



JAEA-Review

2024-006

DOI:10.11484/jaea-review-2024-006

α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発 (委託研究)

—令和4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 Elemental Technologies of Hand-foot-cloth Monitors for

α -contamination Visualization

(Contract Research)

-FY2022 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
北海道大学

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

June 2024

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 研究開発推進部 科学技術情報課
〒 319-1112 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 番地 49
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 Library, Institutional Repository and INIS Section, Research and Development Promotion Department, Japan Atomic Energy Agency.

4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1112, Japan
E-mail: ird-support@jaea.go.jp

α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発
(委託研究)

—令和4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

北海道大学

(2024年2月28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4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 (1F) 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、令和4年度に採択された研究課題のうち、「 α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発」の令和4年度分の研究成果について取りまとめたものである。

本研究は、1F の廃炉事業に携わる作業者の安心・安全を確保するべく、汚染頻度の高い足裏、両手表面を対象とした「 α 汚染可視化ハンドフットモニタ」と着衣等の汚染検査に使用する「 α ・ β 汚染可視化クロスモニタ」(α ・ β 汚染分布・エネルギー計測可搬型ホスウィッチ検出器) から構成される新規装置の開発を目標として、新しいシンチレータ材料及び装置の実用化の可能性について基礎的な検討を行った。 α 汚染可視化ハンドフットモニタ用の α 線検出用材料として AD 法による ZnS (Ag) 厚膜作製及び希土類錯体について検討し、両者ともに α 線によるシンチレーションを観察した。また、市販の ZnS (Ag) シンチレータと CMOS カメラ等を用いて α 線が撮像できること、手部及び靴底の汚染を一度に可視化できる可能性があることを確認した。 α ・ β 汚染可視化クロスモニタにおけるホスウィッチ用シンチレータの開発では、La-GPS の単相化を実現するとともに、窒素雰囲気中の高温でのアニールがフォトルミネッセンス強度の増大に効果的であることを見出した。エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価では、これまでに得られたノウハウに基づき、取得データのハンドリング・分析プログラムの仕様を策定した。さらに、既存の測定装置と組み合わせることで次年度以降の装置製作で必要となる改良点を抽出した。

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、北海道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 Elemental Technologies of Hand-foot-cloth Monitors for α -contamination Visualization
(Contract Research)

— FY2022 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

Hokkaido University

(Received February 28, 2024)

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 FY2022.

The Project aims to contribute to solving problems in the nuclear energy field represented by the decommissioning of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (1F), 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 FY2022, this report summarizes the research results of the “Development of elemental technologies of hand-foot-cloth monitors for α -contamination visualization” conducted in FY2022.

The present study aims to develop hand-foot-monitors for α -contamination visualization and cloth monitors for α/β -contamination visualization consisting of a portable phoswich detector for measuring α/β -contamination distribution and energy to ensure the safety and security of workers involved in the decommissioning project of the 1F. The possibility of practical application of new scintillator materials and devices was examined with the goal of developing such new instruments. ZnS(Ag) thick films by AD method and rare earth complexes as scintillator materials for α -ray detection were prepared, and observed the scintillation by α -ray irradiation. α -ray imaging was possible using a commercially available ZnS(Ag) scintillator and CMOS camera, and it was possible to visualize contamination on whole of hands and shoe soles. Single-phase La-GPS polycrystal for phoswich was obtained, and annealing at high temperature in a nitrogen atmosphere was effective to increase photoluminescence intensity. In the prototype production and basic performance evaluation of the energy/distribution measuring device, specifications for the handling and analysis program for the acquired data were formulated based on the know-how obtained to date. Furthermore, by combining it with ready-made instrument, improvement points were extracted.

Keywords: α -contamination Visualization, Hand-foot-cloth Monitor, Portable Phoswich Detector, ZnS(Ag) Thick Film, Rare Earth Complexes, La-GPS Polycrystal

This work was performed by Hokkaido 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
6. 令和 4 年度 採択課題	12
付録 成果報告書	15

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
6. Accepted Proposal in FY2022.....	12
Appendix Result Report	15

This is a blank page.

1. 英知を結集した原子力科学技術・人材育成推進事業の概要

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

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

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

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

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

2. 平成 30 年度 採択課題

平成 30 年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

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

平成 30 年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

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

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

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

課題解決型廃炉研究プログラム

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

3. 令和元年度 採択課題

令和元年度採択課題については以下のとおりである。

課題数：19 課題

- 共通基盤型原子力研究プログラム 7 課題（若手研究 2 課題、一般研究 5 課題）
- 課題解決型廃炉研究プログラム 4 課題
- 国際協力型廃炉研究プログラム 4 課題（日英共同研究 2 課題、日露共同研究 2 課題）
- 研究人材育成型廃炉研究プログラム 4 課題

令和元年度 採択課題一覧

共通基盤型原子力研究プログラム

【若手研究】

課題名	研究代表者	所属機関
ウラニル錯体化学に基づくテーラーメイド型新規海水ウラン吸着材開発	鷹尾 康一郎	東京工業大学
動作不能からの復帰を可能とする多連結移動ロボットの半自律遠隔操作技術の確立	田中 基康	電気通信大学

共通基盤型原子力研究プログラム

【一般研究】

課題名	研究代表者	所属機関
一次元光ファイバ放射線センサを用いた原子炉建屋内放射線源分布計測	瓜谷 章	名古屋大学
低線量・低線量率放射線被ばくによる臓器別酸化ストレス状態の検討	鈴木 正敏	東北大学
単一微粒子質量分析法に基づくアルファ微粒子オンラインモニタリングに向けた基礎検討	豊嶋 厚史	大阪大学
幹細胞動態により放射線発がんを特徴付ける新たな評価系の構築	飯塚 大輔	量子科学技術 研究開発機構
耐放射線性ダイヤモンド半導体撮像素子の開発	梅沢 仁 (~R2. 3. 31) 大曲 新矢 (R2. 4. 1~)	産業技術総合 研究所

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
Multi-Physics モデリングによる福島2・3号機ペDESTAL燃料デブリ深さ方向の性状同定	山路 哲史	早稲田大学
燃料デブリ取出しに伴い発生する廃棄物のフッ化技術を用いた分別方法の研究開発	渡邊 大輔	日立GE ニュークリア・エナジー
アパタイトセラミックスによるALPS沈殿系廃棄物の安定固化技術の開発	竹下 健二 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (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 (~R3. 3. 31) 岡山大学 (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クスを融合したデブリ性状把握手法の開発とティアップ型人材育成	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 (~R2. 3. 31) 竹下 健二 (~R3. 6. 30) 塚原 剛彦 (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 (～R4. 7. 31) 村上 健太 (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 研究機構

課題解決型廃炉研究プログラム

【一般研究】

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

国際協力型廃炉研究プログラム（日英共同研究）

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

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 Nejdet (~R4. 1. 31) 三輪 修一郎 (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

6. 令和4年度 採択課題

令和4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4年3月1日～令和4年5月6日（課題解決型）

令和4年4月7日～令和4年6月16日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：8 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）

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4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
革新的アルファダスト撮像装置と高線量率場モニタの実用化とその応用	黒澤 俊介	東北大学
3次元線量拡散予測法の確立と γ 線透過率差を利用した構造体内調査法の開発	谷森 達	京都大学
α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発	樋口 幹雄	北海道大学
高放射線耐性の低照度用太陽電池を利用した放射線場マッピング観測システム開発	奥野 泰希	京都大学
障害物等による劣悪環境下でも通信可能なパッシブ無線通信方式の開発	新井 宏之	横浜国立大学
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイ	松下 光次郎	岐阜大学

課題名	研究代表者	所属機関
無線 UWB とカメラ画像分析を組合せたリアルタイム 3D 位置測位・組込システムの開発・評価	松下 光次郎	岐阜大学

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
耐放射線プロセッサを用いた組み込みシステムの開発	渡邊 実	岡山大学
マイクロ・ナノテクノロジーを利用したアルファ微粒子の溶解・凝集分散に及ぼすナノ界面現象の探求	塚原 剛彦	東京工業大学

本報告書は、以下の課題の令和4年度分の研究成果について取りまとめたものである。

課題解決型廃炉研究プログラム

課題名	研究代表者	所属機関
α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発	樋口 幹雄	北海道大学

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 4 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

α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの

要素技術開発

(契約番号 R04I118)

成果報告書

令和 5 年 3 月

国立大学法人北海道大学

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、国立大学法人北海道大学が実施した「 α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発」の令和4年度分の研究成果を取りまとめたものである。

目次

概略	vii
1. はじめに	1-1
2. 業務計画	2-1
2.1 全体計画	2-1
2.1.1 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発	2-2
2.1.2 $\alpha \cdot \beta$ 汚染可視化クロスモニタの開発	2-2
2.2 実施体制	2-4
2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法	2-5
2.3.1 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発	2-5
2.3.2 $\alpha \cdot \beta$ 汚染可視化クロスモニタの開発	2-5
3. 実施内容及び成果	3-1
3.1 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発	3-1
3.1.1 AD法によるZnS等大面積 α 計測用シンチレータの開発	3-1
3.1.2 希土類錯体を用いた α 計測用新規有機シンチレータの開発	3-4
3.1.3 α 線撮像技術の開発	3-10
3.1.4 まとめ	3-14
3.2 $\alpha \cdot \beta$ 汚染可視化クロスモニタの開発	3-15
3.2.1 ホスウィッチ用シンチレータの開発	3-15
3.2.2 エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価	3-18
3.2.3 まとめ	3-20
3.3 研究推進	3-21
4. 結言	4-1
参考文献	5-1

執筆者リスト

事業代表者

国立大学法人北海道大学

特任准教授 樋口 幹雄
准教授 北川 裕一
准教授 金子 純一

再委託先

国立研究開発法人産業技術総合研究所

首席研究員 明渡 純
総括研究主幹 相馬 貢
主任研究員 松井 浩明

連携先

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構

研究副主幹 森下 祐樹

表一覧

表 2. 1-1	年度別全体計画.....	2-1
表 3. 1-1	ポリスチレン膜に分散させた希土類錯体の基礎光物性データ.....	3-10

図一覧

図 2. 1-1	実施体制図	2-4
図 3. 1. 1-1	ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理なし) の段差計データと光学写真	3-1
図 3. 1. 1-2	ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理なし) の断面 SEM 像	3-2
図 3. 1. 1-3	ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理なし) の断面 EDX 像 (基板付近)	3-2
図 3. 1. 1-4	ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理あり) の段差計データと光学写真	3-2
図 3. 1. 1-5	ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理あり) の断面 SEM 像	3-3
図 3. 1. 1-6	ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理あり) の断面 EDX 像 (基板付近)	3-3
図 3. 1. 1-7	ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理あり) のシンチレーション特性評価結果	3-4
図 3. 1. 2-1	Eu(hfa) ₃ (H ₂ O) ₂ の合成スキーム	3-4
図 3. 1. 2-2	Eu(hfa) ₃ (TPPO) ₂ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線	3-5
図 3. 1. 2-3	Eu(hfa) ₃ (TPPO-Me) ₂ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線	3-6
図 3. 1. 2-4	Eu(hfa) ₃ (TPPO-3Me) ₂ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線	3-6
図 3. 1. 2-5	Eu(hfa) ₃ (TPPO-6OMe) ₂ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線	3-7
図 3. 1. 2-6	Eu(hfa) ₃ biphepo の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線	3-8
図 3. 1. 2-7	[Eu(hfa) ₃ (dppb)] _n の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線	3-8
図 3. 1. 2-8	[Eu(hfa) ₃ (bdpc)] _n の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線	3-9
図 3. 1. 2-9	Tb(hfa) ₃ (TPPO) ₂ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線	3-9
図 3. 1. 2-10	Eu(hfa) ₃ (TPPO-6OMe) ₂ ポリスチレン膜の α 線シンチレーション試験	3-10
図 3. 1. 3-1	α 線撮像試験のセットアップ	3-11
図 3. 1. 3-2	光学画像 (左) と 5 秒測定 of α 線画像 (右)	3-11
図 3. 1. 3-3	光学画像と α 線画像の重ね合わせ	3-12
図 3. 1. 3-4	直径 5cm のトリウム線源と文字のコリメータ	3-12
図 3. 1. 3-5	文字のコリメータの撮像結果	3-13
図 3. 1. 3-6	軍手 (左) と靴底 (右)	3-13
図 3. 2. 1-1	SiO ₂ 原料粉末の走査型電子顕微鏡写真 (a) 平均粒径 4 μm (b) 平均粒径 0.8 μm (c) 遊星型ボールミルを用いて (a) を湿式粉砕したもの	3-15
図 3. 2. 1-2	反応焼結後の生成相の X 線回折パターン (a) 平均粒径 4 μm の SiO ₂ 粉末を使用 (b) 平均粒径 0.8 μm の SiO ₂ 粉末を使用 (c) 平均粒径 4 μm の SiO ₂ 粉末を粉砕した粉末を使用	3-16

