



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5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)

– FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource
Development Project –

福島廃炉安全工学研究所 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 and Engineering Institute
Hokkaido University

October 2025

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5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 福島廃炉安全工学研究所
廃炉環境国際共同研究センター

北海道大学

(2025年4月25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5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、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5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、「α汚染可視化ハンドフットモニタ」及び「α・β汚染可視化クロスモニタ」の装置開発を目標としている。α線シンチレータ材料として、令和4年度に引き続き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、ZnS(Ag)単独粉末及びZnS(Ag)/アルミナ混合粉末によるAD成膜体について、シンチレーション特性評価を実施した。その結果、α線に対する発光量は令和4年度から向上した。また、希土類錯体をポリスチレンに分散させた膜を用いて、市販プラスチックシンチレータ（サンゴバン製、BC400）よりも最大で12.5倍大きいシンチレーション強度を得た。α線撮像技術の開発においては、新規シンチレータの評価を重点的に行った。AD法によるZnS膜については5分測定で、希土類錯体については1分測定でα線の分布を確認できた。ホスウィッチ用シンチレータの開発では、La-GPS多結晶薄板の製造工程における、成形用金型、焼結条件、切断工程、アニール条件、研削/研磨工程を最適化し、50mm角のLa-GPS多結晶薄板をほぼルーチンに製造する工程を確立した。また、β線検出用材料として、十分な性能を発揮できることを確認した。α・β汚染可視化クロスモニタの開発では、現場での使い勝手も含めた改善点を抽出・改良型の装置に反映した。さらに、試作したクロスモニタの基本性能を評価し、α線エネルギーと位置分布情報を得た。ホスウィッチ検出器の評価試験では、検出器出力波形の全積分と部分積分から、α線とβ線を明確に弁別することに成功した。

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)

— FY2023 Nuclear Energy Science & Technology and Human Resource Development Project —

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

Hokkaido University

(Received April 25, 2025)

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 FY2023.

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 FY2022, this report summarizes the research results of the “Development of elemental technologies of hand-foot-cloth monitors for α -contamination visualization” conducted in FY2023.

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. ZnS(Ag) thick films by AD method and rare earth complexes have been studied for development of α -ray scintillator materials. The scintillator properties of the newly prepared ZnS(Ag) thick films were improved from those prepared in 2022. A rare earth complex shows strong emission intensity under α -ray irradiation, which was 12.5 times higher than that of a commercially available plastic scintillator (Saint-Gobain, BC400). By optimizing the manufacturing process conditions (molding die, sintering conditions, cutting process, annealing conditions, grinding/polishing processes) for La-GPS polycrystalline thin plates, the preparing process for 50 mm square La-GPS was established. The prepared La-GPS provided excellent performance for β -ray scintillators. The cloth monitors for α/β -contamination visualization were also improved for the reflection of the actual situation. Furthermore, the basic performance of the prototype cloth monitors was evaluated, and alpha-ray energy and position distribution information were obtained. In an evaluation test of the phoswich detector, a precise discrimination between α - and β -rays was achieved.

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 |
| 7. 令和 5 年度 採択課題 | 14 |
| 付録 成果報告書 | 17 |

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 |
| 7. Accepted Proposal in FY2023..... | 14 |
| Appendix Result Report | 17 |

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） |

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 2 課題、日露 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 | 慶應義塾大学 |

研究人材育成型廃炉研究プログラム

| 課題名 | 研究代表者 | 所属機関 |
|--|--|--------|
| 燃料デブリ取り出し時における炉内状況把握のための遠隔技術に関する研究人材育成 | 浅間 一 | 東京大学 |
| 化学計測技術とインフォマティクスを融合したデブリ性状把握手法の開発と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）

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）

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 |
| 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 |

| 課題名 | 研究代表者 | 所属機関 |
|--|-------|--------|
| 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）

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 (～R5.3.31) 理化学研究所 (R5.4.1～) |
| 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 |

7. 令和5年度 採択課題

令和5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5年3月1日～令和5年4月14日（課題解決型）

令和5年4月12日～令和5年6月15日（国際協力型 日英共同研究）

課題数：9 課題

課題解決型廃炉研究プログラム 7 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5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 |
|--|-------|-------|
| 遮蔽不要な耐放射線性ダイヤモンド中性子計測システムのプロトタイプ開発 | 金子 純一 | 北海道大学 |
| 簡易非破壊測定に向けた革新的なn・γシンチレーション検出システムの開発 | 鎌田 圭 | 東北大学 |
| ペDESTAL部鉄筋コンクリート損傷挙動の把握に向けた構成材料の物理・化学的変質に関する研究 | 五十嵐 豪 | 名古屋大学 |
| 動画像からの特徴量抽出結果に基づいた高速3次元炉内環境モデリング | 中村 啓太 | 札幌大学 |
| 放射性コンクリート廃棄物の減容を考慮した合理的処理・処分方法の検討 | 小崎 完 | 北海道大学 |

| 課題名 | 研究代表者 | 所属機関 |
|-----------------------------------|-------|------|
| 高バックグラウンド放射線環境における配管内探査技術の開発 | 鳥居 建男 | 福井大学 |
| PCV 気相漏洩位置及び漏洩量推定のための遠隔光計測技術の研究開発 | 椎名 達雄 | 千葉大学 |

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 |
|---|---------------------------|-------|
| 革新的分光画像解析による燃料デブリの可視化への挑戦と LIBS による検証 | 牟田 浩明 | 大阪大学 |
| 燃料デブリ除去に向けた様々な特性をもつメタカオリンベースのジオポリマーの設計と特性評価 | Yogarajah Elakneswaran | 北海道大学 |

本報告書は、以下の課題の令和5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 5 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 R05I056)

成果報告書

令和 6 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 5 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 | 2-3 |
| 2.2 実施体制 | 2-4 |
| 2.3 令和5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（再委託先：産総研） | 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（北大） | 3-5 |
| 3.1.3 α 線撮像技術の開発（連携先：原子力機構） | 3-8 |
| 3.1.4 まとめ | 3-16 |
| 3.2 $\alpha \cdot \beta$ 汚染可視化クロスモニタの開発 | 3-17 |
| 3.2.1 ホスウィッチ用シンチレータの開発（北大） | 3-17 |
| 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、連携先：原子力機構） | 3-22 |
| 3.2.3 ホスウィッチ検出器の性能評価（連携先：原子力機構） | 3-25 |
| 3.2.4 まとめ | 3-26 |
| 3.3 研究推進 | 3-27 |
| 4. 結言 | 4-1 |
| 参考文献 | 5-1 |

執筆者リスト

研究代表者

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 | 希土類錯体膜及び単結晶の光物性値 | | 3-6 |

