | 3.2-10 |
| 表 3.2.2-5 | シリコン半導体検出器を用いた測定条件 .....                                                                              | 3.2-12 |
| 表 3.2.2-6 | 実サンプルの線源データ .....                                                                                     | 3.2-17 |
| 表 3.2.2-7 | 線源データとアンフォールディング結果の比較 .....                                                                           | 3.2-19 |
| 表 3.2.2-8 | 光学倍率と分解能、視野の関係 .....                                                                                  | 3.2-27 |

## 図一覧

|              |                                                                                                                     |         |
|--------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|---------|
| 図 2. 1-1     | 本業務の全体図.....                                                                                                        | 2. 1-2  |
| 図 2. 1-2     | 組織図.....                                                                                                            | 2. 1-2  |
| 図 3. 1. 1-1  | チョクラルスキー法の概念図.....                                                                                                  | 3. 1-1  |
| 図 3. 1. 1-2  | 結晶育成時の様子.....                                                                                                       | 3. 1-2  |
| 図 3. 1. 1-3  | 育成した $(\text{Gd}_{1-x-y} \text{Ce}_x \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ 結晶の写真.....                   | 3. 1-3  |
| 図 3. 1. 1-4  | 発光量測定の設定アップ.....                                                                                                    | 3. 1-3  |
| 図 3. 1. 1-5  | $(\text{Gd}_{1-0.01-0.5/3} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_{0.5/3})_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ の発光波長スペクトル..... | 3. 1-4  |
| 図 3. 1. 1-6  | $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ の波高値スペクトル.....            | 3. 1-5  |
| 図 3. 1. 1-7  | 結晶の加工.....                                                                                                          | 3. 1-6  |
| 図 3. 1. 1-8  | ブリッジマン法の概念図.....                                                                                                    | 3. 1-7  |
| 図 3. 2. 1-1  | 撮像テスト機の概念図.....                                                                                                     | 3. 2-1  |
| 図 3. 2. 1-2  | 撮像テストの結果.....                                                                                                       | 3. 2-2  |
| 図 3. 2. 2-1  | 解析モデル.....                                                                                                          | 3. 2-3  |
| 図 3. 2. 2-2  | プラスチックシンチレータへの付与エネルギー計算結果.....                                                                                      | 3. 2-4  |
| 図 3. 2. 2-3  | プラスチックシンチレータ出力のシミュレーション結果.....                                                                                      | 3. 2-5  |
| 図 3. 2. 2-4  | 光電子増倍管を用いた測定装置の設定アップ.....                                                                                           | 3. 2-6  |
| 図 3. 2. 2-5  | 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. 2-7  |
| 図 3. 2. 2-6  | CMOS カメラを用いた測定装置の設定アップ.....                                                                                         | 3. 2-8  |
| 図 3. 2. 2-7  | 線源位置の測定結果.....                                                                                                      | 3. 2-8  |
| 図 3. 2. 2-8  | 測定値とシミュレーション結果の比較.....                                                                                              | 3. 2-9  |
| 図 3. 2. 2-9  | 光電子増倍管を用いた測定装置の設定アップ.....                                                                                           | 3. 2-10 |
| 図 3. 2. 2-10 | 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. 2-11 |
| 図 3. 2. 2-11 | シリコン半導体検出器を用いた測定装置構成.....                                                                                           | 3. 2-11 |
| 図 3. 2. 2-12 | 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. 2-12 |
| 図 3. 2. 2-13 | 測定値とシミュレーション結果の比較.....                                                                                              | 3. 2-13 |
| 図 3. 2. 2-14 | 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. 2-14 |
| 図 3. 2. 2-15 | 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. 2-15 |
| 図 3. 2. 2-16 | 改良したエネルギースペクトル測定装置での設定アップ.....                                                                                      | 3. 2-16 |
| 図 3. 2. 2-17 | 実サンプルの写真.....                                                                                                       | 3. 2-16 |
| 図 3. 2. 2-18 | 実サンプルのエネルギースペクトル測定結果.....                                                                                           | 3. 2-17 |
| 図 3. 2. 2-19 | 実サンプル測定に対するアンフォールディング結果.....                                                                                        | 3. 2-18 |
| 図 3. 2. 3-1  | ポータブルダストサンプラ（左）と HE-40T ろ紙（右）.....                                                                                  | 3. 2-19 |
| 図 3. 2. 3-2  | スミヤろ紙を用いた粒子のサンプリング試験.....                                                                                           | 3. 2-20 |
| 図 3. 2. 3-3  | 東北大学から受け取ったシンチレータ.....                                                                                              | 3. 2-21 |
| 図 3. 2. 3-4  | 測定の設定アップ.....                                                                                                       | 3. 2-22 |

|            |                                                |        |
|------------|------------------------------------------------|--------|
| 図 3.2.3-5  | 粉末状シンチレータ                                      | 3.2-22 |
| 図 3.2.3-6  | 光学画像                                           | 3.2-23 |
| 図 3.2.3-7  | ランタンマンントルを線源として用いて得られた画像                       | 3.2-23 |
| 図 3.2.3-8  | $\beta$ 線イメージング結果                              | 3.2-24 |
| 図 3.2.3-9  | 粉末状シンチレータを用いて撮像した放射線イメージ                       | 3.2-25 |
| 図 3.2.3-10 | 超高位置分解能 $\alpha$ 線イメージング装置                     | 3.2-26 |
| 図 3.2.3-11 | 各倍率でのテストチャートの光学画像                              | 3.2-27 |
| 図 3.2.3-12 | 各倍率での $\alpha$ 線の画像                            | 3.2-28 |
| 図 3.2.3-13 | $\alpha$ 線の強度プロファイル                            | 3.2-28 |
| 図 3.2.3-14 | プルトニウム粒子から放出される $\alpha$ 線の画像（光学倍率 5 倍）        | 3.2-29 |
| 図 3.2.3-15 | プルトニウム粒子から放出される $\alpha$ 線の画像                  | 3.2-29 |
| 図 3.2.3-16 | 測定時間ごとの計数値変化                                   | 3.2-29 |
| 図 3.2.3-17 | 開発した超高位置分解能 $\alpha$ 線イメージング装置                 | 3.2-31 |
| 図 3.2.3-18 | $\beta$ 線源測定 の概念図                              | 3.2-31 |
| 図 3.2.3-19 | $^{222}\text{Rn}$ 子孫核種測定 の概念図                  | 3.2-32 |
| 図 3.2.3-20 | $\alpha$ 線スポットの例                               | 3.2-33 |
| 図 3.2.3-21 | シミュレーション計算体系                                   | 3.2-34 |
| 図 3.2.3-22 | ノイズとなる $\beta$ 線の撮像評価                          | 3.2-35 |
| 図 3.2.3-23 | $\alpha$ 線の撮像評価                                | 3.2-35 |
| 図 3.2.3-24 | 30 分測定で取得した $^{222}\text{Rn}$ 子孫核種の画像          | 3.2-36 |
| 図 3.2.3-25 | $\alpha$ 線計数率から $\text{PuO}_2$ 粒子の等価粒径への換算曲線   | 3.2-37 |
| 図 3.2.3-26 | 開発した $\alpha$ 線イメージング装置のモバイル電源での作動確認           | 3.2-38 |
| 図 3.2.4-1  | 検出器外観                                          | 3.2-39 |
| 図 3.2.4-2  | $\alpha$ デブリ検出器の設計概念図                          | 3.2-40 |
| 図 3.2.4-3  | $\alpha$ デブリ検出器の外観                             | 3.2-41 |
| 図 3.2.4-4  | テストチャートの写真                                     | 3.2-41 |
| 図 3.2.4-5  | 位置分解能評価の様子                                     | 3.2-42 |
| 図 3.2.4-6  | 位置分解能評価時のセットアップの概念図                            | 3.2-42 |
| 図 3.2.4-7  | テストチャートの影絵の結果                                  | 3.2-43 |
| 図 3.2.4-8  | 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               | 3.2-44 |
| 図 3.2.4-9  | シンチレータの境界部分の $\alpha$ 線撮像結果                    | 3.2-44 |
| 図 3.2.4-10 | 線源をずらしたときの様子                                   | 3.2-45 |
| 図 3.2.4-11 | 可動式にしたイメージング検出器の写真（JAEA にて）                    | 3.2-46 |
| 図 3.2.4-12 | 開発した装置の写真                                      | 3.2-46 |
| 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 3.3.1-3  | 準備したサンプル                                       | 3.3-3  |
| 図 3.3.1-4  | CHI セメントサンプルの波高値スペクトル                          | 3.3-4  |
| 図 3.3.1-5  | 京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 ガンマ線照射装置での<br>セットアップ概念図 | 3.3-5  |

|            |                                                 |        |
|------------|-------------------------------------------------|--------|
| 図 3.3.1-6  | 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 3.3.1-7  | 単純積分型仕様での結果の一例                                  | 3.3-7  |
| 図 3.3.1-8  | 単純積分型仕様での線量と電流値の関係                              | 3.3-7  |
| 図 3.3.1-9  | 分光型仕様で得られた発光スペクトル                               | 3.3-8  |
| 図 3.3.1-10 | 分光型仕様での線量と電流値の関係                                | 3.3-8  |
| 図 3.3.1-11 | CH 法の概念図                                        | 3.3-10 |
| 図 3.3.1-12 | Ce 添加 $Y_3Al_5O_{12}$ 結晶の写真                     | 3.3-11 |
| 図 3.3.1-13 | CH 法で育成した Yb:LHO 結晶（研磨後）の写真と比較用のルビーの写真          | 3.3-11 |
| 図 3.3.1-14 | 開発した光ファイバーのアクセサリ部品などの写真                         | 3.3-12 |
| 図 3.3.1-15 | 校正曲線を求めるための積分範囲を示した発光波長スペクトルの概念図(a)<br>と校正曲線(b) | 3.3-13 |
| 図 3.3.1-16 | 通信系ケーブルの最適化作業の様子（一例）                            | 3.3-14 |
| 図 3.3.1-17 | 光電子増倍管と光学フィルタをマウントした写真                          | 3.3-15 |
| 図 3.3.1-18 | 光電子増倍管を用いた単純積分型仕様＋光学フィルタでの信号                    | 3.3-16 |

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<br>(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                                                          |
| 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                                                    |
| 東京電力   | : 東京電力ホールディングス株式会社                                                                    |

## 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、 $\alpha$  線核種を含むダストの吸引による作業員の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  $\mu\text{m}$  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、スミヤロ紙上に付着するより細かい  $\alpha$  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。 $\alpha$  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、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が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  $\alpha$  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）。

当初の研究期間である平成 30 年度から令和 2 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国立大学法人東北大学（以下、「東北大学」と略す。）にて行い、 $\alpha$  線核種の撮像検出器の準備を進めた。その中で、 $\text{Cs}_2\text{HfI}_6$ （以下、「CHI」と略す。）などの革新的な材料の探索を進めることができた。

三菱電機株式会社（以下、「三菱電機」と略す。）では、 $\alpha$  線核種のエネルギー分別に関する装置開発を行い、実環境で想定される  $\alpha$  ダストの実サンプルでのエネルギースペクトルを取得し、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した。これにより  $\alpha$  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。

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、上記三菱電機や東北大学で開発してきた装置の実証試験といった、目的その 1 に該当する実施内容を実施した。

これら、三者の連携により、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。

目的その2に対応する作業として、高線量モニタなどへの展開について、当初研究計画では、期間全体の2年目と3年目（令和元年度～令和2年度）で実施する予定であったが、予想以上の進展があったことから、延長し、令和3年度に当該項目のみ開発を進めた（本研究の実施内容）。そして、1Fでの実証試験などを行うことができ、各年度に掲げていた目標をすべて達成することができた。さらに、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。

これまでに、光ファイバーを用いた高線量モニタ、コア・ヒーティング法（以下、「CH法」と略す。）の開発、及び、 $\alpha$ ダストモニタの開発の3点についてプレスリリースも行うことができ、一部は新聞報道、テレビ放送された（本研究の成果（特に世界初、国内初等アピールすべき成果））。

前年度までの報告書：

- ・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）；平成30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 2019-038，  
<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2019-038>
- ・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，  
<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2020-039>
- ・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，JAEA-Review 2021-044，  
<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-044>

## 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  $\alpha$  線核種を含むダスト ( $\alpha$  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  $\alpha$  線を放出する核種を含むダストやデブリの取り扱いとは重要な問題である。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、体内被ばくのリスクが高まる。 $\alpha$  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  $\mu\text{m}$  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、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  $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  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 とともにに行った。

撮像については、 $\alpha$  線励起の発光体で 10  $\mu\text{m}$  以下の位置分解能をもつような検出器（「放射線顕微鏡」）を開発してきた。そして、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。

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。これは、1 つ目の検出器開発の一部である材料開発研究から派生した、いわば「スピンオフ」となるような検出器開発であるが、1F での実機搭載を目指した開発を進めた。

## 2. 業務計画

### 2.1 全体計画

#### 2.1.1 計画表

本業務の全体計画図を図 2.1-1 に示す。各項目の簡単な流れは次の通りである。

#### (1) 高機能シンチレータの開発

はじめに、本研究の核となる高機能シンチレータの開発を東北大学で実施した。①機能的な構造をもつシンチレータ結晶の開発と②高発光量・長波長発光シンチレータ材料の開発の 2 つの作業を行い、材料開発のみならずその形状などについても検討を行った。

#### (2) $\alpha$ デブリ ( $\alpha$ ダスト) 検出器の開発

並行して、撮像とエネルギー取得を行う  $\alpha$  デブリ検出器 ( $\alpha$  ダスト検出器) の開発を、東北大学、三菱電機及び JAEA と緊密な連携をとりながら実施した。東北大学及び三菱電機はそれぞれ、「①イメージング検出器の開発」及び「②エネルギー取得部分の開発」を担当し、「③実証試験」について JAEA が担当した。

#### (3) 高線量下モニタなどへの展開

東北大学で開発した新規シンチレータ材料を利用した、高線量下モニタなどへの展開も行った。なお、本業務については、(1) 高機能シンチレータの開発での進捗が順調に行ったことを踏まえて、当初令和 2 年度のみの実施予定であったが、令和元年度に前倒しを行った。さらに、実証試験を進められる環境が整いつつあったことから令和 3 年度に延長して実施を続けた。

また、これらのほかに報告書を編纂する作業、その他日々の進捗管理業務等などを実施した。

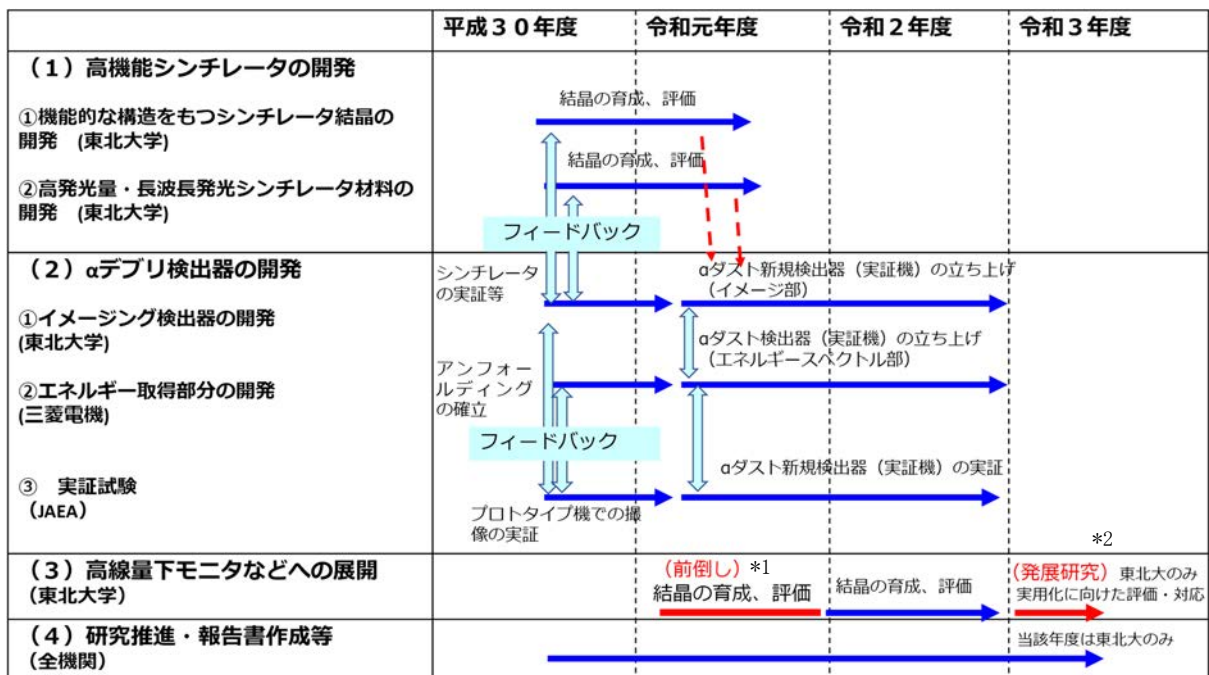


図 2.1-1 本業務の全体図

(\*1 は令和元年度に前倒し、\*2 は令和 3 年度に延長)

### 2.1.2 実施体制図

本業務の組織図を図 2.1-2 に示す。初めに、本研究の核となる高機能シンチレータの開発を東北大学で実施する。また並行して、撮像とエネルギー取得を行う  $\alpha$  デブリ検出器の開発を東北大学と三菱電機で行い、その実証試験を JAEA と行う。これらの開発に際して、三者で緊密な連携をとる。加えて、東北大学で開発した新規シンチレータ材料を利用した、高線量下モニタなどへの展開も行う。

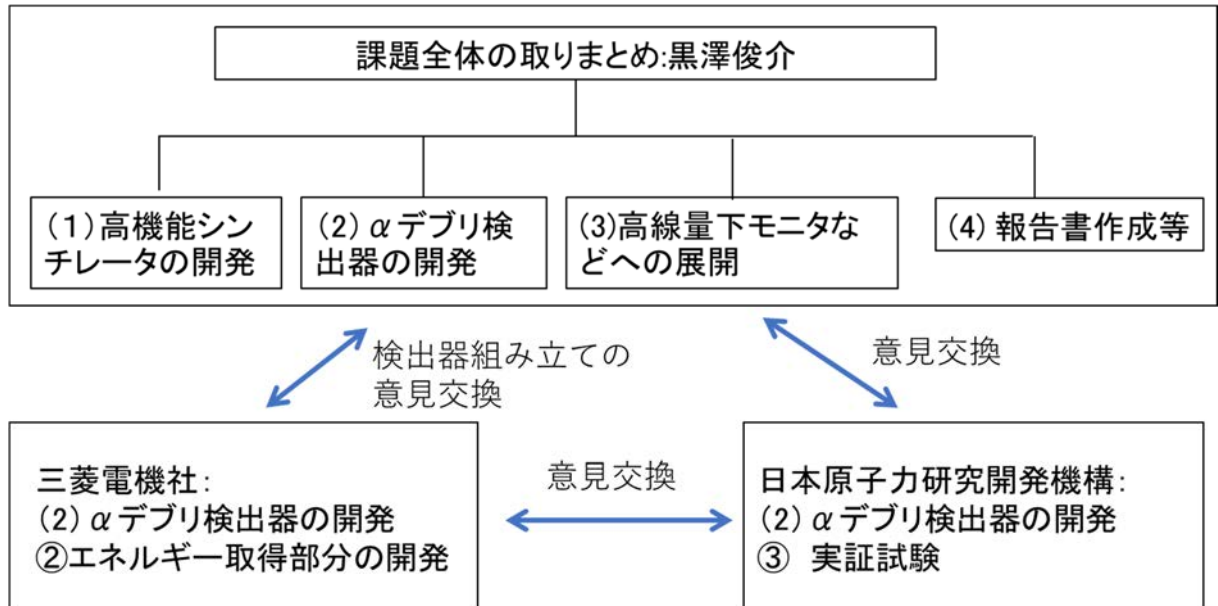


図 2.1-2 組織図

## 2.2 各年度の成果の目標及び業務の実施方法

### 2.2.1 平成30年度

#### (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

$\alpha$ 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。そのため、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った。令和3年度は薄いシンチレータなどを開発し、 $\alpha$ 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の向上を目指した。具体的には、マイクロ引き下げ法、チョクラルスキー法、その他固相反応法による粉体の探索など、多岐にわたる合成法を用いて探索を進めた。また、その目標は次の通りである。

- ・ 5.5 MeVの $\alpha$ 線入射での発光量：60,000光子
- ・ 発光波長：500～700 nm

##### ② 高発光量・長波長発光シンチレータ材料の開発

長波長発光体は、半導体検出器との感度のマッチングが良いほか、高線量モニタの開発にもつながる新材料である。そこで、次の特性を満たすシンチレータ結晶の開発に取り組んだ。

- ・ 5.5 MeVの $\alpha$ 線入射での発光量：50,000光子
- ・ 発光波長：500～900 nm

#### (2) $\alpha$ デブリ検出器の開発

##### ① イメージング検出器の開発

「放射線顕微鏡」のイメージング検出器の準備を行った。

##### ② エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）

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た。

##### ③ 実証試験（連携先：JAEA）

(1)の①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った。平成30年度は、得られたデータをもとに、位置分解能10  $\mu\text{m}$ 以下に近づくような方策（フィードバック）を東北大学と行った。

## 2.2.2 令和元年度

### (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

平成30年度に引き続き、 $\alpha$ 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プポイントになるため、下記の特性を満たすような、シンチレータの探索を行った。

- 5.5 MeVの $\alpha$ 線入射で発光量：60,000光子
- 発光波長：500～700 nm
- $\alpha$ 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 $\gamma$ 線（662 keV）のその10倍程度以上

#### ② 高発光量・長波長発光シンチレータ材料の開発

平成30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んだ。

- 5.5 MeVの $\alpha$ 線入射で発光量：60,000光子
- 発光波長：500～700 nm
- $\alpha$ 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 $\gamma$ 線（662 keV）のその10倍程度以上

### (2) $\alpha$ 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った。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（「放射線顕微鏡」の実証機）の開発を三菱電機と共同で進めた。

#### ② エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）

平成30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んだ。

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した。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 $\alpha$ 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 $\beta$ 線の影響なく $\alpha$ 線の全吸収ピークを検出できる装置構成を検討・検証した。

#### 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した。適用の結果線源として用いた $^{241}\text{Am}$

からの  $\alpha$  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、アンフオールディング法が適用できることを検討した。

③ 実証試験（連携先：JAEA）

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  $\alpha$  線イメージングの試験を行った。

(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年以上前倒して実施する。大強度  $\gamma$  線源（10 TBq以上）などを用いて、モニタの実証試験を行う。

2.2.3 令和2年度

令和2年度の目標及び方法は下記の通りである。

(2)  $\alpha$  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、「放射線顕微鏡」の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した。

$\alpha$  線イメージング：位置分解能 10  $\mu\text{m}$  以下

② エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）

$\alpha$  線とノイズ要因（ $\beta$ 、 $\gamma$  線）の識別、及び  $\alpha$  線のエネルギーを測定可能なアンフオ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った。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  $\alpha$  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  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$  の 3 核種を含む線源からの  $\alpha$  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オ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オ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  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$  の 3 核種を含む実サンプルからの  $\alpha$  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、アンフオ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  $\mu\text{m}$  以下になるような方策（フィードバック）を東北大学と行った。また、測定した微粒子の粒子径の情報をうい、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実施した。

## (3) 高線量下モニタなどへの展開（東北大学）

## ① 結晶育成

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

## ② 東京電力のニーズに対応するための課題

発展的研究として、本項目②が東北大学の実施分として追記され、令和3年度への延長が行われた。

## 2.2.4 令和3年度

## (3) 高線量下モニタなどへの展開（東北大学）

## ① 結晶育成

令和2年度に引き続き、大強度  $\gamma$  線源（10 TBq 以上）等を用いて、モニタの実証試験を行った。 $^{60}\text{Co}$  照射施設等で、線量と信号量の線形性が 0.1 Sv/h 以上であるかを確認した。

## ② 現場適用に向けた詳細検討

高線量下モニタが、1FのRPV内部調査において細径長尺センサに関する利用ニーズがあることを踏まえ、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った。

そして、実用化に向けた基礎的なデータについて、東京電力へ提供した。

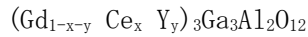
上記の実施事項を、京都大学複合原子力科学研究所のコバルト60ガンマ線照射装置で行ったとともに、校正曲線を作成し、実際に、1FのRPV内部調査に適用することができた。さらに、 $^{137}\text{Cs}$ との線量補正についても進めることができた。

### 3. 業務の実施内容及び成果

#### 3.1 高機能シンチレータの開発【平成30年度～令和元年度】

##### 3.1.1 機能的な構造をもつシンチレータ結晶の開発

目的のシンチレータ結晶として、平成30年度は次の式3.1のように、ガーネット型結晶をチョクラルスキー法（図3.1.1-1）にて育成した。



式 3.1

ただし、 $x=0.01$ 、 $y=0.5/3$ 、 $1.0/3$ 、 $1.5/3$  である。当該材料の選択理由は、式3.1において、 $y=0$  のとき、つまり  $\text{Ce} : \text{Gd}_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ （以下、「Ce:GAGG」と略す。）の発光量が46,000光子/MeV[1]と大きいことが出発点になっている。ただ、Ce:GAGGでは有効原子番号が50程度と高く、 $\alpha$ 線検出時においてはノイズとなる $\gamma$ 線の検出効率が大きくなるという問題があった。ここで、 $\gamma$ 線の光電吸収の効率（光電吸収の断面積）は有効原子の4から5乗に比例する。そこで、有効原子を小さくすることで $\gamma$ 線の検出効率を下げるために、Gdの一部をYに置換することに着想を得た。式3.1において、 $y=0.5/3$ 、 $1.0/3$  及び  $1.5/3$  と置換量を上げていくことで、有効原子番号はそれぞれ49、46、および44と下がっていくことが計算から分かっている。

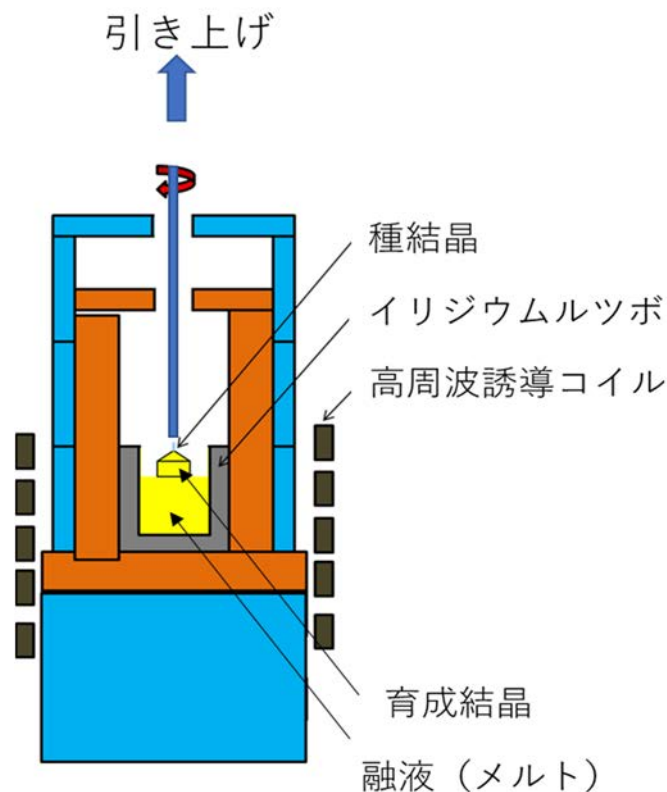


図 3.1.1-1 チョクラルスキー法の概念図  
（[2]より引用）

結晶育成には半導体結晶などを作る方法としても利用され、良質でかつ1インチ以上の大型結晶を育成する方法として知られているチョクラルスキー法を採用して、実際に育成を始めた。原材料としては、純度が99.99%以上の $\text{Y}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Gd}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Ga}_2\text{O}_3$ 、 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ 、及び、 $\text{CeO}_2$ を用意し、式3.1と化学量論比になるように秤量して、結晶育成を行った（図3.1.1-2）。ルツボには育成結晶の融点と酸化条件に耐えられることからイリジウムルツボを用いた。

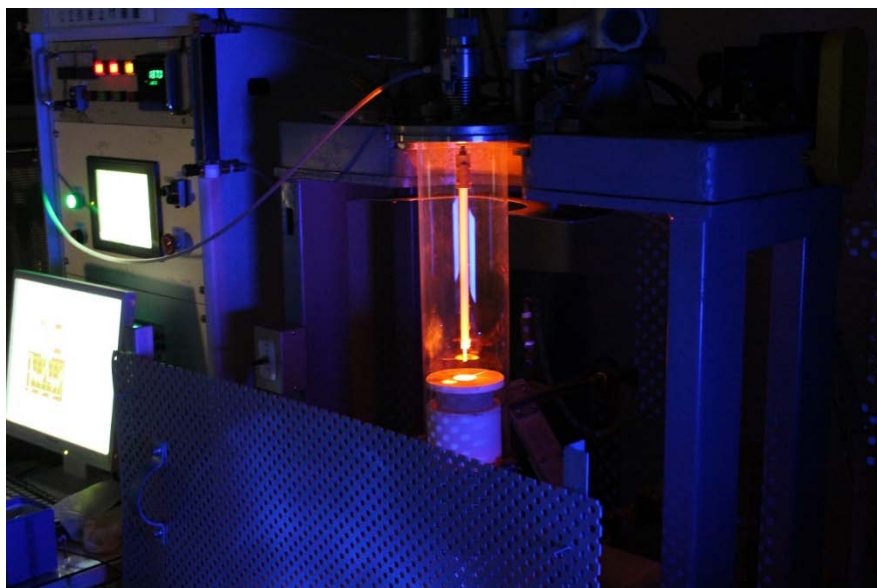


図 3.1.1-2 結晶育成時の様子  
（[2]より引用）

育成した結晶（As-grown）は図3.1.1-3のようになり、結晶の育成に成功した。育成した結晶については、まずは発光波長と発光量の調査を行うために、5 mm×5 mm×1 mm（厚）に切断し、鏡面に研磨を行った。発光波長については、分光器（Edinburgh Instruments Ltd.、FLS920）を用いて取得し、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  $\alpha$ 線、ないしは、 $^{137}\text{Cs}$ 線源からの $\gamma$ 線を、光電子増倍管（浜松ホトニクス株式会社、R7600U-200）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、ORTEC 社、Model 113）及び波形整形器（ORTEC 社、Model 572A）を通したのちに、AMPTTEK 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。