図 3.2.1-3	試作した成形用金型	3-16
図 3.2.1-4	(a) ラバープレス後の成形体、(b) 得られた焼結体	3-17
図 3.2.1-5	フォトルミネッセンス強度に及ぼすアニール温度の効果	3-17
図 3.2.2-1	ソフトの各モード画面 (a) データ収集モード (b) 線種弁別モード α 線と β 線の 2 つの直線的なプロットが確認でき、このプロットに対し直線で弁別閾値を設定する (c) 2 次元分布モード (d) エネルギーモード	3-19

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)
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
北大	: 国立大学法人北海道大学
産総研	: 国立研究開発法人産業技術総合研究所
AD	: Aerosol Deposition (エアロゾルデポジション)
GPS	: Gadolinium Pyrosilicate (ガドリニウムピロケイ酸塩)
La-GPS	: La-substituted Gadolinium Pyrosilicate (La 置換ガドリニウムピロケイ酸塩)
高純度研	: 株式会社高純度化学研究所

概略

東京電力ホールディングス株式会社福島第一原子力発電所（以下、「1F」と略す）廃炉事業で大きな問題となっている、建屋内作業者の α 線放出核種吸引事故に対して合理的対応を可能とする α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術を開発する。具体的には、汚染頻度の高い足裏、両手表面を対象とした「 α 汚染可視化ハンドフットモニタ」と着衣等の汚染検査に使用する「 α ・ β 汚染可視化クロスモニタ」（ α ・ β 汚染分布・エネルギー計測可搬型ホスウィッチ検出器）から構成される新規装置を開発する。これにより汚染箇所・範囲、 α 線、 β 線放出核種の可視化、さらに α 線放出核種の種別判定を可能とする装置の要素技術を開発し、将来的に内部被ばくの有無の判断にかかわる作業を大幅に軽減・迅速化し、作業者の安全・安心確保に貢献する。

令和4年度においては、上述の新規装置を実現するための新しいシンチレータ材料及び装置の実用化の可能性について基礎的な検討を行った。

α 汚染可視化ハンドフットモニタ用の α 線検出用シンチレータ材料としてエアロゾルデポジション（以下、「AD」と略す）法によるZnS(Ag)厚膜作製及び希土類錯体について検討した。AD法による厚膜作製においては、市販のZnS(Ag)を用いて実験を開始し、厚膜化にまだ課題が残るものの、ZnS(Ag)によるAD成膜体によってシンチレーション特性が評価可能であることを示す一定の結果が得られた。希土類錯体については、Eu錯体を含むポリスチレン膜は高い発光量子収率(>60%)を示すとともに、Eu(hfa)₃(TPPO-60Me)₂含有ポリスチレン膜について α 線照射において、明確な発光が観測された。 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発においては、市販のZnS(Ag)シンチレータとCMOSカメラ等を用いて α 線が撮像できることを確認した。また、視野や検出感度等の評価を行い、手部及び靴底の汚染を一度に可視化できる可能性があることを確認した。

α ・ β 汚染可視化クロスモニタにおけるホスウィッチ用シンチレータの開発では、入手可能なSiO₂市販粉末を遊星型ボールミル粉砕することにより、反応焼結によるLa-GPSの単相化を実現した。また、ラバープレス前の金型を使用した一軸加圧が、焼結体の必要なサイズを実現するのに有効であることと窒素雰囲気中の高温でのアニールがフォトルミネッセンス強度の増大に効果的であることを見出した。エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価では、これまでに得られたノウハウに基づき、取得データのハンドリング・分析プログラムの仕様を策定した。さらに、既存の測定装置と組み合わせることで次年度以降の装置製作で必要となる改良点を抽出した。

1. はじめに

1F 廃炉事業では、今後段階的に燃料デブリによる汚染可能性の高い領域での作業増加に伴い、作業員の安全管理業務上プルトニウムの吸引事故対応・汚染拡大防止がこれまで以上に重要となる。そこで、本事業においては α 汚染可視化ハンドフットクロスモニタの要素技術開発を提案する。この装置は汚染頻度の高い足裏、両手表面を対象とした①「 α 汚染可視化ハンドフットモニタ」と着衣等の汚染検査に使用する、②「 α ・ β 汚染可視化クロスモニタ」(α ・ β 汚染分布・エネルギー計測可搬型ホスウィッチ検出器)からなる。

核燃料再処理工場等のプルトニウム取扱施設では、管理区域内からの退出前にエアプロポーションカウンタやハンドフットクロスモニタ検査により汚染の有無を確認する。発報が生じた場合、鼻スミア試験を行い、 α 放射能が 1 Bq を超える場合、 α 線放出核種の核種識別無しにキレート剤(DTPA:Diethylenetriamine pentaacetic acid)が投与される。コンクリート建屋では、 α 線放出核種であるラドン子孫核種が壁面等から染み出し、放射線安全管理上厄介なバックグラウンドとなる。1F 建屋では十分な換気が行えない場所も多く、ラドン子孫核種が多く存在する。1F での汚染は正常な管理体制下にあるプルトニウム取扱施設等と全く異なり、 β 線放出核種である ^{137}Cs 等が大量に存在する中で微弱な α 線放出核種を検出する困難性が顕在化している。さらに、 β 線のみを放出し、骨に沈着する ^{90}Sr 汚染への対応も今後必要性が増すことから、検査初期の段階で α 線と β 線を正確に識別しそれらの汚染分布を取得する技術の確立が極めて重要となる。

提案する装置は一般的なエアプロポーションカウンタやハンドフットクロスモニタで警報が発報した後に使用し、汚染物質にプルトニウム等デブリ起因物質が含まれているかを現場で迅速に判断可能とする。これにより、鼻スミア試験の前段階でプルトニウム等の吸引可能性を客観的な情報に基づき判断し、不要な業務の発生を回避し、作業員の安全・安心の確保に寄与する。事業終了時の到達目標として、①に関しては足の裏相当の面積(35 cm×10 cm)の α 汚染を位置分解能 5 mm 以下で測定可能とする目途を得ること、挑戦的目標として β 汚染の分布計測も同時に取得可能とすること、②に関しては実効面積 5 cm 角程度の範囲で α ・ β 汚染分布それぞれを位置分解能 5 mm 以下で測定可能とし、 α 線に関してはエネルギー弁別によりラドン子孫核種とデブリ起因 α 線放出核種を識別可能とすることを目標とする。

2. 業務計画

2.1 全体計画

本業務の年度別全体計画を表 2.1-1 に示す。各業務項目の詳細について以下に説明する。

表 2.1-1 年度別全体計画

		令和4年度	令和5年度		令和6年度
(1) α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発	①AD 法による ZnS 等大面積 α 計測用シンチレータの開発(産総研)	AD 用粉体材料の選定・評価・試験成膜	AD 厚膜の緻密化・透明化のための粉体の調製法の開発		AD 厚膜の α 線に対する発光量を向上させる成膜条件の確立
	②希土類錯体を用いた α 計測用新規有機シンチレータの開発(北大)	錯体合成とその評価	錯体合成及び対 α 線シンチレーションの評価		高効率新規錯体の探索とその α 線シンチレーションの評価
	③ α 線撮像技術の開発(JAEA)	α カメラ製作	α カメラ試験	AD 法厚膜及び錯体シンチレータを用いた撮像試験	α / β 線放出核種の同時分布計測及び画像処理の自動化
(2) $\alpha \cdot \beta$ 汚染可視化クロスモニタの開発	①ホスウィッチ用シンチレータの開発(北大)	GPS 多結晶体の作製条件の検討	GPS 多結晶体の作製条件の確立と対 β 線シンチレーションの評価		GPS 多結晶体の量産とホスウィッチ検出器への実装及び性能評価
	②エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価(北大、JAEA)	ソフトウェア開発	エネルギー・分布計測装置の製作と性能評価		エネルギー/分布計測装置の改良と性能評価
	③ホスウィッチ検出器の性能評価(JAEA)		検出器の試作	有機シンチレータ試験 ホスウィッチ検出器試験	最適なシンチレータの組み合わせによるホスウィッチ検出器の作製と α / β 弁別能を主とした性能試験
(3) 研究推進		技術評価委員会の開催	技術評価委員会の開催		技術評価委員会の開催

2.1.1 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発

靴底、手の平と甲の汚染を対象とし最大 35 cm×10 cm 程度の領域を 5 mm 程度の位置分解能で測定する必要があり、 α 線用大面積シンチレータと光学カメラを組み合わせた撮像装置の要素技術を開発する。同種の装置として中性子ラジオグラフィーで実用化されている蛍光版、鏡、CCD カメラからなる撮像装置がある。本開発では対象が現場の作業員であり、測定時間は概ね 5 分程度が上限となるため、 α 線用シンチレータの輝度向上、発光波長とカメラの量子効率とのマッチングがカギとなる。そこで α 線用シンチレータの開発として (1) AD 法による ZnS 等大面積 α 計測用厚膜シンチレータの開発、(2) 希土類錯体を用いた α 計測用新規有機シンチレータの開発、(3) α 線撮像技術の開発に取り組む。

(1) AD 法による ZnS 等大面積 α 計測用シンチレータの開発

AD 法による透明度の高い厚さ 20 μm 程度の ZnS 等を用いた高輝度蛍光体厚膜シンチレータの開発を産総研が担当する。AD 法は原料粉を真空チャンバー中に吸引し、ガラス等の基板に衝突させ積層する。緻密な透明厚膜をバインダーレスで作製可能であり、産総研では 5 cm 角程度の各種厚膜試料を製作している。使用する粉体の調整と基板の選定・表面状態の調整が重要な開発項目となる。ZnS の単結晶合成は特殊な方法が必要であり、AD 法により透明度の高い 20 μm 程度の厚膜 ZnS シンチレータが安定して製作可能となれば画期的な α 線計測技術となる。AD 法は共同研究者である明渡がパイオニアとして開発した国産技術であり、シンチレータへの AD 法の活用は今回が初めてとなる。粒径が小さくなると発光量が低下する可能性はあるが、十二分に実用化可能性があるものと考えている。ZnS の発光波長はカメラの感度領域と適合可能である。

(2) 希土類錯体を用いた α 計測用新規有機シンチレータの開発

北大の若手研究者である北川を中心に希土類錯体を用いた有機・無機ハイブリッドシンチレータの開発を進める。本開発ではカメラの感度（量子効率）に適合した発光波長をもつ大光量発光材料の開発が最重要となる。北川はこれまで希土類錯体を用い独創的な発光材料の開発を多数行っている。課題として光励起で発光する材料であっても、放射線励起では励起された電子が正孔と再結合前に別のパスにとられ発光が生じない場合がある。本技術のシンチレータへの本格応用はこれからであり、新規性に富んだ試みとなる。

(3) α 線撮像技術の開発

α 線用シンチレータと CCD カメラを使用した撮像技術開発を JAEA の若手研究者である森下が担当する。既存の中性子イメージング装置では画像処理に目視判断が入っており、ここでは画像処理の自動化などに必要な知見の獲得も目指す。

2.1.2 α ・ β 汚染可視化クロスモニタの開発

本装置は可搬型装置で、作業員の着衣や面体に第三者が検出器部を近づけて使用する。減衰時間（立下り時間）の異なる 2 層のシンチレータを使い、第一層で α 線、第二層で β 線の検出を一つの多チャンネル光電子増倍管で行う位置検出型ホスウィッチ検出器となっている。開発は (1) ホスウィッチ用シンチレータの開発、(2) エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価、(3) ホスウィッチ検出器の性能評価に整理して進める。

(1) ホスウィッチ用シンチレータの開発

通常第二層シンチレータは、飛程の長い β 線を捉えるため比較的厚いシンチレータを使用する。一方、1F 廃炉事業では ^{137}Cs 等からの高い γ 線線量場で使用することが多く、他用途への応用も勘案すると γ 線の影響を抑えるため第二層もできるだけ薄い方が好ましい。そこで 2012

年度 JST 先端計測機器開発事業で基礎開発を行った GPS ($Gd_2Si_2O_7:Ce$) 系焼結体シンチレータを使用する。GPS シンチレータは北大が開発した国産オリジナルの無潮解性大発光量シンチレータであり、単結晶では NaI:Tl シンチレータの 1.4 倍の光出力を誇る。この大発光量を活用し、必要最低限の厚さで β 線計測を可能とする。デブリ起因の α 線放出核種 (5 MeV 前後) と天然ラドン子孫核種 (8 MeV 弱) の識別はエネルギー計測によって行う。既存のプラスチックシンチレータのエネルギー分解能が 20%程度であることから、限られた測定時間内でどの程度まで判別可能か (3) で精査する。希土類錯体有機シンチレータの試用も行う。