図一覧

| | | | |
|------------|--|-----|------|
| 図 2.1-1 | 実施体制図 | ... | 2-4 |
| 図 3.1.1-1 | Eljen Technology 製、ZnS(Ag)粉末 (EJ-600) の断面 SEM 像及び EDX 像 | ... | 3-2 |
| 図 3.1.1-2 | ヘリウム粒子搬送ガスによる ZnS(Ag)厚膜の断面 SEM 像 (左：成膜層全体、右：基板界面近傍) | ... | 3-2 |
| 図 3.1.1-3 | ヘリウム粒子搬送ガスによる ZnS(Ag)厚膜の断面 EDX 像 (基板界面近傍) | ... | 3-3 |
| 図 3.1.1-4 | ZnS(Ag)/アルミナ混合粉による AD 膜の光学写真 (左) と 段差計データ (右) | ... | 3-3 |
| 図 3.1.2-1 | 合成した希土類錯体の分子構造及び PS 膜の発光の様子 | ... | 3-5 |
| 図 3.1.2-2 | α 線シンチレーションの励起状態ダイナミクスの模式図 | ... | 3-6 |
| 図 3.1.3-1 | 新規シンチレータ測定の写真 | ... | 3-8 |
| 図 3.1.3-2 | 評価方法 | ... | 3-9 |
| 図 3.1.3-3 | プラスチックシンチレータを用いて測定した α 線分布 (左) と 輝度プロファイル (右) : 5分測定の結果 | ... | 3-9 |
| 図 3.1.3-4 | 産総研の AD 膜シンチレータを線源にセットした写真 | ... | 3-10 |
| 図 3.1.3-5 | AD 膜シンチレータ (原料粉=ZnS:Ag、膜厚=10-20 μm) : 5分測定の結果 | ... | 3-10 |
| 図 3.1.3-6 | AD 膜シンチレータ (原料粉=ZnS:Ag+アルミナ (重量比 1:1 混合) 膜厚=5-10 μm) : 5分測定の結果 | ... | 3-11 |
| 図 3.1.3-7 | AD 膜シンチレータ (原料粉=ZnS:Ag+アルミナ (重量比 1:1 混合) 膜厚=10-20 μm) : 5分測定の結果 | ... | 3-11 |
| 図 3.1.3-8 | プラスチックシンチレータを用いて測定した α 線分布 (左) と 輝度プロファイル (右) : 1分測定の結果 | ... | 3-12 |
| 図 3.1.3-9 | 北大のシンチレータを線源にセットした写真 | ... | 3-13 |
| 図 3.1.3-10 | ポリスチレン自立膜 10wt%Eu 錯体 : 1分測定の結果 | ... | 3-13 |
| 図 3.1.3-11 | ポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体 : 1分測定の結果① | ... | 3-14 |
| 図 3.1.3-12 | ポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体 : 1分測定の結果② | ... | 3-14 |
| 図 3.1.3-13 | ポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体 : 1分測定の結果③ | ... | 3-15 |
| 図 3.2.1-1 | 試作した金型 (左：金型 2 号、右：金型 3 号) | ... | 3-18 |
| 図 3.2.1-2 | 金型 3 号を使用した場合の多結晶体全体 (左) と切断後の薄板 (右) | ... | 3-18 |
| 図 3.2.1-3 | 種々の昇温時間と保持時間の組み合わせにおける多結晶体の微構造 : ハイフン前の数字が昇温時間、ハイフン後が保持時間 (単位:h) | ... | 3-19 |
| 図 3.2.1-4 | 種々のアニール条件によって得られた多結晶体のフォトルミネッセンス | ... | 3-20 |
| 図 3.2.1-5 | ベータ線 (^{90}Sr) シンチレーションの結果 | ... | 3-21 |
| 図 3.2.1-6 | ベータ線 (^{90}Sr) シンチレーションにおける集光強度の分布 | ... | 3-21 |
| 図 3.2.2-1 | 試作したエネルギー・分布計測装置 | ... | 3-22 |
| 図 3.2.2-2 | ホスウィッチ検出器の構造 | ... | 3-22 |
| 図 3.2.2-3 | エネルギー・分布計測装置の開発に伴う改良点検討 | ... | 3-23 |
| 図 3.2.2-4 | エネルギー・分布計測装置の開発に伴う改良点議論・課題抽出の様子 | ... | 3-23 |
| 図 3.2.2-5 | 基本性能評価の概念図 | ... | 3-24 |
| 図 3.2.2-6 | ^{241}Am 線源の 5.5 MeV α 線エネルギースペクトル | ... | 3-24 |

| | | | |
|-----------|--|-------|------|
| 図 3.2.2-7 | ^{241}Am 線源の α 線の 2 次元位置分布 | | 3-25 |
| 図 3.2.3-1 | 全積分と部分積分の 2 次元プロット | | 3-25 |
| 図 3.3-1 | 1F 視察時の様子 | | 3-27 |
| 図 3.3-2 | 第 3 回全体ミーティングの様子 | | 3-27 |

略語一覧

| | |
|--------|--|
| 原子力機構 | : 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) |
| SEM | : 走査型電子顕微鏡 |
| EDX | : エネルギー分散型 X 線分光 |
| XRD | : X 線回折 |

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員の 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、作業員の安全・安心確保に貢献する。

【令和4年度の成果概略】

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 Aerosol Deposition（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-6OMe)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碎することにより、反応焼結による La-substituted Gadolinium Pyrosilicate (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令和6年度以降の装置作製で必要となる改良点を抽出した。

令和4年度までの成果報告書：

- ・ 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に関する要素技術開発（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
JAEA-Review 2024-006
<https://doi.org/10.11484/jaea-review-2024-006>

【令和5年度の成果概略】

α 汚染可視化ハンドフットモニタ用の新規 α 線検出用シンチレータ材料として、令和4年度に引き続き 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、ZnS(Ag)単独粉末及び ZnS(Ag)/アルミナ混合粉末による AD 成膜体について、シンチレーション特性評価を実施した。その結果、 α 線に対する発光量は令和4年度から向上した。 α 線計測用新規有機シンチレータの開発では希土類錯体をポリスチレンに分散させた膜を用いて市販のプラスチックシンチレータ（サンゴバン製、BC400、57 mm）よりも最大で12.5倍大きいシンチ

レーション強度を得た。これは、(1)効率的なポリスチレンから配位子へのエネルギー移動及び(2)希土類錯体の高効率な発光に起因していると考えられる。 α 線撮像技術の開発においては、本事業において開発する新規シンチレータの評価を重点的に行った。AD法によるZnS膜については、5分測定で α 線の分布を確認した。市販のプラスチックシンチレータの輝度との比は0.30~0.31であった。一方、希土類錯体については、1分測定で α 線の分布を確認した。すべてのサンプルが市販プラスチックシンチレータより高い輝度を示すことを明らかにした。

ホスウィッチ用シンチレータの開発では、La-GPS多結晶薄板の製造工程における、成形用金型、焼結条件、切断工程、アニール条件、研削/研磨工程を最適化し、50 mm角のLa-GPS多結晶薄板をほぼルーチンに製造する工程を確立した。また、 β 線検出用材料として、十分な性能を発揮できることを確認した。 α ・ β 汚染可視化クロスモニタの開発では、現場での使い勝手も含めた改善点を抽出・改良型の装置に反映した。さらに、試作したクロスモニタの基本性能を評価し、 α 線エネルギーと位置分布情報を得た。ホスウィッチ検出器の評価試験では、検出器出力波形の全積分と部分積分から、 α 線と β 線を明確に弁別することに成功した。

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)「 $\alpha \cdot \beta$ 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ナル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なしにキレート剤 (Diethylenetriamine Pentaacetic Acid : DTPA) 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ナル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 \times 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 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 (原子力機構) | α カメラ試作 | 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、原子力機構) | ソフトウェア開発 | エネルギー・分布計測装置の作製と性能評価 | | 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 (原子力機構) | | 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者であり、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鍵となる。そこで、 α 線用シンチレータの開発として、①AD 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（再委託先：産総研）

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、国立研究開発法人産業技術総合研究所（以下、「産総研」と略す。）が担当する。AD 法は原料粉を真空チャンバー中に吸引し、ガラス等の基板の上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作製している。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作製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）