ここで得られた波高値スペクトルの光電吸収ピークから発光量を求めた。発光量を求めるうえで、比較サンプルとして $\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$ （以下、「BGO」と略す。）を用いた。BGOの発光量は、5.5 MeVの $\alpha$ 線を照射したときには、9000 光子/（5.5 MeV  $\alpha$ ）ということがあらかじめ校正しており、この値と比較を行った。

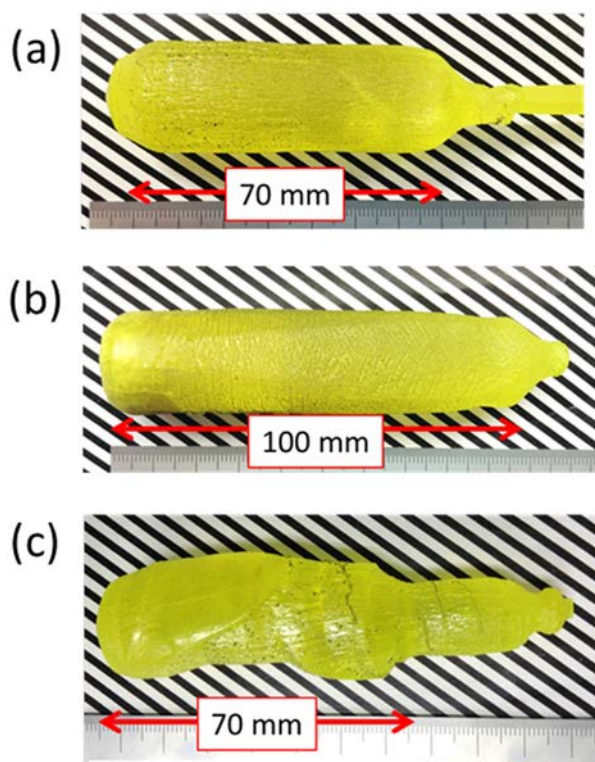


図 3.1.1-3 育成した  $(\text{Gd}_{1-x-y} \text{Ce}_x \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  結晶の写真  
ただし、 $x=0.01$ 、(a)  $y=0.5/3$ 、(b)  $1.0/3$ 、(c)  $1.5/3$   
([2]より引用)



図 3.1.1-4 発光量測定の設定アップ  
([2]より引用)

これらの測定から、たとえば  $y=0.5/3$  の組成、 $(\text{Gd}_{1-0.01-0.5/3} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_{0.5/3})_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  の発光波長は図 3.1.1-5 の通りになり、3 つのサンプルの発光波長をまとめると表 3.1.1-1 のようになった。Y の置換によって発光波長が若干短波長側にシフトした。これは、発光をつかさどる  $\text{Ce}^{3+}$  イオン周りの電場（結晶場）の変化によるエネルギー準位の変化と考えられる。若干の発光波長の変化はあったものの、すべての育成したサンプルの発光波長は目標となる発光波長の 500～700 nm の範囲に入っていた。

また、波高値スペクトルは図 3.1.1-6 の通りになった。光電吸収ピークの位置が紙面に向かっ

て右に行くほど発光量が高いことを示している。ここで、(i)BG0 の光電吸収ピークとの比較、および、(ii)発光波長による光電子増倍管の感度の違いを補正することで、発光量は表 3.1.1-2 のようになった。

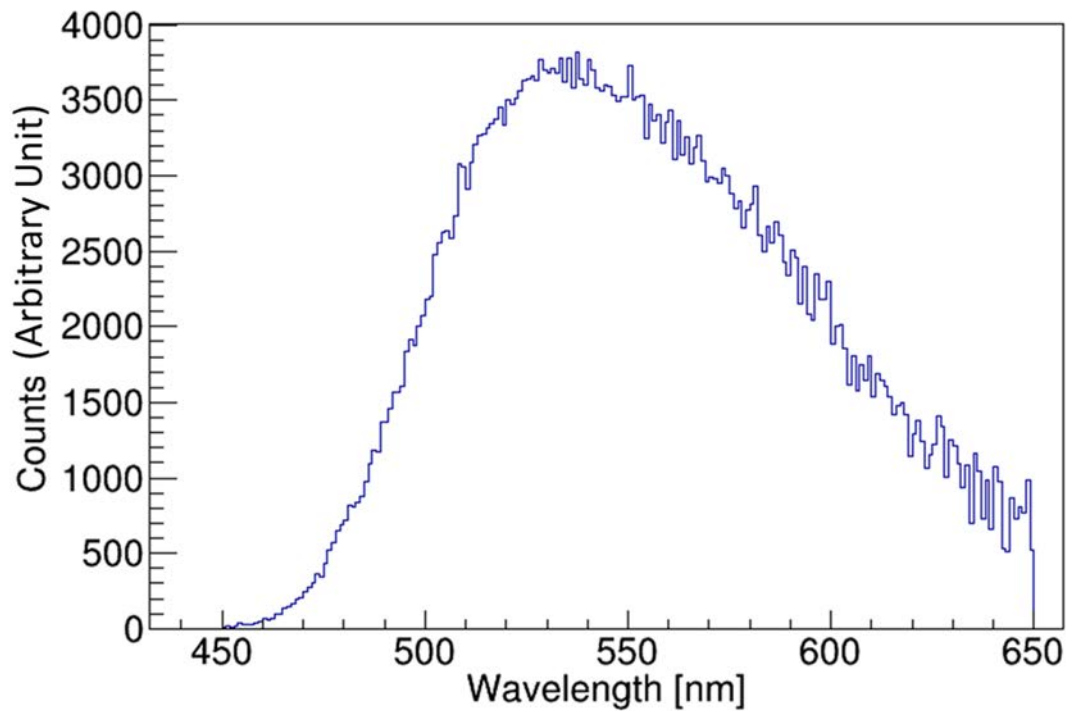


図 3.1.1-5  $(\text{Gd}_{1-0.01-0.5/3} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_{0.5/3})_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  の発光波長スペクトル  
(励起波長：347 nm) ([2]より引用)

表 3.1.1-1  $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  の発光波長 ([2]より引用)

| $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ | 発光波長[nm] |
|-------------------------------------------------------------------------------------------|----------|
| y=0.5/3                                                                                   | 530      |
| y=1.0/3                                                                                   | 525      |
| y=1.5/3                                                                                   | 520      |

表 3.1.1-2  $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  の発光量 ([2]より引用)

| $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ | 発光量[光子/5.5 MeV $\alpha$ ] |
|-------------------------------------------------------------------------------------------|---------------------------|
| y=0.5/3                                                                                   | ~79,000                   |
| y=1.0/3                                                                                   | ~60,000                   |
| y=1.5/3                                                                                   | ~70,000                   |

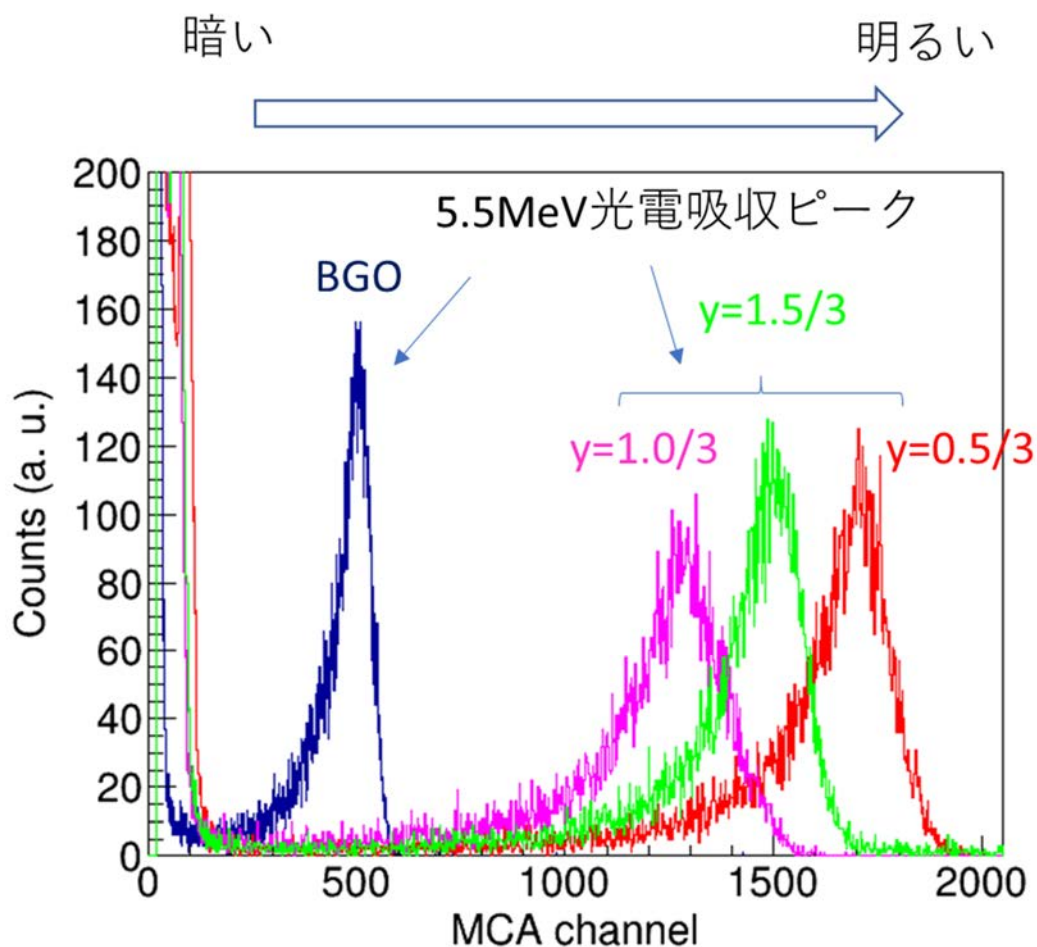


図 3.1.1-6  $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  の波高値スペクトル  
([2]より引用)

この結果から、Y の置換量による発光量の系統的な変化は見え、Gd に対して 1/3 を Y に置換した時の発光量が最低であったが、どのサンプルも 5.5 MeV の  $\alpha$  線入射での発光量で、60,000 光子という目標値を達成していることが分かった。この発光量のばらつきは、結晶の品質の問題、たとえば欠陥など、が関連している可能性がある。

さて本研究では、 $\alpha$  線撮像のために、育成したシンチレータ材料の加工を行った。そこで、図 3.1.1-7 に示すように、①  $(\text{Gd}_{1-0.01-y} \text{Ce}_{0.01} \text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  の厚みを 0.2 mm まで薄くしたサンプルの合成（面は 10 mm×10 mm）、及び、②片方をレンズ状にしたサンプルの準備に取り掛かった。このうち、②については、研磨条件の最適化や研磨にかかる器具の最適化が必要であり、また対応したが歩留まりが低い状態であった。

そこで、①についてのみ、実際に撮像機器とマウントして試験を後述のように実施した。

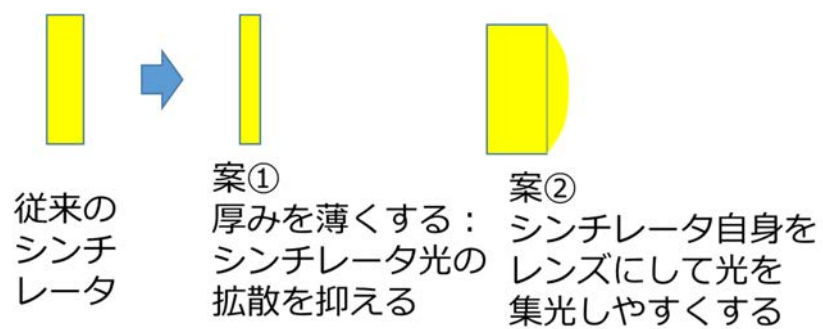


図 3. 1. 1-7 結晶の加工  
([2]より引用)

### 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][4]、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、赤色になることが予想できた。そこで、今回は CHI を中心に材料の探索を行った。

結晶の育成には図 3.1.1-8 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フ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、融点を超えた空間で融液（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  $\text{HfI}_4$  及び同 99.999 %の  $\text{CsI}$  を用いた。CHI の融点は  $1000\text{ }^\circ\text{C}$  に満たないため ( $820\text{ }^\circ\text{C}$ )、アンフ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  $\beta$  材料に比べると大きい。

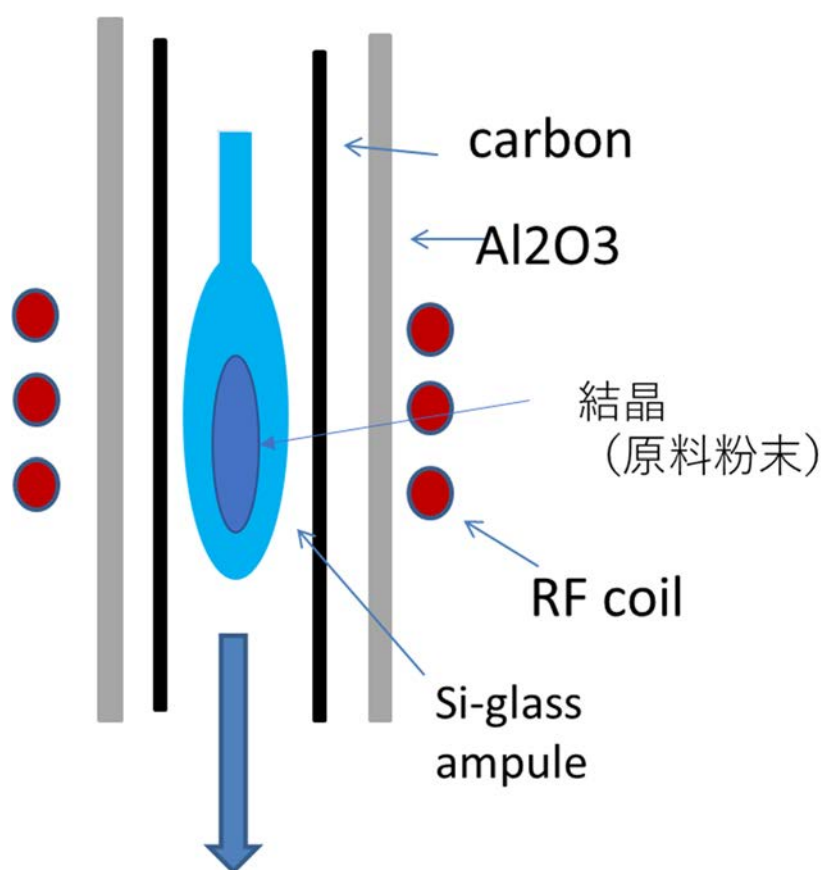


図 3.1.1-8 ブリッジマン法の概念図（[2]より引用）

育成した CHI の結晶について、初めての育成では、40 %よりもさらに低い透明度であったが、育成条件の最適化を行いながらの結晶育成の結果、今回のように透明度の改善が見られた。今後のさらなる条件の最適化でより透明度の高い結晶が得られることが期待できる。通常のシンチレ

ータの透過率はおおむね 70～90 %程度であり、理論限界値もおおむね 90 %程度である。なお、今回の育成では、純度 99 %の  $\text{HfI}_4$  を出発原料としているため、残りの 1 %が透過率の低下を招いている可能性もある。市販されている  $\text{HfI}_4$  原料で、手軽に入手可能な原材料は 99 %が現状では最高純度である。そこで、今後の課題として出発原料の高純度化があげられる。

今回、初めてのバルク結晶であるため、粉末 X 線回折による相の確認を行ったところ、目的の相が出ており、CHI が確かに育成できていることが確認できた。発光波長について X 線励起による発光を分光器でみると、およそ 700 nm の発光波長を有していることが分かった。つまり、発光波長が 700 nm と長波長発光シンチレータの開発に成功した。

発光波長が 700 nm と長く、光電子増倍管の感度領域から外れていることから、Si-アバランシェフォトダイオード（以下、「Si-APD」と略す。）を用いて、波高値スペクトルを取得して、そこから発光量を求めた。Si-APD からの信号は、プリアンプ（クリアパルス株式会社、581K）を通したのちに、光電子増倍管での測定と同じ波形整形器、マルチチャンネルアナライザーを通して、PC に記録した。

発光量の測定には、(i)はじめに、シンチレータを取り付けず直接  $^{57}\text{Co}$  線源からの、14 keV の X 線を Si-APD に照射させて、その時に発生した電子数と、(ii)CHI シンチレータを Si-APD に貼り付けた時に放射線を照射させたときの発生する電子数の比較を波高値スペクトルの光电吸収ピークから行い、発光量を見積もった。すなわち、 $^{57}\text{Co}$  からの X 線を直接照射した場合には、Si での電子生成エネルギーが約 3.6 eV であることから、(14 keV/3.6 eV) 個の電子が生成される。CHI に放射線を照射したときに生成される電子数を、波高値スペクトルでの (i) の比較から求めたのちには、発光波長での Si-APD の量子収率から発光量を見積もった。

その結果、 $\gamma$  線照射時の発光量は～64,000 光子/MeV と見積ることができた。また、5.5 MeV の  $\alpha$  線でも 60,000 光子/MeV であった。そして、エネルギー分解能は FWHM 値で  $4.2 \pm 0.2$  % (662 keV) と非常に優れている値であることが分かった。

これまで、700 nm 程度の赤い発光波長（長い波長）をもつシンチレータでは、典型的な蛍光寿命が 100  $\mu\text{s}$  を超えるため、シングル・フォトン・カウンティング法による発光量の評価は難しかったが、今回、世界で初めて、700 nm の発光波長でシングル・フォトン・カウンティング法による評価ができるほどの非常に短い蛍光寿命を持ち、かつ、50,000 光子/MeV を超える発光量と 4 % 台という優れたエネルギー分解能 (662 keV, FWHM) をもつ、高機能シンチレータの開発が行えた。これらのことから、目標値としていた 5.5 MeV の  $\alpha$  線入射での発光量 (50,000 光子)、および、発光波長の条件 (500～900 nm) は達成できた。なお、蛍光寿命 ( $^{137}\text{Cs}$  からの 662 keV  $\gamma$  線照射時) については、 $1.9 \pm 0.1$   $\mu\text{s}$  であった。以上については、[5]にまとめられている。

### 3.2 $\alpha$ デブリ ( $\alpha$ ダスト) 検出器の開発【平成 30 年度～令和元年度】

#### 3.2.1 イメージング検出器の開発

3.1.1 で育成して、10 mm×10 mm×0.2 mm 厚に加工した  $(\text{Gd}_{1-x-y}\text{Ce}_x\text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$  シンチレータ結晶について、JAEA でのテストの前に、 $^{241}\text{Am}$  (3.7 MBq) からの 5.5 MeV  $\alpha$  線励起させて、既存の CMOS カメラで撮像ができるか簡単なテストを行った。当該撮像テスト機器の概念図は図 3.2.1-1 の通りである。

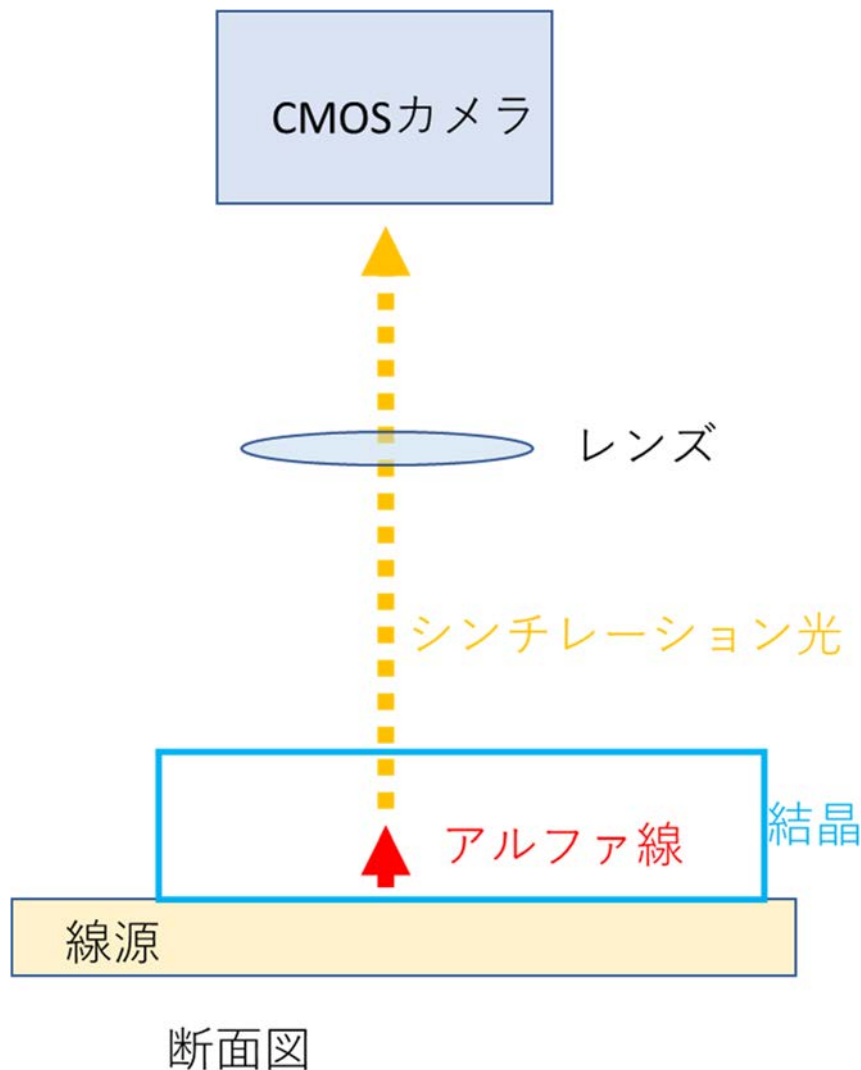


図 3.2.1-1 撮像テスト機概念図  
([2]より引用)

その結果、 $(\text{Gd}_{1-x-y}\text{Ce}_x\text{Y}_y)_3\text{Ga}_3\text{Al}_2\text{O}_{12}$ 、 $y=0.5/3$ 、 $1.0/3$ 、 $1.5/3$  のどのサンプルでも 10 秒露光で、図 3.2.1-2 のように、結晶部分が光っていることが分かった。

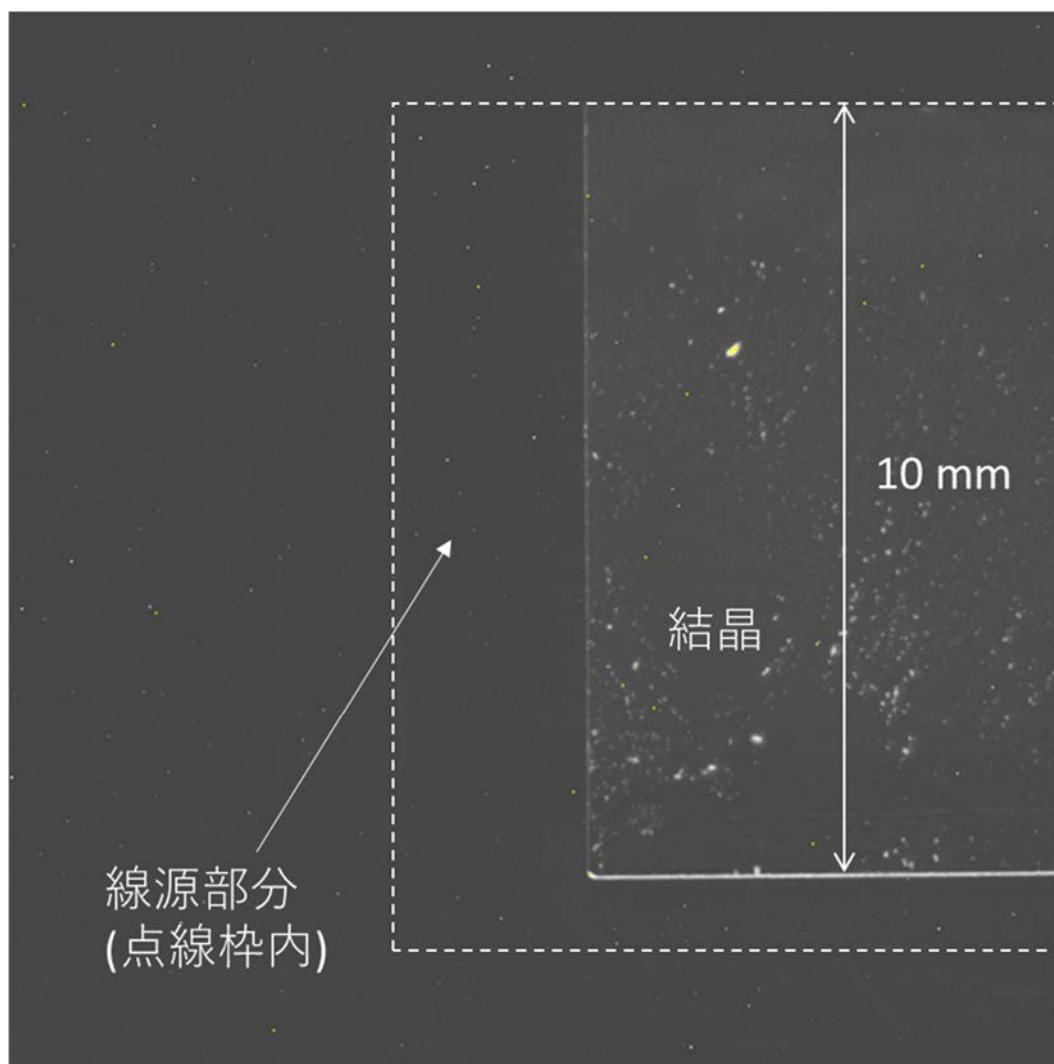


図 3.2.1-2 撮像テストの結果

(〔2〕より引用)

既存のテスト機での位置分解能の評価になるが、図 3.2.1-2 の結果で、結晶の端での発光のプロファイルからおおよそ位置分解能が 100  $\mu\text{m}$  程度であった。ここで、テスト機の位置分解能も位置分解能が 100  $\mu\text{m}$  程度であったため、検出器の位置分解能に律速し、少なくともシンチレータの位置分解能は 100  $\mu\text{m}$  以下であることが期待できた。

### 3.2.2 エネルギー取得部分の開発（再委託先：三菱電機）

#### ① シミュレーションによる模擬データ取得

$\alpha$  デブリ検出器に適用予定のシンチレータを用いて  $\alpha$  線を検出した場合の、シンチレータ出力の模擬データを取得するため、粒子輸送計算コードを用いて放射線の挙動解析を行った。

#### ② 解析モデルの構築

シンチレータで  $\alpha$  線を検出した場合のシンチレータ出力（受光素子で得られるシンチレーション光の光量）は、 $\alpha$  線がシンチレータに付与するエネルギー  $\Delta E$ 、シンチレータの発光効率  $f_s$ 、受光素子までの光学系を含めた集光効率  $f_c$  の積で表される。

シンチレータのエネルギー分解能は、受光素子で検出できる光子数のゆらぎと、測定回路系のノイズに起因する。受光素子で検出する光子数のゆらぎは、 $f_s$  と  $f_c$  を定数とすると概ねシンチレータへの付与エネルギー  $\Delta E^{1/2}$  に比例するため、粒子輸送計算コードを用いて  $\alpha$  線がシンチレータに付与するエネルギー  $\Delta E$  を計算し、付与エネルギースペクトルを適切な半値幅を持つガウス関数でフォールディングすることで、シンチレータの模擬出力を算出した。このとき、スミヤろ紙に付着した放射性から放出される  $\alpha$  線は、シンチレータに入射するまでに空気中でエネルギーを失うため、ろ紙とシンチレータの幾何学的条件も正確に模擬してシミュレーションを行った。

本検討では、粒子輸送計算コードとして、欧州原子核研究機構を中心に開発が進められている Geant4[8]および JAEA 等で開発が進められている PHITS (Ver. 3.02) [9]を用いた。

解析モデルを図 3.2.2-1 に示す。測定時に想定される検出器体系のうち、 $\alpha$  線の挙動に影響のある部分を抽出し、シンチレータ、光電子増倍管の窓、光電子増倍管の筐体で構成した。線源はスミヤ法でふき取った場合を想定して円形のスミヤろ紙に付着している状態、すなわち薄い円盤状の状態を模擬した。なお、シミュレーションの整合性を評価するため、円盤状の線源の直径は、測定（3.2.1 項参照）に用いた  $\alpha$  線源 ( $^{241}\text{Am}$ ) と共通とし、 $\alpha$  線のエネルギーは 5.4 MeV とした。表 3.2.2-1 に、構成部材の物性情報を示す。