(2) エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価

北大と JAEA が協力して開発を進める。計測装置に関しては、2012 年の JST 先端計測機器開発以降も限られた予算の中で継続して装置の改良を重ねて来た。本開発では、分布測定、エネルギー測定に加えて立ち下がり時間処理機能の追加が必要となる。すでに JAEA の森下が 2019-20 年度の科研費により、ホスウィッチ検出器の可能性検証を行っており、プラスチックシンチレータを第一層、GPS 系焼結体 (La-GPS) シンチレータを第二層とし、多チャンネル光電子増倍管と組み合わせ、不完全ではあるが α 線、 β 線それぞれの分布計測にある程度成功している。ハードウェアの最適化、ソフトウェアの開発・改善も含め現場で使いやすい装置の開発を目指す。

(3) ホスウィッチ検出器の性能評価

JAEA の若手研究者である森下を中心に進め、北大がサポートする。ZnS の AD 厚膜あるいは希土類錯体を利用したシンチレータ、装置を組み合わせ α ・ β 汚染可視化クロスモニタを構成し、各種試験を行う。1F におけるスミア試験なども試みる。

2.2 実施体制

実施体制を図 2.1-1 に示す。

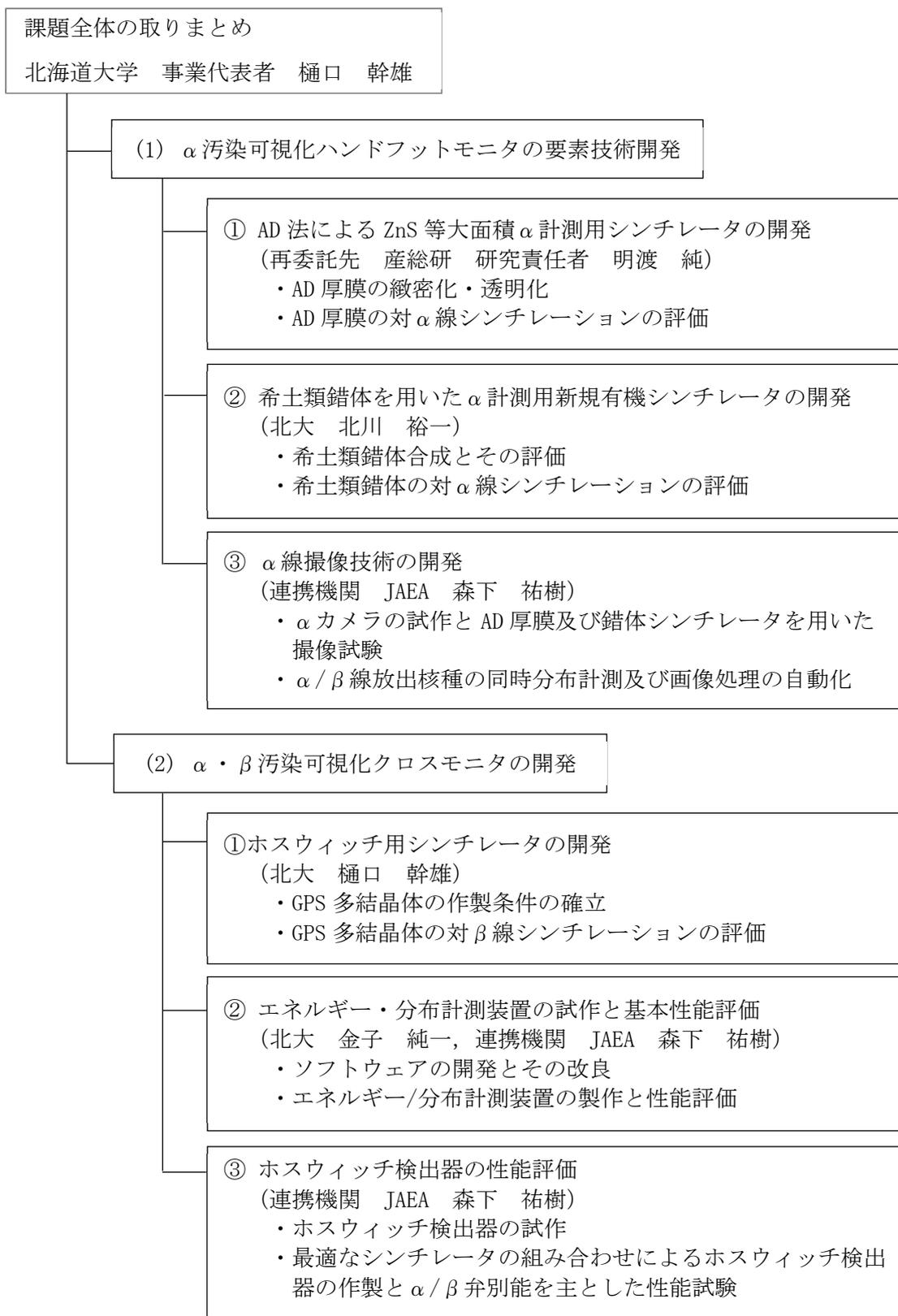


図 2.1-1 実施体制図

2.3 令和4年度の成果の目標及び業務の実施方法

2.3.1 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発

(1) AD法によるZnS等大面積 α 計測用厚膜シンチレータの開発

目標：シンチレータとしての発光特性や厚膜化など基本性能の評価を行う。

方法：AD法に適したZnS等の粉体の探索や成膜条件を検討する。作製したAD厚膜を評価することにより、原料粉末の調整法にフィードバックさせる。また、シンチレーション等の特性を評価し、材料の絞り込みを検討する。

(2) 希土類錯体を用いた α 計測用新規有機シンチレータの開発

目標：4f-4f励起状態形成後において高い発光量子収率を示す希土類錯体を合成する。

方法： β -ジケトナト(ヘキサフルオロアセチルアセトナト等)とホスフィンオキシド型配位子(トリス(ペンタフルオロフェニル)ホスフィンオキシド等)を導入した希土類錯体の合成を行う。得られた合成物の基礎光物性を評価する。

(3) α 線撮像技術の開発

目標： α カメラを試作し、 α 線の撮像評価を行う。

方法：市販のZnS(Ag)シンチレータとCMOSカメラ等を用いて α 線が撮像できるか試験を行う。 α 線撮像に関する適した撮像条件を見出す。

2.3.2 α ・ β 汚染可視化クロスモニタの開発

(1) ホスウィッチ用シンチレータの開発(北大)

目標： β 線検出用 $Gd_2Si_2O_7:Ce$ (GPS)系多結晶体の作製条件を検討する。

方法：Gdの一部をLaで置換した $Gd_2Si_2O_7:Ce$ (La-GPS)多結晶体を反応焼結により作製し、焼成温度・時間等の最適条件を検討する。また、アニール条件を検討し、発光特性の改善を試みる。

(2) エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価(北大、JAEA)

目標：試作したエネルギー・分布計測装置を用いてエネルギーと2次元分布の基礎評価試験を行う。

方法：ホスウィッチ計測に対応するソフトウェアを開発する。既存の測定装置と組み合わせることで次年度以降の装置製作で必要となる問題点を抽出する。

3. 実施内容及び成果

3.1 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発

3.1.1 AD 法による ZnS 等大面積 α 計測用シンチレータの開発

3.1.1.1 ZnS 膜厚膜化のための粉体材料の選定・評価

厚膜化のための AD 用粉体材料の選定・評価を行った。材料としては、 α 線シンチレーションですでに実績のある ZnS(Ag)を第一候補して実験を開始した。本年度の実験からは、厚膜化にまだ課題が残るものの、ZnS(Ag)による AD 成膜体によってシンチレーション特性が評価可能であることを示す一定の結果が得られた。以下にその概要を述べる。なお、以下に示す断面 SEM 観察(日立ハイテク社製 走査電子顕微鏡 SU6600)及び断面 EDX 観察(BRUKER 社製 エネルギー分散型 X 線分析装置 Quantax200)により膜の緻密性や組成分布の知見を得るために行った。イオンミリング法により断面分析試料を作製した。AD 成膜は標準的な条件(搬送ガス種=空気、成膜中チャンバー圧力=400 Pa、基板移動速度=10 mm/s)を中心に、ガス流量を1~10 L/min、ノズル-基板間距離を10~40 mmと変化させ成膜条件を探った。図 3.1.1-1~図 3.1.1-3 は、Eljen Technology 製 ZnS(Ag)粉末 (EJ-600) を用いてガラス基板上に AD 成膜を行った結果である(試料#1)。図 3.1.1-1 の段差計による膜厚測定の結果が示すように、最大5ミクロン厚の固化膜が得られた。しかし、図 3.1.1-2 の断面 SEM 像では横方向中央にクラックが、さらに、図 3.1.1-3 の EDX 像からは S の組成分布にムラが確認されたことから、膜の均一性は低いことがわかる。図 3.1.1-4~図 3.1.1-6、同じ ZnS(Ag)粉末を遊星ミル処理した粉末を用いて成膜を行った結果である(試料#2)。図 3.1.1-4 の段差計による膜厚測定の結果が示すように、最大1ミクロン厚の固化膜が得られた。最大膜厚が粉体処理前から低下した一方、図 3.1.1-5 の断面 SEM 像及び図 3.1.1-6 の EDX 像から膜の均一性が向上している様子が見られる。試料#1 で見られた膜の不均一性の要因としては、原料粒子表面の酸化によって酸化亜鉛が混入した可能性が考えられる。今後は原料粒子の詳細な化学状態の把握を行い、ZnS 以外の相を除去する必要性等を検討する。

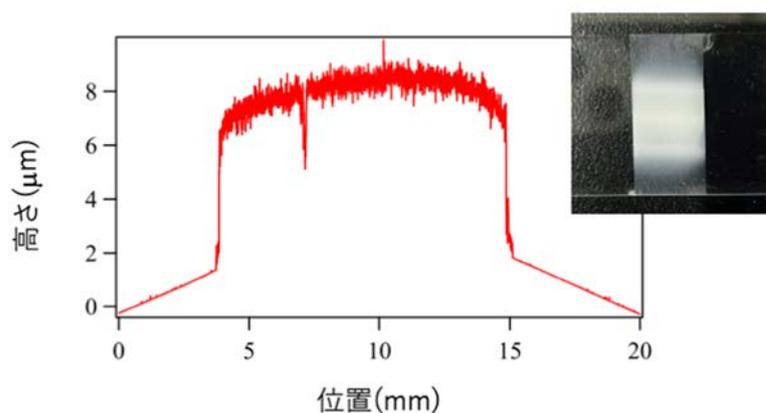


図 3.1.1-1 ZnS(Ag)AD 成膜体(粉体処理なし)の段差計データと光学写真

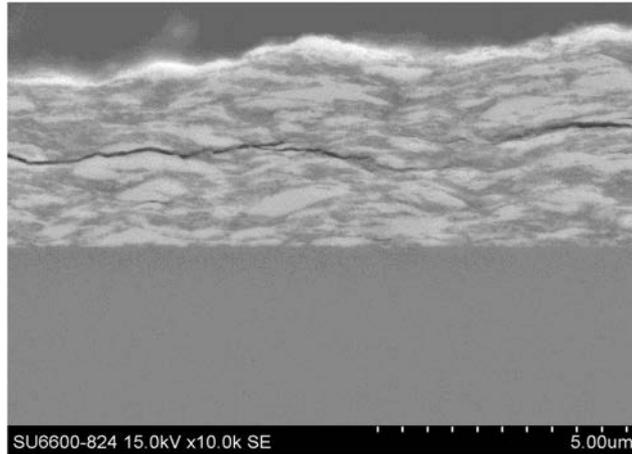


図 3. 1. 1-2 ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理なし) の断面 SEM 像

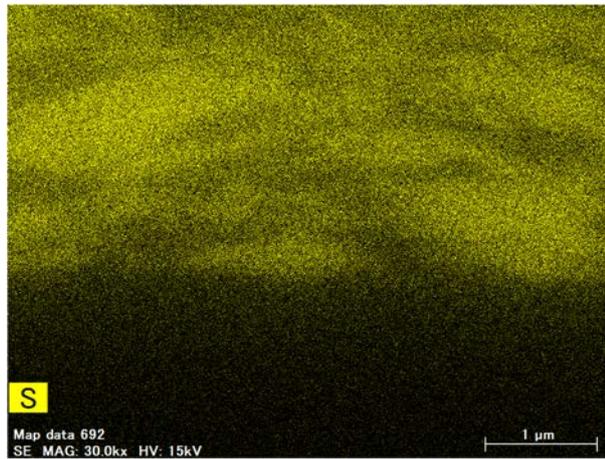


図 3. 1. 1-3 ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理なし) の断面 EDX 像 (基板付近)