国立大学法人北海道大学（以下、「北大」と略す。）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・無機ハイブリット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（連携先：原子力機構）

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、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構（以下、「原子力機構」と略す。）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 $\alpha \cdot \beta$ 汚染可視化クロスモニタの開発

本装置は可搬型装置で、作業者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）の異なる二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ほうが好ましい。そこで、平成24年度 JST 先端計測分析技術・機器開発プログラムで基礎開発を行った GPS($\text{Gd}_2\text{Si}_2\text{O}_7:\text{Ce}$)系焼結体シンチレータを使用する。Gadolinium Pyrosilicate (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

北大と原子力機構が協力して開発を進める。計測装置に関しては、平成24年度 JST 先端計測分析技術・機器開発プログラム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。すでに原子力機構の森下が令和元年～令和2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

原子力機構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 $\alpha \cdot \beta$ 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。

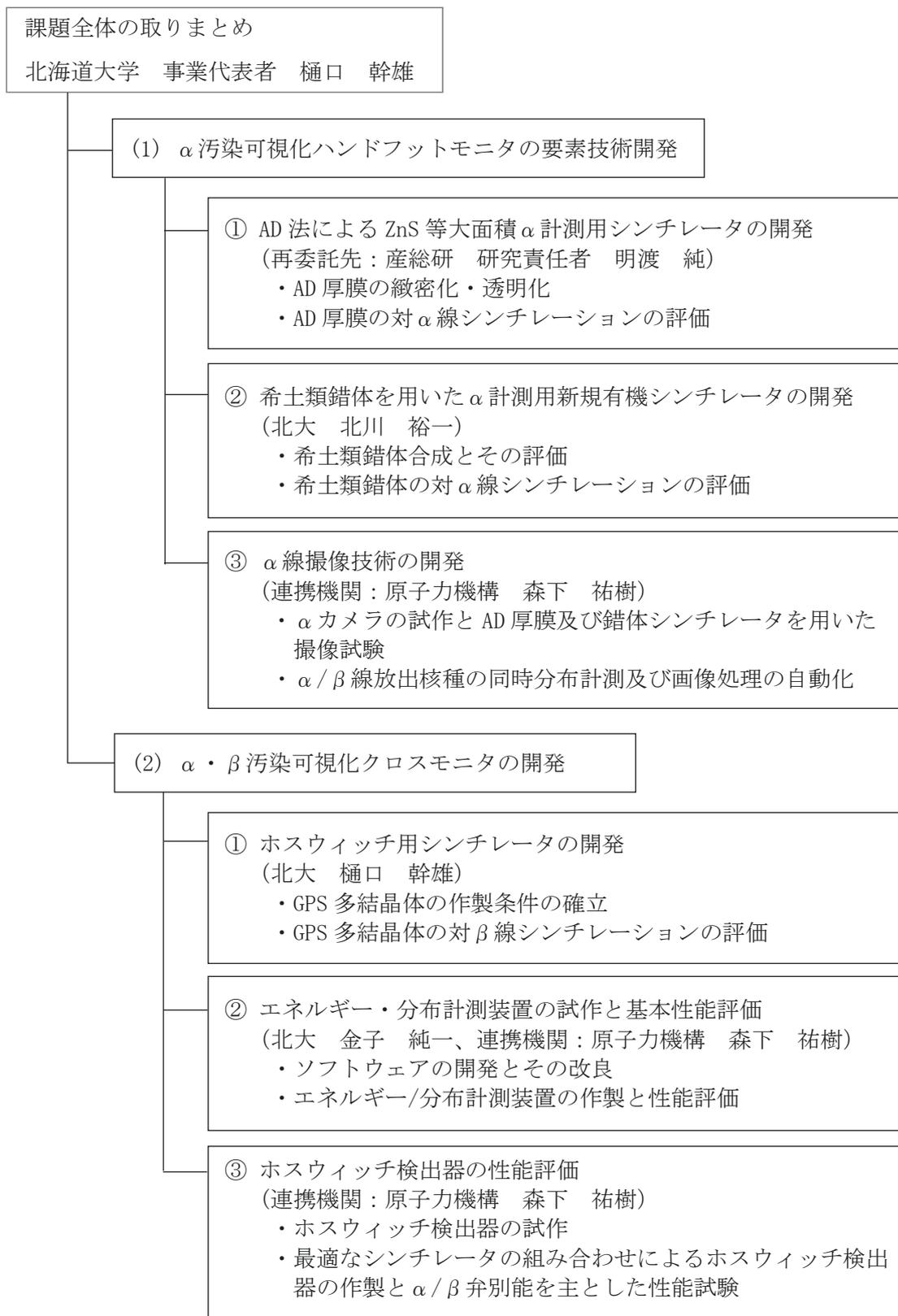


図 2.1-1 実施体制図

2.3 令和5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（再委託先：産総研）

AD厚膜の緻密化・透明化のための粉体の調製法の開発を行う。具体的には、原料粉末の改質のために粉砕法や熱処理を見直し、基板への密着性の改善と厚膜化を進め、分光特性やシンチレーション特性の向上を図る。

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）

令和4年度に引き続き、ユウロピウム錯体とテルビウム錯体を合成し、発光性の希土類錯体を作製した。作製した希土類錯体について、基礎光物性を評価するとともに、 α 線シンチレーションの評価を行う。さらに、ジベンゾイルメタンとフェナントロリン配位子を導入したEu錯体と併せて比較することにより、シンチレータ発光強度を上げるためのメカニズムに関する知見を得る。

③ α 線撮像技術の開発（連携先：原子力機構）

新規シンチレータとCMOSカメラ等を用いて、 α 線が撮像できるか試験を行う。また、撮像試験に必要なソフト開発を行う。

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）

ホスウィッチ検出器に実装可能なサイズのLa-GPSの大型多結晶体をルーチンに作製する方法の確立に向けて、原料粉の混合方法、成形方法や焼成方法を検討する。また、多結晶体についてベータ線シンチレーション特性を測定し、ホスウィッチ検出器用材料として十分な発光量であるかどうかを評価する。

② エネルギー・分布計測装置の試作と基本性能評価（北大、連携先：原子力機構）

令和4年度の検討結果を踏まえ、エネルギー・分布計測装置の試作を行う。①で作製したLa-GPS等のシンチレータと組み合わせ、エネルギー分布測定、位置分布測定等の基礎試験を行い、③のホスウィッチ検出器試験にデータを供する。

原子力機構は、エネルギー・分布計測装置の試験を行い、エネルギー分解能等の性能を評価し、改良点を抽出する。

③ ホスウィッチ検出器の評価試験（連携先：原子力機構）

ホスウィッチ検出器と有機シンチレータ等を用いて、 α 線と β 線の弁別試験を行う。試験の結果、 α 線と β 線の弁別に最適な組み合わせを見出す。

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（再委託先：産総研）

【令和4年度までの概要】

令和4年度には、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。Eljen Technology製、ZnS(Ag)粉末(EJ-600)を用いてガラス基板上にAD成膜を行い、最大5 μ m厚の固化膜を得た。同膜の断面の走査型電子顕微鏡(SEM)像及びエネルギー分散型X線分光(EDX)像から、膜の均一性が低いことがわかったため、同粉末を遊星ミル処理したものをを用いて成膜を行った。その結果、膜の均一性が大きく向上した一方、最大膜厚が粉体処理前から低下した(5 \rightarrow 1 μ m)。ミル処理ありの膜(1 μ m)について、原子力機構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。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。これらの令和4年度の結果から、ZnS(Ag)AD厚膜の緻密化に向けては、断面方向の不均一性と粉末処理による膜厚低下の問題を解決する必要があることがわかった。