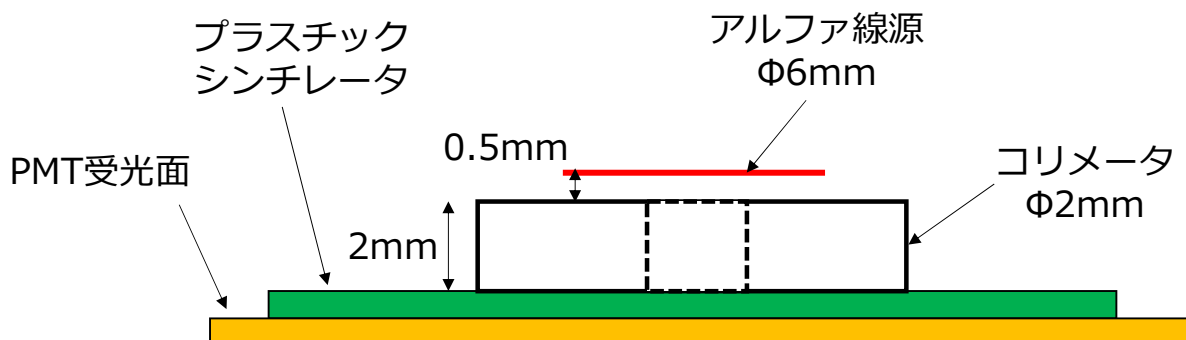


図 3.2.2-1 解析モデル  
（[2]より引用）

表 3.2.2-1 シミュレーションモデルの構成部材（[2]より引用）

| 構成部材   | 物性情報             |
|--------|------------------|
| シンチレータ | プラスチックシンチレータ[10] |
| PMT 窓  | SiO <sub>2</sub> |
| コリメータ  | アクリル             |
| 周辺環境   | 空気               |

## ③ シミュレーション結果

図 3.2.2-2 に、Geant4 及び PHITS により求めたプラスチックシンチレータへの付与エネルギー分布を示す。図より、2 種類の計算コードの結果はほぼ一致することが確認できた。図 3.2.2-2 に示すエネルギー付与分布を、測定系のエネルギー分解能でフォールディングし、模擬的なプラスチックシンチレータ出力を得た。ここで、測定系のエネルギー分解能は、付与エネルギーの  $\Delta E^{1/2}$  に比例するパラメータと測定系回路ノイズから評価した値とした。結果を図 3.2.2-3 に示す。

以上より、シミュレーションにより模擬的なシンチレータ出力を得られることを確認した。なお、本検討では、シンチレータを光電子増倍管に接着した場合の、シンチレータ出力を模擬したが、CMOS カメラを用いる場合においても、シンチレータから CMOS カメラまでの光学系についての光線追跡を行うことで、本検討と同様に模擬的なシンチレータ出力を計算することが可能である。

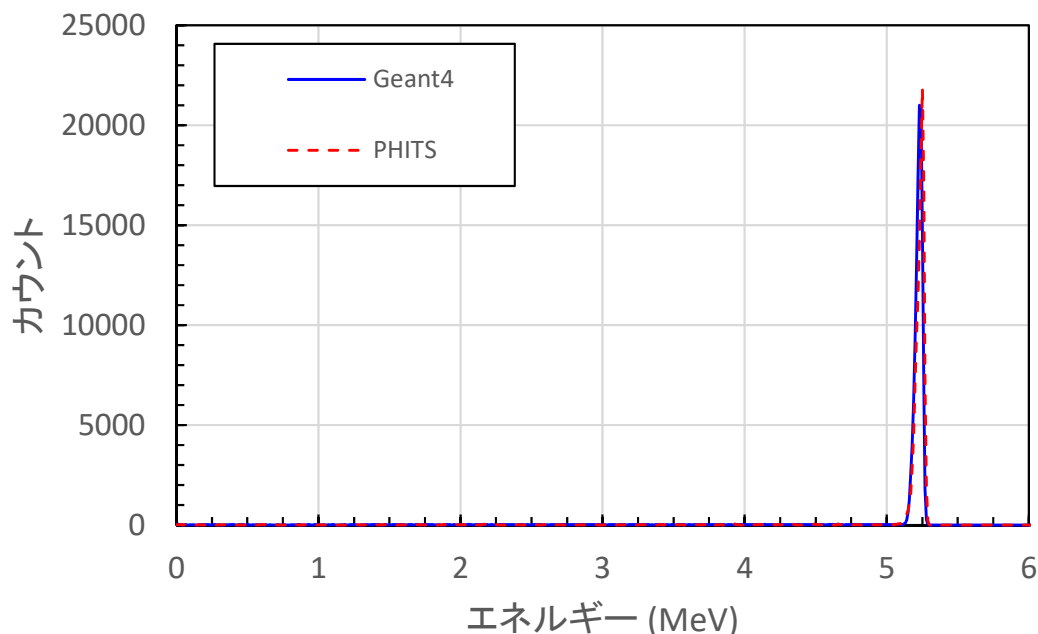


図 3.2.2-2 プラスチックシンチレータへの付与エネルギー計算結果  
（[2]より引用）

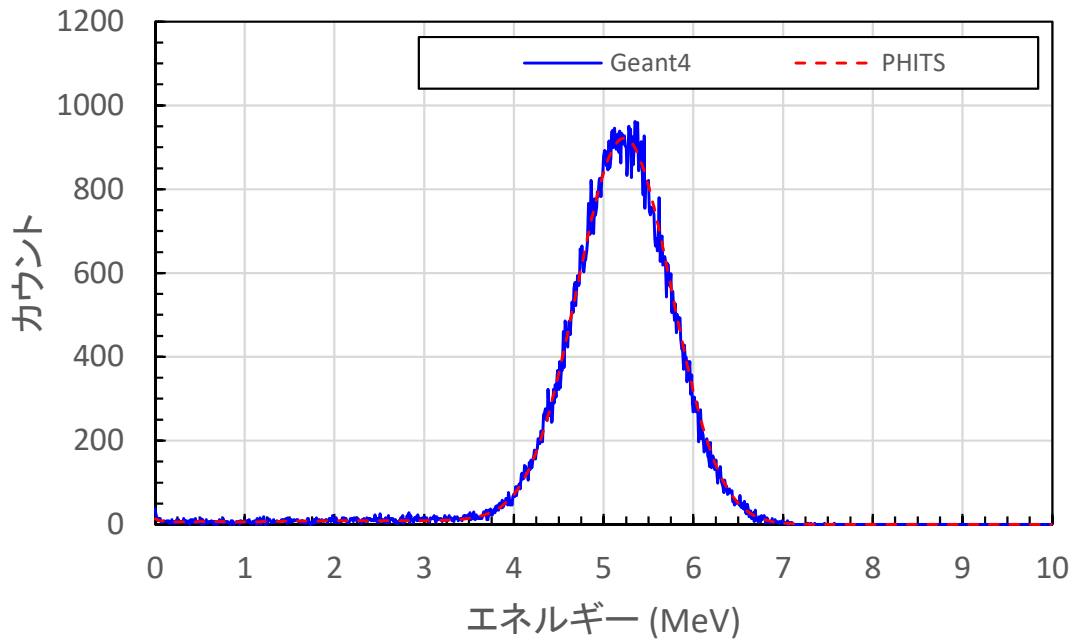


図 3.2.2-3 プラスチックシンチレータ出力のシミュレーション結果  
([2]より引用)

#### ④ 簡易的な装置によるエネルギースペクトル測定

汎用のシンチレータと光電子増倍管及び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、エネルギー測定部分の模擬データを取得した。

また、放射性物質の位置検出の模擬データを取得するため、汎用のシンチレータにピクセル型光電子増倍管、ピクセル型光半導体、及び CMOS カメラを組み合わせ、密封放射線源から放出される放射線の位置検出の模擬データを取得した。

#### ⑤ 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及び放射線計測用信号処理回路を用いて  $\alpha$  線のエネルギーを測定した。測定装置の構成を図 3.2.2-4 及び表 3.2.2-2 に示す。光電子増倍管は角型の R7600U を用い、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。

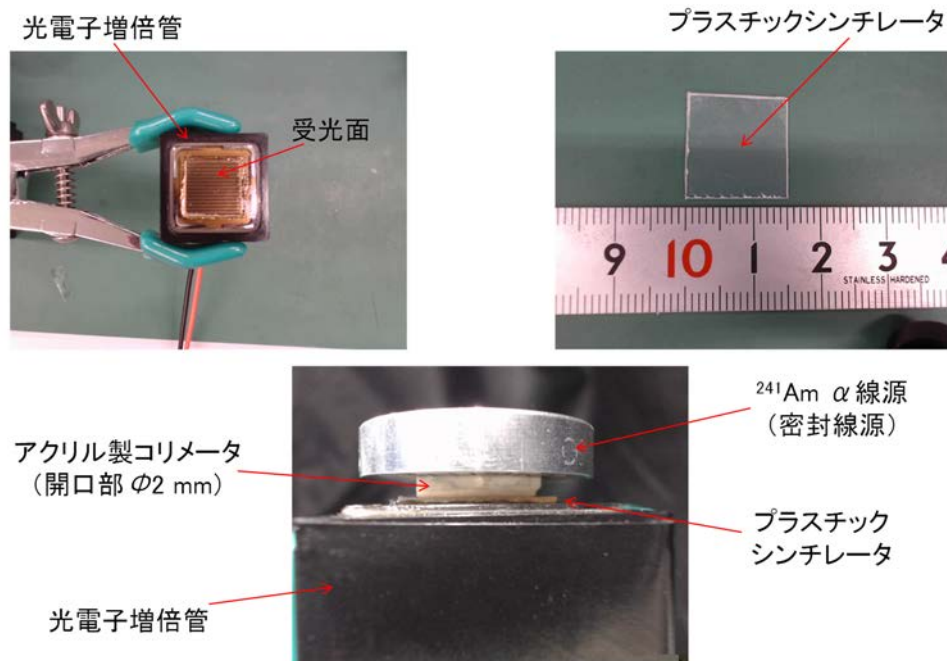


図 3.2.2-4 光電子増倍管を用いた測定装置のセットアップ  
([2]より引用)

表 3.2.2-2 光電子増倍管を用いた測定条件 ([2]より引用)

|        |                                     |
|--------|-------------------------------------|
| 光電子増倍管 | 浜松ホトニクス株式会社 R7600U                  |
| シンチレータ | プラスチックシンチレータ<br>(厚さ: 0.5 mm、反射材なし)  |
| コリメータ  | アクリル<br>(厚さ: 2 mm、開口部: $\Phi 2$ mm) |
| 線源     | $^{241}\text{Am}$ $\alpha$ 線源       |

図 3.2.2-5 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 $\alpha$ 線のエネルギーを示しており、5.2 MeV 付近にピークを観測した。この結果から、ろ紙とシンチレータを近接させることで、 $\alpha$ 線のエネルギースペクトルを測定できることが確認できた。一方、プラスチックシンチレータは電子と $\alpha$ 線で発光効率が異なり、その比率（ $\alpha/\beta$ 比）は約 0.07 程度 [11]である。そのため、 $^{241}\text{Am}$  から放出される 59.5 keV の $\gamma$ 線のエネルギーが、見かけ上 1 MeV 付近に観測されている。このことから、測定環境中に存在する $\beta$ 線や $\gamma$ 線の影響を除去するためには、シンチレータの $\alpha/\beta$ 比も考慮する必要がある。

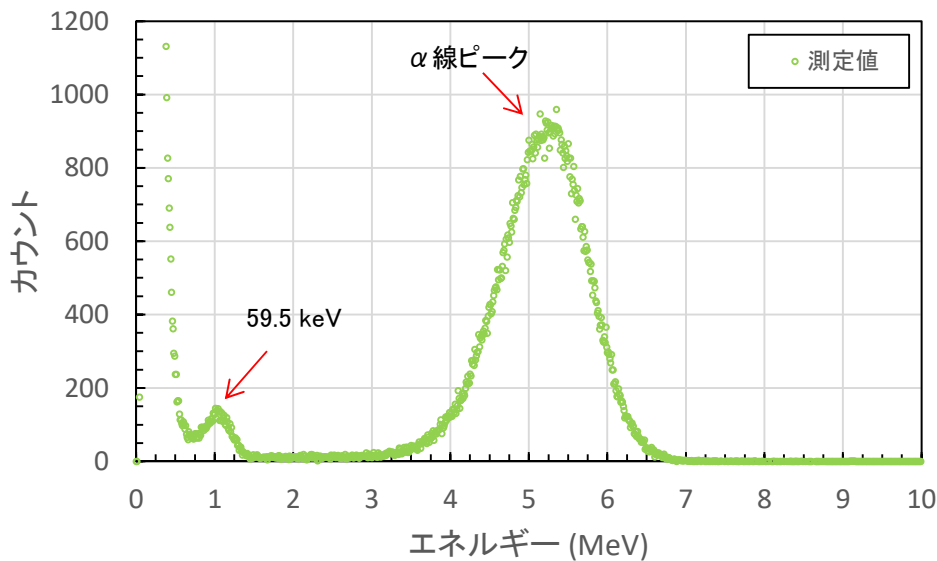


図 3.2.2-5 光電子増倍管を用いたエネルギースペクトル取得結果  
([2]より引用)

#### ⑥ CMOS カメラを用いた $\alpha$ 線のエネルギー測定

実機に適用予定のカメラと同等の CMOS カメラを用いてエネルギー取得装置の原理モデルを構築し、 $\alpha$ 線によるシンチレータの発光を観測した。図 3.2.2-6 に測定装置のセットアップを示す。測定条件は表 3.2.2-3 に示す通りである。

ポリエチレンブロックと遮光シートを用いて簡易暗室を構成し、CMOS カメラと GAGG シンチレータ、線源をその中に設置した。GAGG シンチレータと CMOS カメラの距離を 25 cm に設定し測定を行った。

図 3.2.2-7 に測定結果を示す。図に示すように、露光時間 1 秒で $\gamma$ 線による発光を観測できることを確認した。

今後、放射線挙動と光線追跡シミュレーションとを組み合わせた解析との比較を実施し、CMOS カメラで取得したデータを用いたエネルギースペクトル測定方法の検討を進める。

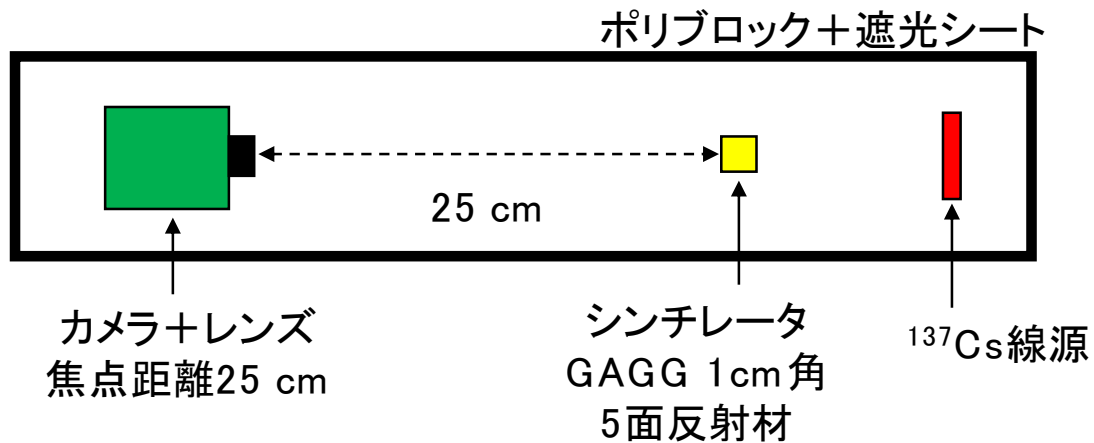


図 3. 2. 2-6 CMOS カメラを用いた測定装置のセットアップ（[2]より引用）

表 3. 2. 2-3 CMOS カメラを用いた測定条件（[2]より引用）

|          |                                       |
|----------|---------------------------------------|
| CMOS カメラ | 浜松ホトニクス株式会社 C13440-20CU               |
| 距離       | 25 cm                                 |
| 露光時間     | 1 秒                                   |
| シンチレータ   | GAGG シンチレータ<br>(サイズ: 10×10×10、5 面反射材) |
| 線源       | $^{137}\text{Cs}$                     |

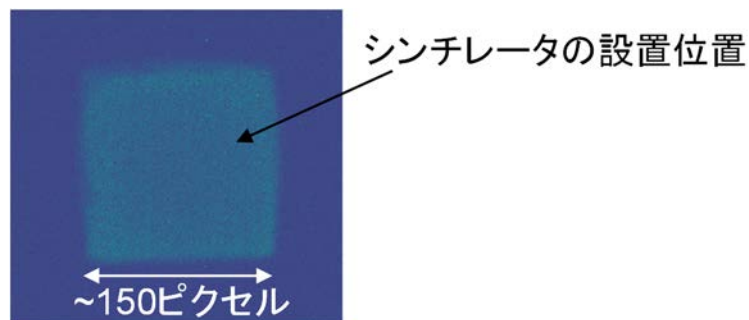


図 3. 2. 2-7 線源位置の測定結果（[2]より引用）

## ⑦ アンフォールディング法の検討

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[12]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。 $\alpha$ 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 $\alpha$ 線をシンチレータで測定した場合のエネルギースペクトル（受光素子で検出したシンチレーション

ン光の光量分布) となる。応答関数は粒子輸送計算と光線追跡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との比較を行い、高精度な応答関数の実現可能性について評価を行った。

図 3.2.2-8 に、③に示した測定結果と⑤に示したシミュレーション結果の比較を示す。図より、 $\alpha$  線の全吸収ピークの形状がよく再現できていることが確認できた。一方で、ピークの低エネルギー側で、測定値のほうがわずかに高い傾向が確認できる。この原因として、 $\alpha$  線のエネルギーに対するシンチレータの発光効率に非線形性[13]があるため、測定値のピークはガウス分布でフォールディングしたシミュレーション結果に比べ、低エネルギー側が大きくなると考えられる。

今後、発光効率の非線形性を考慮することで、高精度な応答関数を求めることができると考えられる。

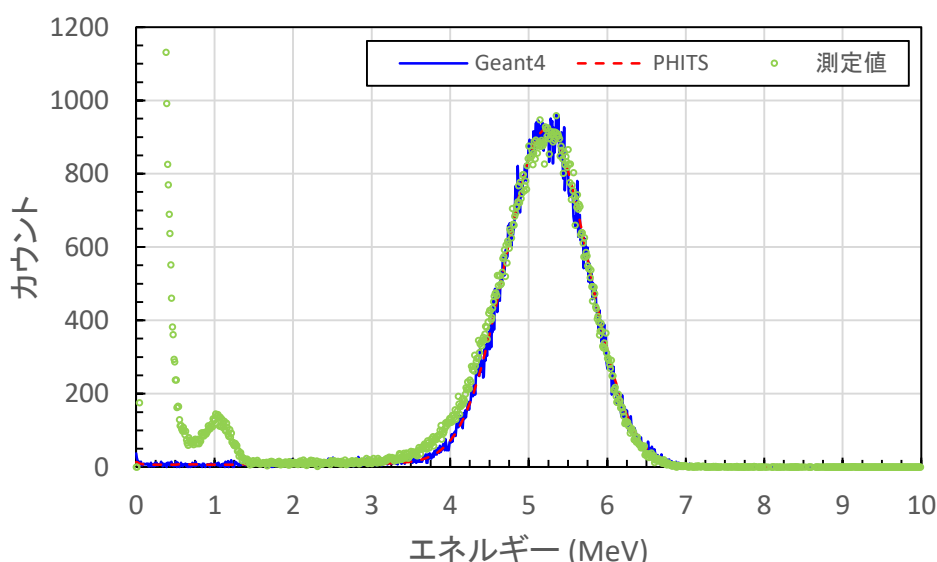


図 3.2.2-8 測定値とシミュレーション結果の比較 ([2] より引用)

次に、汎用のシンチレータと光電子増倍管及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。

#### ⑧ 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及び放射線計測用信号処理回路を用いて  $\alpha$  線のエネルギーを測定した。測定装置の構成を図 3.2.2-9 及び表 3.2.2-4 に示す。光電子増倍管は角型の R7600U

を用い、厚さ 0.5 mm のプラスチックシン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。

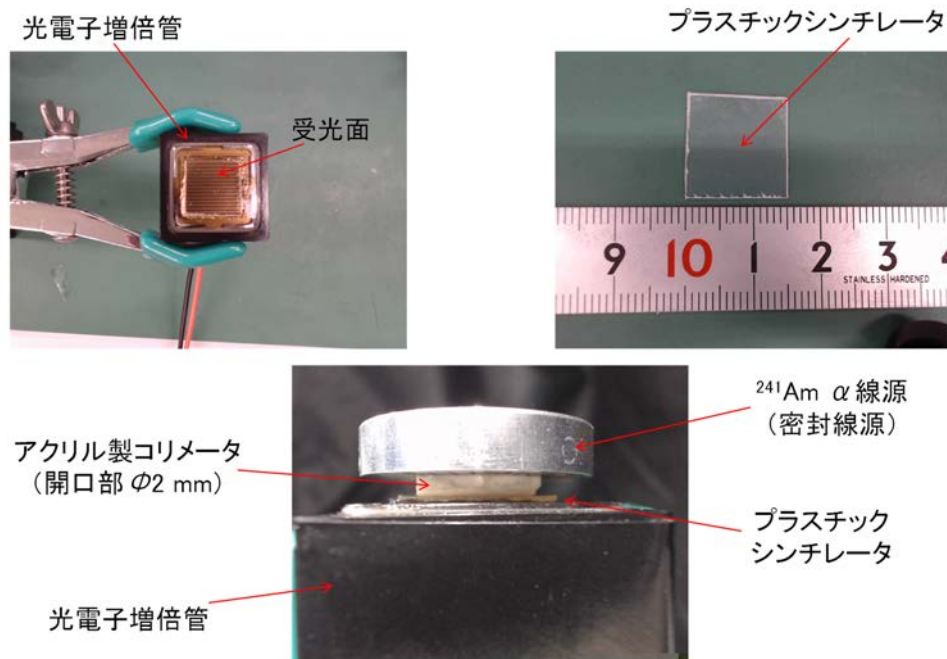


図 3.2.2-9 光電子増倍管を用いた測定装置のセットアップ  
([6]より引用)

表 3.2.2-4 光電子増倍管を用いた測定条件 ([6]より引用)

|        |                                                 |
|--------|-------------------------------------------------|
| 光電子増倍管 | 浜松ホトニクス株式会社 R7600U                              |
| シンチレータ | プラスチックシンチレータ<br>(厚さ:0.5 mm、反射材なし)               |
| コリメータ  | アクリル<br>(厚さ:2 mm、開口部: Φ2 mm)                    |
| 線源     | $^{241}\text{Am}$ α 線源<br>$^{90}\text{Sr}$ β 線源 |

図 3.2.2-10 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 α 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  $\gamma$  線 59.5 keV のピークを用いて校正を行った。 $^{241}\text{Am}$  からの α 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 α 線での発光効率の違いである  $\alpha/\beta$  比が 0.07 と小さい[14]ことによる影響で 0.3 MeV に α 線のピークが検出された。

実際の測定環境では α 線核種だけではなく、β 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 α 線源でのスペクトルに加えて β 線源を使ったスペクトル計測を行い β 線の影響も評価を実施した。図 3.2.2-10 に α 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、β 線のスペクトルは α 線のピークと重なり β 線の影響が大きいことが分かった。

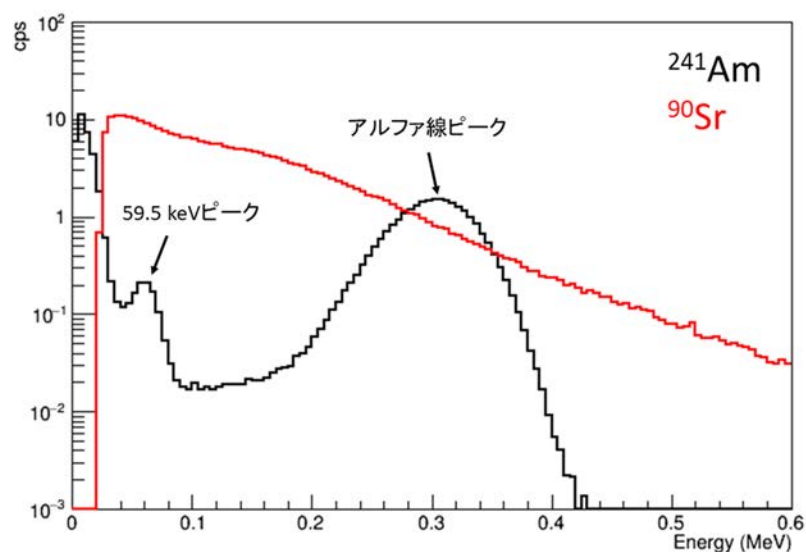


図 3.2.2-10 光電子増倍管を用いたエネルギースペクトル取得結果  
([6]より引用)

#### ⑨ 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) 及び放射線計測用信号処理回路を用いて  $\alpha$  線のエネルギーを測定した。測定装置の構成を図 3.2.2-11 及び表 3.2.2-5 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  $\alpha$  線への感度が高いこと、また、印加電圧として 5 V 程度で  $\alpha$  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 3.2.2-11 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 (菊水電子工業株式会社、401) と半導体検出器用の増幅率の大きいプリアンプ (クリアパルス株式会社、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 3.2.2-4 のように検出器のみ変更し、コリメータ及び線源は表 3.2.2-4 での測定と同等のものとした。

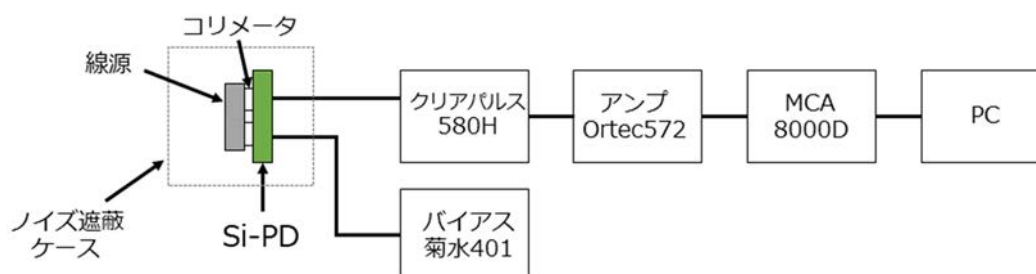


図 3.2.2-11 シリコン半導体検出器を用いた測定装置構成  
([6]より引用)

表 3.2.2-5 シリコン半導体検出器を用いた測定条件（[6]より引用）

|        |                                                              |
|--------|--------------------------------------------------------------|
| 半導体検出器 | 浜松ホトニクス株式会社 3590-09                                          |
| コリメータ  | アクリル<br>(厚さ:2 mm、開口部: $\Phi 2$ mm)                           |
| 線源     | $^{241}\text{Am}$ $\alpha$ 線源<br>$^{90}\text{Sr}$ $\beta$ 線源 |

図 3.2.2-12 に、シリコン半導体検出器での  $\alpha$  線スペクトルと  $\beta$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  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。 $\beta$  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、 $\alpha$  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[11]。

実際の環境では  $\beta$  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、 $\alpha$  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。

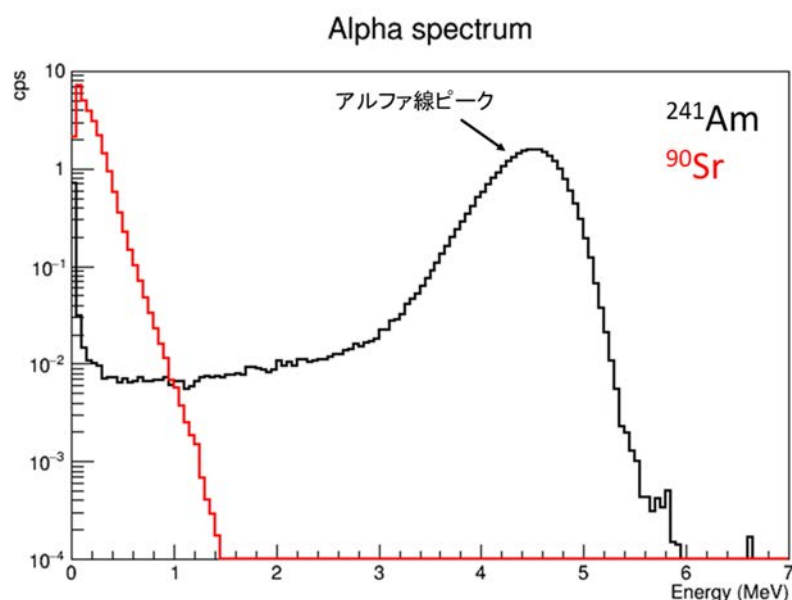


図 3.2.2-12 シリコン半導体検出器を用いたエネルギースペクトル取得結果（[6]より引用）

# ⑩ アンフォールディング法の適用性検証

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 節での $\alpha$ 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、再現性を確認した。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 節での $\alpha$ 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した。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 $\alpha$ 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。

## ⑩-1 粒子輸送計算による $\alpha$ 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[12]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。 $\alpha$ 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 $\alpha$ 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[13]) との比較を行い、図 3.2.2-13 に、(2)に示した測定結果とシミュレーションによる $\alpha$ 線スペクトルとの比較を示す。図 3.2.2-13 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ており、特に $\alpha$ 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。