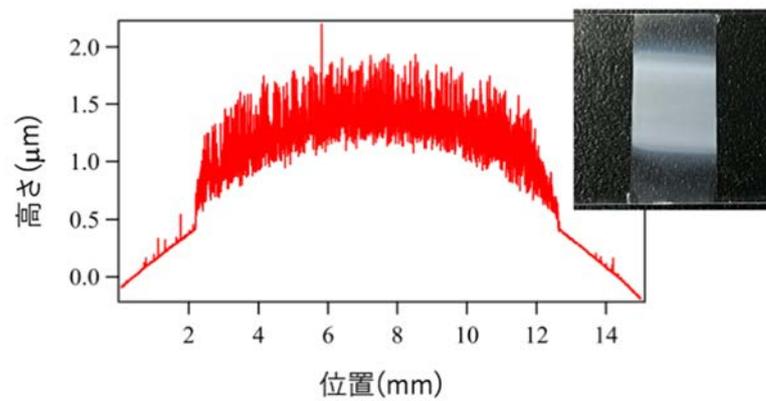


図 3. 1. 1-4 ZnS(Ag)AD 成膜体 (粉体処理あり) の段差計データと光学写真

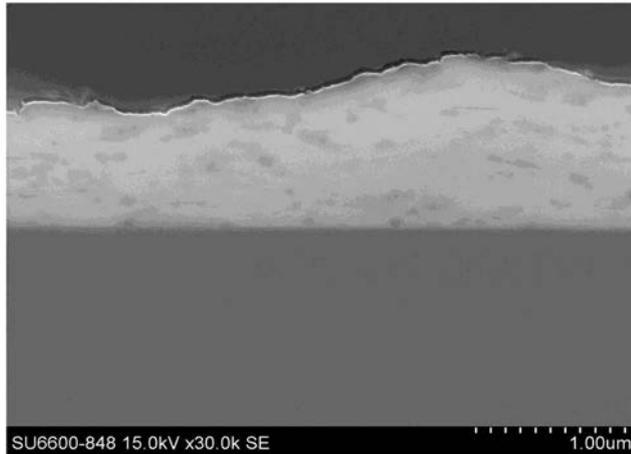


図 3. 1. 1-5 ZnS(Ag)AD 成膜体（粉体処理あり）の断面 SEM 像

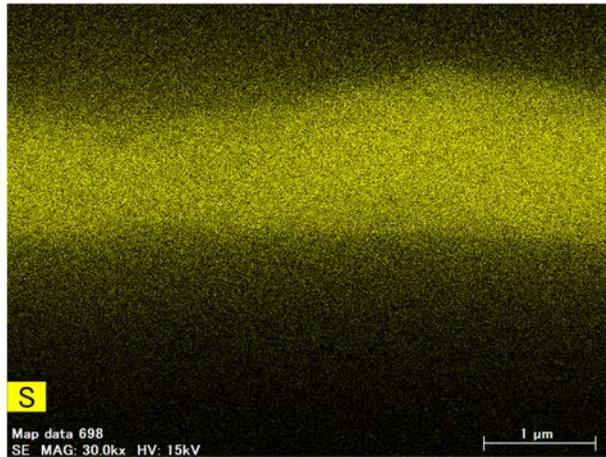


図 3. 1. 1-6 ZnS(Ag)AD 成膜体（粉体処理あり）の断面 EDX 像（基板付近）

3. 1. 1. 2 AD 法により作製した ZnS 膜の α 線シンチレーション特性

図 3. 1. 1-7 は、均一性の向上した試料#2 について、JAEA に依頼し試験的なシンチレーション特性評価を実施した結果である。ガラス基板上に作製した ZnS 膜を α 線源 (^{241}Am 、4. 30 kBq) と光電子増倍管 (HV=-800 V) とでサンドイッチした配置でイメージング観測を行った。膜厚が小さいためと思われる理由から、エネルギースペクトルはピークを形成しなかったが、 α 線が計測可能であることがわかった。今後は、厚膜化に取り組み、 α 線の計測感度の向上を狙う。

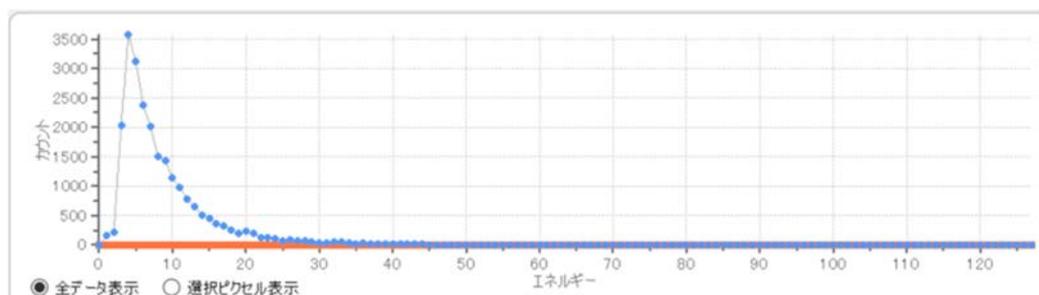


図 3. 1. 1-7 ZnS(Ag)AD 成膜体（粉体処理あり）のシンチレーション特性評価結果

3. 1. 2 希土類錯体を用いた α 計測用新規有機シンチレータの開発

以下に示す 8 種の希土類錯体の合成・基礎光物性評価を行った。

3. 1. 2. 1 $\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2$

$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2$ の基本的な合成スキームを下記に示す。Europium(III) Acetate n-Hydrate (2.50 g、7.6 mmol) を純水 20 mL に溶解させ、攪拌する。hfa (4.74 g、22.8 mmol) を溶液に滴下する(図 3. 1. 2-1)。室温で 3 時間反応させる。溶液を吸引ろ過し、 CHCl_3 と純水で洗浄した後真空乾燥させる。

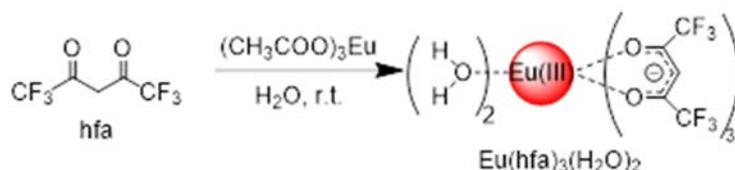


図 3. 1. 2-1 $\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{H}_2\text{O})_2$ の合成スキーム

$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{H}_2\text{O})_2$ (0.40 g、0.5 mmol)、TPPO (0.28 g、1.0 mmol) を MeOH (15 mL) に溶解させ、3 時間加熱還流する(図 3. 1. 2-2、上)。エバポレーターで溶媒除去し、得られた粉末を吸引ろ過/洗浄する。ろ液をエバポレーターで溶媒除去し、得られた粉末を MeOH で再結晶する。析出した結晶を吸引ろ過により回収し、真空乾燥する。他の錯体も同様のスキームで合成した。

得られた錯体粉末をメタノールに溶かして室温で揮発させることでその錯体結晶を得た[1]。また、この錯体結晶(1.7 mg)とポリスチレン(40.3 mg)をトルエン(2 mL)に溶解させ、ガラス基板にキャストして薄膜を形成した。この薄膜に対して、発光スペクトルと発光減衰を評価した(図 3. 1. 2-2、下)。発光減衰から発光寿命は 620 ms と見積もられた。発光スペクトルから放射速度定数(k_r)について式(1)を用いて見積もった[1]。 $A_{MD,0}$ は $n^3 I_{tot}$ は I_{MD} はそれぞれ自然放出確率(14.65 s^{-1})、屈折率、4f-4f 遷移の全発光面積、 $^5D_0 \rightarrow ^7F_1$ 遷移の発光面積に相当する。屈折率はポリスチレンの一般的な屈折率($n=1.59$)を用いた。得られた放射速度定数は 1240 s^{-1} となった。

$$k_r = A_{MD,0} n^3 \left(\frac{I_{tot}}{I_{MD}} \right) \quad (1)$$

式(2)-(5)より、無輻射速度定数(k_{nr})と発光量子効率(Φ_{ff})を見積もったところ[1]、それぞれ 370 s^{-1} 、77%であった。 Φ_{ff} は 4f-4f 励起状態形成後の発光効率を示す。その Φ_{ff} は十分高

いため、 α 計測用新規有機シンチレータ構築に向けて、 α 線照射における希土類錯体の励起子生成効率が重要となる。

$$\tau_{rad} = \frac{1}{k_r} \quad (2)$$

$$\tau_{obs} = \frac{1}{k_r + k_{nr}} \quad (3)$$

$$\Phi_{ff} = \frac{k_r}{k_r + k_{nr}} = \frac{\tau_{obs}}{\tau_{rad}} \quad (4)$$

$$k_{nr} = \frac{1}{\tau_{obs}} - \frac{1}{\tau_{rad}} \quad (5)$$

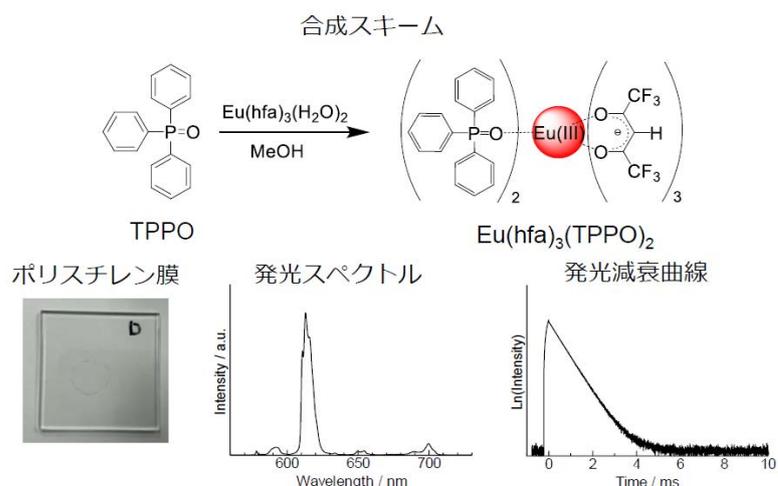


図 3. 1. 2-2 $\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2$ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線

3. 1. 2. 2 $\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-Me})_2$

$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{H}_2\text{O})_2$, TPPO-Me を MeOH 中で錯形成反応をさせることで合成した(図 3. 1. 2-3、上) [2]。この錯体結晶(1. 7 mg)とポリスチレン(40. 3 mg)をトルエン(2 mL)に溶解させ、ガラス基板にキャストして薄膜を形成した。この薄膜に対して、発光スペクトルと発光減衰を評価した。発光減衰から発光寿命は 620 μs と見積もられた(図 3. 1. 2-3、下)。発光スペクトルから放射速度定数について式(1)を用いて見積もった[1]。その際に屈折率はポリスチレンの一般的な屈折率($n=1.59$)を用いた。得られた放射速度定数は 1110 s^{-1} となった。式(2)-(5)より、無輻射速度定数と発光量子効率を見積もったところ[1]、それぞれ 500 s^{-1} 、69%であった。

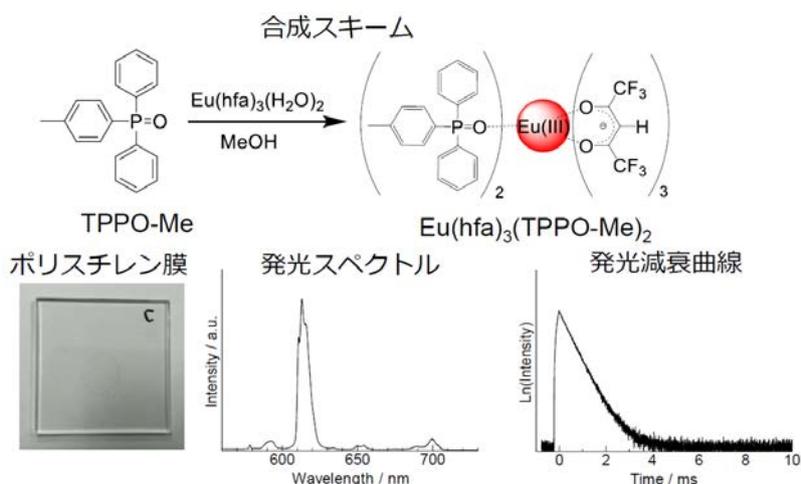


図 3.1.2-3 $\text{Eu(hfa)}_3(\text{TPPO-Me})_2$ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線

3.1.2.3 $\text{Eu(hfa)}_3(\text{TPPO-3Me})_2$

$\text{Eu(hfa)}_3(\text{H}_2\text{O})_2$ 、TPPO-3Me を MeOH 中で錯形成反応をさせることで合成した(図 3.1.2-4、上) [2]。この錯体結晶(1.7 mg)とポリスチレン(40.3 mg)をトルエン(2 mL)に溶解させ、ガラス基板にキャストして薄膜を形成した。この薄膜に対して、発光スペクトルと発光減衰を評価した(図 3.1.2-4、下)。発光減衰から発光寿命は 620 μs と見積もられた。発光スペクトルから放射速度定数について式(1)を用いて見積もった。その際に屈折率はポリスチレンの一般的な屈折率($n=1.59$)を用いた。得られた放射速度定数は 1250 s^{-1} となった。式(2)-(5)より、無輻射速度定数と発光量子効率を見積もったところ[1]、それぞれ 370 s^{-1} 、77%であった。