【令和5年度実施内容及び成果】

(1) AD厚膜の緻密化のための粉体調整法開発

はじめに、令和4年度に明らかになったZnS(Ag)AD膜の断面方向の不均一性と粉末処理による膜厚低下の原因を明らかにする実験を行った。原料粉末のEljen Technology製、ZnS(Ag)粉末(EJ-600)の断面SEM及びEDX分析を行った(図3.1.1-1)。その結果、ZnS(Ag)粒子中に僅かなSi酸化物粒子の混入を観測した。この結果を、後に述べるZnS(Ag)AD膜の断面SEM像及びEDX像と比較した結果、ZnS(Ag)AD膜における不均一性の主な原因が、原料粉末段階で混入したSi酸化物の膜内への取り込みであることが明らかになった。次に、原料粉末の遊星ミル処理によってZnS(Ag)AD膜の膜厚が低下する要因を探るため、粒子搬送ガスの変更(空気 \rightarrow ヘリウム)を試みた。その結果、膜厚の大幅な向上(1 \rightarrow 20 μ m)を得た。この試料の化学状態を明らかにするため、断面SEM(図3.1.1-2)及びEDX分析(図3.1.1-3)を行った。その結果、同試料はSi酸化物を高密度で内包していることがわかった。膜中のSi酸化物の混入濃度は原料粉末における混入濃度から大幅に増加していることから、Si酸化物がAD成膜における一種の「バインダー材」として機能して膜中に濃縮し、厚膜化に寄与していることが示唆された。また、搬送ガスに空気ではなくヘリウムを用いることで、このバインダー機能が活性化することが示唆された。すなわち、約10 μ m以上の比較的大きい膜厚のZnS(Ag)AD膜を得るためには、ZnS(Ag)単独粒子の弱い付着力を補うバインダー材を用いることが不可避であることが示唆された。この解釈を検証するため、バインダー材として代表的なAD材料であるアルミナを選択し、ZnS(Ag)/アルミナ混合粉末による成膜を行った。その結果、膜厚はZnS(Ag)単独の場合からさらに向上し(20 \rightarrow 45 μ m、図3.1.1-4)、バインダー特性と膜厚に相関があることが確かめられた。

上記のZnS(Ag)単独粉末及びZnS(Ag)/アルミナ混合粉末によるAD成膜体について、原子力機構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。その結果、 α 線に対する発光量は令和4年度から向上した(後段の原子力機構担当箇所に記載)。令和6年度は、発光量を目的とする α 線イメージングに必要な水準に引き上げるべく、さらなる粉末調整、AD成膜条件及び膜・アニール等の条件の最適化を進める。

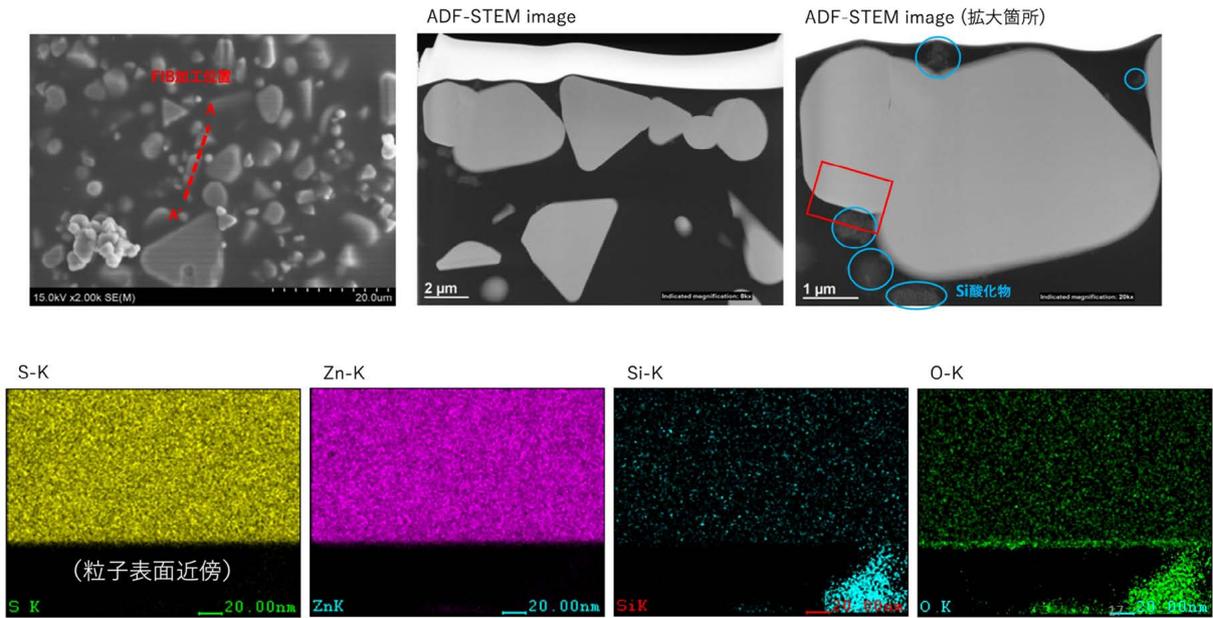


図 3.1.1-1 Eljen Technology 製、ZnS(Ag)粉末 (EJ-600) の断面 SEM 像及び EDX 像

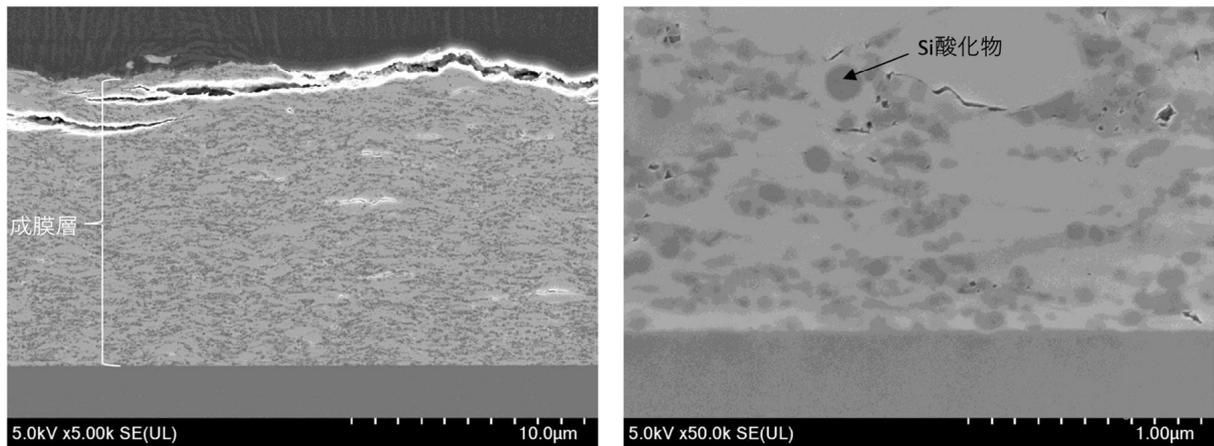


図 3.1.1-2 ヘリウム粒子搬送ガスによる ZnS(Ag)厚膜の断面 SEM 像
(左：成膜層全体、右：基板界面近傍)