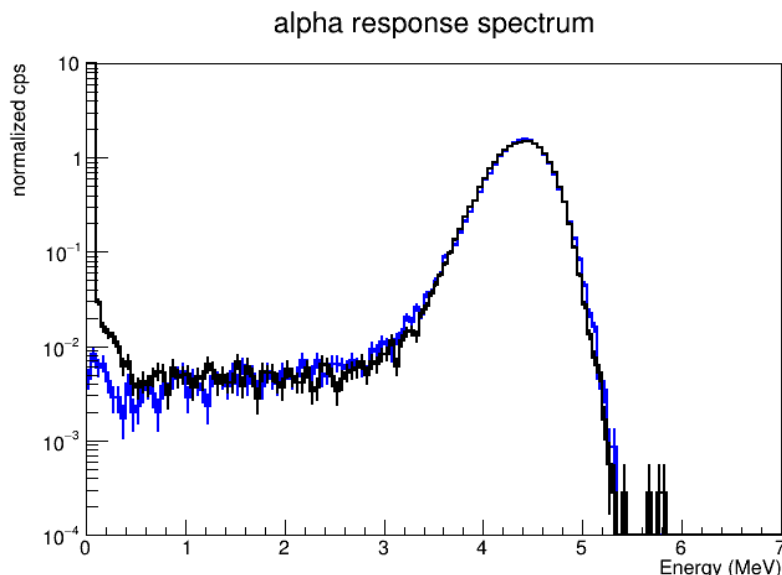


図 3.2.2-13 測定値とシミュレーション結果の比較  
([6]より引用)

## ⑩-2 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  $\alpha$  線源のエネルギーと検出器での付与エネルギーを 2 次元で表した図が、図 3.2.2-14 である。2.0 MeV 以下の  $\alpha$  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  $\alpha$  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 3.2.2-12 で得られたような  $\alpha$  線スペクトルにアンフォールディング法を適用する。

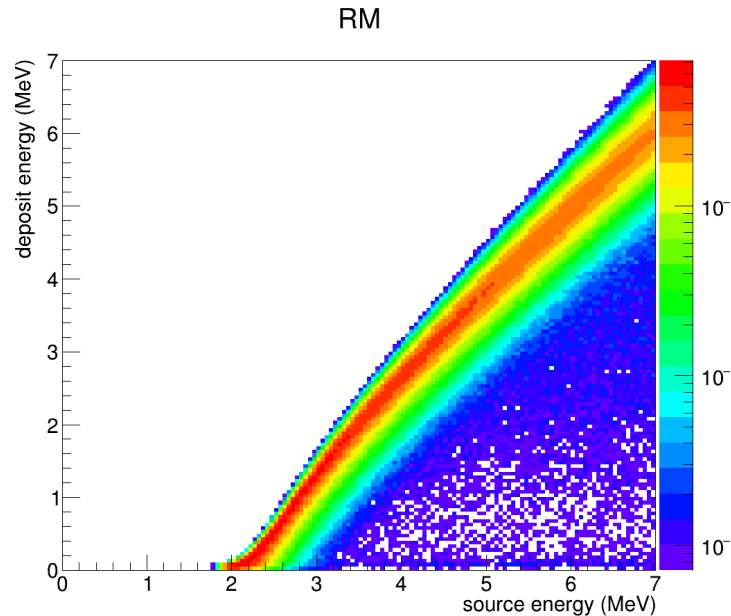


図 3.2.2-14 応答関数での線源エネルギーと検出器付与エネルギーの関係  
([6]より引用)

## ⑩-3 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[13]。逐次近似法では、初期の線源スペクトルを測定スペクトルとして用いることで、 $\alpha$  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 3.2.2-15 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  $\alpha$  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。

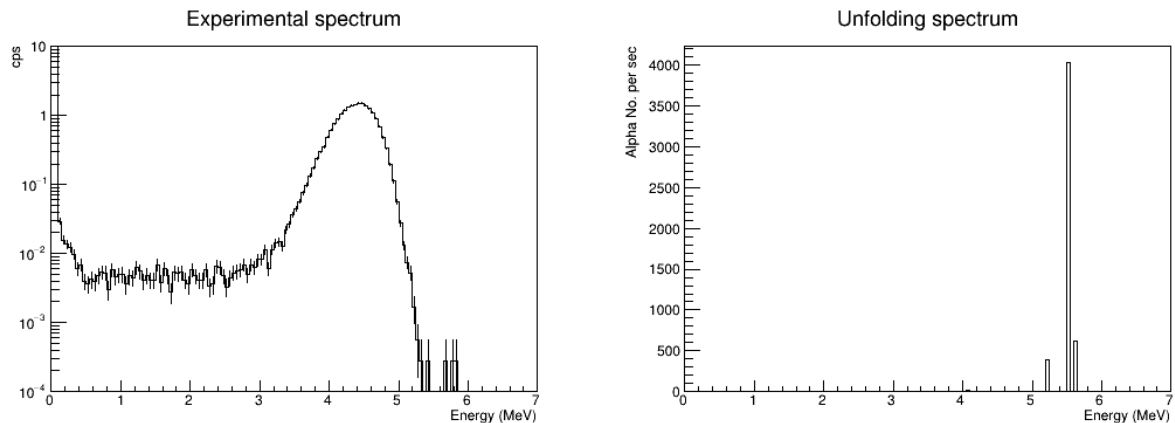


図 3.2.2-15 測定（左）とアンフォールディング適用後のスペクトル（右）  
（[6]より引用）

今回作成して適用した応答関数は⑨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。

$\alpha$  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、平成 30 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  $\alpha$  ダストの実サンプルにてデータ取得を行った。

#### ⑪ エネルギースペクトル測定装置の小型化

$\alpha$  線の検出器としては、シリコンフォトダイオード（以下、「Si-PD」と略す。）（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  $\mu\text{m}$  以下）を配し、 $\alpha$  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ー、それぞれ設計・開発を行い、さらに図 3.2.2-16 のように、小型化を行った。



図 3.2.2-16 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（[7]より引用）

⑫ JAEA 核燃料サイクル工学研究所（以下、「核サ研」と略す。）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  $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  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  $\alpha$  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 3.2.2-17 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 3.2.2-17 実サンプルの写真（[7]より引用）

核サ研が保有する実サンプルには  $\alpha$  線核種として  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$  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  $\alpha$  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 3.2.2-6 に記載した。

表 3.2.2-6 実サンプルの線源データ ([7]より引用)

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

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 3.2.2-18 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  $\alpha$  線スペクトルでのピーク構造は、令和 2 年度検証したノイズ要因となる  $\beta$  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。 $\beta$  線と近いエネルギーを持つ  $\gamma$  線に対しても、同様に影響を受けない。

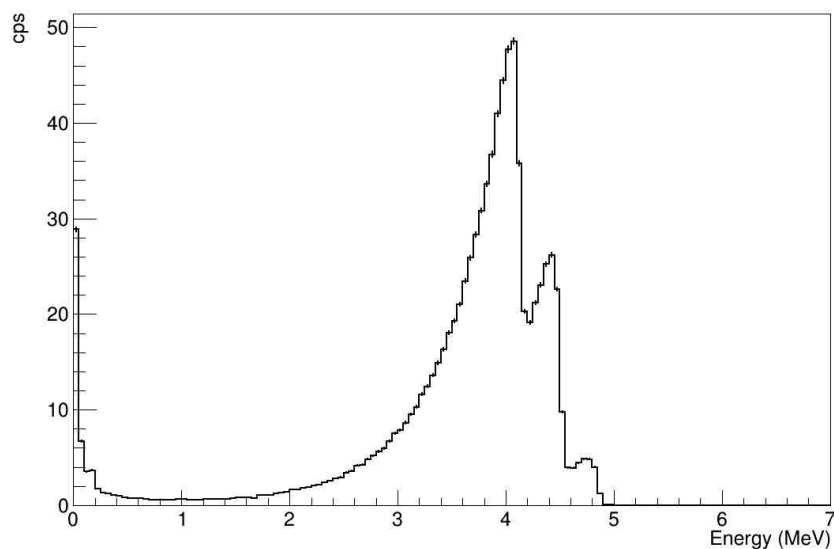


図 3.2.2-18 実サンプルのエネルギースペクトル測定結果 ([7]より引用)

### ⑬ 実サンプルデータへのアンフォールディング法の適用

令和元年度に取得した  $^{241}\text{Am}$  の  $\alpha$  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。

### ⑭ 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[14]を用いた。応答関数作成時のモデル体系は、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③で検証した逐次近似法での演算を実施した。

図 3.2.2-19 に、図 3.2.2-18 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  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$ 、 $^{244}\text{Cm}$ 、3 核種が分析できていることが実証された。

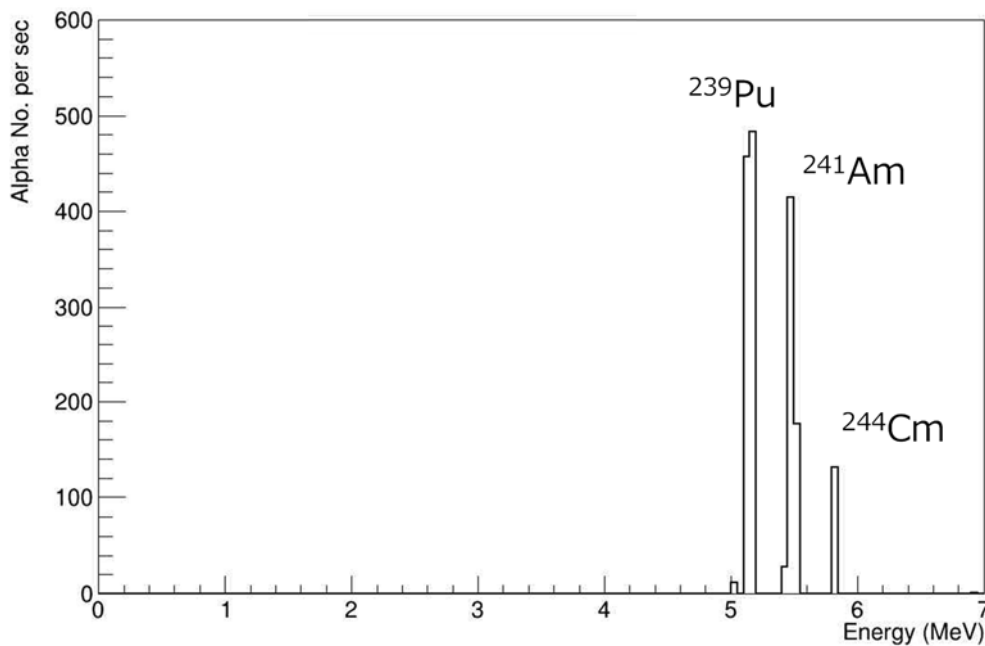


図 3.2.2-19 実サンプル測定に対するアンフォールディング結果  
([7]より引用)

また、アンフォールディング法によって得られた  $\alpha$  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 3.2.2-7 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 3.2.2-7 線源データとアンフォールディング結果の比較（[7]より引用）

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

$^{244}\text{Cm}$  は  $^{239}\text{Pu}$ 、 $^{241}\text{Am}$  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。

### 3.2.3 実証試験（連携先：JAEA）

#### ① $\alpha$ ダストサンプリングに向けた資機材の整備

JAEA では、 $\alpha$  ダストをサンプリングするための資機材の整備をまずは下記の通り実施した。

##### ①-1 空気中 $\alpha$ ダストサンプリング

図 3.2.3-1 左に整備したダストサンプラの外観写真を示す。このサンプラは、最大吸引流量 50 L/min 以上で動作し、ポータブルサンプラとしては比較的軽量（約 15 kg）という特徴を有し、多くの原子力施設で使用されている実績を持つ。サンプリングホースを接続してサンプラから離れた位置のサンプリングも可能である。同時に、サンプラに装着するフィルタ（HE-40T）も整備した（図 3.2.3-1 右）。HE-40T もまた多くの原子力施設で使われている実績を有し、ダストサンプリングに適している。



図 3.2.3-1 ポータブルダストサンプラ（左）と HE-40T ろ紙（右）（[2]より引用）

①-2 表面汚染 $\alpha$ ダストサンプリング

現場での放射線管理において、表面汚染は一般にスミヤろ紙といわれる円形のろ紙を用いて採取される。こちらにも、国内外の原子力施設や 1F で広く用いられている ADVANTEC のスミヤろ紙を整備した。このスミヤろ紙を用いた粒子のサンプリング試験も行い、サンプリングが可能であることを確認した（図 3.2.3-2）。1F の原子炉建屋等には高濃度の汚染が存在し、高線量下におけるサンプリングとなる。1F で安全に、また適切にサンプリングができるように、1F での現場経験者と意見交換を行い、サンプリング方法の見直し及び訓練を実施した。サンプリングを行ったスミヤろ紙が汚染しないようにし、かつ迅速にサンプリングできるような方法の検討も行った。



図 3.2.3-2 スミヤろ紙を用いた粒子のサンプリング試験  
（[2]より引用）

## ② JAEA が有する CCD カメラを用いた先行試験

## ②-1 試験の目的

本試験の目的は、東北大学で製作したシンチレータを JAEA が有する CCD カメラで先行試験することにより、 $\alpha$  線イメージング性能を評価し、また、課題点等を抽出することにより今後のシンチレータ開発等へフィードバックすることである。当初計画では、JAEA が保有する核燃料の試料を模擬的なデブリと見立てた実証試験を行う予定であったが、JAEA 内で汚染トラブルが発生したため、この実証試験は先送りせざるを得ない状況であった。

## ②-2 シンチレータ

東北大学で製作したシンチレータを用いた先行試験を実施した。東北大学から受け取ったシンチレータの外観写真を図 3.2.3-3 に示す。シンチレータは単結晶の板状になっており、4、5、6 とナンバリングがしてある。それぞれ

4 :  $(\text{Gd}_{2.5} \text{ Y}_{0.5}) (\text{Ga}, \text{Al})_5 \text{ O}_{12}$  1 個

5 :  $(\text{Gd}_{2.0} \text{ Y}_{1.0}) (\text{Ga}, \text{Al})_5 \text{ O}_{12}$  2 個

6 :  $(\text{Gd}_{1.5} \text{ Y}_{1.5}) (\text{Ga}, \text{Al})_5 \text{ O}_{12}$  2 個

となっていた。シンチレータのサイズは 1 cm×1 cm、厚みは 0.2 mm であった。



図 3.2.3-3 東北大学から受け取ったシンチレータ  
([2]より引用)

#### ②-3 $\alpha$ 線イメージングのセットアップ

図 3.2.3-4 に測定の設定アップを示す。 $\alpha$ 線源として  $^{232}\text{Th}$  線源（ランタンマントル）を用いた。ランタンマントルは薄いポリエチレンフィルム（約  $4\ \mu\text{m}$ ）でラミネートされている。そのランタンマントルにシンチレータを密接させた。シンチレータ表面位置に焦点が合うようにシンチレータとランタンマントルを配置した。 $\alpha$ 線がシンチレータに入射すると発光する。その光を Electron Multiplying (EM) -CCD カメラ（浜松ホトニクス株式会社、ImagEM X）を用いて撮像した。このカメラは EM（電子増倍）ゲインの機能を有し、低照度下での極微弱光観察に適しており、量子効率分布も今回用いたシンチレータの発光波長と合っている特長を有する。レンズには株式会社リコーの FL-CC1614A を用い、10 mm の接写リングをレンズと EM-CCD カメラとの間に挿入した。これにより、シンチレータとレンズ先端間の距離を約 2 cm に縮めることができ、シンチレーション光のロスを少なくすることができた。レンズ、シンチレータ、線源は暗箱の中に封入され、さらなる遮光のために暗箱の上から暗幕をかけた状態で測定を行った。ランタンマントルを線源として用いる放射線イメージを取る際は EM ゲインを最大（255）の状態にして撮像を行った。全反射により光が拡散するのを防ぐため、シンチレータを粉碎し、粉末状にしたものを作製した。粉末状にしたシンチレータを薄いポリエチレンフィルムとプラスチックシートで挟んだ。このシンチレータシートを用いた測定も行った（図 3.2.3-5）。

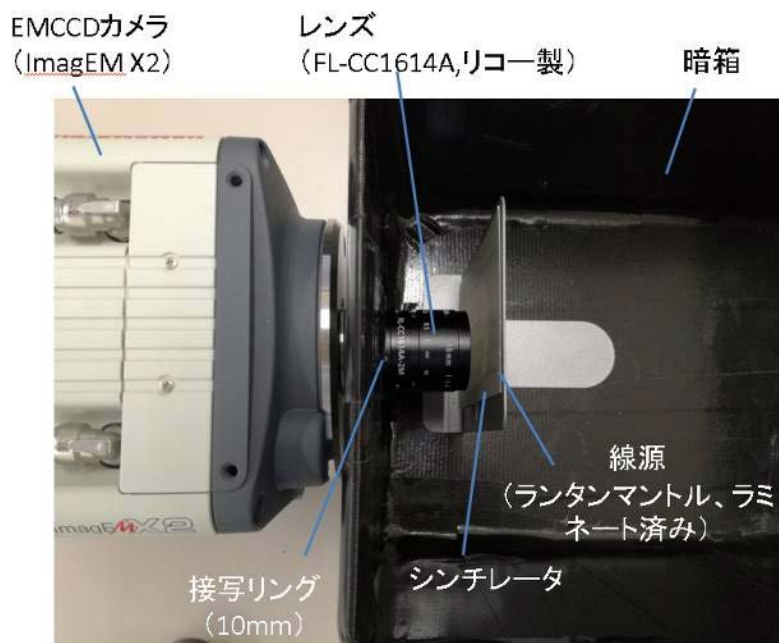


図 3.2.3-4 測定のセットアップ  
([2]より引用)



図 3.2.3-5 粉末状シンチレータ  
([2]より引用)

## ②-4 測定結果（光学画像）

図 3.2.3-6 に撮像した光学画像の結果を示す。辺縁に多少歪みがみられるものの、中心付近では歪みの少ない状態で撮像ができていることを確認した。この定規は 1 mm 単位で、計測すると 48 ピクセルの長さであるため、1 ピクセルの長さは 0.021 mm/pixel と評価された。

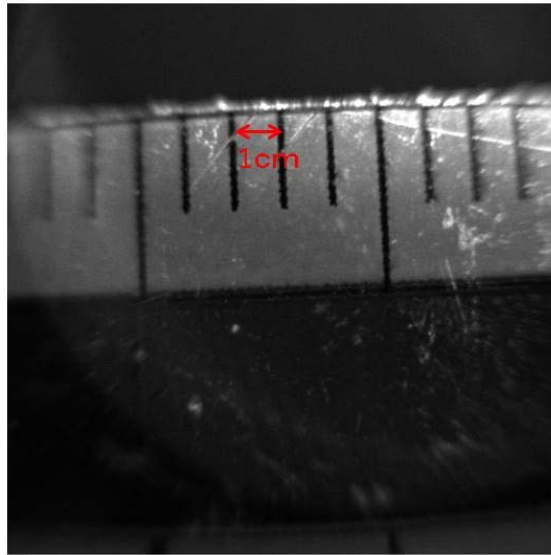


図 3.2.3-6 光学画像（[2]より引用）

## ②-5 測定結果

図 3.2.3-7 にランタンマントルを線源として用いて得られた画像を示す。左が No. 4、右が No. 6 のシンチレータを用いて撮像された画像である。辺縁が高い強度になっており、これはシンチレータ内部で生じた光が全反射し辺縁に集まっているためと考えられる。シンチレータ内に高い強度のパターンのようなものが確認できる。このパターンは、目視によって確認したシンチレータの傷の形状と同じであったため、これは  $\alpha$  線によるものではなく、シンチレータ表面にある傷によるものと考えられる。No. 6 も同様に傷によるパターンと、辺縁の高い強度の部分を確認できた。

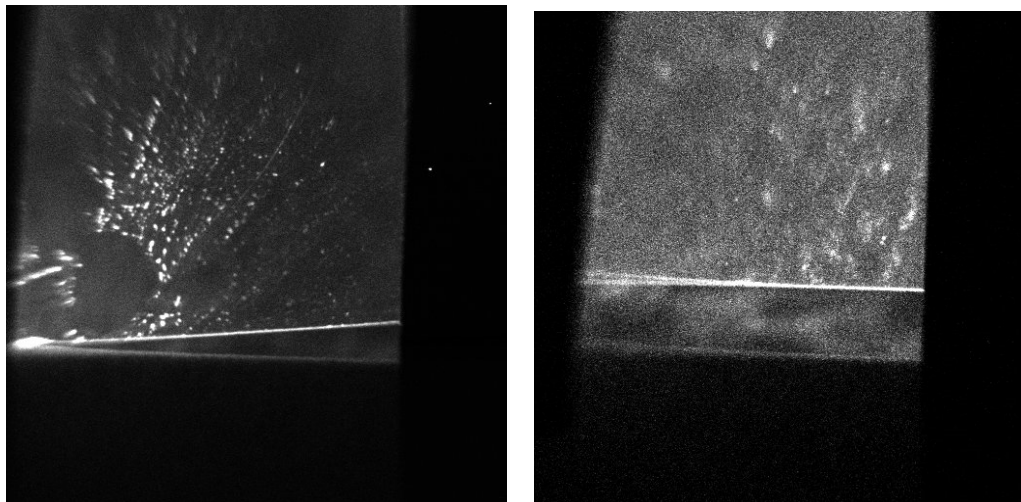


図 3.2.3-7 ランタンマントルを線源として用いて得られた画像（[2]より引用）  
左が No. 4、右が No. 6 のシンチレータ

ランタンマンントルは  $^{232}\text{Th}$  であるため、 $\alpha$  線を放出するが、同時にその子孫核種の  $^{228}\text{Ac}$  等が  $\beta$  線を放出している。得られたイメージが  $\alpha$  線によるものか  $\beta$  線によるものかを識別するため、線源とシンチレータ間に紙（名刺）を置いて撮像も行った。 $\alpha$  線は紙 1 枚で止まるので、得られるイメージは  $\beta$  線のみによるものとなる。図 3.2.3-8 に  $\beta$  線のイメージング結果を示す。シンチレータは No.6 のものを用いた。 $\beta$  線でもシンチレータ全体が発光しており、図 3.2.3-6 と同様、パターンと辺縁の高い強度が確認できる。文字が見えているのは名刺がシンチレータの発光により反射して写っているためである。つまり、このシンチレータは  $\beta$  感度を有するため、 $\alpha$  線のイメージングに用いるためには、 $\beta$  感度を下げる改良が必要であるということが明らかとなった。

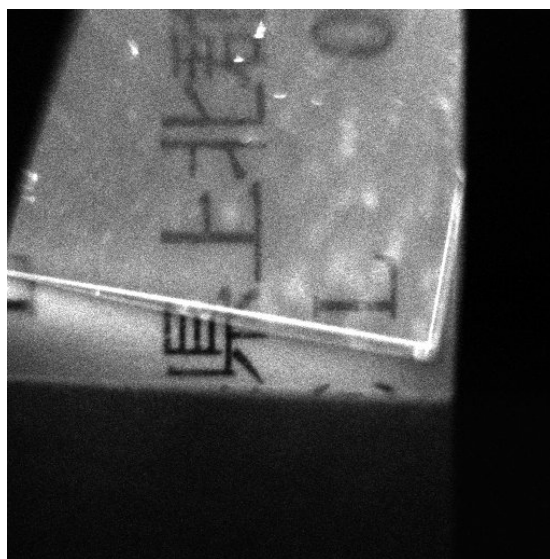


図 3.2.3-8  $\beta$  線イメージング結果（[2]より引用）

図 3.2.3-9 に、粉末状シンチレータを用いて撮像した放射線イメージを示す。プラスチックシートが湾曲していたため、辺縁は焦点が合っていないものの、粉末状シンチレータの形状は確認できる。粉末状のシンチレータ全体が発光しており、 $\beta$  線による影響と考えられる。この粉末状シンチレータを用いることにより、図 3.2.3-6、図 3.2.3-7 に示すような全反射により辺縁の強度が高くなる影響は避けられたものの、やはり  $\beta$  感度を下げる必要があることが明らかとなった。より粉末の粒径を細かくし、 $\alpha$  線のシンチレータ内での飛程（数十  $\mu\text{m}$ ）に近づけていけば  $\beta$  感度が下がるものと考えられる。

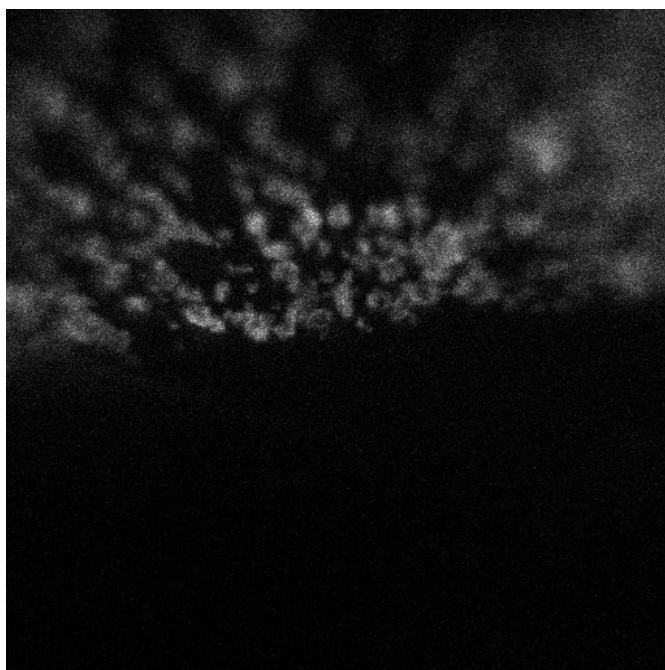


図 3.2.3-9 粉末状シンチレータを用いて撮像した放射線イメージ  
([2]より引用)

## ②-6 考察とまとめ

東北大学で製作したシンチレータと JAEA が有する CCD カメラを用いた先行試験を行った結果、以下のことが明らかとなった。

- 1) 板状のシンチレータの場合、内部で生じた光が全反射し、辺縁や傷の部分に集まり、そこが高い強度として撮像される。
- 2) 板状のシンチレータを粉砕した粉末状シンチレータを用いることにより 1) の影響を抑えることができた。しかし、 $\beta$ 線による感度をまだ有しているため、これを下げる必要がある。

これらの改善点は、実際に東北大学と実験を行うことにより即座に共有することができ、さらなるシンチレータの改良へとつなげていく。

## ③-1 超高位置分解能 $\alpha$ 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  $\alpha$  線イメージング装置の開発を行った。光学顕微鏡にはオリンパス株式会社の 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株式会社の電子増倍 CCD カメラ (EMCCD カメラ) である ImagEM X2 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。 $\alpha$  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 (Eljen Technology, EJ-440) 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 (図 3.2.3-10)。

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。

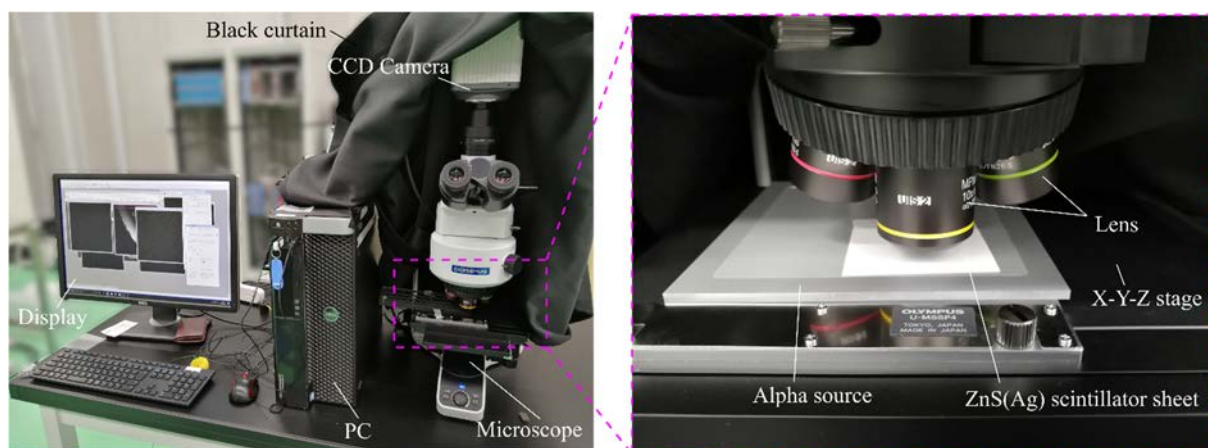


図 3.2.3-10 超高位置分解能 $\alpha$ 線イメージング装置  
([6]より引用)

### ③-2 光学画像の撮像

光学画像の撮像の際は、暗幕を開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 倍に変えて撮像を行った。

### ③-3 $\alpha$ 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 $\times$ 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。

### ③-4 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 (Eljen Technology、EJ-440) 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。

## ③-5 試験結果

## 1) 光学画像の撮像

図 3.2.3-11 に光学倍率を 5 倍、10 倍、20 倍に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 3.2.2-8 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。被ばく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。

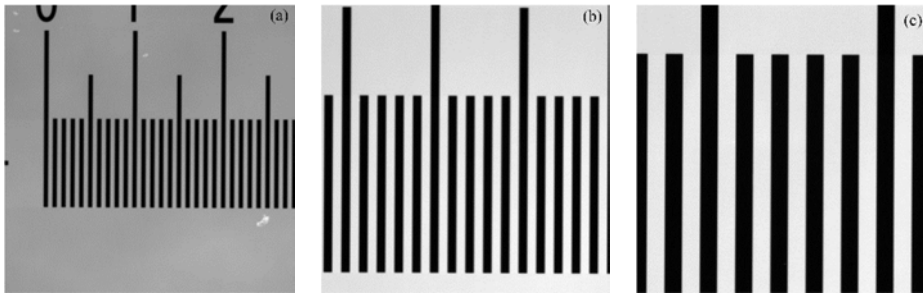


図 3.2.3-11 各倍率でのテストチャートの光学画像（[6]より引用）  
(a)5 倍、(b)10 倍、(c)20 倍、スリット幅は 25  $\mu\text{m}$