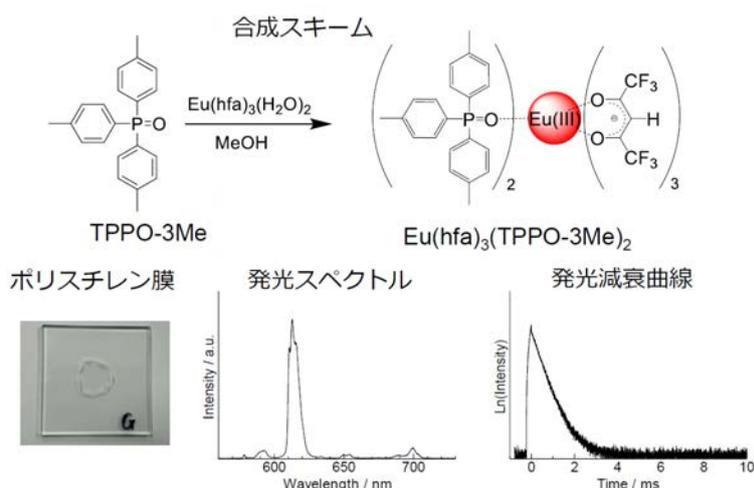


図 3.1.2-4 $\text{Eu(hfa)}_3(\text{TPPO-3Me})_2$ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線

3. 1. 2. 4 $\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-6OMe})_2$

$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{H}_2\text{O})_2$, TPPO-6OMe を MeOH 中で錯形成反応をさせることで合成した(図 3. 1. 2-5、上)。この錯体結晶(1.7 mg)とポリスチレン(40.3 mg)をトルエン(2 mL)に溶解させ、ガラス基板にキャストして薄膜を形成した。この薄膜に対して、発光スペクトルと発光減衰を評価した(図 3. 1. 2-5、下)。発光減衰から発光寿命は 640 μs と見積もられた。発光スペクトルから放射速度定数について式(1)を用いて見積もった[1]。その際に屈折率はポリスチレンの一般的な屈折率($n=1.59$)を用いた。得られた放射速度定数は 940 s^{-1} となった。式(2)-(5)より、無輻射速度定数と発光量子効率を見積もったところ[1]、それぞれ 620 s^{-1} 、60%であった。

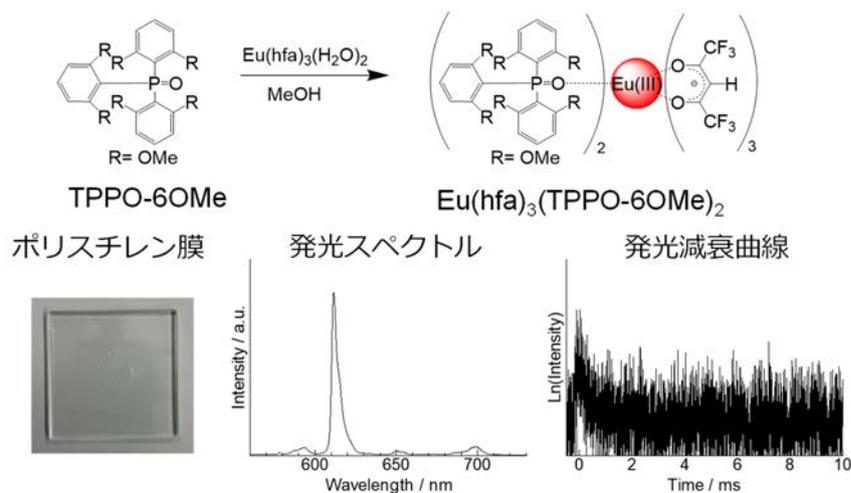


図 3. 1. 2-5 $\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-6OMe})_2$ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線

3. 1. 2. 5 $\text{Eu}(\text{hfa})_3\text{biphepo}$

$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{H}_2\text{O})_2$, biphepo を MeOH 中で錯形成反応をさせることで合成した(図 3. 1. 2-6、上) [3]。この錯体結晶(1.7 mg)とポリスチレン(40.3 mg)をトルエン(2 mL)に溶解させ、ガラス基板にキャストして薄膜を形成した。この薄膜に対して、発光スペクトルと発光減衰を評価した。発光減衰から発光寿命は 690 μs と見積もられた(図 3. 1. 2-6、下)。発光スペクトルから放射速度定数について式(1)を用いて見積もった[1]。その際に屈折率はポリスチレンの一般的な屈折率($n=1.59$)を用いた。得られた放射速度定数は 1050 s^{-1} となった。式(2)-(5)より、無輻射速度定数と発光量子効率を見積もったところ[1]、それぞれ 400 s^{-1} 、72%であった。

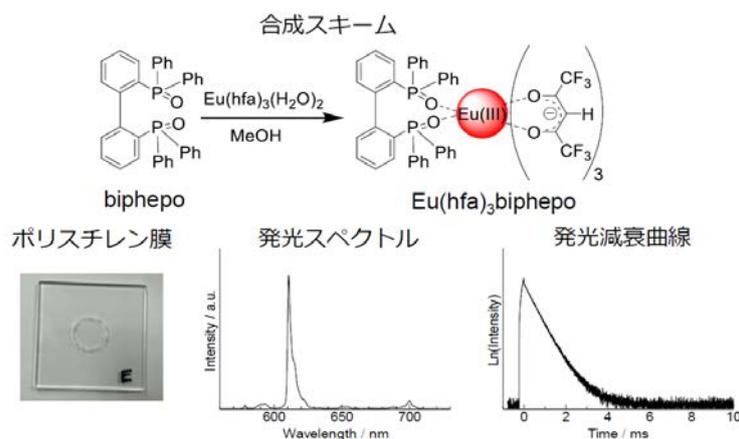


図 3. 1. 2-6 Eu(hfa)₃biphepo の合成スキーム・ポリスチレン膜・
発光スペクトル・発光減衰曲線

3. 1. 2. 6 [Eu(hfa)₃(dppb)]_n

Eu(hfa)₃(H₂O)₂, dppb を MeOH 中で錯形成反応をさせることで合成した (図 3. 1. 2-7、上)。この錯体結晶 (1. 7 mg) とポリスチレン (40. 3 mg) をトルエン (2 mL) に溶解させ、ガラス基板にキャストして薄膜を形成した。この薄膜に対して、発光スペクトルと発光減衰を評価した (図 3. 1. 2-7、下)。発光減衰から発光寿命は 610 μs と見積もられた。発光スペクトルから放射速度定数について式 (1) を用いて見積もった [1]。その際に屈折率はポリスチレンの一般的な屈折率 (n=1. 59) を用いた。得られた放射速度定数は 1330 s⁻¹ となった。式 (2)-(5) より、無輻射速度定数と発光量子効率を見積もったところ [1]、それぞれ 310 s⁻¹、81% であった。

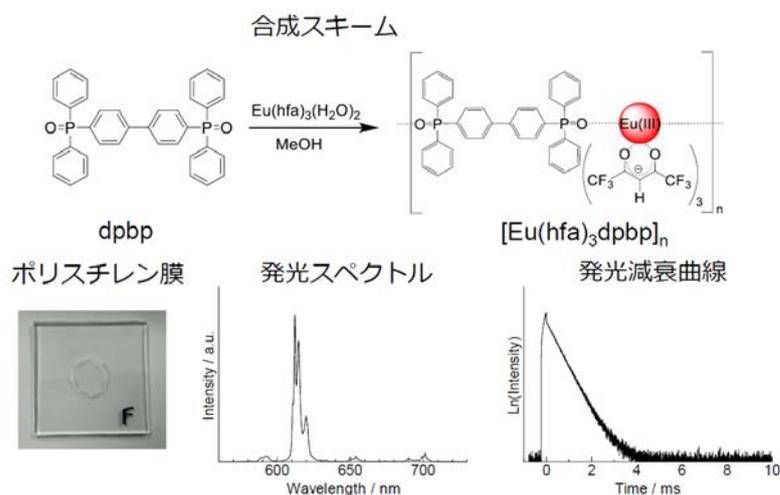


図 3. 1. 2-7 [Eu(hfa)₃(dppb)]_n の合成スキーム・ポリスチレン膜・
発光スペクトル・発光減衰曲線

3. 1. 2. 7 [Eu(hfa)₃(bdpc)]_n

Eu(hfa)₃(H₂O)₂, bdpc を MeOH 中で錯形成反応をさせることで合成した (図 3. 1. 2-8、上) [5]。この錯体結晶 (1. 7 mg) とポリスチレン (40. 3 mg) をトルエン (2 mL) に溶解させ、ガラス基板にキャストして薄膜を形成した。この薄膜に対して、発光スペクトルと発光減衰を評価

した (図 3.1.2-8、下)。発光減衰から発光寿命は 630 μs と見積もられた。発光スペクトルから放射速度定数について式(1)を用いて見積もった[1]。その際に屈折率はポリスチレンの一般的な屈折率($n = 1.59$)を用いた。得られた放射速度定数は 1180 s^{-1} となった。式(2)-(5)より、無輻射速度定数と発光量子効率を見積もったところ[1]、それぞれ 410 s^{-1} 、74%であった。

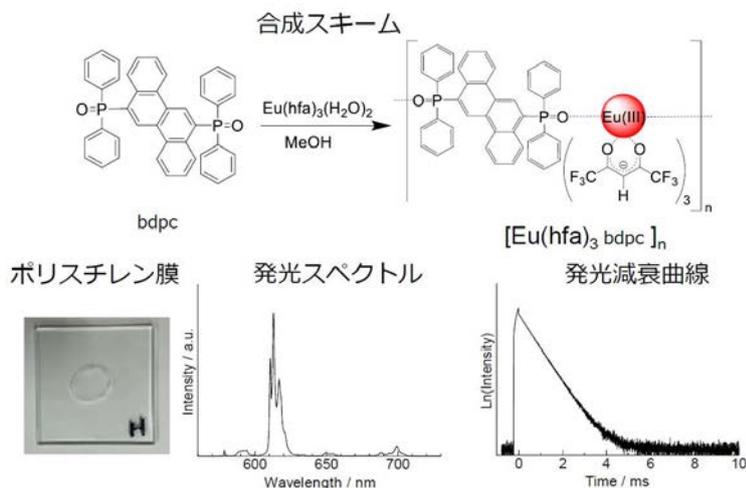


図 3.1.2-8 $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{bdpc})]_n$ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線

3.1.2.8 $\text{Tb}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2$

$\text{Tb}(\text{hfa})_3(\text{H}_2\text{O})_2$ 、TPPO を MeOH 中で錯形成反応をさせることで合成した (図 3.1.2-9、上)。この錯体結晶(1.7 mg)とポリスチレン(40.3 mg)をトルエン(2 mL)に溶解させ、ガラス基板にキャストして薄膜を形成した。この薄膜に対して、発光スペクトルと発光減衰を評価した (図 3.1.2-9、下)。発光減衰から発光寿命は 220 μs と見積もられた。

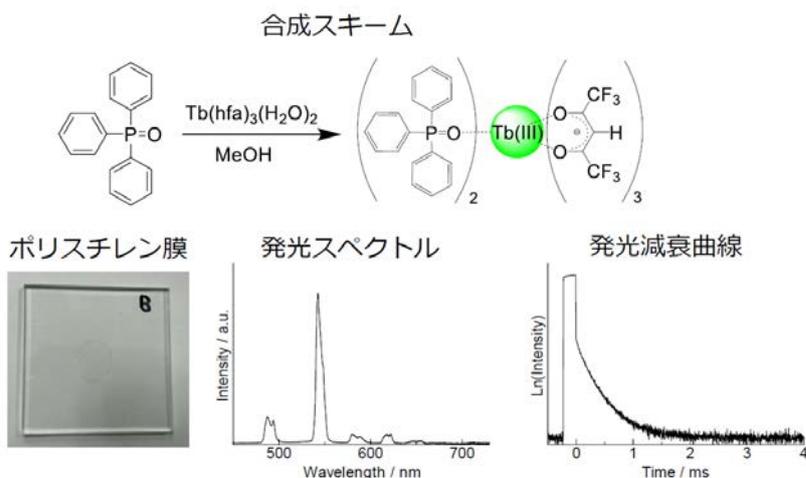


図 3.1.2-9 $\text{Tb}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2$ の合成スキーム・ポリスチレン膜・発光スペクトル・発光減衰曲線