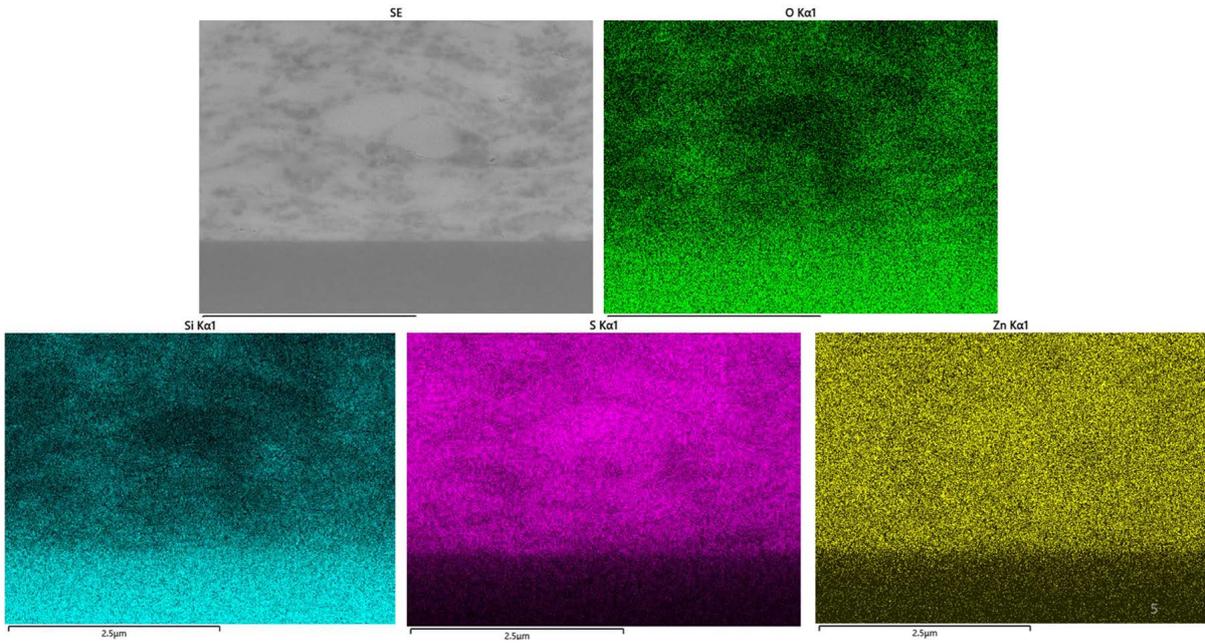


図 3. 1. 1-3 ヘリウム粒子搬送ガスによる ZnS(Ag)厚膜の断面 EDX 像 (基板界面近傍)

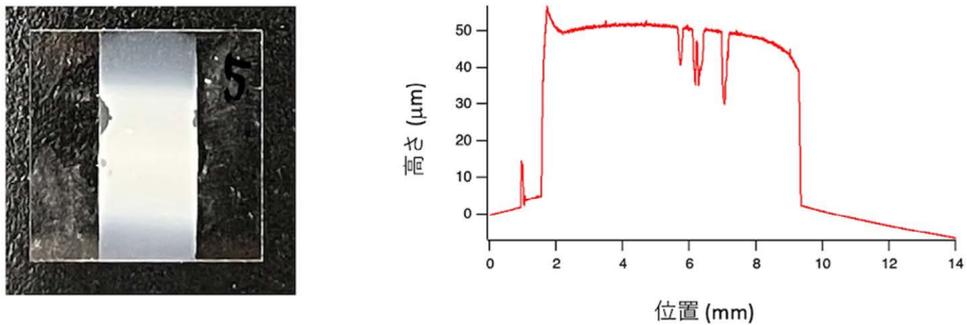


図 3. 1. 1-4 ZnS(Ag)/アルミナ混合粉による AD 膜の光学写真 (左) と段差計データ (右)

(2) AD 膜のアニール等の処理による発光特性の性能向上

本実施項目では、実施項目(1)で開発中の厚膜化・緻密化のための粉末・成膜プロセスを、発光特性の向上に不可欠であることが予想されるアニール処理が可能な高耐熱基板に展開するための実験に取り組んだ。はじめに、ガラス基板で有効性を確認できた遊星ミル処理 ZnS(Ag)粉末を用いて、ヘリウム搬送ガスで成膜するプロセスをサファイア基板に適用した。その結果、サファイア基板ではガラス基板と膜形成の様態が大きく異なり、1)膜厚が大きく抑制される(20→2 μm)、2)膜表面が顕著に荒れる(凹凸、剥離)といった問題が生じることがわかった。これらの要因としては、サファイアの高い硬度によって膜と基板の接着力を支える「アンカー層」が形成しにくくなること、AD膜に蓄積される残留応力が高くなり粉末の付着力が下がることの2点が考えられた。1)の理由を検証するため、サファイア基板に一旦アルミナ AD 膜を薄く形成し、その上に ZnS(Ag)の AD 成膜を行った。しかし、この場合 ZnS(Ag)-アルミナ界面にアンカー層は形成されたが(断面 SEM による確認)、ZnS(Ag)

層の厚さは約 2 μm に抑制されたままとなった。次に、上記 2) の理由を検証するため、ガラス基板とサファイア基板における ZnS(Ag)AD 膜の残留応力を X 線回折 (XRD) によって評価・比較した [1]。その結果、両者はほぼ等しい残留応力 (-0.28 GPa) を示し、残留応力からも両基板での膜厚・膜質の違いが説明されないことがわかった。サファイア基板における ZnS(Ag)AD 成膜の困難さの原因は、現在検討を続けている。

一方、令和 5 年度の途中において、実施項目 (1) から ZnS(Ag)/アルミナ混合粉末プロセスの有効性が示唆されたため、これをサファイア基板に適用した。その結果、上記の ZnS(Ag)単独粉末で生じていた問題は大きく解決に向かい、膜厚・膜質ともに比較的良好な ZnS(Ag)含有 AD 膜がサファイア基板で得られた (図 3.1.1-4)。令和 6 年度は、同試料を中心にアニール処理の発光特性等への効果を検証する予定である。

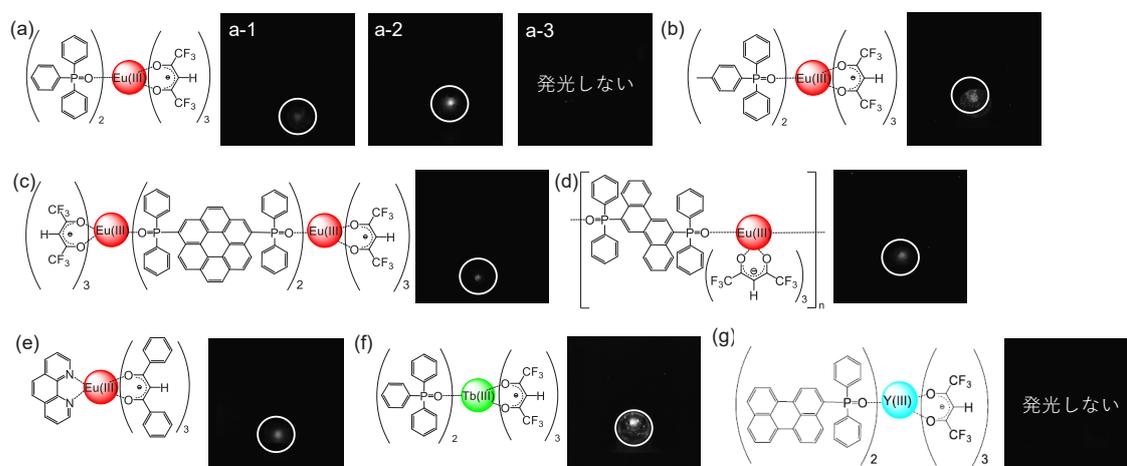
3.1.2 希土類錯体を用いた α 計測用新規有機シンチレータの開発（北大）

【令和4年度までの概要】

令和4年度には α 計測用有機シンチレータ用のポリスチレン（PS）に分散した希土類錯体を合成・基礎光物性評価を行った。種々のEu錯体含有PS膜において、4f-4f遷移に基づく高い発光量子収率（>60%）が算出された。また、このPS膜に α 線を照射するとEu錯体から発光が観測された。