表 3.2.2-8 光学倍率と分解能、視野の関係（[6]より引用）

| Zoom | Resolution<br>(Distance / Pixel) | Field of View                              |
|------|----------------------------------|--------------------------------------------|
| 5 x  | 3.28 $\mu\text{m}$               | 1679.4 $\mu\text{m}$ ×1679.4 $\mu\text{m}$ |
| 10 x | 1.63 $\mu\text{m}$               | 835.0 $\mu\text{m}$ ×835.0 $\mu\text{m}$   |
| 20 x | 0.81 $\mu\text{m}$               | 412.9 $\mu\text{m}$ ×412.9 $\mu\text{m}$   |

2)  $\alpha$  線のイメージング

図 3.2.3-12 に、光学倍率を 5 倍、10 倍、20 倍に変えたときの  $\alpha$  線の画像を示す。これは 1 発の  $\alpha$  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、 $\alpha$  線の形状がより精細に確認できる。図 3.2.3-13 に  $\alpha$  線の強度プロファイルを示す。 $\alpha$  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。

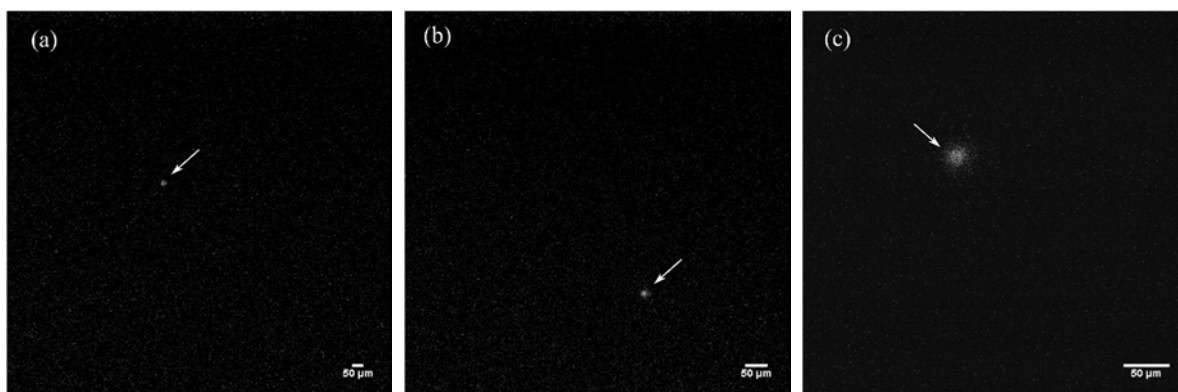


図 3.2.3-12 各倍率での  $\alpha$  線の画像  
(a)5 倍、(b)10 倍、(c)20 倍  
([6]より引用)

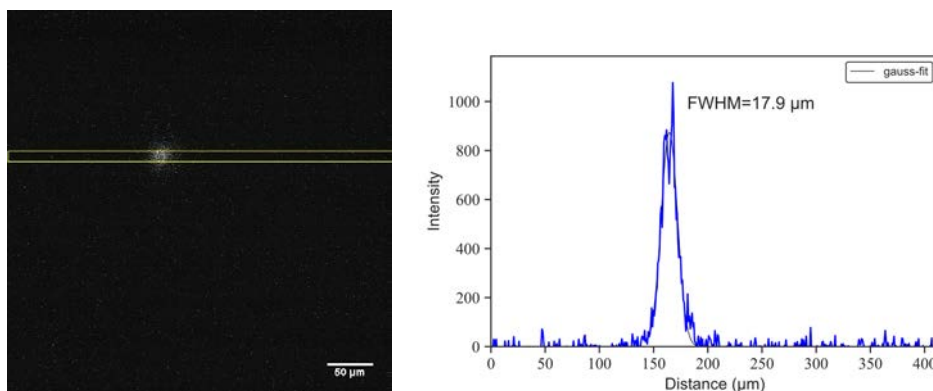


図 3.2.3-13  $\alpha$  線の強度プロファイル  
左は設定した関心領域  
([6]より引用)

### 3) プルトニウム粒子の測定

図 3.2.3-14 に、単一のプルトニウム粒子から放出される  $\alpha$  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 3.2.3-15 に、光学倍率 5 倍、30 分測定 of  $\alpha$  線画像及び光学倍率 20 倍、1 時間測定 of  $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  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  $\alpha$  線画像を取得することができる。この  $\alpha$  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 3.2.3-16 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  $\alpha$  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。

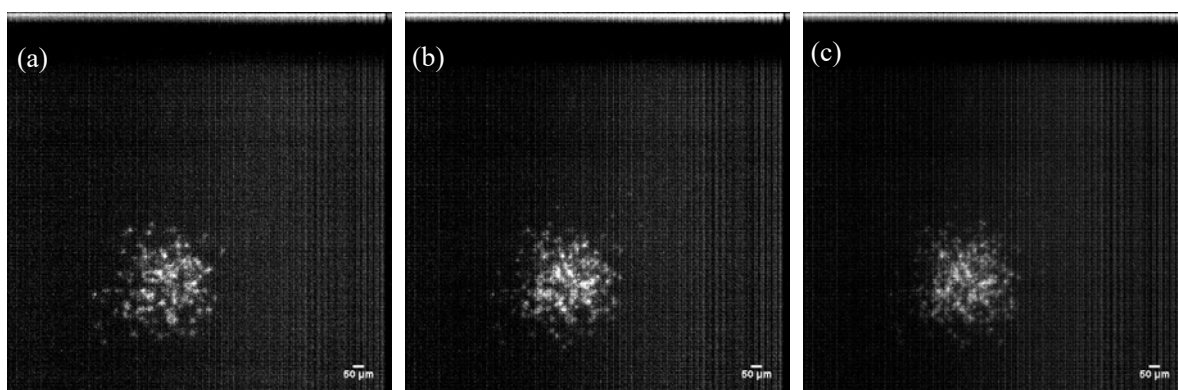


図 3.2.3-14 プルトニウム粒子から放出される $\alpha$ 線の画像（光学倍率 5 倍）  
測定時間はそれぞれ、(a) 1 分、(b) 2 分、(c) 3 分（[6]より引用）

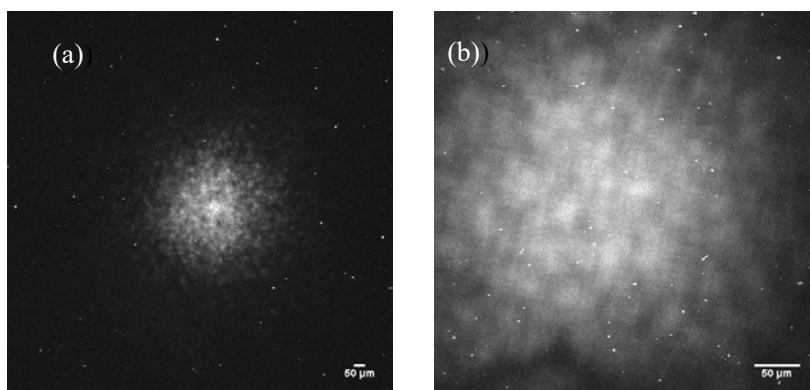


図 3.2.3-15 プルトニウム粒子から放出される $\alpha$ 線の画像  
(a) 光学倍率 5 倍、30 分測定、(b) 光学倍率 20 倍、1 時間測定  
（[6]より引用）

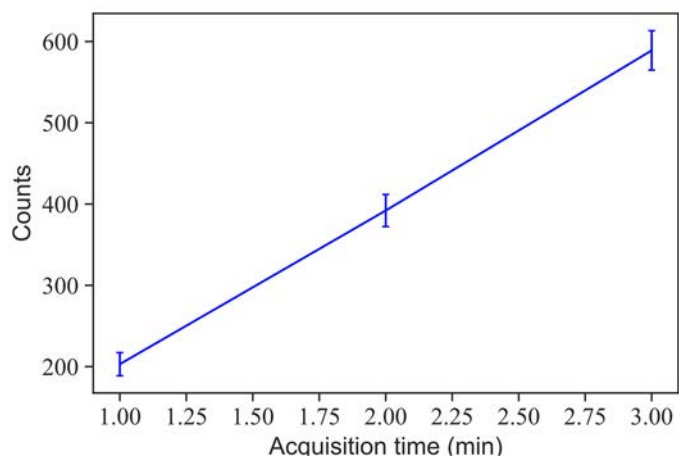


図 3.2.3-16 測定時間ごとの計数值変化  
（[6]より引用）

#### 4) 試験結果のまとめと考察

開発した超高位置分解能  $\alpha$  線イメージング装置を用いた  $\alpha$  線源の測定とプルトニウム粒子の測定を行った。 $\alpha$  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[15]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、 $\alpha$  線が通過する際に複数の 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  $\alpha$  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、 $\alpha$  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、 $\alpha$  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、被ばく評価に用いる粒子径である空気力学的放射能中央径（以下、「AMAD」と略す。）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。

#### ④ 超高位置分解能 $\alpha$ 線イメージング装置

##### ④-1 超高位置分解能 $\alpha$ 線イメージング装置

③に記載した通り、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  $\alpha$  線イメージング装置の開発を行った（図 3.2.3-17）。光学顕微鏡にはオリンパス株式会社の BX53MRF-S を用いた。 $\alpha$  線源を X-Y-Z ステージ上に置き、ZnS(Ag)シンチレータ（Eljen Technology、EJ-440）を密接して置き撮像を行う。令和 2 年度は、 $\alpha$  線計測の際に妨害となる、 $\beta$  線感度等の他の放射線による影響を調査するとともに、プルトニウム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。

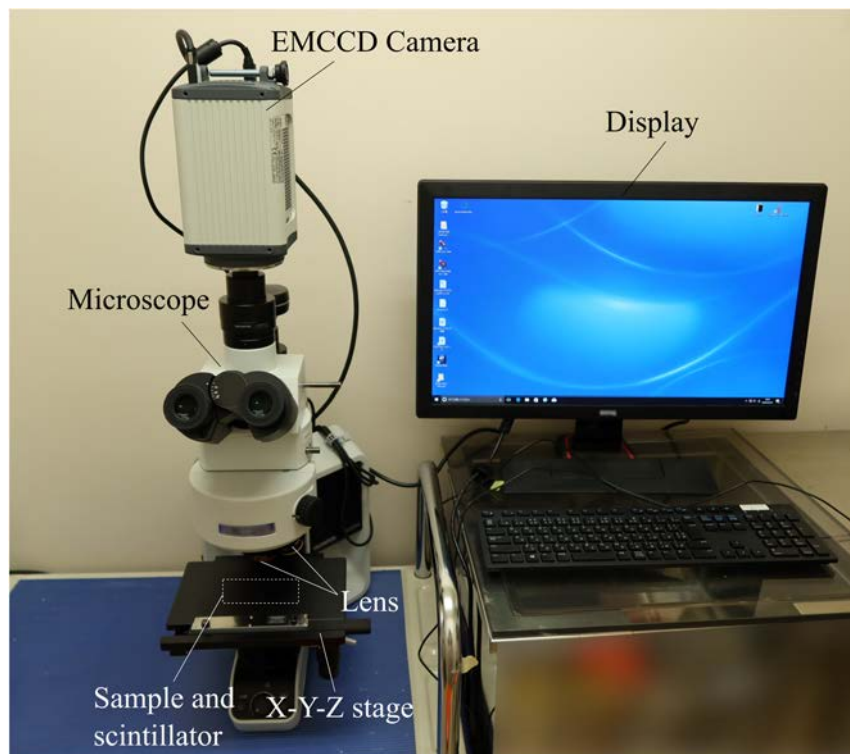


図 3.2.3-17 開発した超高位置分解能  $\alpha$  線イメージング装置（[7]より引用）

#### ④-2 $\beta$ 線

1Fの廃炉現場において、 $\alpha$  汚染と  $\beta$  汚染が混在して存在していることが確認されている[14]。令和元年度報告において、開発した装置が  $\alpha$  感度を有することを確認したものの、 $\beta$  感度についても確認し、 $\alpha$  線との弁別について確認することは重要である。図 3.2.3-18 に  $\beta$  線測定概念図を示す。1 MBq  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$   $\beta$  線源をステージに乗せ、ZnS(Ag)シンチレータを  $\beta$  線源上に置き測定を行った。結果については、後述する。

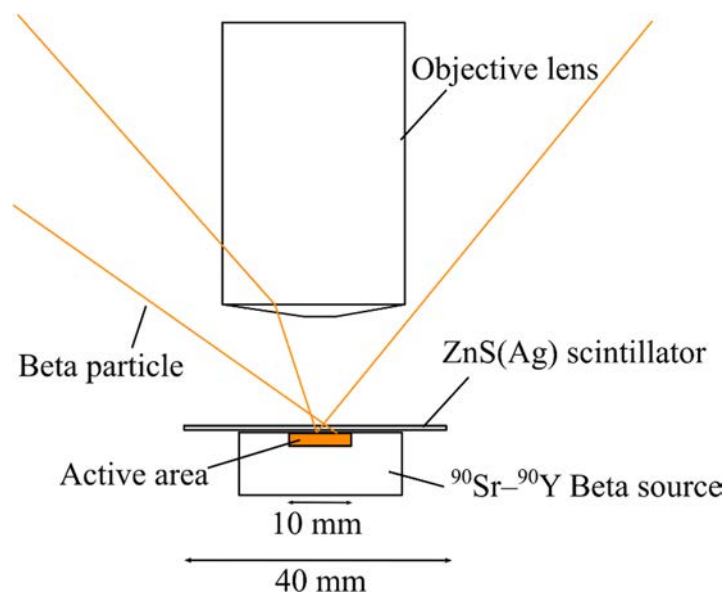


図 3.2.3-18  $\beta$  線源測定概念図（[14]より許諾を得て転載）

④-3  $^{222}\text{Rn}$  子孫核種

$^{222}\text{Rn}$  子孫核種も  $\alpha$  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、 $^{222}\text{Rn}$  子孫核種を  $\alpha$  線イメージング装置を用いて測定した。図 3.2.3-19 に  $^{222}\text{Rn}$  子孫核種の測定の概念図を示す。 $^{222}\text{Rn}$  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、 $^{222}\text{Rn}$  濃度が約 200 Bq/m<sup>3</sup> 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。

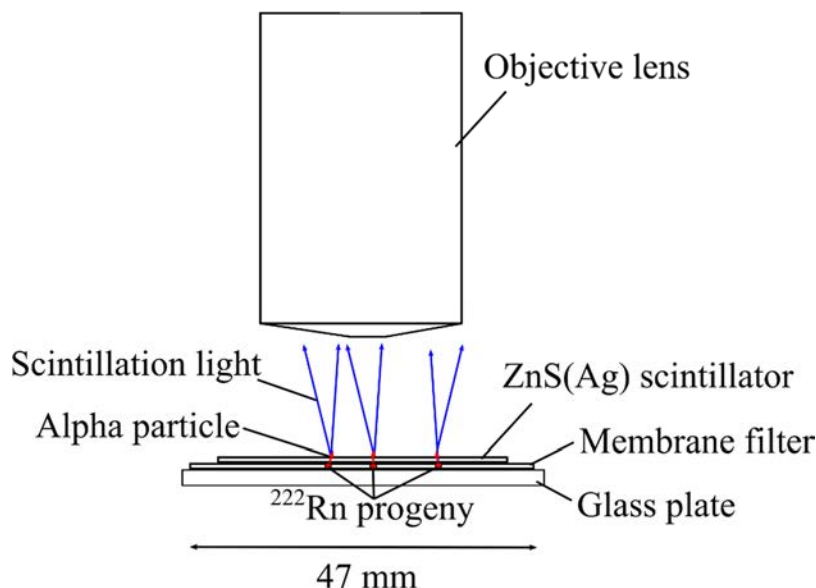


図 3.2.3-19  $^{222}\text{Rn}$  子孫核種測定の概念図  
([14] より許諾を得て転載)

④-4  $\alpha$  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、 $\alpha$  線イメージング装置で測定した 1 つ 1 つの  $\alpha$  線の位置（以下、「 $\alpha$  線スポット」と略す。）を定量的に識別する必要がある。そこで、 $\alpha$  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 3.2.3-1 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。

$$K = \frac{1}{25} \times \begin{bmatrix} 1 & 4 & 6 & 4 & 1 \\ 4 & 16 & 24 & 16 & 4 \\ 6 & 24 & 36 & 24 & 6 \\ 4 & 16 & 24 & 16 & 4 \\ 1 & 4 & 6 & 4 & 1 \end{bmatrix} \quad \text{式 3.2.3-1}$$

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、 $\alpha$  線スポットのエッジ（境界）を検出した。図 3.2.3-20 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  $\alpha$  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。

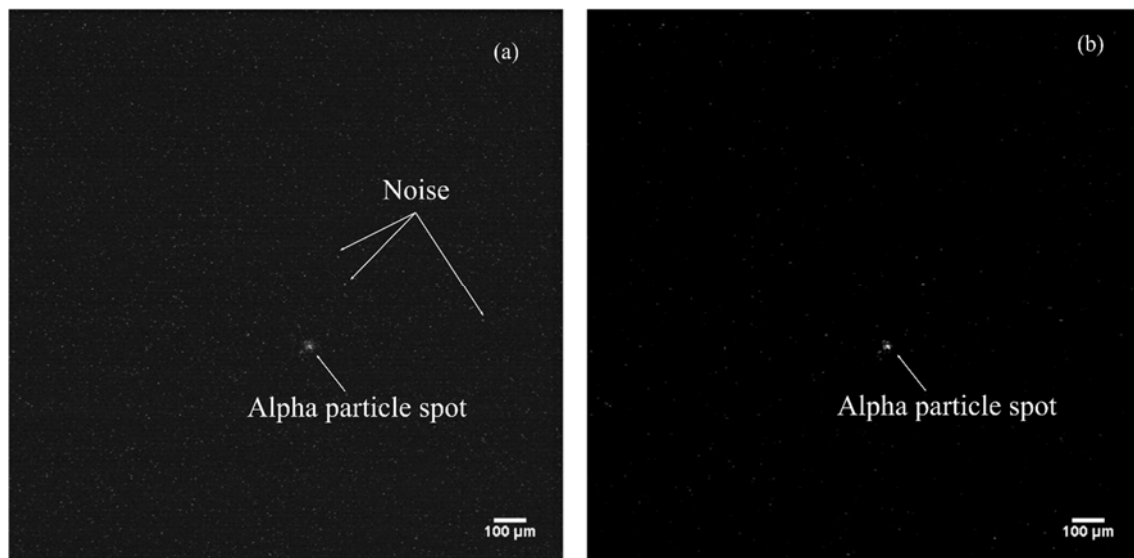


図 3.2.3-20  $\alpha$  線スポットの例

(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。

（[14] より許諾を得て転載）

#### ④-5 $\text{PuO}_2$ 粒子の粒子径分布の評価

$\text{PuO}_2$  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 AMAD の値を評価するために必要になる[15]。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、 $\alpha$  線イメージング装置で測定された  $\alpha$  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  $\text{PuO}_2$  粒子を再現し、検出された計数値を  $\text{PuO}_2$  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 3.2.3-21 にシミュレーションの計算体系を示す。 $\alpha$  線は、 $\text{PuO}_2$  粒子から等方に放出させた。また、 $\text{PuO}_2$  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  $\alpha$  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  $0.5 \sim 10.0 \text{ } \mu\text{m}$  の範囲で変化させて計算を行った。 $\text{PuO}_2$  粒子の密度は  $11.46 \text{ g/cm}^3$  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 3.2.3-2 と式 3.2.3-3 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 68[16] に記載されている。

$$d_{ae} = d_e \times \sqrt{\frac{\rho C(d_e)}{\chi \rho_0 C(d_{ae})}}; \quad \text{式 3.2.3-2}$$

$$C(d) = 1 + \left(\frac{\lambda}{d}\right) \left\{ 2.54 + 0.800 \exp \left[ -0.55 \left( \frac{d}{\lambda} \right) \right] \right\}, \quad \text{式 3.2.3-3}$$

ここで、 $\lambda = 0.0712 \text{ } \mu\text{m}$ 、 $\chi$  と  $\rho$  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。 $\rho_0$  は単位密度 ( $1 \text{ g/cm}^3$ ) である。 $C(d)$  はすべりの補正係数 (カニン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。

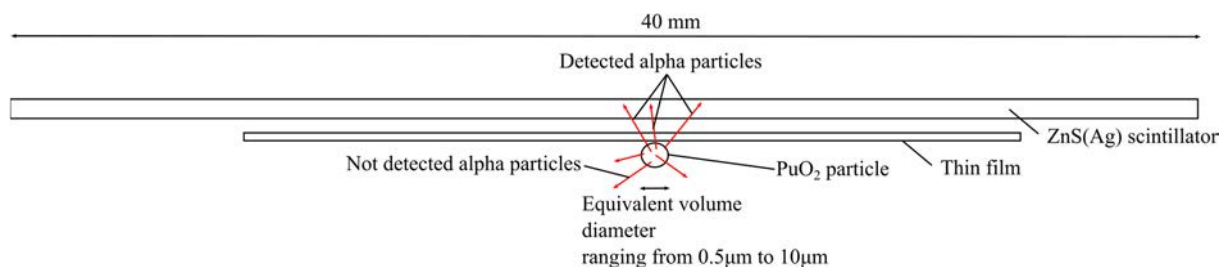


図 3.2.3-21 シミュレーション計算体系  
 $\text{PuO}_2$  粒子の等価粒子径を  $0.5 \sim 10 \text{ } \mu\text{m}$  の範囲で変化させた。  
 ([14] より許諾を得て転載)

#### ④-6 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[16]によると  $1 \text{ } \mu\text{mAMAD}$  または  $5 \text{ } \mu\text{mAMAD}$  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、 $^{238}\text{Pu}$  では実効線量係数 ( $\text{Sv/Bq}$ ) が  $4.3\text{E-}05$  ( $1 \text{ } \mu\text{mAMAD}$ )、 $3.0\text{E-}05$  ( $5 \text{ } \mu\text{mAMAD}$ ) となる[16]。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。

## ④-7 試験結果

(1)  $\beta$  線の影響

図 3.2.3-22(a)は、50 ミリ秒測定で取得した  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$   $\beta$  線源の画像を示す。画像の全領域が  $^{90}\text{Sr}$ - $^{90}\text{Y}$   $\beta$  線源の領域であった。図 3.2.3-20 に示すような  $\alpha$  線のスポットが確認されていない。

図 3.2.3-22(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  $\alpha$  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、3.2.3④-4「 $\alpha$  線スポットの自動識別方法」に示す判別にかけても  $\alpha$  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、 $\beta$  線の影響が無視でき、 $\alpha$  線が明確に区別できることを示している。比較のため、 $\alpha$  線源を同一の時間で測定した画像を図 3.2.3-23 に示す。

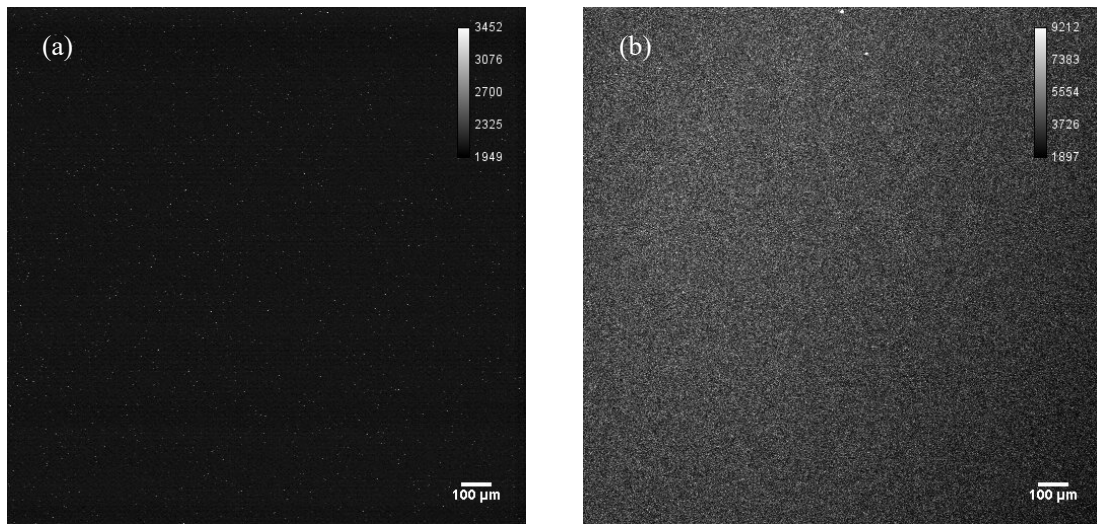


図 3.2.3-22 ノイズとなる  $\beta$  線の撮像評価

(a) 50 ミリ秒測定で取得した  $\beta$  線源の画像、(b) 10 分間積算測定で取得した  $\beta$  線源の画像  
どちらの画像とも、 $\alpha$  線スポットは確認されず、 $\beta$  線と区別できることが分かる。

([14]より許諾を得て転載)

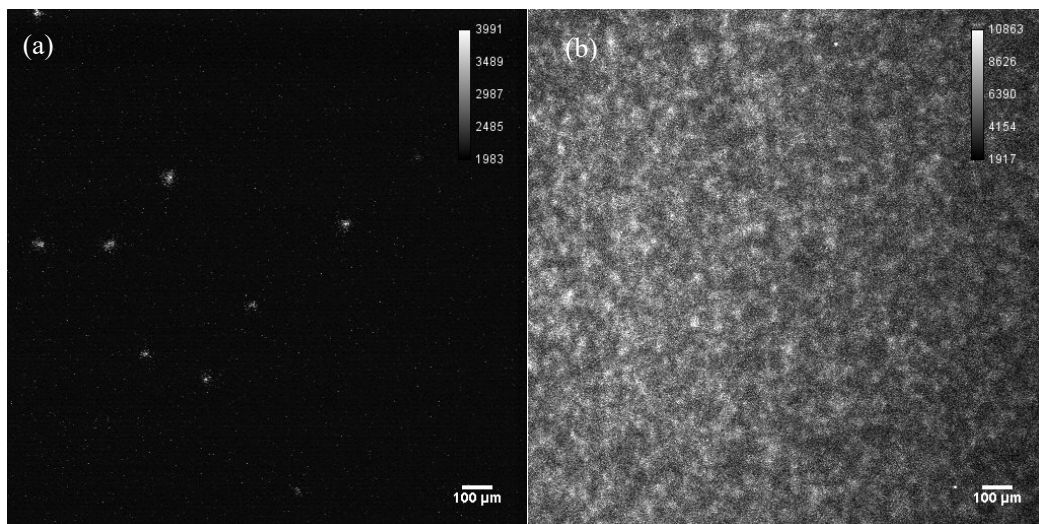


図 3.2.3-23  $\alpha$  線の撮像評価

(a) 50 ミリ秒測定で取得した  $\alpha$  線源の画像、(b) 10 分間積算測定で取得した  $\alpha$  線源の画像  
どちらの画像とも、 $\alpha$  線スポットが確認される。([14]より許諾を得て転載)

(2)  $^{222}\text{Rn}$  子孫核種

図 3.2.3-24 に 30 分測定で取得した  $^{222}\text{Rn}$  子孫核種の画像を示す。 $\alpha$  線が画像全体に分布しており、これは  $^{222}\text{Rn}$  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。 $^{222}\text{Rn}$  子孫核種のうち  $^{218}\text{Po}$  や  $^{214}\text{Po}$  が  $\alpha$  線を放出するが、 $^{218}\text{Po}$  は半減期が短いため、 $^{214}\text{Po}$  の 1 本の  $\alpha$  線が主であると考えられる。 $\text{PuO}_2$  粒子の場合、1 つの粒子から  $\alpha$  線が継続的に放出されるため、令和元年度報告書[6]で示したように、クラスターとして撮像される。従って  $\alpha$  線の分布の違いから、 $\text{PuO}_2$  粒子と  $^{222}\text{Rn}$  子孫核種は識別が可能である。

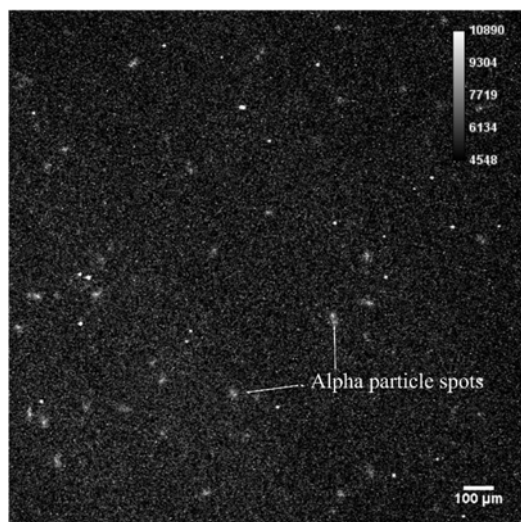


図 3.2.3-24 30 分測定で取得した  $^{222}\text{Rn}$  子孫核種の画像  
 $\alpha$  線が画像全体に分布している。  
 ([14] より許諾を得て転載)