3.1.2.1 から 3.1.2.8 のデータについて表 3.1-1 にまとめる。

表 3.1-1 ポリスチレン膜に分散させた希土類錯体の基礎光物性データ

	$\tau / \mu\text{s}$	放射速度定数/ s^{-1}	無輻射速度定数/ s^{-1}	発光量子効率/%
$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2$	620	1240	370	77
$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-Me})_2$	620	1110	500	69
$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-3Me})_2$	620	1250	370	77
$\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-6OMe})_2$	640	940	620	60
$\text{Eu}(\text{hfa})_3\text{biphepo}$	690	1050	400	72
$[\text{Eu}(\text{hfa})_3\text{dppb}]_n$	610	1330	310	81
$[\text{Eu}(\text{hfa})_3\text{bdpc}]_n$	630	1180	410	74
$\text{Tb}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2$	220	-	-	-

α 線シンチレーションについて JAEA において評価を行った。 $\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-6OMe})_2$ にポリスチレン膜 (5 wt%) に対して α 線を照射したところ、シンチレーションによる発光を確認できた (図 3.1.2-10)。今後、数値の定量化及び他の錯体と比較検討を行っていく予定である。

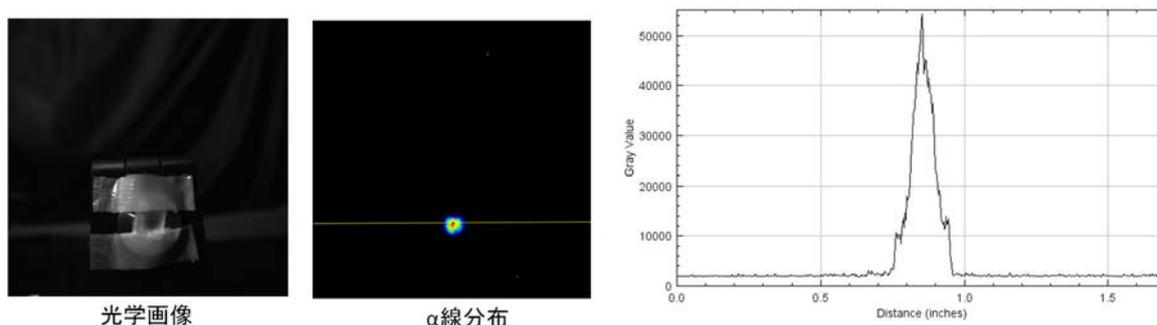


図 3.1.2-10 $\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-6OMe})_2$ ポリスチレン膜の α 線シンチレーション試験

3.1.3 α 線撮像技術の開発

令和 4 年度の JAEA は、市販の $\text{ZnS}(\text{Ag})$ シンチレータ (EJ-440 (Eljen Technology) 製) と CMOS カメラ等を用いて α 線が撮像できるか試験を行った。なお、同一位置・撮像条件で、本事業で開発するシンチレータに置き換えた試験も今後実施していく。メラとしてすでに保有していた電子増倍型 CCD カメラを用いた試験を行った。図 3.1.3-1 に試験のセットアップを示す。カメラとシンチレータ、線源等を暗室中に設置した。レンズとして焦点距離: 8 mm、F 値: 1.4 のレンズを用いた。ものさしを使ってピント合わせを行うとともに、画像のサイズの計測に用いた。線源を横向きにセットし線源に密接する形でシンチレータを置いた。 α 線源として ^{241}Am 線源 (放射能: 4.30 kBq) を用いた。

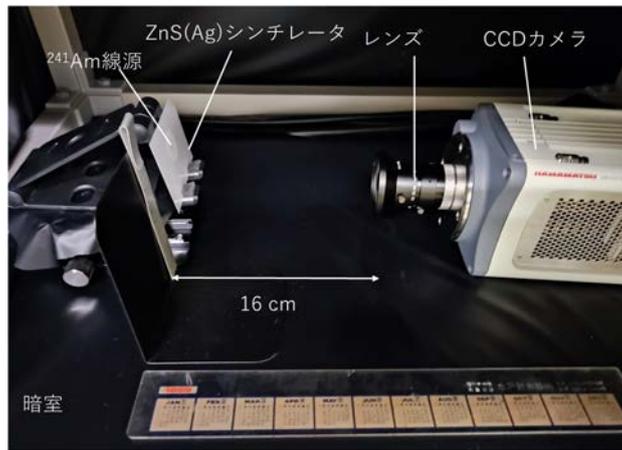


図 3.1.3-1 α 線撮像試験のセットアップ

図 3.1.3-2 に α 線撮像結果を示す。左が光学画像で、右が 5 秒測定 of α 線画像である。 α 線源の部分のみが高い強度となっていることがわかる。撮像時間は 5 秒であり、極めて短時間で α 線の位置検出が可能であることを確認した。

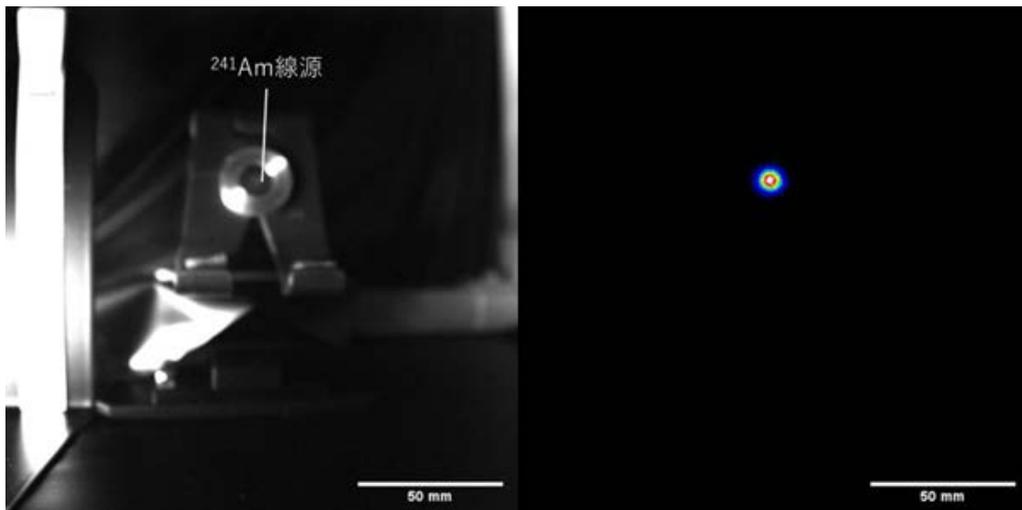


図 3.1.3-2 光学画像（左）と 5 秒測定 of α 線画像（右）

また、図 3.1.3-3 に光学画像と α 線画像の重ね合わせを示す。線源と同位置で α 線分布を可視化できていることがわかる。

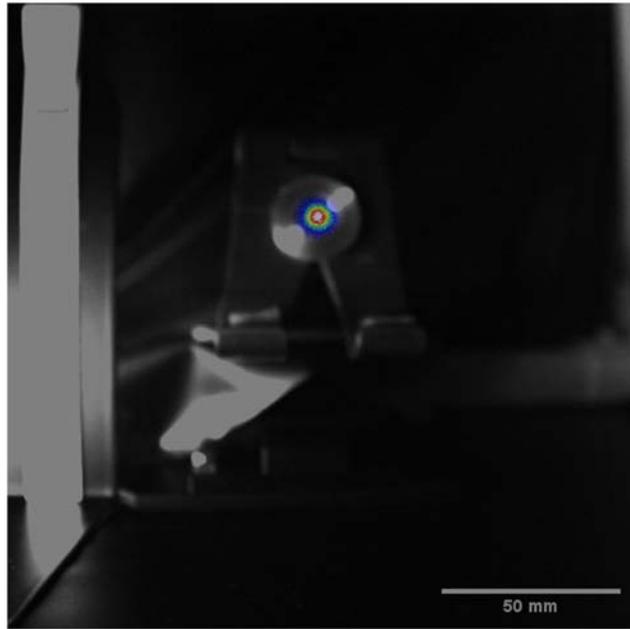


図 3.1.3-3 光学画像と α 線画像の重ね合わせ

手や足に広がった汚染を可視化できるかを確認するため、直径 5 cm のトリウム線源を撮像した（図 3.1.3-4）。位置分布の可視化ができていることを確認するため、文字のコリメータを置いた。 α 線は紙一枚で遮蔽できることから、厚紙を用いてコリメータを作成した。

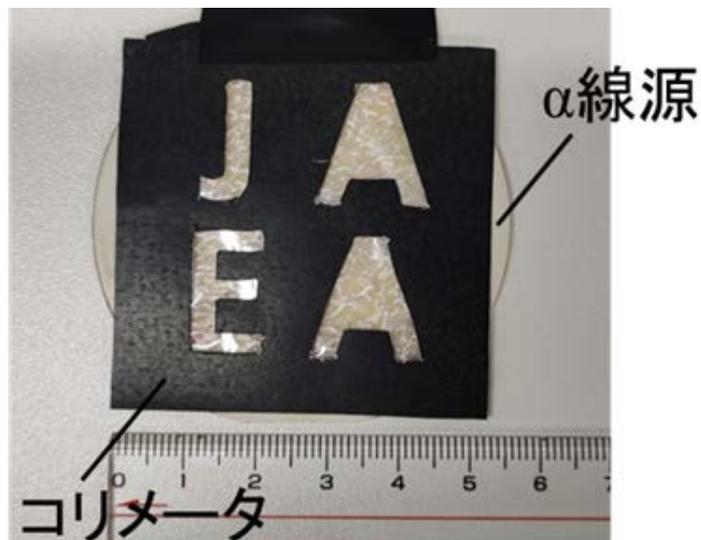


図 3.1.3-4 直径 5cm のトリウム線源と文字のコリメータ

図 3.1.3-5 に α 線撮像結果を示す。1 時間の撮像で明瞭に文字が可視化できることを確認した。本開発は、汚染が確認された場合の詳細測定を想定しており、1 時間の撮像は許容範囲と考えるが、表面密度限度等を担保するために必要な撮像時間についても評価していく予定

である。なお、トリウム線源の放射能は 14000 dpm (約 233 Bq) であるため、表面密度は $233 \text{ Bq} / 19.625 \text{ cm}^2 = 11 \text{ Bq/cm}^2$ である。このレベルの汚染であれば可視化が可能であることを確認した。

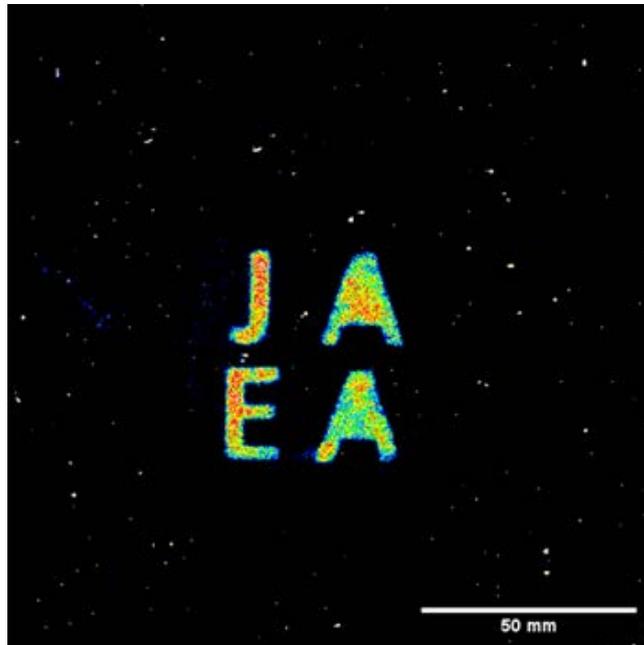


図 3.1.3-5 文字のコリメータの撮像結果

また 視野を確認した。視野は、 $176.2 \text{ mm} \times 176.2 \text{ mm}$ であった。この視野で手と靴底が可視化できるか確認した (図 3.1.3-6)。その結果、今回の装置のセットアップで、手及び靴底の大部分をカバーできる視野を有していることが確認できた。撮像の距離等の撮像条件を最適化することにより、全体をカバーできる視野の検討も行っていく。

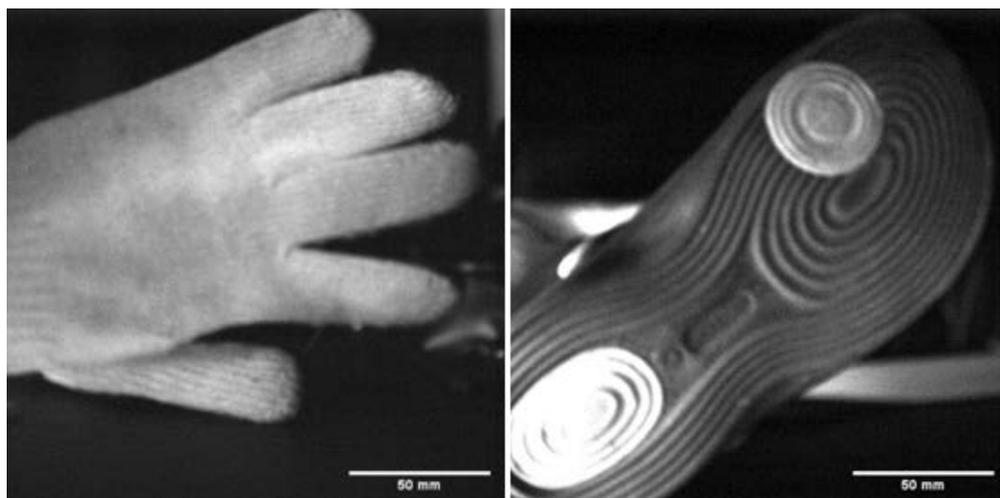


図 3.1.3-6 軍手 (左) と靴底 (右)