【令和5年度実施内容及び成果】

研究で用いた希土類錯体の分子構造及び α 線照射下における、希土類錯体分散PS膜の発光写真を図3.1.2-1に示す。



- (a) $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2]$ a-1 : PS 膜 (5wt%、1分積算)、a-2 : PS 膜 (10wt%、1分積算)、a-3 : 単結晶 (1分積算)
- (b) $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-Me})_2]$ PS 膜 (5wt%、1分積算)
- (c) $[\text{Eu}_2(\text{hfa})_6(\text{dpc})_2]$ PS 膜 (5wt%、1分積算)
- (d) $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{bdpc})]_n$ PS 膜 (10wt%、1分積算)
- (e) $[\text{Eu}(\text{dbm})_3(\text{phen})]$ PS 膜 (10wt%、1分積算)
- (f) $[\text{Tb}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2]$ PS 膜 (5wt%、5分積算)
- (g) $[\text{Y}(\text{hfa})_3(\text{dpp})_2]$ PS 膜 (5wt%、1分積算)

図 3.1.2-1 合成した希土類錯体の分子構造及びPS膜の発光の様子

市販物に対する相対発光強度及びそれらの基礎光物性値を表 3.1-1 にまとめる。

表 3.1-1 希土類錯体膜及び単結晶の光物性値

| 化合物名 | 状態 | 発光効率 ^a | シンチレーション相対強度 ^c |
|--|--------------|-------------------|---------------------------|
| [Eu(hfa) ₃ (TPPO) ₂] | PS 膜 (5wt%) | 76 | 3.3 |
| | PS 膜 (10wt%) | 76 | 12.5 |
| | 単結晶 | 74 | N. D. |
| [Eu(hfa) ₃ (TPPO-Me) ₂] | PS 膜 (5wt%) | 68 | 6.9 |
| [Eu ₂ (hfa) ₆ (dpc) ₂] | PS 膜 (5wt%) | 56 | 5.0 |
| [Eu(hfa) ₃ (bdpc)] _n | PS 膜 (10wt%) | 74 | 5.8 |
| [Eu(dbm) ₃ (phen)] | PS 膜 (10wt%) | - | 6.2 |
| [Tb(hfa) ₃ (TPPO) ₂] | PS 膜 (5wt%) | 13 ^b | 3.0 |
| [Y(hfa) ₃ (dpp) ₂] | PS 膜 (5wt%) | - | N. D. |

^a4f-4f 励起状態形成後の発光効率を光物性評価により算出したもの。

^b結晶状態の値。

^c市販プラスチックシンチレータ (サンゴバン製、BC400、57 mm) の発光強度を 1 として規格化したもの。

4f-4f 遷移に基づく、発光を示す希土類 (Eu と Tb) が含まれる PS 膜は、どれも市販プラスチックシンチレータ (サンゴバン製、BC400、57 mm) と比べて 3 倍以上の大きな発光強度を示した。特に、10wt%を混合した [Eu(hfa)₃(TPPO)₂] については、12.5 倍と一桁大きい値を示した。一方、[Eu(hfa)₃(TPPO)₂] の単結晶サンプルは、α 線照射時に発光が観測されなかった (図 3.1.2-1 の a-3)。これは、発光性希土類 (Eu と Tb) を含む PS 膜において α 線照射により希土類錯体ではなく、ポリスチレンに励起子が生成して、その励起子が希土類錯体へエネルギー移動することで発光していることを示している。さらに、エネルギー移動機構について詳しく調べるため、希土類イオンが発光を示さず、有機配位子が最低励起三重項状態から蛍光を示す [Y(hfa)₃(dpp)₂] について、α 線照射時の発光特性を検討した。その結果、α 線照射により [Y(hfa)₃(dpp)₂] 含有 PS 膜から蛍光が観測されなかった (図 3.1.2-1 の g)。これは、発光性希土類 (Eu と Tb) を含む PS 膜において PS の最低励起三重項 (T₁) 状態から希土類に結合している配位子 T₁ 状態へのエネルギー移動を介して、希土類が発光していることを示唆している (図 3.1.2-2)。これらの結果より、大きな α 線シンチレーション強度を示す PS 膜を創成するためには、1) PS の T₁ から配位子の T₁ へ高効率なエネルギー移動が起きること、2) 配位子の T₁ から希土類イオンの発光準位へ効率的なエネルギー移動が起きること、3) 希土類イオンの 4f-4f 遷移に基づく発光効率が高いことが重要な条件となることが明らかとなった。

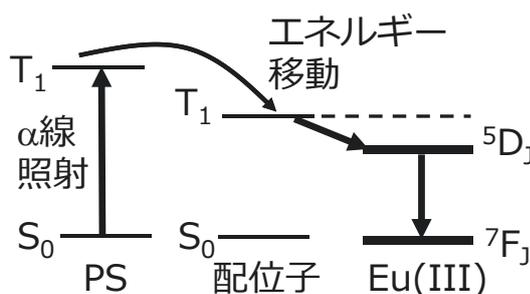


図 3.1.2-2 α 線シンチレーションの励起状態ダイナミクスの模式図

強く発光している PS 膜について着目すると、錯体の電子構造にほとんど変化がない $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2]$ (5wt%) と $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO-Me})_2]$ (5wt%) のシンチレーション相対強度が、それぞれ 3.3 と 6.9 と大きく異なっている (表 3.1-1)。また、4f-4f 遷移の発光効率が非常に低い $[\text{Tb}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2]$ (5wt%) と発光効率が高い $[\text{Eu}(\text{hfa})_3(\text{TPPO})_2]$ (5wt%) のシンチレーション強度が、それぞれ 3.0 と 3.3 とほとんど違いがない (表 3.1-1)。錯体自身の電子構造特性のみを考慮すると、本実験結果は説明することが困難であり、PS 膜の質 (厚みや平滑性など) がシンチレーション特性に大きな影響を与えている可能性が考えられる。令和 6 年度は、再現良く大きな強度が発現可能な PS 膜の生成法を検討するとともに、ZnS を超えるシンチレータ強度を示す発光膜の開発を目指す。

3.1.3 α 線撮像技術の開発（連携先：原子力機構）

【令和4年度までの概要】

市販の ZnS(Ag) シンチレータと CMOS カメラ等を用いて α 線の撮像評価を行った。視野や検出感度等の評価を行い、 α 線撮像に関する適した撮像条件を見出した。

【令和5年度実施内容及び成果】

(1) α 線撮像システムの構築

原子力機構は、産総研と北大で開発した新規シンチレータを用いて、 α 線の撮像試験を行った図 3.1.3-1 に新規シンチレータ測定の写真を示す。 α 線源として、約 4 kBq の ^{241}Am α 線源を使用した。 α 線源をホルダーにセットし自立するようにした。線源の前面に各シンチレータを設置し測定を行った。暗箱に穴をあけ、レンズ（焦点距離 8 mm、絞りを最大に設定）が入るようにし開口部を暗幕で覆った。線源、新規シンチレータ、レンズを暗箱と暗幕内に設置した。