(3)  $\text{PuO}_2$  粒子の粒子径分布の評価

図 3.2.3-25 は、シミュレーションを使用して計算された  $\alpha$  線計数率から  $\text{PuO}_2$  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  $\alpha$  線計数率が  $214.3 \pm 5.2$  cpm であり、 $\text{PuO}_2$  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 3.2.3-2 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  $\text{PuO}_2$  粒子のみの測定であるが、この評価方法を複数の  $\text{PuO}_2$  粒子に対して適用することにより、AMAD が評価できる。

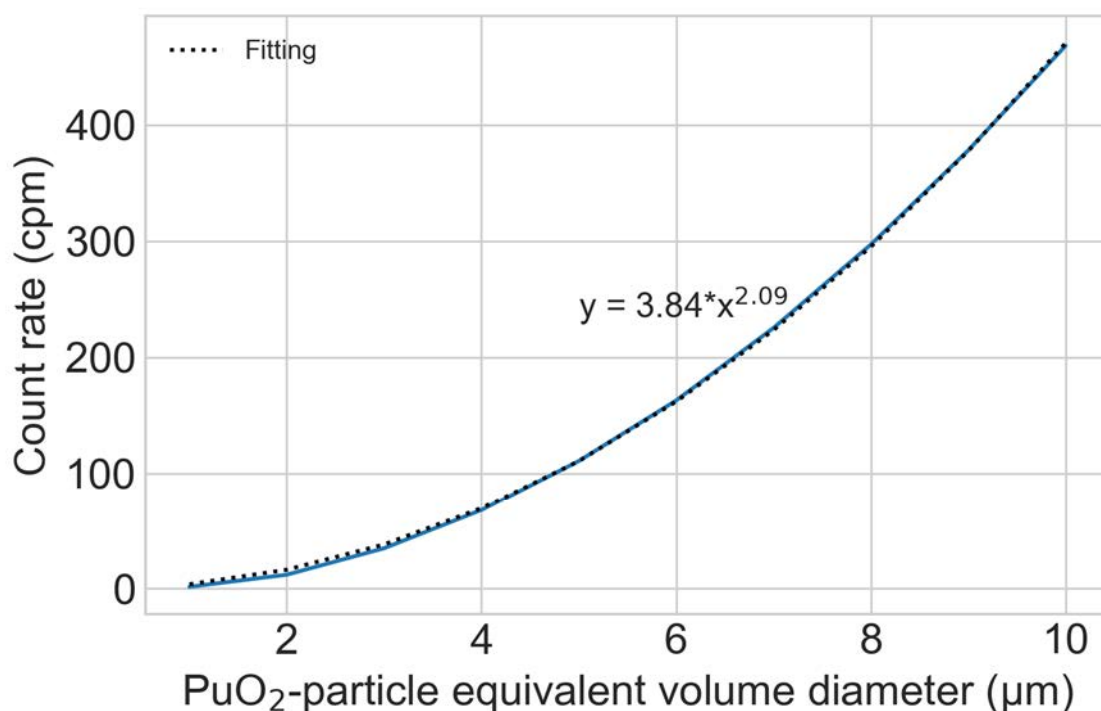


図 3.2.3-25  $\alpha$  線計数率から  $\text{PuO}_2$  粒子の等価粒径への換算曲線  
([14] より許諾を得て転載)

#### (4) 作業者の内部被ばく評価への影響

今回、図 3.2.3-25 に示すように  $d_e$  が 0.5～10  $\mu\text{m}$  までの換算曲線を求めることができた。ここから  $d_{ae}$  を式 3.2.3-2 で評価すると 1.4～25.4  $\mu\text{m}$  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、電離放射線障害防止規則第 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。

#### ④-8 まとめと考察

開発した超高位置分解能  $\alpha$  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  $\alpha$  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)  $\alpha$  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  $\text{PuO}_2$  粒子が高精度に識別できる。(ここでは、 $\text{PuO}_2$  粒子とシンチレータ間の  $\alpha$  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、 $\text{PuO}_2$  粒子自体や試料そのもの(養生のフィルム等)の  $\alpha$  線の自己吸収の影響を含めた換算が可能。
- 4) 光学画像と  $\alpha$  線分布の重ね合わせが可能のため、 $\text{PuO}_2$  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  $d_e$  が内部被ばく評価(実効線量係数)に必要な  $1 \mu\text{mAMAD}$  または  $5 \mu\text{mAMAD}$  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  $\alpha$  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 3.2.3-26)。これらのことから、今回開発した超高位置分解能  $\alpha$  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。

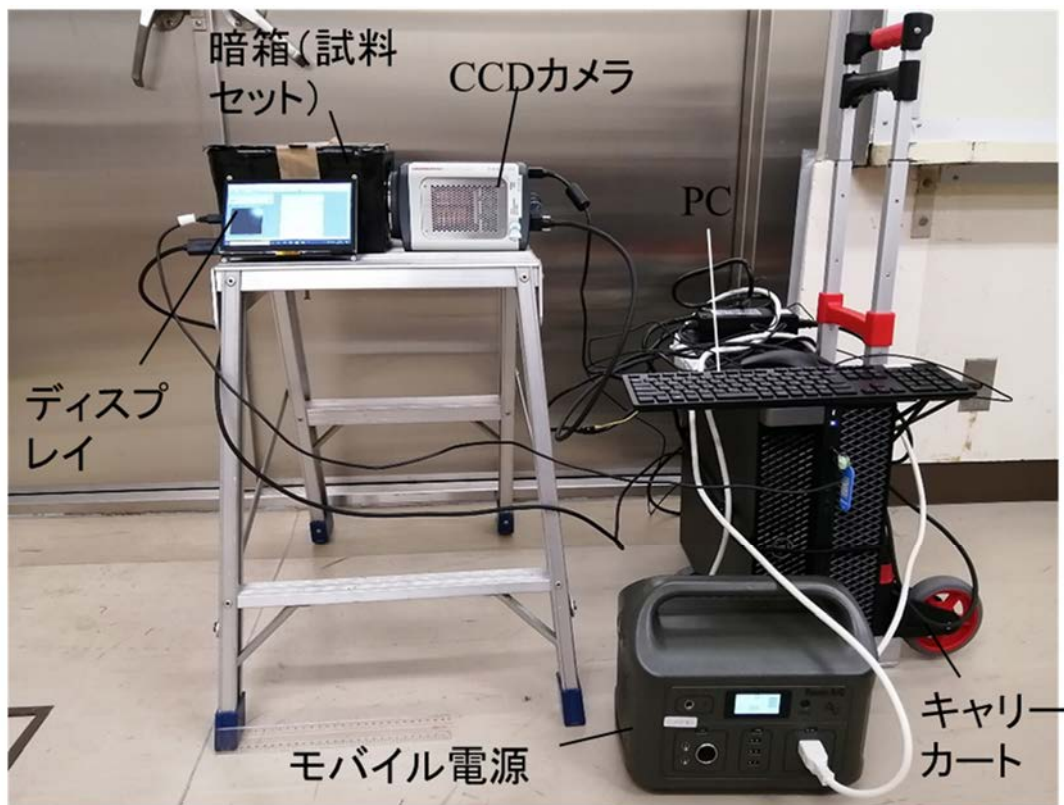


図 3.2.3-26 開発した  $\alpha$  線イメージング装置のモバイル電源での作動確認  
([7]より引用)

### 3.2.4 イメージング検出器の開発

(実験の流れからここに記述する。図番号については3.2.4とする。)

3.2.1 で取り扱った撮像装置（既存機）などは位置分解能が 100  $\mu\text{m}$  程度であり、また別用途で開発したものであるため、本研究では、 $\alpha$  線ダスト用に、図 3.2.4-1 及び図 3.2.4-2 のような装置を開発した。

ここでの改良ポイントとしては、既存機に比べて開口率が 50 %以上高いレンズ（浜松ホトニクス株式会社、M Plan Apo HR 50x）を選択し、CMOS カメラに届く光量を向上させて位置分解能の向上を狙った点が挙げられる。また、3.2.2 で取り扱ったエネルギー測定部分の組み込みも念頭に設計した。

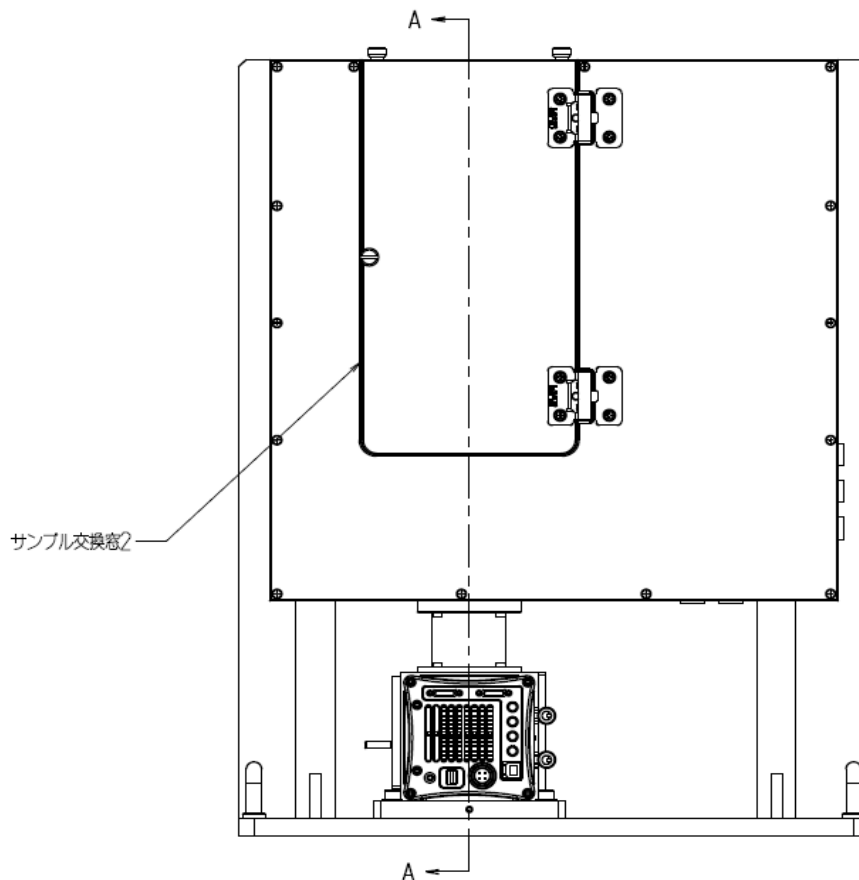


図 3.2.4-1 検出器外観  
([2]より引用)

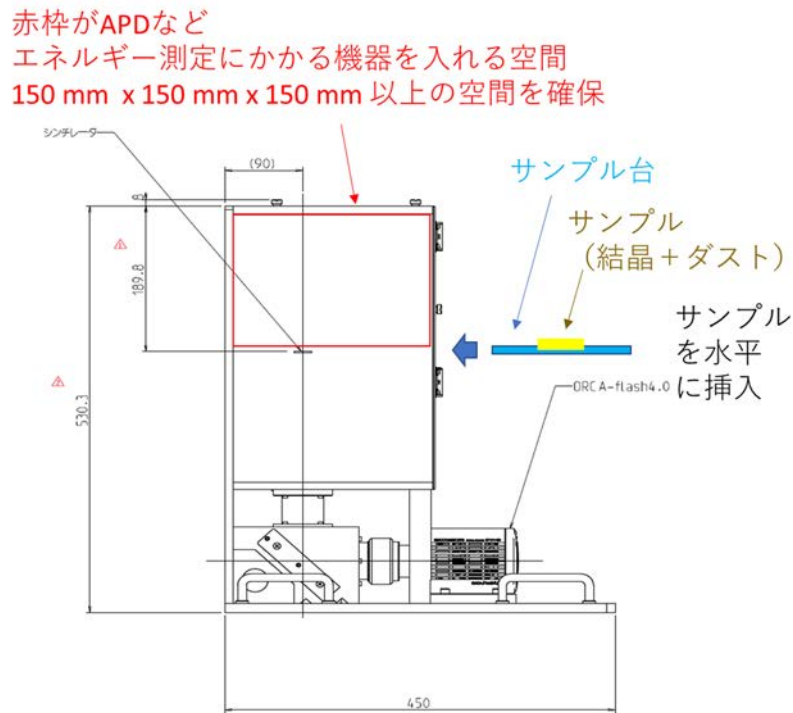


図 3.2.4-2  $\alpha$  デブリ検出器の設計概念図  
([6]より引用)

なお、 $\alpha$  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、 $\alpha$  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 3.2.4-3 には完成した検出器（筐体）を載せる。まず初めに撮像部分の動作確認は行い、駆動系などに問題が無いことを確認した。



図 3.2.4-3  $\alpha$  デブリ検出器の外観  
([6]より引用)

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 3.2.4-4 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、初めにシンチレータを置かず、可視光光源（蛍光灯）を用いて「顕微鏡」として位置分解能を評価した。

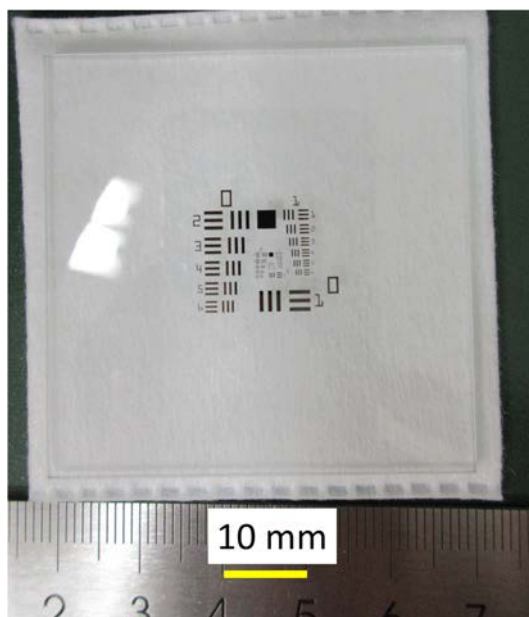


図 3.2.4-4 テストチャートの写真 ([7]より引用)  
中心部分のチャートの最小線幅は  $2.19 \mu\text{m}$  である

その結果、可視光としては、中心部分のチャートの最小線幅は  $2.19\ \mu\text{m}$  を分解することができ、位置分解能はそれ以上に優れていることが示唆された（図 3.2.4-5）。

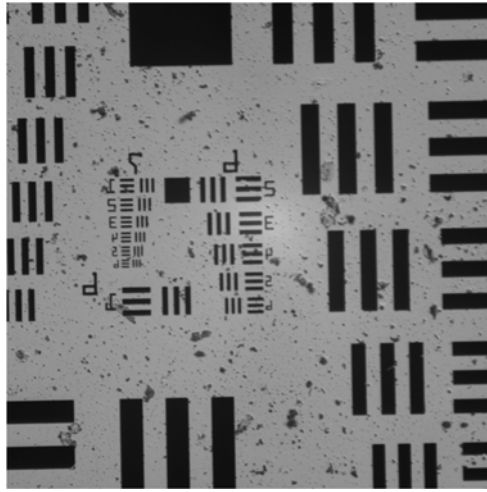


図 3.2.4-5 位置分解能評価の様子  
（[6]より引用）

次に、図 3.2.4-6 のようなセットアップで撮像を行い、 $\alpha$  線照射時の位置分解能を評価した。ただし、 $\alpha$  線発生源として、約  $1\ \text{MBq}$  の  $^{241}\text{Am}$  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（シャドーマージ）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。

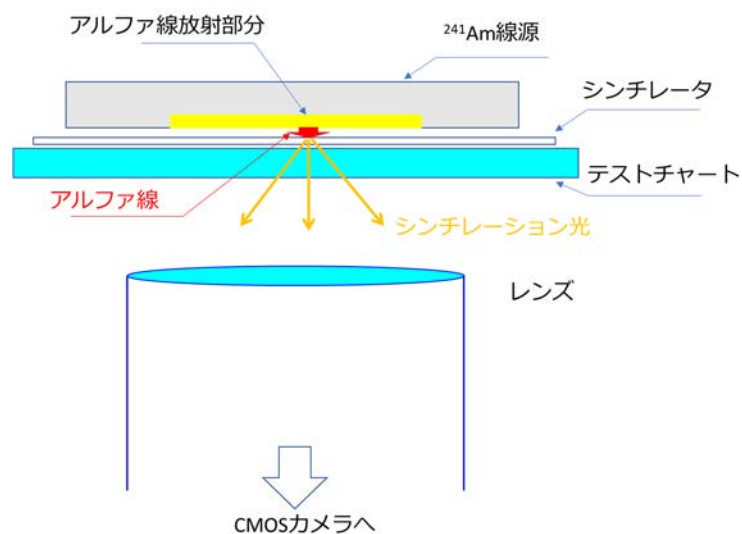


図 3.2.4-6 位置分解能評価時のセットアップの概念図  
（[7]より引用）

その結果、図 3.2.4-7 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。

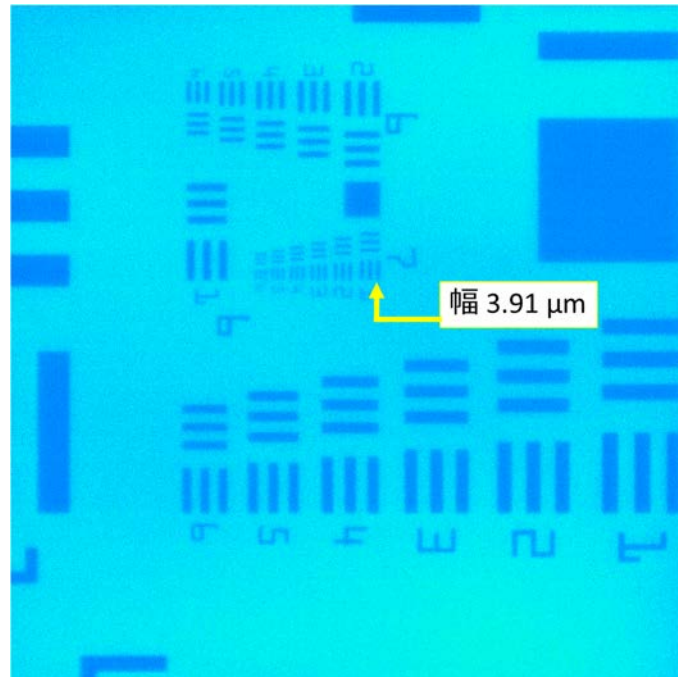


図 3.2.4-7 テストチャートの影絵の結果（[7]より引用）

さらに、図 3.2.4-8 のように、シンチレータ部分を一部  $\alpha$  線放射部分からずらして、撮像をとったときも、図 3.2.4-9 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  $^{241}\text{Am}$  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、 $10\ \mu\text{m}$  以下の位置分解能を持つことが分かった。なお、図 3.2.4-9 の赤点線部分 C の、シンチレータの境界部分で、二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 3.2.4-10 のように、 $^{241}\text{Am}$  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。

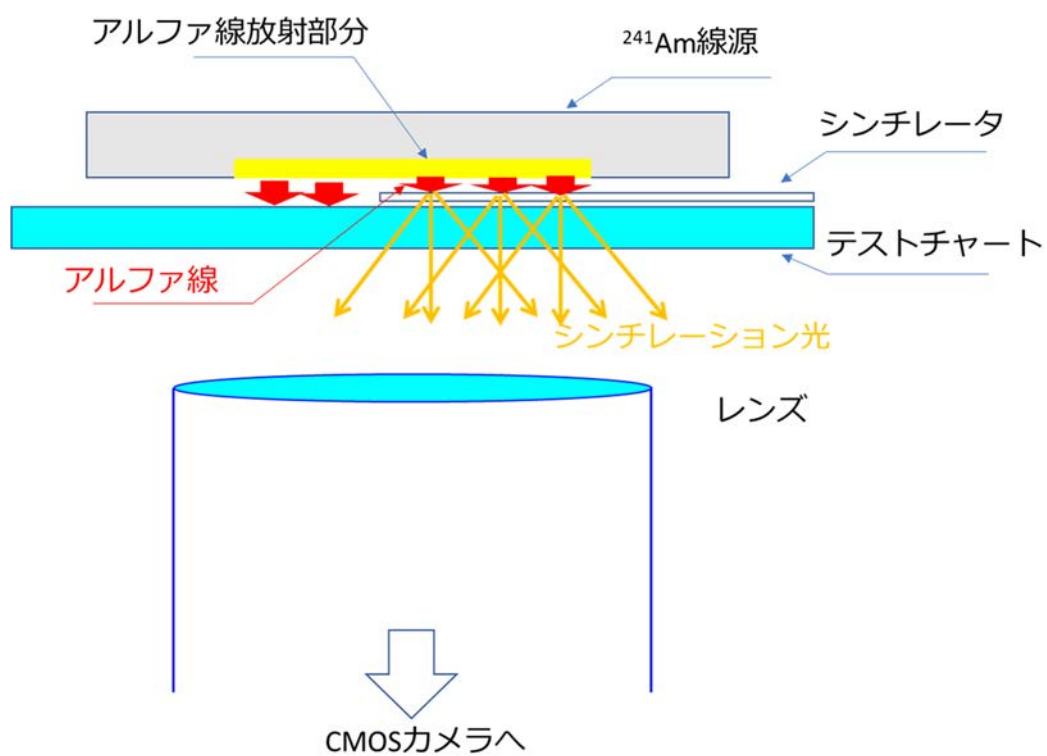


図 3.2.4-8 位置分解能評価時のセットアップ（発光と不発光の境界測定）の概念図  
（[7]より引用）

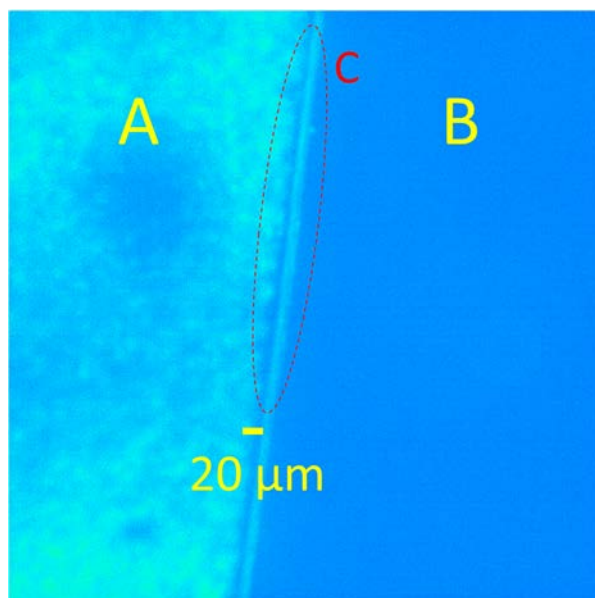


図 3.2.4-9 シンチレータの境界部分の  $\alpha$  線撮像結果  
（[7]より引用）

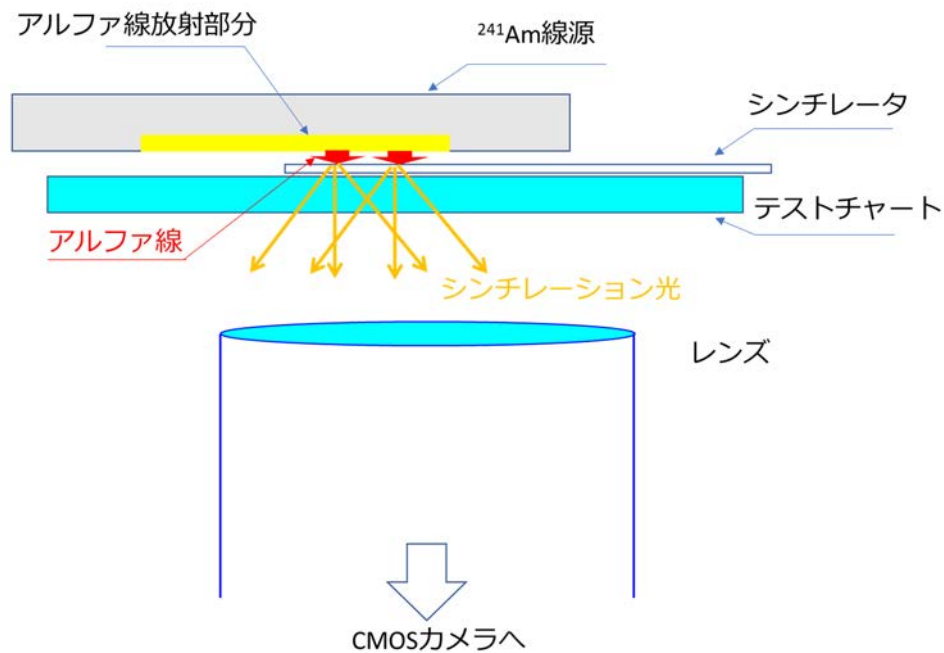


図 3.2.4-10 線源をずらしたときの様子  
([7]より引用)

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 3.2.4-11）。また、図 3.2.4-12 のように、エネルギー検出器も組み込むことができた。これは、前項の 3.2.1～3.2.3 を合わせた集大成である。



図 3.2.4-11 可動式にしたイメージング検出器の写真（JAEA にて）  
（[7] より引用）

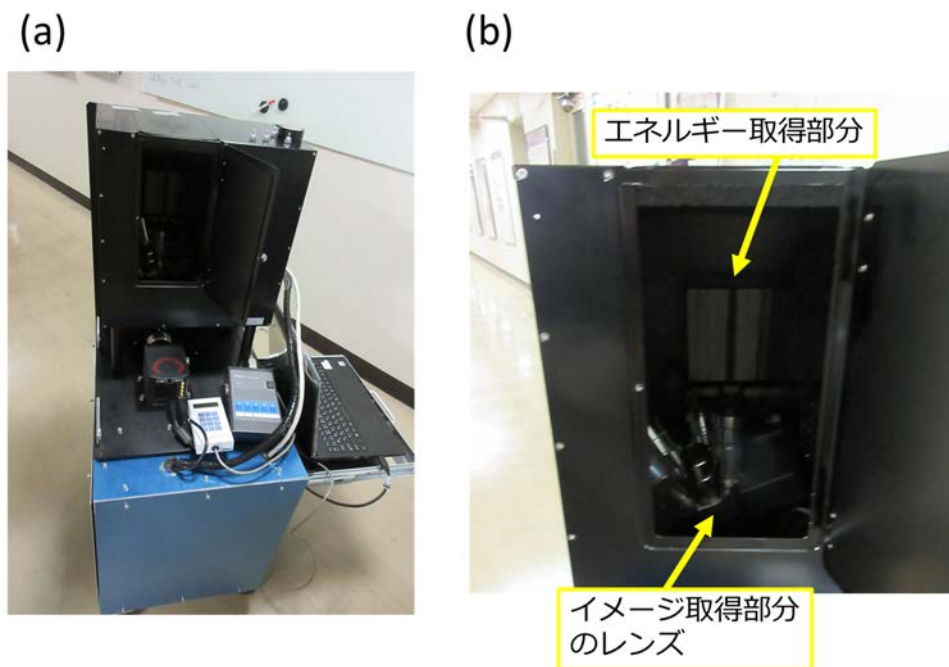


図 3.2.4-12 開発した装置の写真  
(a) 開発した装置の全景、(b) サンプル設置用チャンバー部分の中  
（[7] より引用）

### 3.3 高線量下モニタなどへの展開【令和元年度～令和3年度】

#### 3.3.1 結晶育成

##### ①高線量モニタへの応用

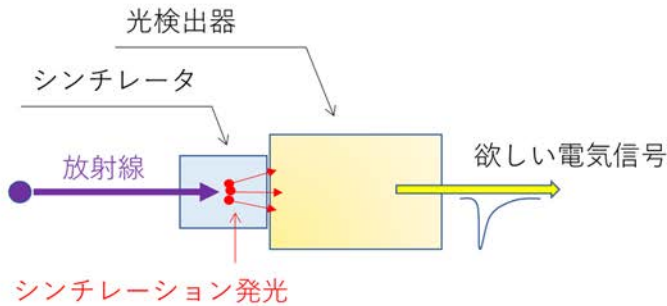
1F 1-3号機では、廃炉手順の1つとして燃料デブリなど高線量放射性“ごみ”の取り出しが、要求されており、これらの取り出しには、はじめに、「どのように“ごみ”が分布するか」を確認する必要がある。しかしながら、炉内の環境は非常に高い空間線量（1 Sv/h 以上）を示すことから、数分以内などの比較的短期間で、その場の線量を知ることができるリアルタイムの線量計、サーベイメータといった放射線計測機器の利用は不可能である。これは、人が立ち入れない以外にも、放射線検出器が動作しないという問題のためである。

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 3.3.1-1③を参照、以下、「分離型」と略す。）。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。

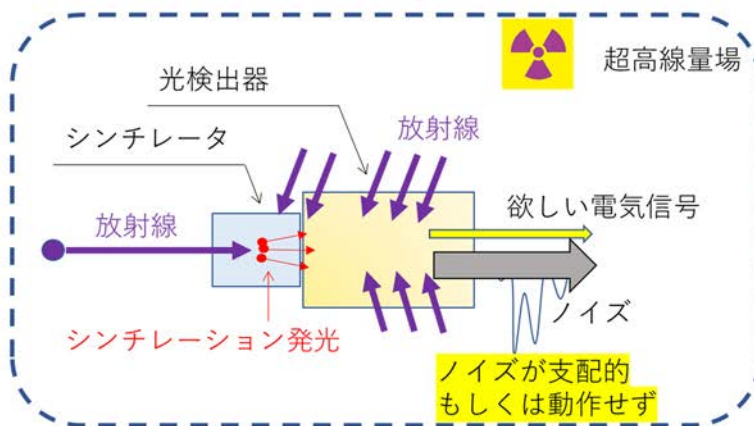
ただし、炉の外側の線量の低いエリアまでシンチレータの光を伝搬させる必要があるため、光ファイバーの長さは 100 m 程度、もしくは、それ以上の長さになる可能性がある。つまり、非常に明るいシンチレータである必要があるが、図 3.3.1-2 のように、既存のシンチレータの発光波長領域である 550 nm 以下では、伝達効率が低いという問題点があった。