3.1.4 まとめ

AD 法による ZnS 等大面積 α 計測用厚膜シンチレータの開発では、厚膜化のための原料粉体材料の選定・評価を行った。市販の ZnS(Ag) を用いて実験を開始した。本年度の実験からは、厚膜化にまだ課題が残るものの、ZnS(Ag) による AD 成膜体によってシンチレーション特性が評価可能であることを示す一定の結果が得られた。

希土類錯体については 8 種の錯体の合成を行い、その錯体をポリスチレン膜に分散させたときの発光特性を評価した。Eu 錯体を含むポリスチレン膜は高い発光量子収率 (>60%) を示した。また、Eu(hfa)₃(TPPO-6OMe)₂ 含有ポリスチレン膜について α 線照射において試験を行ったところ、明確な発光が観測された。次年度以降、数値の定量化及び他の錯体と比較検討を行っていき、 α 線照射で強く光る Eu 錯体を明らかにしていく。

α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発においては、市販の ZnS(Ag) シンチレータと CMOS カメラ等を用いて α 線が撮像できることを確認した。また、視野や検出感度等の評価を行い、手部及び靴底の汚染を一度に可視化できる可能性があることを確認した。

3.2 α ・ β 汚染可視化クロスモニタの開発

3.2.1 ホスウィッチ用シンチレータの開発

3.2.1.1 La-GPS 焼結体作製のための SiO_2 粉末原料の検討

以下の3種類の SiO_2 粉末（いずれも株式会社高純度化学研究所（以下「高純度研」と略す）、3N）を用いて、La-GPS の反応焼結を行った。(a)平均粒径：4 μm 、(b)平均粒径：0.8 μm 、(c)遊星型ボールミル（フリッチュ製 P-6）を用いて(a)を湿式粉砕したもの。これらの粉末の走査型電子顕微鏡写真を図 3.2.1-1 に示す。

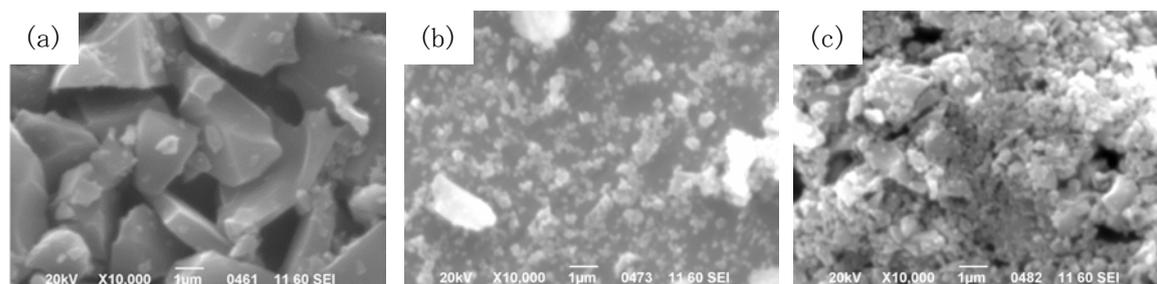


図 3.2.1-1 SiO_2 原料粉末の走査型電子顕微鏡写真

(a)平均粒径 4 μm (b)平均粒径 0.8 μm (c)遊星型ボールミルを用いて(a)を湿式粉砕したもの

他の粉末原料は、 Gd_2O_3 （高純度研、3 N）、 La_2O_3 （高純度研、4N）、 CeO_2 （高純度研、3 N）である。以上の粉末を $(\text{La}_{0.06}\text{Gd}_{0.915}\text{Ce}_{0.025})_2\text{Si}_2\text{O}_7 + \text{SiO}_2$ (8 mol%) となるように秤量し、水を分散媒として、分散剤及びバインダーを加えて湿式混合した。焼結は以下のプログラムで空気中にて行った。昇温時間：4 h、焼結温度：1670 $^{\circ}\text{C}$ 、保持時間：20 h、冷却：炉内放冷。

得られた焼結体の X 線回折パターンを図 3.2.1-2 に示す。平均粒径 4 μm の SiO_2 粉末を用いた場合(a)では、目的相である GPS 以外に、アパタイト相が大量に生成していることがわかる。アパタイト相は希土類元素 (RE) と Si の比が GPS よりも多い $\text{RE}_{9.33}(\text{SiO}_4)_6\text{O}_2$ という組成をとる。したがって、平均粒径が大きい SiO_2 原料を用いた場合には、接点における SiO_2 の量がサブミクロンの粒子で構成されている希土類酸化物に対して相対的に少なくなり、アパタイト相の生成が優先的に起こったと考えられる。これに対して、平均粒径 0.8 μm の SiO_2 粉末を用いた場合(b)には、アパタイト相の生成は全く観察されず、GPS 相の単相となっている。また、平均粒径 4 μm の SiO_2 粉末を粉砕した粉末を用いた場合(c)においても、平均粒径 0.8 μm の場合と同様に、アパタイト相の生成が完全に抑制されている。粉砕された SiO_2 粉末の平均粒径及び粒度分布は現在のところ不明であるが、図 3.2.1-1 の SEM 写真から、大半はサブミクロンで最大でも 2 μm 程度の粒子から構成されていることがわかる。一方、平均粒径 4 μm の粉末は 10 μm 程度に及ぶ粒子も存在している。このことから、平均粒径あるいは粒度分布というよりも今回の場合、最大粒子径が反応焼結により単相を得るためのもっと重要な要素と考えられる。平均粒径 0.8 μm の SiO_2 粉末は現在生産中止となっているため、今後は平均粒径 4 μm の SiO_2 粉末を遊星型ボールミルにより粉砕した粉末を La-GPS 反応焼結用の原料として使用していくこととする。

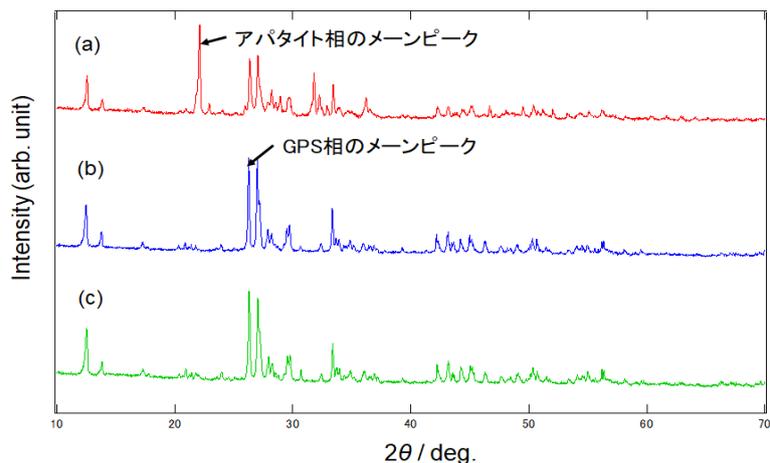


図 3. 2. 1-2 反応焼結後の生成相の X 線回折パターン

- (a) 平均粒径 4 μm の SiO_2 粉末を使用
- (b) 平均粒径 0.8 μm の SiO_2 粉末を使用
- (c) 平均粒径 4 μm の SiO_2 粉末を粉砕した粉末を使用

3. 2. 1. 2 La-GPS 焼結体作製のための成形方法の検討

現有の冷間等方圧プレス装置（内径：80 mm）を用いて、ラバープレス法により焼結前の粉末を厚板状に成形するにあたり、成形後の特に横方向の収縮を極力抑える必要がある。そのために、図 3. 2. 1-3 に示すような金型を試作した。ゴム内に密封充填した原料粉末（約 200 g）に対して、この金型を用いて一軸加圧（約 6 MPa）をかけた後、ラバープレス法による等方圧加圧（約 100 MPa）を行い、引き続き前項で述べた条件で反応焼結を試みた。

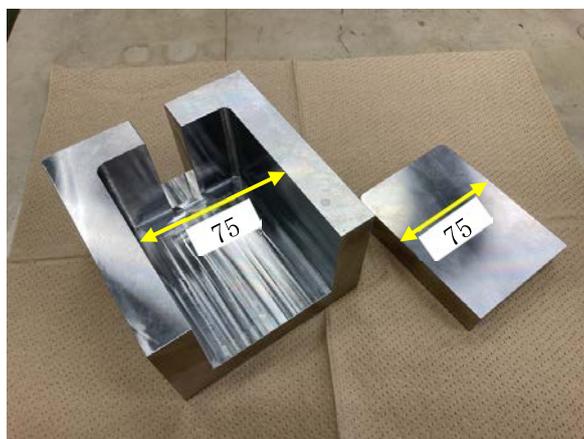


図 3. 2. 1-3 試作した成形用金型

得られた成形体及び焼結体の横幅は、図 3. 2. 1-4 に示すように、それぞれ約 63 mm 及び約 56 mm であり、ホスウィッチ検出器に必要な 50 mm 角の板状シンチレータを採取可能である。現時点では、図 3. 2. 1-3 において、一軸加圧時に下方向に粉体が逃げる余地あるため、それを改善するために令和 5 年度においては、76 mm×76 mm の角上に成形できる金型を作製す

る予定である。焼結体においてクラックが生じているのは、焼結条件がまだ最適化されていないためであり、引き続き、昇温速度、焼結温度、保持温度等を詳細に検討していく。

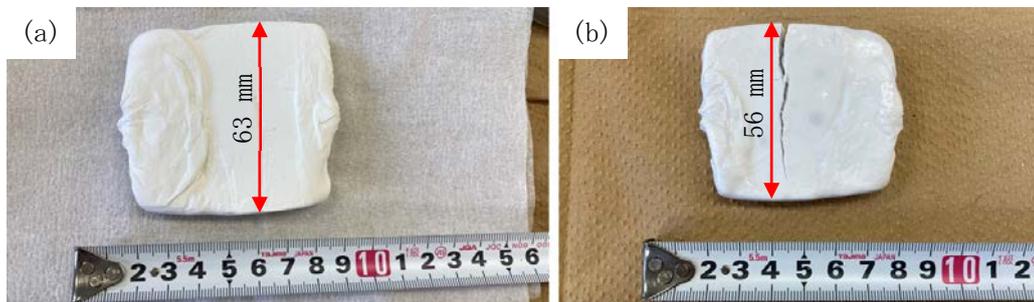


図 3.2.1-4 (a) ラバープレス後の成形体、(b) 得られた焼結体

3.2.1.3 La-GPS 焼結体のアニール条件能の検討

反応焼結は空気中で行うために、発光中心となる Ce の原子価状態が 3 価と 4 価の混合状態となるのは避けられない。4 価の Ce は発光に全く寄与しないため、3 価の Ce を増やすために、低酸素分圧下でのアニールが必須である。今回は一般的に市販されている窒素ガス（純度：99.99%）を雰囲気として、1200、1300、1400 °C で 10 h のアニールを行った。アニール後のサンプルのフォトルミネセンススペクトルを図 3.2.1-5 に示す。高温でのアニールにより明らかに発光強度が増大していることがわかる。発光量のより定量的な検討は、β線シンチレーションを行う必要があるが、より強い発光を目指して雰囲気ガス中の酸素濃度、アニール時間等をさらに検討していく。

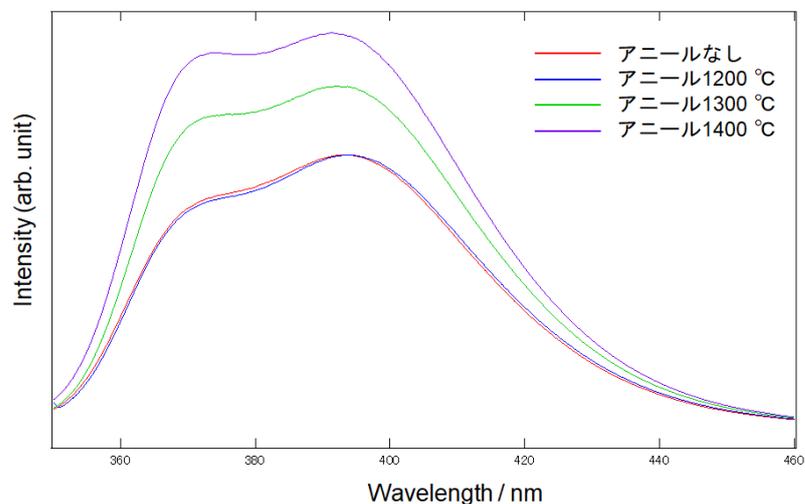


図 3.2.1-5 フォトルミネッセンス強度に及ぼすアニール温度の効果

3.2.2 エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価

北大は、これまでに得られたノウハウに基づき、取得データのハンドリング・分析プログラムの仕様を策定した。また、JAEA と協力し、既存の測定装置と組み合わせることで次年度以降の装置製作で必要となる問題点を抽出した。JAEA は、北大と協議しながらソフトウェアならびにエネルギー・分布計測装置の仕様策定を進めた。以下にそれらの実施内容を記す。