なお、 α 線を撮像するときは暗箱を閉じ遮光した状態で測定を行い、光学写真を撮像するときは暗箱を開け光が入るようにして測定した。

撮像した画像の評価方法について以下に示す。評価には画像処理ソフトウェアである ImageJ を使用した。評価方法を示した図を図 3.1.3-2 に示す。左の写真は測定した α 線の分布である。線源の領域の強度が高くなっていることがわかる。この線源領域を含むようにプロファイルの領域を決定した。幅は線源領域全体を含むように設定した。この輝度のプロファイルを右図のように測定した。このプロファイルのピークの値を読み取り、それぞれのシンチレータについて比較を行った。

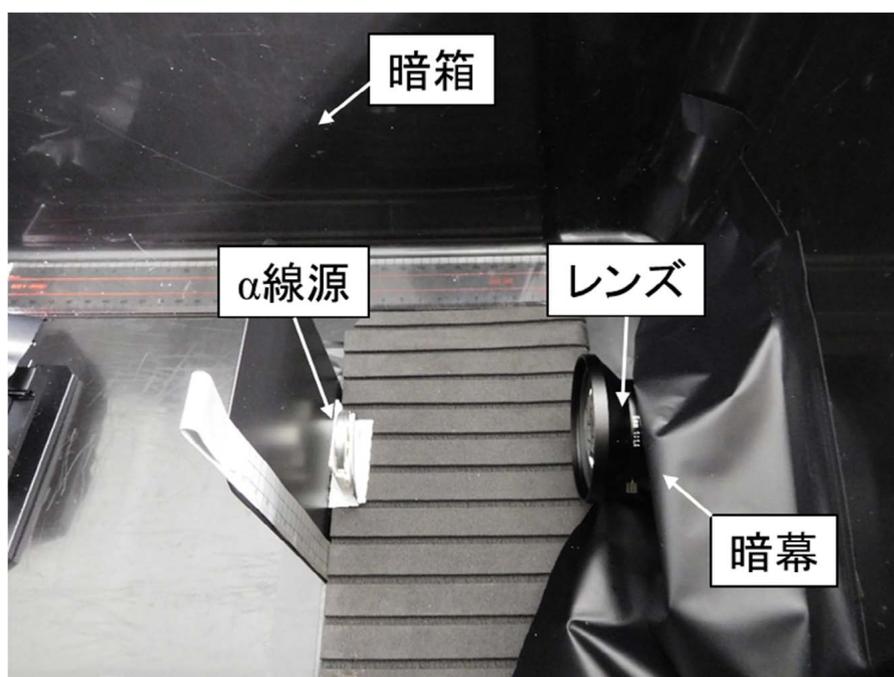


図 3.1.3-1 新規シンチレータ測定の写真

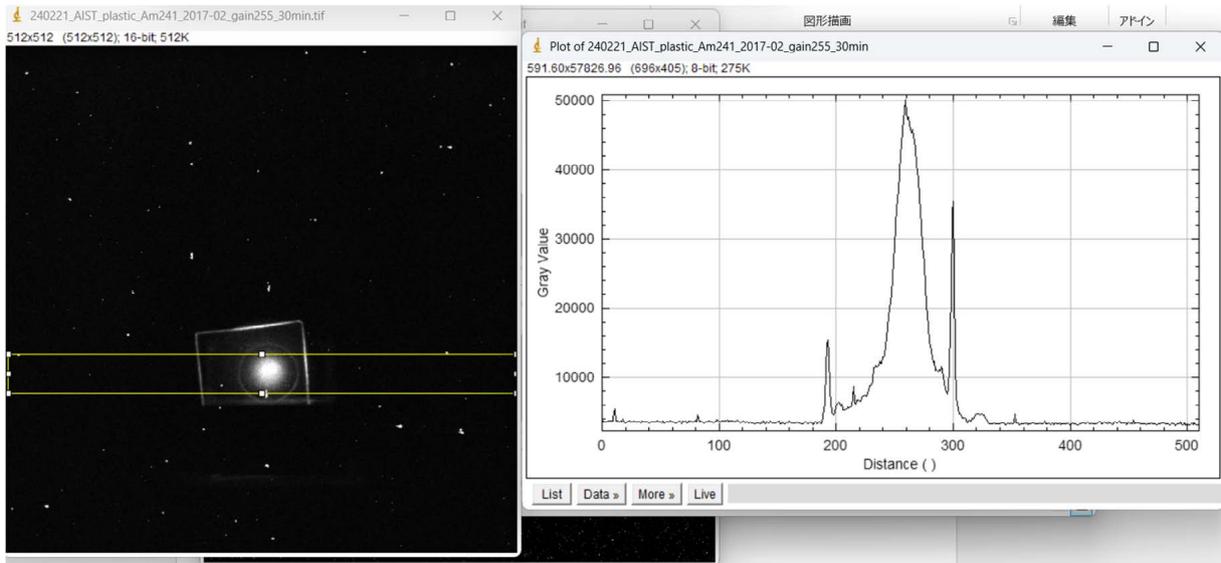


図 3.1.3-2 評価方法

(2) 産総研の新規シンチレータ用いた α 線の撮像試験

まず比較のため、基準となる市販のシンチレータ（プラスチックシンチレータ）を測定した。プラスチックシンチレータとして厚み約 50 μm の BC400 を用いた。このシンチレータを線源の前面に置き測定を行った。図 3.1.3-3 に測定した結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。5分測定の結果であるが、輝度の最大値は 11,219 であった。この値を基準として以降の測定結果と比較した。

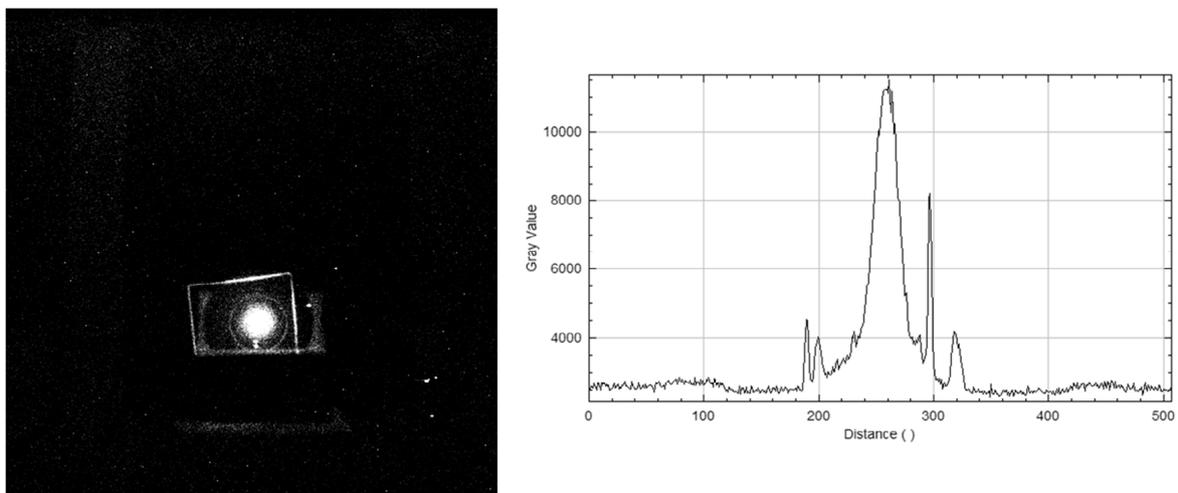


図 3.1.3-3 プラスチックシンチレータを用いて測定した α 線分布（左）と輝度プロファイル（右）：5分測定の結果

図 3. 1. 3-4 に産総研のシンチレータを線源にセットした写真を示す。AD 法により ZnS(Ag) の粉末をガラス面にコーティングしたシンチレータである。このシンチレータを図のように α 線源の有効領域と密接させ配置した。シンチレータの面がレンズの焦点位置に来るように試料の位置を暗箱内で配置した。すべての測定で、同一位置に配置して測定を行った。