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）

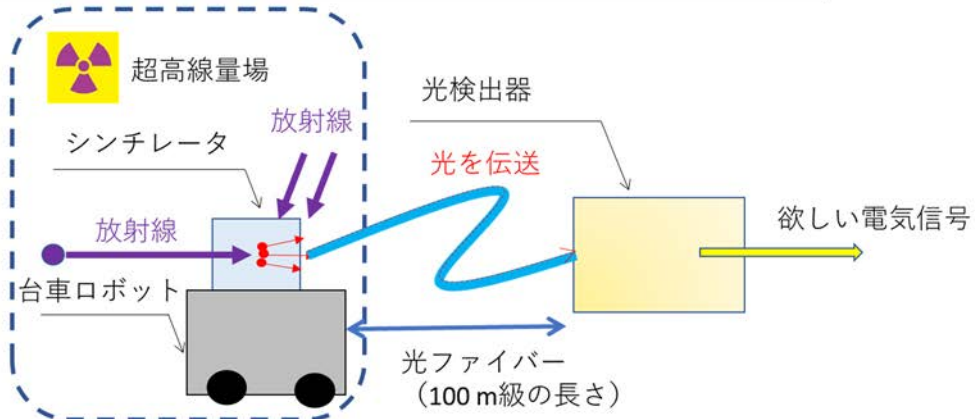


図 3.3.1-1 当該線量モニタの概念図  
（[6]より引用）

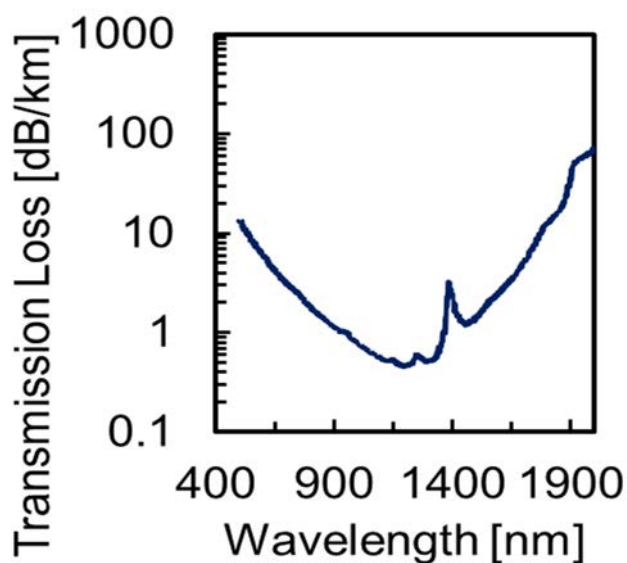


図 3.3.1-2 光ケーブルの伝送損失と波長の関係  
値が低いほど、透過率が良い。[17]をもとに作図（[6]より引用）

## 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 3.3.1-3 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 3.3.1-4 のように  $\gamma$  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。

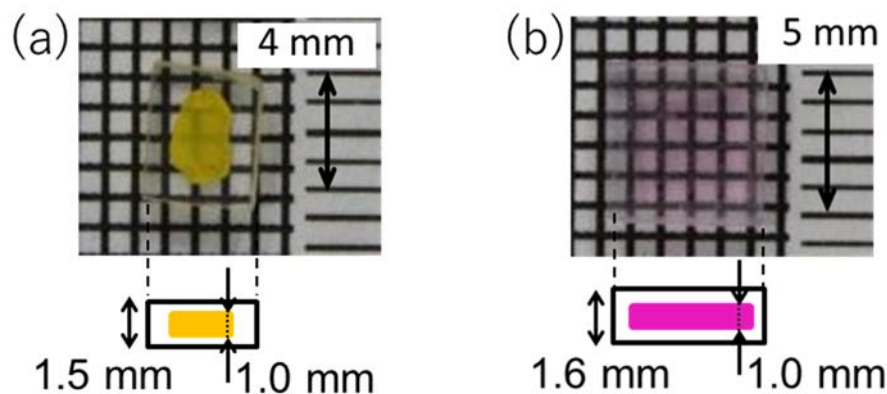


図 3.3.1-3 準備したサンプル（[6]より引用）  
(a)CHI、(b)ルビー

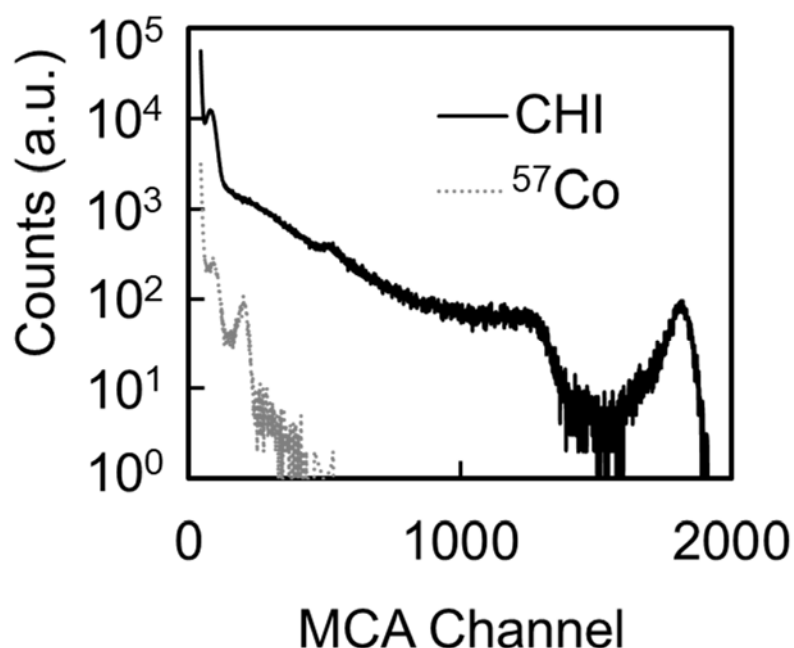


図 3.3.1-4 CHI セメントサンプルの波高値スペクトル  
([6]より引用)

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 3.3.1-3(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 1 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 3.3.1-4 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 3.3.1-3 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 1 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、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。

### 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 ガンマ線照射装置にて、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 3.3.1-5 及び図 3.3.1-6 の通りである。

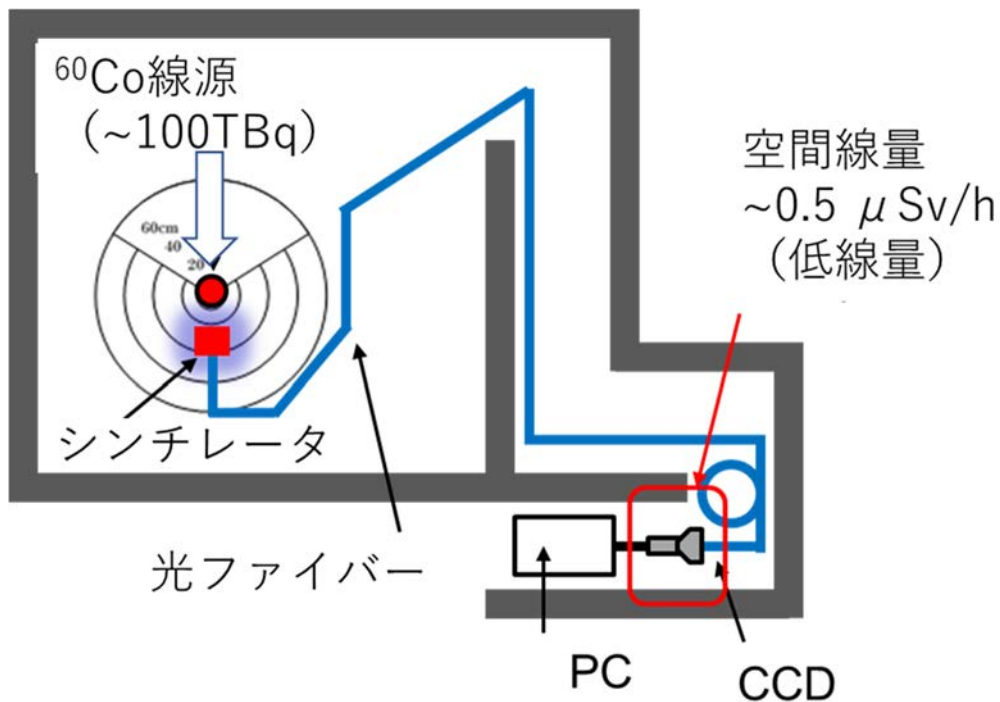


図 3.3. 1-5 京都大学複合原子力科学研究所のコバルト 60 ガンマ線照射装置での  
セットアップ概念図 ([6]より引用)

ここで、シンチレータの光を読み出す光ファイバーには、株式会社フジクラの 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  $\text{SiO}_2$  低 OH タイプと呼ばれるもので、コアの直径は  $600 \pm 30 \mu\text{m}$  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＞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 (Thorlabs、SM1PD1A) を取り付け、信号はソースメータ (Keithley Instruments、2441) 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 (StellarNet、BLACK-Comet XR-SR-TEC) を用いて、光を読み出し、PC にて記録した。

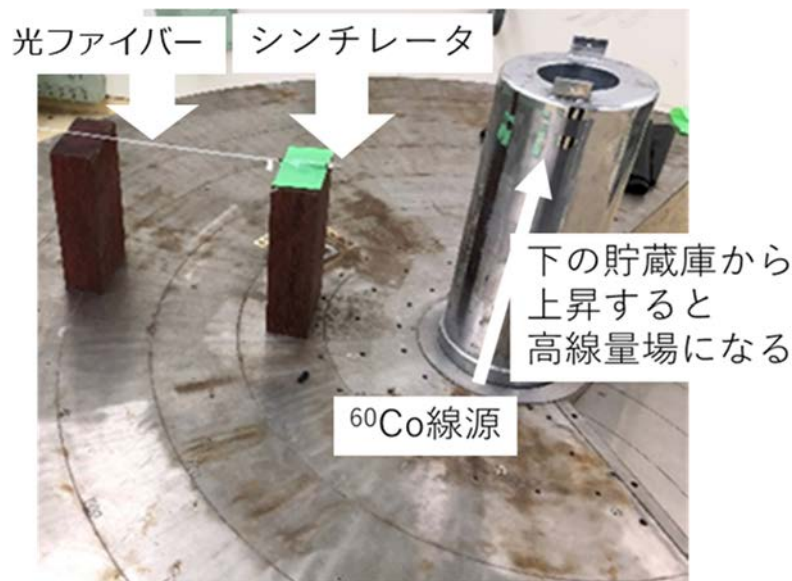


図 3.3.1-6 京都大学複合原子力科学研究所のシンチレータの線源部分への配置の様子  
（[6]より引用）

#### ④ 実証試験の結果

##### <1>Si-PD を用いた単純積分型仕様

図 3.3.1-7 のように、単純積分型仕様では、 $^{60}\text{Co}$  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 3.3.1-8 である。ここで、線量の調整は、あらかじめ測定した空間線量率データを用いて、その校正されたポイントにシンチレータの場所を移動させることで、空間線率（図 3.3.1-8 の横軸）を調整した。

ここで、図 3.3.1-8 の(a)、(b)ともに青線は、そのエラーバーが電流値の 0 点を交差するイベントを表しており、すでに信号が無い可能性もある値となっている。そのため、これら青色のエラーバーがついている点は、上限値（upper limit）を示す点と見なせ、それらの点より高い領域で検出できるとした。そのため、検出限界値として、CHI とルビーそれぞれ $\sim 0.05$ 、および $\sim 0.2$  kSv/h と求めた。以上より、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。

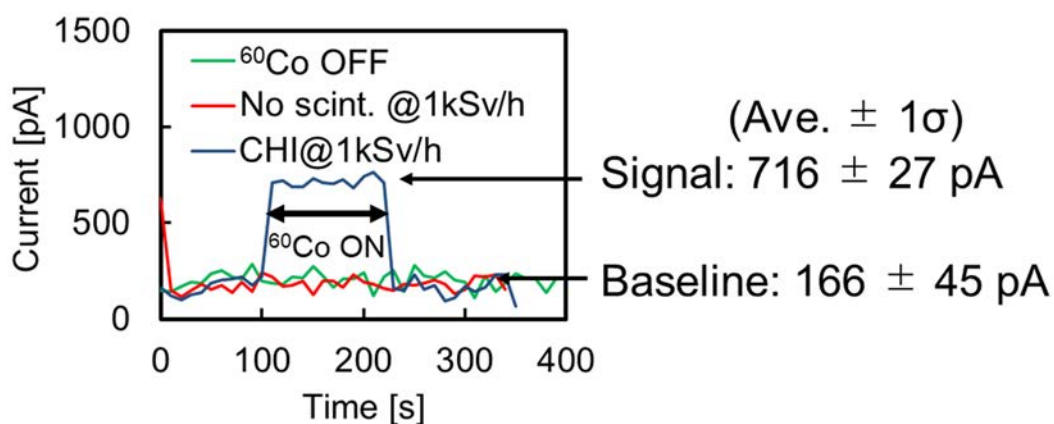


図 3.3.1-7 単純積分型仕様での結果の一例  
([6]より引用)

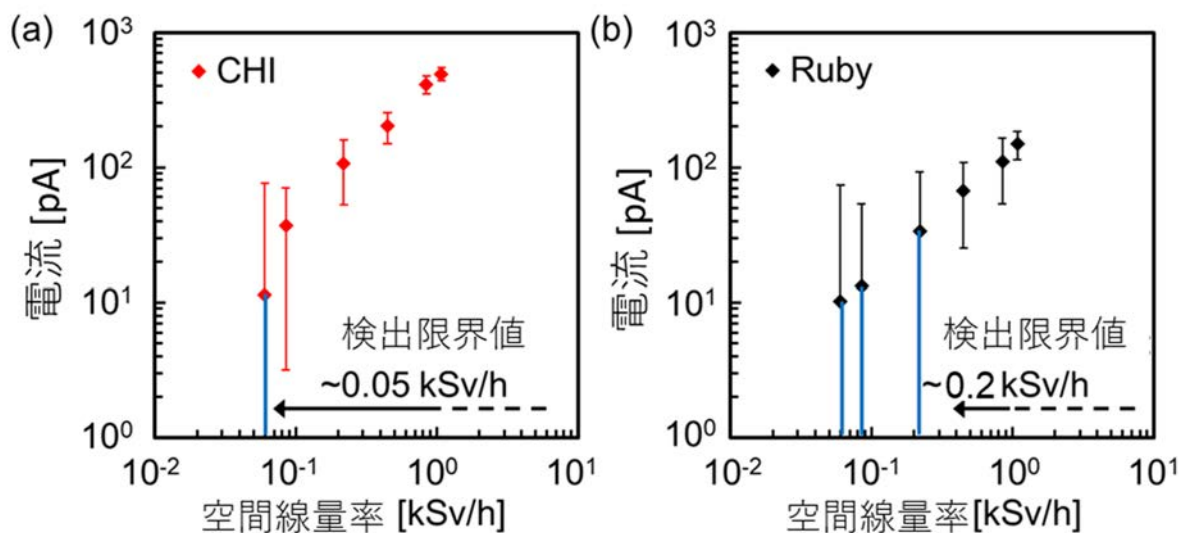


図 3.3.1-8 単純積分型仕様での線量と電流値の関係 ([6]より引用)

(a)CHI、(b)ルビーでの実験結果

#### <2>分光器を用いた分光型仕様

分光型仕様においては、図 3.3.1-9 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 3.3.1-10 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。

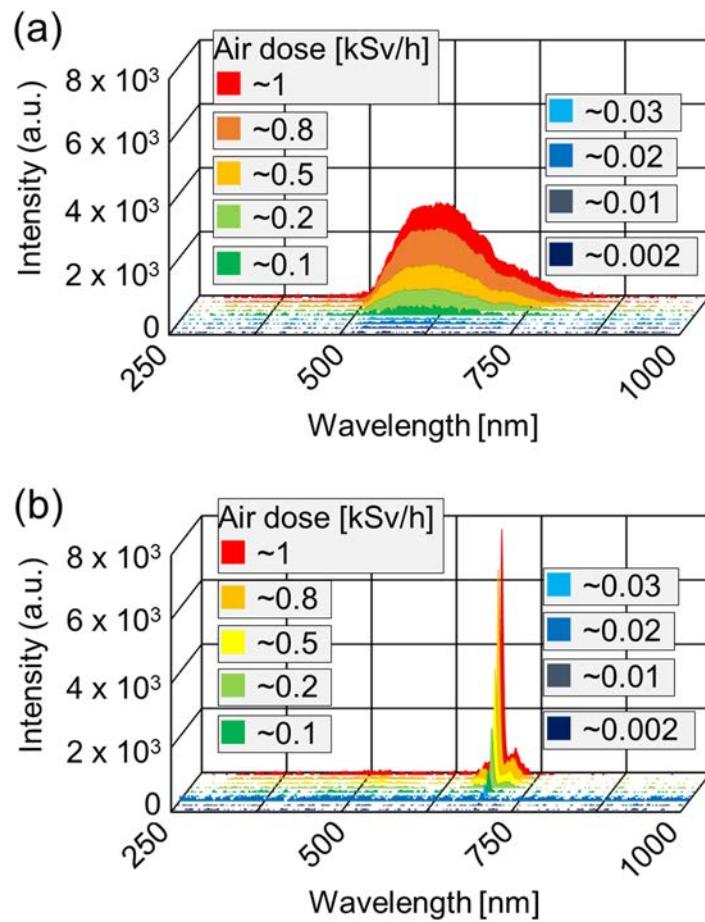


図 3.3.1-9 分光型仕様で得られた発光スペクトル ([6]より引用)  
(a)CHI、(b)ルビーでの実験結果

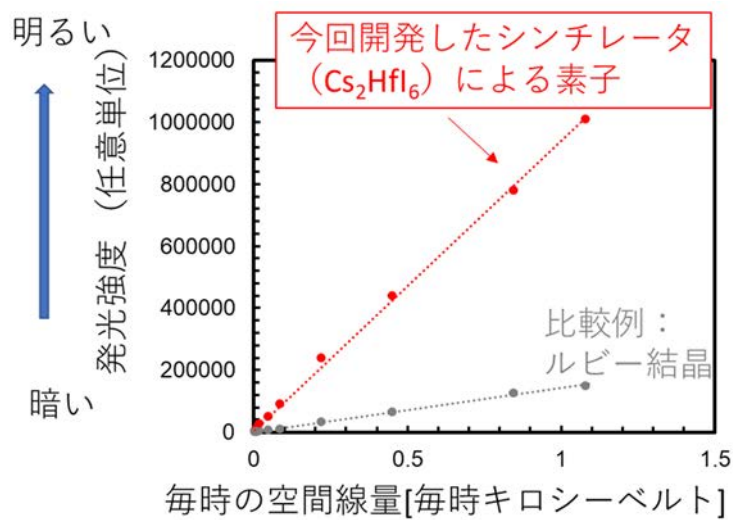


図 3.3.1-10 分光型仕様での線量と電流値の関係 ([6]より引用)

### ⑤ 実証試験の結論

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（約 70 TBq）を用いて、動作を確認することができた。

### ⑥ その他の検証（結晶育成法の開発）

CHI 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。しかし一点、潮解性がある点が、取り扱いの上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、 $\alpha$  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開発を実施した。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  $\mu\text{m}$  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、 $\gamma$  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、 $\gamma$  線が物質に当たり光電吸収という相互作用で、 $\gamma$  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 から 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  $\gamma$  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 CHI などでも開発した。

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 3.3.1-11 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。

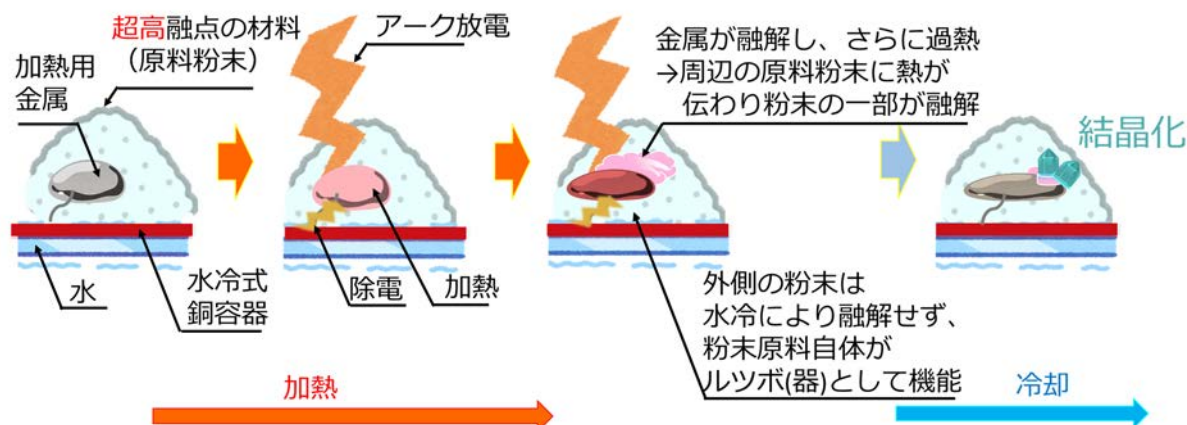


図 3.3.1-11 CH 法の概念図[18]

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  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  結晶（融点 1970 °C 程度）について、検証を進めた。この Ce 添加  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  結晶はレーザーなどにも使われる  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  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高比較的事、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 3.3.1-12）、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 3.3.1-12 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[19]。また、プレスリリースもできた[18]。

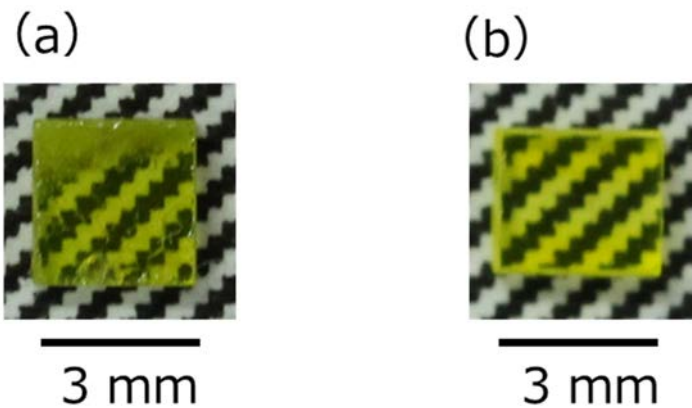


図 3.3.1-12 Ce 添加  $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$  結晶の写真  
CH 法(a)とマイクロ引き下げ法(b)で育成  
([19]より引用、加工、許諾を得て転載)

その次に、CH 法を用いて、融点  $2418^\circ\text{C}$  の Yb 添加  $\text{La}_2\text{Hf}_2\text{O}_7$  (Yb:LHO) などの開発を行った。図 3.3.1-13 は育成したのちに、ファイバー読み出しモニタ用に研磨したもので、ファイバー読み出しモニタの比較例として、Cr 添加  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  (ルビー) 結晶についても同様に準備した。

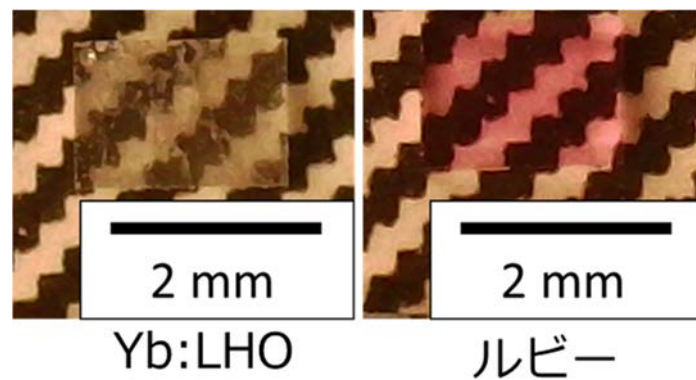


図 3.3.1-13 CH 法で育成した Yb:LHO 結晶（研磨後）の写真と  
比較用のルビーの写真[7]

これらの、光学特性、及び、コバルト 60 施設での照射実験の結果などは、参考文献[7]を参照されたいが、また光ファイバー自身からの発光との波長による切り分け能力は CHI よりも優れていた。ただし、発光量自体は、CHI よりも低く、総合的にみれば、潮解性を気にしない場合には、CHI が第一候補であることが分かった。

### 3.3.2 現場適用に向けた詳細検討

#### ① 素材の検討

これまでの結果から、CHI が第一候補として挙げられ、当該材料を用いた 1F への現場適用に向けた検討を行うに至った。図 3.3.1-10 から分かるように、これまでの試験（令和 2 年度）では測定できる上限は kGy/h 以上で、これは京都大学複合原子力科学研究所での設備で達成できる線量率に律速しており、それ以上の現場でも計測できることが分かっていた。一方で、下限線量率は 10 Gy/h 弱相当であったが、現場適用では、もう一桁低い線量率でも計測できると都合が良いことが分かった。

この計測できる線量率のダイナミックレンジを広げること、言い換えると感度を上げるために、結晶成長の最適化による透過率の向上と、それに伴う発光量の向上をめざした研究を進めた。詳細は割愛するが、育成条件などの最適化を行うことで最大 1.4 倍程度の発光量の向上に成功した。

また、生じたシンチレーション発光の消光（ロス）を抑え、効率的に分光器に伝達させるため、光ファイバーのアクセサリ部品についての検討と、最適化も実施した（図 3.3.1-14）。

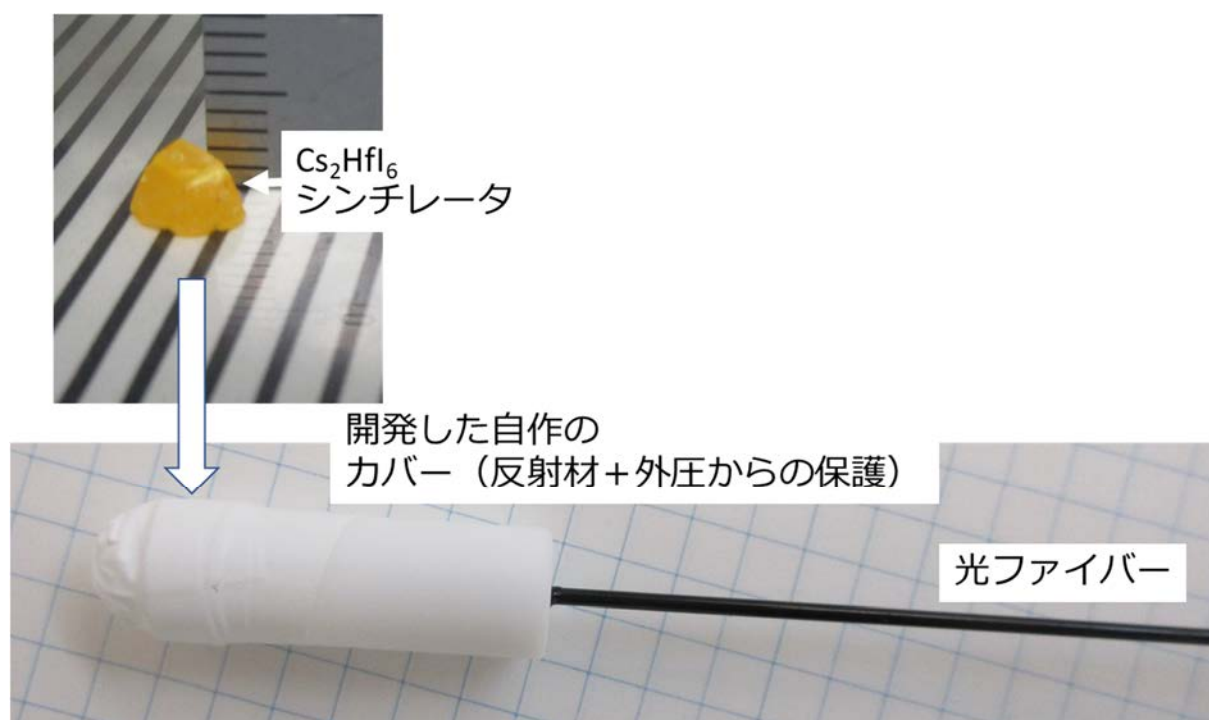


図 3.3.1-14 開発した光ファイバーのアクセサリ部品などの写真

#### ② 線量校正・モックアップ試験・現場適用

以上の改良を加えた上で、前節 3.2 の＜2＞分光器を用いた分光型仕様を踏襲して線量校正を行った。すなわち、CCD 分光器を用いて、図 3.3.1-15(a) のように、得られた発光スペクトルのピーク値から 10 %までの範囲について積分した値を信号値として計算した。その結果、例えば図 3.3.1-15(b) のような校正曲線を得ることができ、当時の空間線量の校正の都合上、1 Gy/h

(Sv/h) 程度に相当する値までしか校正できなかったが、外伸してバックグラウンドレベルと比較すると、300～500 mGy/h 程度までは測定可能であると示唆された。