クロスモニタに必要な機能として、幾つかの機能をソフトに設けた。すなわち、データ収集モード、線種弁別モード、2次元分布モード、エネルギーモードを設けた。図 3.2.2-1 にソフトの各モードの画面を示す。まず、データ収集モードでは、データの収集及び停止を行う。次に、線種弁別モードでは、 α 線と β 線の波形情報を2次元的にプロットし、弁別閾値を設けて α 線と β 線を弁別する。図 3.2.2-1(b)は、 α 線と β 線を同時に放出する線源を測定した結果である。 α 線と β 線の2つの直線的なプロットが確認できる。この弁別のアルゴリズムは JAEA の過去の論文や特許に基づいている[6][7][8][9]。弁別をした後、2次元分布表示モードで α 線と β 線の位置分布を可視化する。エネルギーモードでは、 α 線と β 線それぞれのエネルギースペクトルを表示する。

このソフトを既存の測定装置と組み合わせ、JAEA において JAEA・北大で次年度以降の装置製作で必要となる問題点を抽出するための共同実験を実施した。 α 線と β 線を同時に放出する線源を測定し、 α 線と β 線の弁別可視化ができることを確認した。さらに、エネルギー測定が可能であることを確認するため、 α 線源として ^{241}Am 線源を測定し、エネルギースペクトルに 5.5 MeV α 線のピークを確認した。

共同実験を実施した後、次年度以降の装置製作で必要となる以下の改良点を抽出した。

- ・機能としては十分であるが、現場で誰でも簡単に使えるよう、使い勝手を改良する必要がある。具体的には、ボタン一つで α 線と β 線を弁別し、プルトニウム汚染を判定できるような簡便に使用可能なモードを搭載することを検討している。
- ・弁別が完全に上手くいかない場合がある(α 線が β 線の領域に入ってしまうことがある)。その場合、判別領域を調整しグレーゾーンに入ったカウントを除去するような機能を検討していく。

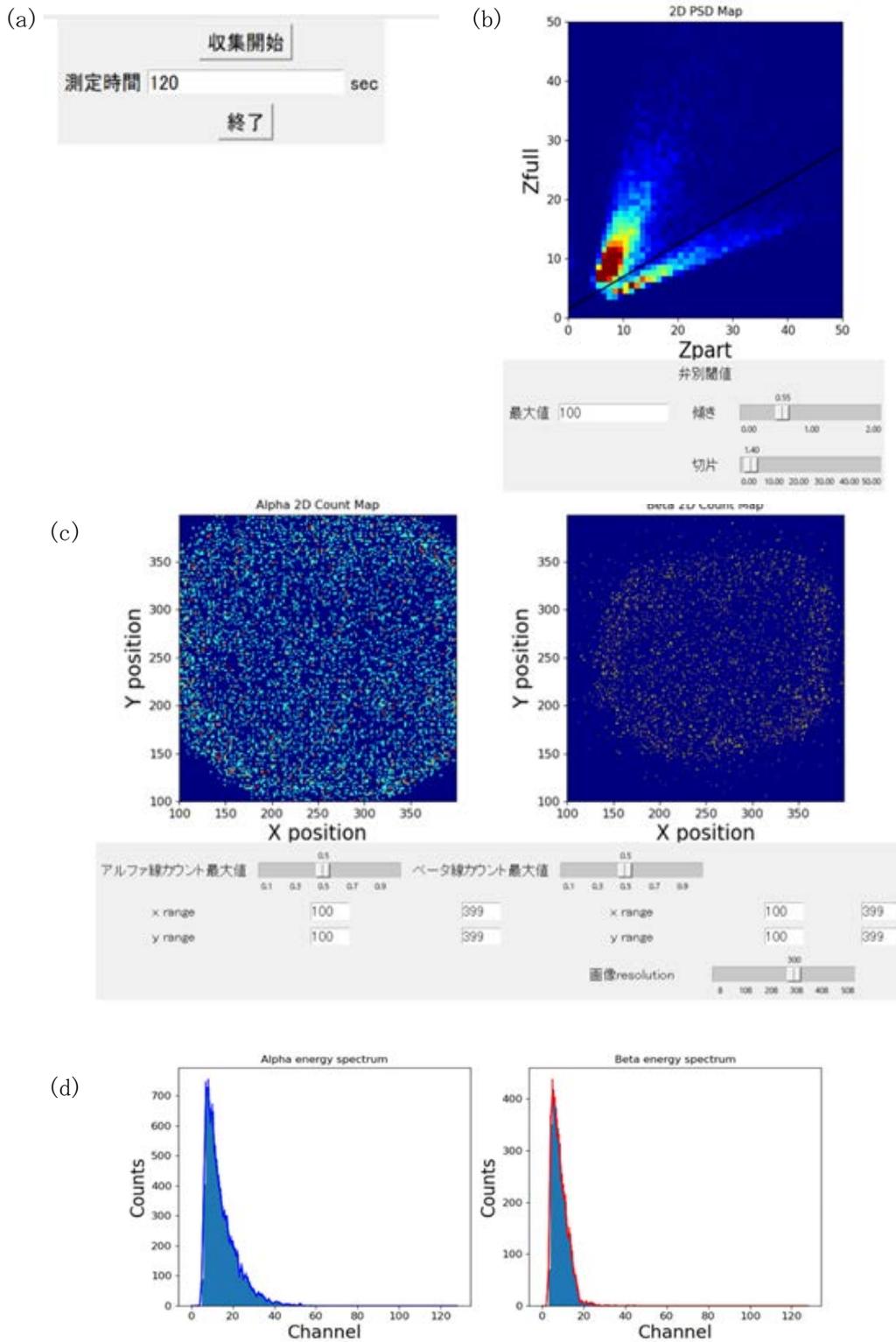


図 3.2.2-1 ソフトの各モード画面

(a)データ収集モード (b)線種弁別モード α 線と β 線の2つの直線的なプロットが確認でき、このプロットに対し直線で弁別閾値を設定する
 (c)2次元分布モード (d)エネルギーモード

3.2.3 まとめ

ホスウィッチ用シンチレータの開発では、 SiO_2 原料、成形方法及びアニール条件の検討を行った。入手可能な SiO_2 市販粉末を遊星型ボールミル粉砕することにより、反応焼結による La-GPS の単相化を実現した。またラバープレス前の金型を使用した一軸加圧が、焼結体の必要なサイズを実現するのに有効であった。さらに、窒素雰囲気中の高温でのアニールがフォトルミネッセンス強度の増大に効果的であった。

エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価では、これまでに得られたノウハウに基づき、取得データのハンドリング・分析プログラムの仕様を策定した。さらに、既存の測定装置と組み合わせることで次年度以降の装置製作で必要となる改良点を抽出した。抽出した課題は、主に現場適用を見据えたハード・ソフトの使い勝手の部分である。この点について、次年度の装置製作で改良していく。

3.3 研究推進

令和4年10月14日に北大において、メンバー全員の出席のもと、キックオフミーティングを開催した。令和4年度における各機関において達成すべき目標の再確認と目標達成に向けた技術的な問題点の抽出ならびにそれに対する解決策を議論した。

当初計画していた技術評価委員会の開催については、その準備を行い開催は令和5年度以降とした。

令和4年12月21日にオンラインにて井口P0による中間フォローがあり、業務の進捗状況が評価された。

4. 結言

1F の廃炉事業に携わる作業者の安心・安全を確保するべく、汚染頻度の高い足裏、両手表面を対象とした「 α 汚染可視化ハンドフットモニタ」と着衣等の汚染検査に使用する「 α ・ β 汚染可視化クロスモニタ」(α ・ β 汚染分布・エネルギー計測可搬型ホスウィッチ検出器) から構成される新規装置の開発を目標として、新しいシンチレータ材料及び装置の実用化の可能性について基礎的な検討を行った。

α 汚染可視化ハンドフットモニタ用の α 線検出用シンチレータ材料として AD 法による ZnS(Ag) 厚膜作製及び希土類錯体について検討した。AD 法による厚膜作製においては、市販の ZnS(Ag) を用いて実験を開始し、厚膜化にまだ課題が残るものの、ZnS(Ag) による AD 成膜体によってシンチレーション特性が評価可能であることを示す一定の結果が得られた。今後は、厚膜化に取り組むとともに成膜後のアニールについても検討し、 α 線の計測感度の向上を狙う。希土類錯体については、Eu 錯体を含むポリスチレン膜は高い発光量子収率 (>60%) を示すとともに、Eu(hfa)₃(TPPO-60Me)₂ 含有ポリスチレン膜について α 線照射において、明確な発光が観測された。 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発においては、市販の ZnS(Ag) シンチレータと CMOS カメラ等を用いて α 線が撮像できることを確認した。今後は、数値の定量化及び他の錯体と比較検討を行い、 α 線照射で強く光る希土類錯体を明らかにしていく。 α 汚染可視化ハンドフットモニタの要素技術開発においては、市販の ZnS(Ag) シンチレータと CMOS カメラ等を用いて α 線が撮像できることを、手部及び靴底の汚染を一度に可視化できる可能性があることを確認した。今後は、試作した装置を使い勝手が良いものに仕上げるとともに、現在、開発中の AD 厚膜及び希土類錯体をシンチレータとした撮像試験を行っていく。

α ・ β 汚染可視化クロスモニタにおけるホスウィッチ用シンチレータの開発では、入手可能な SiO₂ 市販粉末を遊星型ボールミル粉砕することにより、反応焼結による La-GPS の単相化を実現した。また、ラバープレス前の金型を使用した一軸加圧が、焼結体の必要なサイズを実現するのに有効であることと窒素雰囲気中の高温でのアニールがフォトルミネッセンス強度の増大に効果的であることを見出した。今後は、50 mm 角の La-GPS 多結晶シンチレータをルーチンに作成できるプロセスを確立するとともに、対 β 線シンチレーション特性を検討する。エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価では、これまでに得られたノウハウに基づき、取得データのハンドリング・分析プログラムの仕様を策定した。さらに、既存の測定装置と組み合わせることで次年度以降の装置製作で必要となる改良点、すなわち現場適用を見据えたハード・ソフトの使い勝手の部分を抽出した。今後は、抽出した課題について新規導入予定の装置製作で改良していく。

参考文献

- [1] Nakajima, A. et al., Hyper-stable organo-Eu^{III} luminophore under high temperature for photo-industrial application, *Sci. Rep.*, 6, 2016, 24458, 9p.
<https://doi.org/10.1038/srep24458>
- [2] Hasegawa, Y. et al., Effect of Ligand Polarization on Asymmetric Structural Formation for Strongly Luminescent Complexes, *Eur. J. Inorg. Chem.*, 2013, 34, 2013, pp. 5911-5918.
<https://doi.org/10.1002/ejic.201301102>
- [3] Nakamura, K. et al., Enhanced Lasing Properties of Dissymmetric Eu(III) Complex with Bidentate Phosphine Ligands, *J. Phys. Chem. A*, 111, 2007, pp. 3029-3037.
<https://doi.org/10.1021/jp067672h>
- [4] Miyata, K. et al., Thermostable Organo-phosphor:Low-Vibrational Coordination Polymers That Exhibit Different Intermolecular Interactions, *ChemPlusChem*, 77, 2012, pp. 277-280.
<https://doi.org/10.1002/cplu.201200002>
- [5] Kitagawa, Y. et al., Long-Range LMCT Coupling in Eu^{III} Coordination Polymers for an Effective Molecular Luminescent Thermometer, *Chem. Eur. J.*, 27, 2021, pp. 264-269.
<https://doi.org/10.1002/chem.202002628>
- [6] Morishita, Y. et al., A phoswich alpha/beta detector for monitoring in the site of Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, *Radiat. Meas.*, 160, 2023, 106896, 9p.
<https://doi.org/10.1016/j.radmeas.2022.106896>
- [7] Morishita, Y. et al., Organic scintillator-based alpha/beta detector for radiological decontamination, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. A: Accel. Spectrom. Detect. Assoc. Equip.*, 935, 2019, pp. 207-213.
<https://doi.org/10.1016/j.nima.2019.04.024>
- [8] 日本原子力研究開発機構, 放射線検出器, 特開 2021-162421.
- [9] 日本原子力研究開発機構, 核物質分布測定装置, 特開 2021-162422.