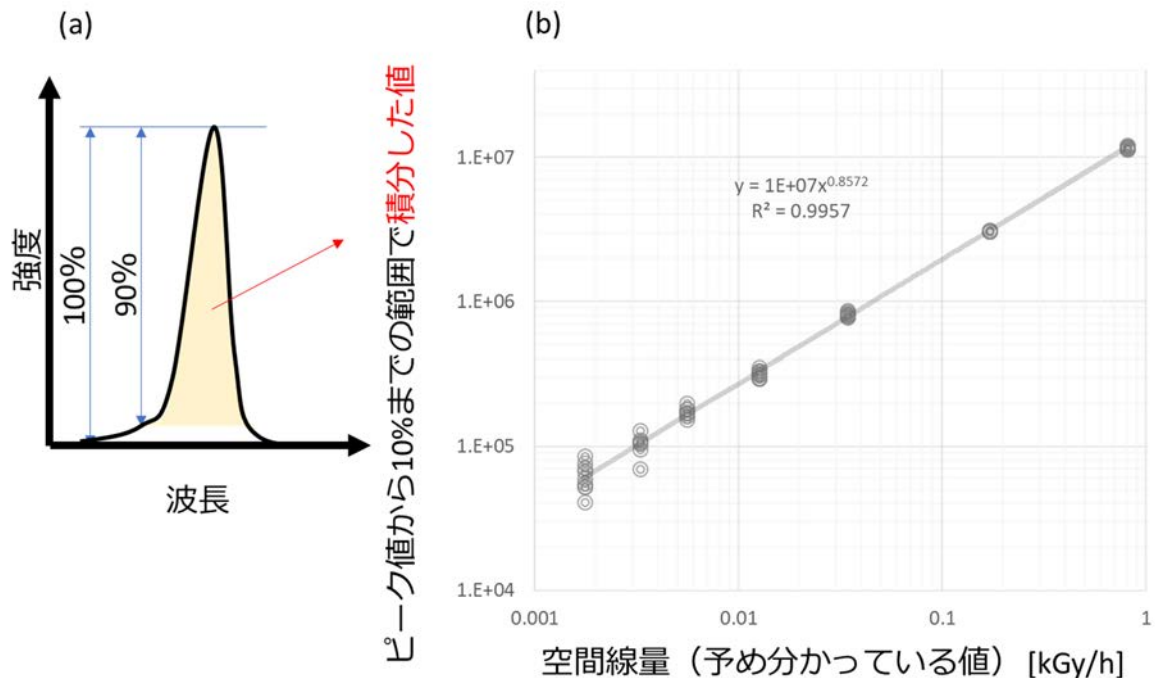


図 3.3.1-15 校正曲線を求めるための積分範囲を示した発光波長スペクトルの概念図(a)と校正曲線(b)

なお、この準備段階では、長さ 20 m の光ファイバーのほかにも、100 m 長のファイバーを使って、CCD 分光器で発光を観測するなど、1F への応用を見据えた対応を進めていた。また、曲げ半径の関係から、これまで利用していたコア径が 600  $\mu\text{m}$  の光ファイバー以外にも、400 及び 200  $\mu\text{m}$  の曲げ半径が小さいファイバーでのテストも実施し、いずれのファイバーでも発光を観測し、かつ、測定可能な線量率の下限値の見積もりを行うことができた。

現場適用に当たっては、CCD 分光器から先の読み出しシステム、及び、制御システムの構築も必要であった。これは、1F という特殊な環境でデータを安全な場所まで伝送し読み出す必要と、現場の作業員の方が操作できるという点が必要だからである。

例えば、CCD 分光器から先について、PC での読み出しや制御を遠隔で行う必要がある場合に備えて、PC と CCD 分光器との間の通信系ケーブルの選定を、図 3.3.1-16 のような構成を含めていくつかの案について試験を行った。そして、信頼性のある読み出し方などについての検証を予め行い、現場適用に向けた準備を進めた。

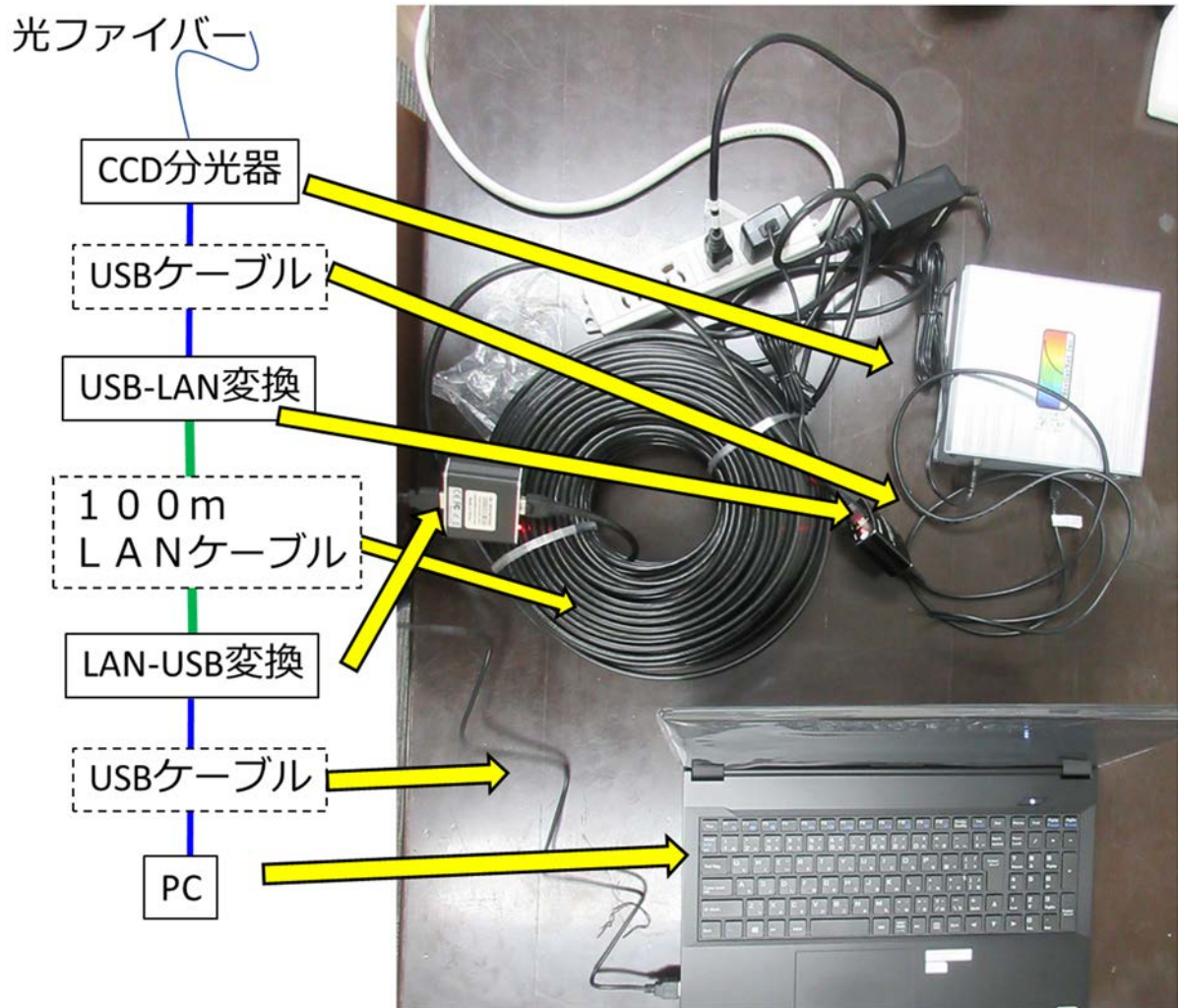


図 3.3.1-16 通信系ケーブルの最適化作業の様子（一例）

以上の作業を行ったところ、実際に 1F の現場で利用していただけるという話が来たため、モックアップ試験などを、廃炉環境国際共同研究センター（以下、「CLADS」と略す。）や東京電力及び協力会社など多くの方のご協力のもとに実施した。そして、実際の現場での適用を頂くことができた[20][21]。

### 3.3.3 現場利用を見据えた革新的な検出器の研究開発

実際の現場適用では、無事に計測システムを動作させて、値を算出することができたが、いくつかの課題も見えてきた。特に、求められている線量率のダイナミックレンジを、より広範囲にする必要があることが、実際の現場での結果から分かってきた。

そのために、分光器の高感度化を進めており、コア径 600  $\mu\text{m}$  の光ファイバーで、100 mGy/h 程度まで見えるようになってきた。

また、＜1＞Si-PD を用いた単純積分型仕様、を改良し、＜3＞光電子増倍管を用いた単純積分型仕様＋光学フィルタの導入、という 3 番目の方法についても実証試験を行った（図 3.3.1-17）。光電子増倍管自体には波長分別能力は無いものの、本仕様では、1 光子ごとにカウントが可能なほど高感度である光電子増倍管に、例えば 690 nm よりも長波長の光子のみを透過させるような光学フィルタを置くことで、ノイズとなる短波長側の発光を光電子増倍管の前で遮断して、信号と見なせる長波長の光子のみを読み出すものである。これにより、コア径 600  $\mu\text{m}$  の光ファイバーで、10 mGy/h 程度までのレンジで線量率を計測できるシステムが整いつつある。

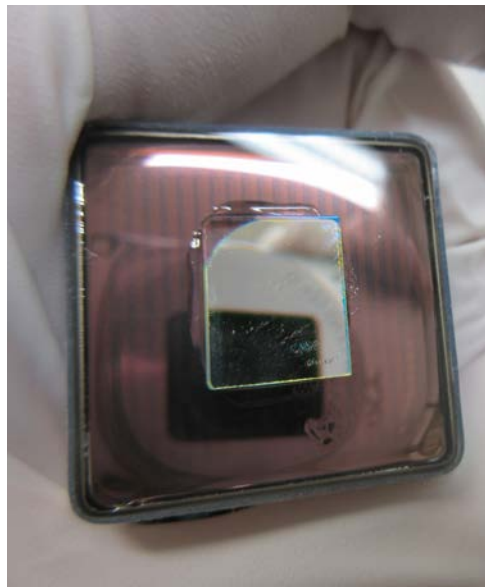


図 3.3.1-17 光電子増倍管と光学フィルタをマウントした写真

実際に図 3.3.1-18 のように、10 mGy/h 程度でも信号を確認した。一方で、1 kGy/h 程度でも信号を得ることができた。

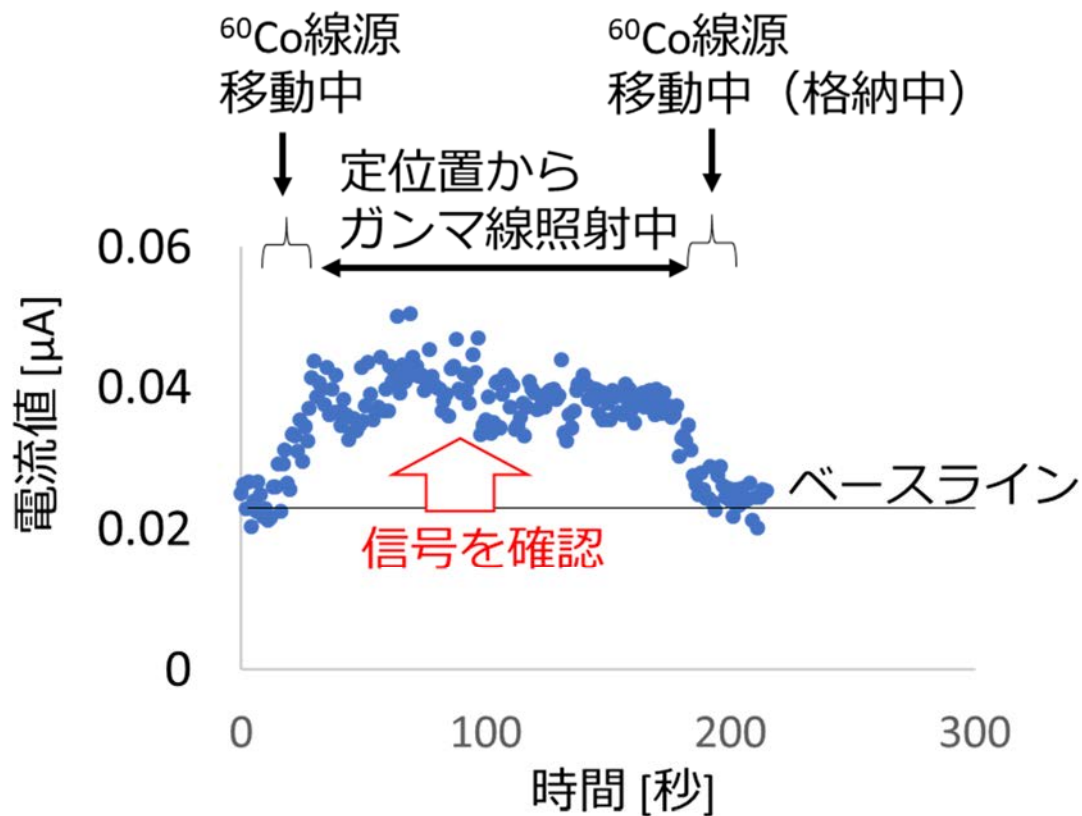


図 3.3.1-18 光電子増倍管を用いた単純積分型仕様+光学フィルタでの信号

以上のような、改良を加えることで、1F で適用できる範囲・状況をより広くすることができた。また、現場適用が決まってから実際に適用するまでのスキームについても確立でき、現場サイドの要望が出た場合に、比較的迅速に対応可能な体制になりつつある。

今後は、さらなる感度の向上、ノイズの抑制などの研究開発と合わせて、このスキーム全体を含めた産業界への技術移転も推し進めていきたい。

### 3.4 研究推進

本研究を推進するにあたり、これまでに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のみでは知りえない情報や設備等の提供をいただいた。

また、本研究を通じて下記の発表を行うことができ、当時在籍した博士学生 2 名ともに、2022 年 4 月現在では、大学の助教ポストについているなど、若手の育成も行うことができた。

#### 研究業績一覧

##### ①論文（査読付き）

1. S. Kodama, S. Kurosawa, M. Ohno, A. Yamaji, M. Yoshino, J. Pejchal, R. Král, Y. Ohashi, K. Kamada, Y. Yokota, M. Nikl, A. Yoshikawa  
Development of a Novel Red-emitting Cesium Hafnium Iodide Scintillator Radiation Measurements 124, pp.54-58 (2019).
2. S. Kodama, S. Kurosawa, M. Ohno, Y. Morishita, H. Usami, M. Hayashi, M. Sasano, T. Azuma, H. Tanaka, V. Kochurikhin, A. Yamaji, M. Yoshino, S. Toyoda, H. Sato, Y. Ohashi, K. Kamada, Y. Yokota, A. Yoshikawa, T. Torii  
Fiber-read Radiation Monitoring System Using an Optical Fiber and Red-emitting Scintillator for Ultra-high-dose Conditions  
Applied Physics Express 13(4), p.047002 (2020).
3. S. Kodama, S. Kurosawa, Y. Morishita, H. Usami, T. Torii, M. Hayashi, M. Sasano, T. Azuma, H. Tanaka, V. Kochurikhin, J. Pejchal, R. Král, M. Yoshino, A. Yamaji, S. Toyoda, H. Sato, Y. Ohashi, Y. Yokota, K. Kamada, M. Nikl, A. Yoshikawa  
Growth and Scintillation Properties of a New Red-emitting Scintillator  $\text{Rb}_2\text{HfI}_6$  for the Fiber-reading Radiation Monitor  
IEEE Transactions on Nuclear Science 67(6), pp.1055-1062 (2022).
4. S. Kodama, S. Kurosawa, K. Fujii, T. Murakami, M. Yashima, J. Pejchal, R. Král, M. Nikl, A. Yamaji, M. Yoshino, S. Toyoda, H. Sato, Y. Ohashi, K. Kamada, Y. Yokota, A. Yoshikawa  
Single-crystal Growth, Structure and Luminescence Properties of  $\text{Cs}_2\text{HfCl}_3\text{Br}_3$   
Optical Materials 106, p.109942 (2020).
5. Y. Kurashima, S. Kurosawa, R. Murakami, A. Yamaji, S. Ishikawa, J. Pejchal, K. Kamada, M. Yoshino, S. Toyoda, H. Sato, Y. Yokota, Y. Ohashi, A. Yoshikawa  
Novel Method of Search for Transparent Optical Materials with Extremely High Melting Point  
Crystal Growth & Design 21(1), pp.572-578 (2020).

6. Y. Morishita, S. Kurosawa, A. Yamaji, M. Hayashi, M. Sasano, T. Makita, and T. Azuma  
Plutonium Dioxide Particle Imaging Using a High-resolution Alpha Imager for  
Radiation Protection  
Scientific Reports 11, 5948 (2021).

## ②国際学会発表（招待）

7. S. 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.
8. S. Kurosawa, Y. Kurashima, A. Yamaji, S. Kodama, M. Yoshino, S. Toyoda, H. Sato, Y.  
Yokota, K. Kamada, Y. Ohashi, A. 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.

## ③国際学会発表（一般講演：口頭）

9. S. Kodama, S. Kurosawa, J. Pejchal, R. Král, M. Yoshino, A. Yamaji, Y. Ohashi, K.  
Kamada, Y. Yokota, M. Nikl, A. Yoshikawa  
Development of Red-orange-emitting Halide Scintillator for Single Photon Counting,  
10th International Conference on Luminescent Detectors and Transformers of Ionizing  
Radiation, Prague, Czech Republic  
2018年9月11日.
10. S. Kurosawa, S. Kodama, T. Horiai, A. Yamaji, R. Murakami, Y. Shoji, M. Yoshino, Y.  
Ohashi, K. Kamada, Y. Yokota, A. 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.
11. S. Kurosawa, A. Yamaji, S. Kodama, S. Yamato, Y. Kurashima, K. Kamada, M. Yoshino,  
S. Toyoda, H. Sato, Y. Yokota, Y. Ohashi, A. 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06日.

12. 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.
  
13. Y. Kurashima, S. Kurosawa, R. Murakami, A. Yamaji, K. Kamada, M. Yoshino, S. Toyoda, H. Sato, Y. Yokota, Y. Ohashi, T. Hanada, A. Yoshikawa  
Synthesis of Transparent  $\text{CaHfO}_3$  Crystals by the CH Method and its Optical Properties  
2020 International Conference on Solid State Devices and Materials (52nd)  
オンライン、2020 年 9 月 30 日.
  
14. S. Kurosawa, H. Sone, H. Ujiie, Y. Kurashima, A. Yamaji, K. Kamada, M. Yoshino, S. Toyoda, H. Sato, Y. Yokota, Y. Ohashi, A. Yoshikawa  
Evaluation of Defect Sites for  $\text{Gd}_3(\text{Ga}, \text{Al})_{5012}$  Based Transparent Ceramics Prepared by the Spark Plasma Sintering Process  
20th International Conference on Defects in Insulating Materials (ICDIM2020)  
オンライン、2020 年 11 月 23 日－27 日発表（オンライン上でビデオ公開）.
  
15. C. Fujiwara, S. Kodama, S. Kurosawa, A. Yamaji, Y. Ohashi, K. Kamada, H. Sato, Y. Yokota, S. Toyoda, M. Yoshino, T. Hanada, A. Yoshikawa  
Scintillation Properties for  $\text{Cs}_2\text{HfBr}_6$ -based Crystals  
Virtual 2021 IEEE Nuclear Science Symposium And Medical Imaging Conference  
オンライン、2021 年 10 月 20 日.

#### ④国際学会発表（一般講演：ポスター）

16. S. Kodama, S. Kurosawa, M. Ohno, Ai Makabe, Y. Morishita, H. Usami, M. Hayashi, H. Tanaka, V. Kochurikhin, A. Yamaji, M. Yoshino, H. Sato, Y. Ohashi, K. Kamada, Y. Yokota, A. 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.
  
17. S. Kodama, S. Kurosawa, M. Ohno, A. Yamaji, M. Yoshino, H. Sato, Y. Ohashi, K. Kamada, Y. Yokota, A. Yoshikawa  
Synthesis and Optical Properties of Red-emitting  $\text{A}_2\text{MI}_6$  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.

18. S. Kurosawa, A. Yamaji, C. Fujiwara, S. Ishizawa, A. Yoshikawa  
Scintillation Properties for Ce-doped Garnet-Type Crystals with Longer-Wave-Emitting  
virtual 2021 IEEE Nuclear Science Symposium And Medical Imaging Conference  
オンライン、2021 年 10 月 21 日.

**⑤国内学会発表（招待講演）**

19. 黒澤 俊介  
超高線量場における放射線計測の挑戦 -素子材料とシステム開発-  
第 13 回放射線計測フォーラム福島  
オンライン・東京（ハイブリッド開催）  
2020 年 12 月 11 日.

20. 黒澤 俊介  
革新的無機シンチレータの開発とアイソトープ検出への応用  
第 58 回アイソトープ・放射線研究発表会  
オンライン  
2021 年 7 月 8 日.

21. 黒澤 俊介  
γイメージングとデータ解析  
次世代放射線シンポジウム  
オンライン  
2021 年 8 月 19 日.

**⑥国内学会発表（一般講演：口頭）**

22. 小玉 翔平、黒澤 俊介、森下 祐樹、宇佐美 博士、林 真照、田中 浩基、山路 晃広、吉野 将生、大橋 雄二、鎌田 圭、横田 有為、吉川 彰、鳥居 建男  
光ファイバーと赤色発光シンチレータを用いた γ 線検出器の開発  
第 66 回応用物理学会春季学術講演会、東京  
2019 年 3 月 12 日.
23. 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γ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

2020 年 9 月 8 日.

24. 黒澤 俊介、倉嶋 佑太朗、藤原 千隼、山路 晃広、石澤 倫、石川 志緒利、吉川 彰

高融点材料探索のためのコア・ヒーティング法の開発と材料探索

日本セラミックス協会 第 34 回秋季シンポジウム

2021 年 9 月 2 日.

25. 石澤 倫、黒澤 俊介、倉嶋 佑太朗、山路 晃広、石川 志緒利、藤原 千隼、吉川 彰、田中  
浩基

高線量率下での線量モニタの開発に向けた赤色発光酸化物シンチレータ結晶の探索とその発  
光特性

第 82 回応用物理学会秋季学術講演会

オンライン

2021 年 9 月 10 日.

26. 黒澤 俊介、倉嶋 佑太朗、石澤 倫、藤原 千隼、山路 晃広、吉川 彰

高融点材料探索のためのコア・ヒーティング法の開発と材料探索 II

日本セラミックス協会 2022 年 年会

オンライン

2022 年 3 月 12 日.

27. 石澤 倫、黒澤 俊介、山路 晃広、吉川 彰

Nd 添加近赤外発光シンチレータ結晶の探索とその発光特性

2022 年第 69 回応用物理学会春季学術講演会

オンライン/青山学院大学 (相模原キャンパス)

2022 年 03 月 22 日.

#### ⑦国内学会発表 (一般講演: ポスター)

28. 小玉 翔平、黒澤 俊介、吉野 将生、山路 晃広、大橋 雄二、鎌田 圭、横田 有為、Martin Nikl、

吉川 彰

ハフニウム含有ハロゲン化物  $\text{Cs}_2\text{HfX}_6$  ( $\text{X}=\text{Cl}, \text{Br}, \text{I}$ ) シンチレータの開発と特性評価、

日本セラミックス協会第 31 回秋季シンポジウム

2018 年 9 月 5 日.

29. 倉嶋 佑太朗、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、吉川 彰

高融点透明光学材料を得るためのアークを用いた新たな材料探索法

第 80 回応用物理学会秋期学術講演会

北海道大学

2019 年 9 月 20 日.

30. 藤原 千隼、小玉 翔平、石川 志緒利、黒澤 俊介、山路 晃広、大橋 雄二、横田 有為、鎌田 圭、佐藤 浩樹、豊田 智史、吉野 将生、花田 貴、吉川 彰  
線量モニタ開発用の赤色発光  $\text{Cs}_2\text{Hf}(\text{I}, \text{Br})_6$  シンチレータの発光特性研究  
第 82 回応用物理学会秋季学術講演会  
オンライン  
2021 年 9 月 23 日.

#### 4. 結言

1Fの廃炉工程の中で、重要な解決すべき1つの課題である、 $\alpha$ 線核種を含むダストの把握を実施するための「放射線顕微鏡」の開発を行ってきた。この放射線顕微鏡では、撮像部分とエネルギー取得部分の2つに分けて開発を進めた。前者については、(1)放射線を可視光に変更する発光材料であるシンチレータ、(2)その光をより効率良く収集するための顕微鏡部分、及び、(3)これらを動かす駆動系の開発が求められた。そして、ガーネット型結晶、その他ハロゲン化物シンチレータなどの開発、レンズなどの最適化、及び、駆動系の立ち上げによって、位置分解能について目標値の10  $\mu\text{m}$ 以下を達成することができた。さらに、後者のエネルギー取得部分についても、シンチレータ方式とAPD直接方式などを比較して、APDを用いて、かつ、アンフォールディング法を用いた装置が開発できた。そして、撮像部分とエネルギー取得部分を組み合わせ、かつ、太陽電池などを組み込んで、外部電源なしでも動作できるスタンドアロン型の実証機の開発に成功した。現在、「放射線顕微鏡」についても、開発が進んでおり、現場での適用も近いうちに行われると期待している。

これらの研究課題の過程で、新たなシンチレータ材料をいくつか開発できたことから、上記の $\alpha$ ダストモニタ以外にも、光ファイバーを用いた高線量率場の測定モニタの開発を行った。特にCHIを用いたモニタについて、材料の改良とともに、システムの構築も行い、1Fでの現場適用を行うことができた。また、そこから得られた課題点なども精査し、その対応も行いより高感度な装置の開発も進んでいる。

以上の研究開発では、三者の協力・連携が非常によく機能し、さらに、CLADS、東京電力、原子力安全研究協会をはじめとした各組織からのバックアップも頂いたことから、単なる材料・装置開発のみに限らず、実際の現場での利用も、迅速に行うことができた。

補足：

なお、本報告書の一部は過去の報告書[2][6][7]からの抜粋を含む。

## 参考文献

- [1] K. Kamada et al., 2 Inch Diameter Single Crystal Growth and Scintillation Properties of Ce:Gd<sub>3</sub>Al<sub>2</sub>Ga<sub>3</sub>O<sub>12</sub>, Journal of Crystal Growth, vol.352, no.1, 2012, pp.88-90.
- [2] 廃炉国際共同研究センター, 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); 平成30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 2019-038, 2020, 57p., <https://doi.org/10.11484/jaea-review-2019-038>.
- [3] A. Burger et al., Cesium Hafnium Chloride: A High Light Yield, Non-hygroscopic Cubic Crystal Scintillator for Gamma Spectroscopy, App. Phys. Lett., vol.107, no.14, 2015, 143505.
- [4] S. Kurosawa et al., Cesium Hafnium Chloride Scintillator Coupled with an Avalanche Photodiode Photodetector, Journal of Instrumentation, vol.12, 2017, C02042.
- [5] S. Kodama, S. Kurosawa et al., Development of a Novel Red-emitting Cesium Hafnium Iodide Scintillator, Radiation Measurements, vol.124, 2019, pp.54-58.
- [6] 廃炉環境国際共同研究センター, 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., <https://doi.org/10.11484/jaea-review-2020-039>.
- [7] 廃炉環境国際共同研究センター, 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, JAEA-Review 2021-044, 2022, 58p., <https://doi.org/10.11484/jaea-review-2021-044>.
- [8] J. Allison et al., Recent Developments in Geant4, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment, vol.835, no.1, 2016, pp.186-225.
- [9] T. Sato et al., Features of Particle and Heavy Ion Transport Code System (PHITS) Version 3.02, J. Nucl. Sci. Technol., vol.55, no.6, 2018, pp.684-690.
- [10] NIST, Material Composition Data, <https://physics.nist.gov/cgi-bin/Star/compos.pl> (参照日: 2022.3.31) .
- [11] J. Czirr, The  $\alpha/\beta$  Ratio of Several Organic Scintillators, Nuclear Instruments and Methods, vol.25, 1963, pp.106-108.
- [12] 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, 900p., ISBN 978-4-274-21449-3.
- [13] 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.
- [14] Y. Morishita, S. Kurosawa et al., Plutonium Dioxide Particle Imaging Using a High-resolution Alpha Imager for Radiation Protection, Sci. Rep., vol.11, no.1, 2021, 5948.

- [15] S. Yamamoto, K. Kamada, A. Yoshikawa, Ultrahigh Resolution Radiation Imaging System Using an Optical Fiber Structure Scintillator Plate, Sci. Rep., vol.8, no.1, 2018, 3194.
- [16] ICRP, Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers, ICRP Publication 68, Ann. ICRP, vol.24, no.4, 1994.
- [17] 電子情報通信学会, 図1 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 : 2022.3.31) .
- [18] 東北大学金属材料研究所、プレスリリース・研究成果, 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-, 2021年1月22日,  
<http://www.imr.tohoku.ac.jp/ja/news/results/detail---id-1301.html> (参照日 : 2022.3.31) .
- [19] Y. Kurashima, S. Kurosawa et al., Novel Method of Search for Transparent Optical Materials with Extremely High Melting Point, Crystal Growth Des., vol.21, no.1, 2021, pp.572-578.
- [20] 東京電力ホールディングス株式会社, 東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会 (第21回) 資料5-3, 2号機シールドプラグ高濃度汚染への対応状況について, <https://www.nsr.go.jp/data/000358693.pdf> (参照日 : 2022.3.31) .
- [21] NRAJapan, 第21回東京電力福島第一原子力発電所における事故の分析に係る検討会 (2021年07月08日) , <https://www.youtube.com/watch?v=Tdc0iPWYnNI> (参照日 : 2022.3.31) .

This is a blank page.