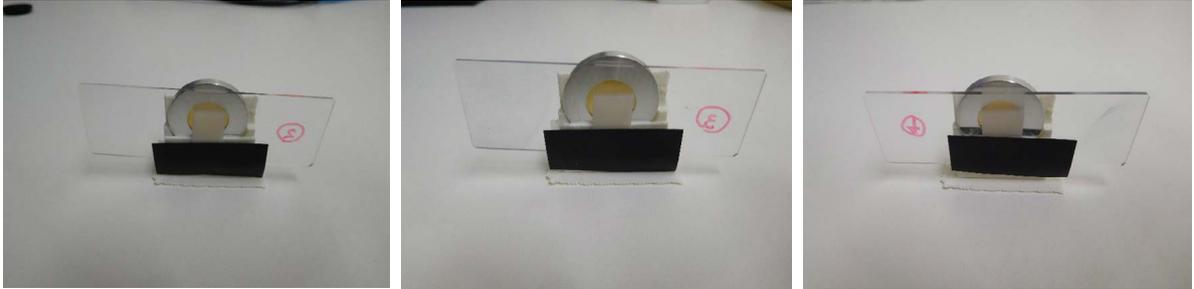


図 3. 1. 3-4 産総研の AD 膜シンチレータを線源にセットした写真

AD 膜シンチレータ、原料粉=ZnS:Ag、膜厚=10-20 μm を測定した。図 3. 1. 3-5 に 5 分測定の結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。輝度の最大値は 3,506 であった。基準のプラスチックシンチレータとの強度比は、新規シンチレータ/プラスチックシンチレータ=0.31 であった。

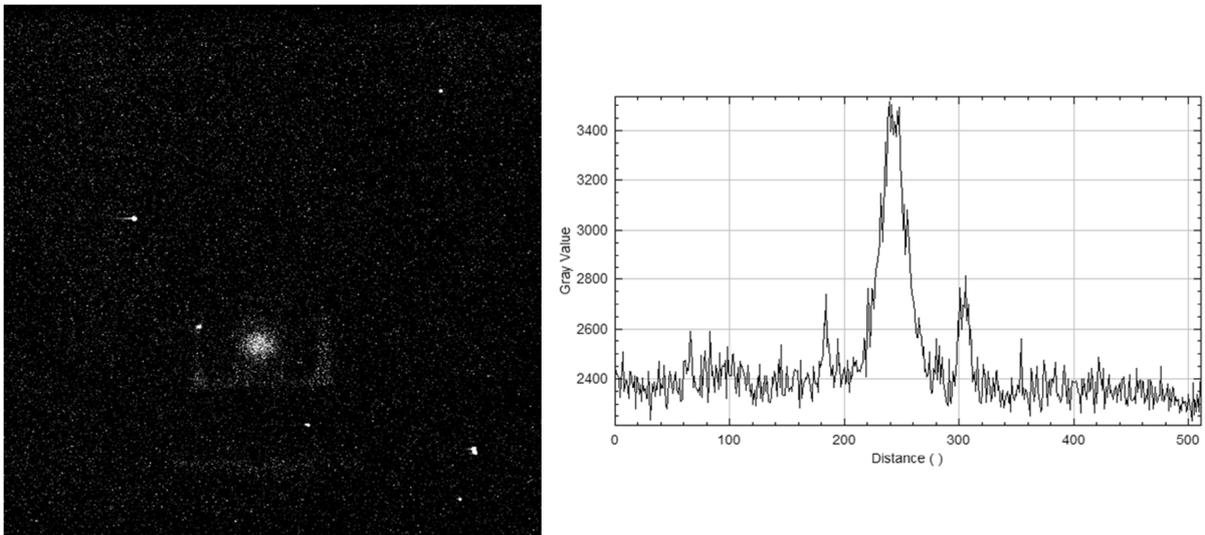


図 3. 1. 3-5 AD 膜シンチレータ (原料粉=ZnS:Ag、膜厚=10-20 μm) : 5 分測定の結果

次に、AD 膜シンチレータ、原料粉=ZnS:Ag+アルミナ（重量比 1:1 混合）、膜厚=5-10 μm を測定した。図 3.1.3-6 に 5 分測定の結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。輝度の最大値は 3,372 であった。基準のプラスチックシンチレータとの強度比は、新規シンチレータ/プラスチックシンチレータ=0.30 であった。

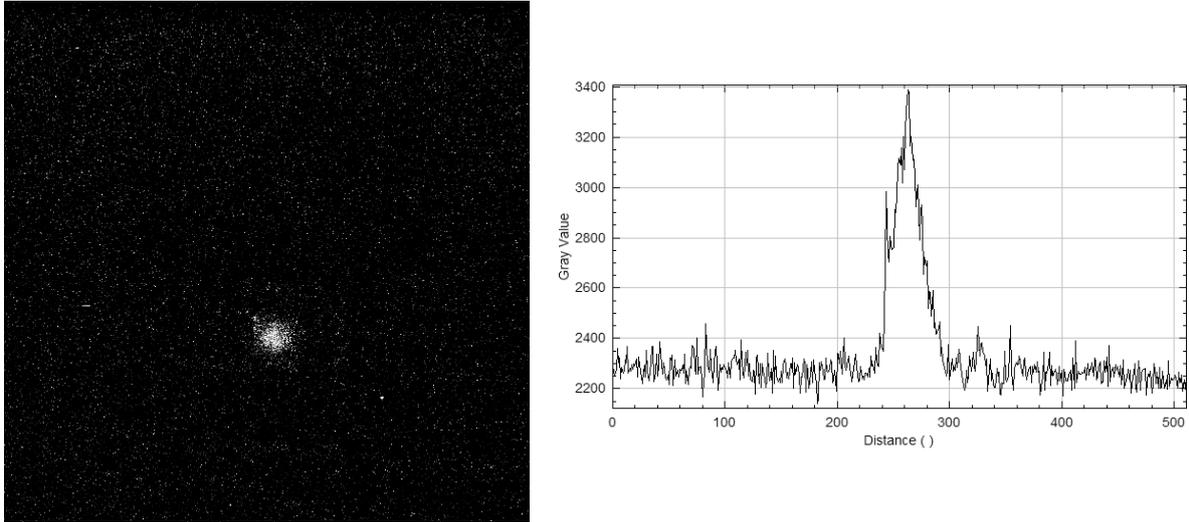


図 3.1.3-6 AD 膜シンチレータ（原料粉=ZnS:Ag+アルミナ（重量比 1:1 混合）
膜厚=5-10 μm）：5 分測定の結果

次に、AD 膜シンチレータ、原料粉=ZnS:Ag+アルミナ（重量比 1:1 混合）、膜厚=10-20 μm を測定した。図 3.1.3-7 に 5 分測定の結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。輝度の最大値は 3,506 であった。基準のプラスチックシンチレータとの強度比は、新規シンチレータ/プラスチックシンチレータ=0.31 であった。

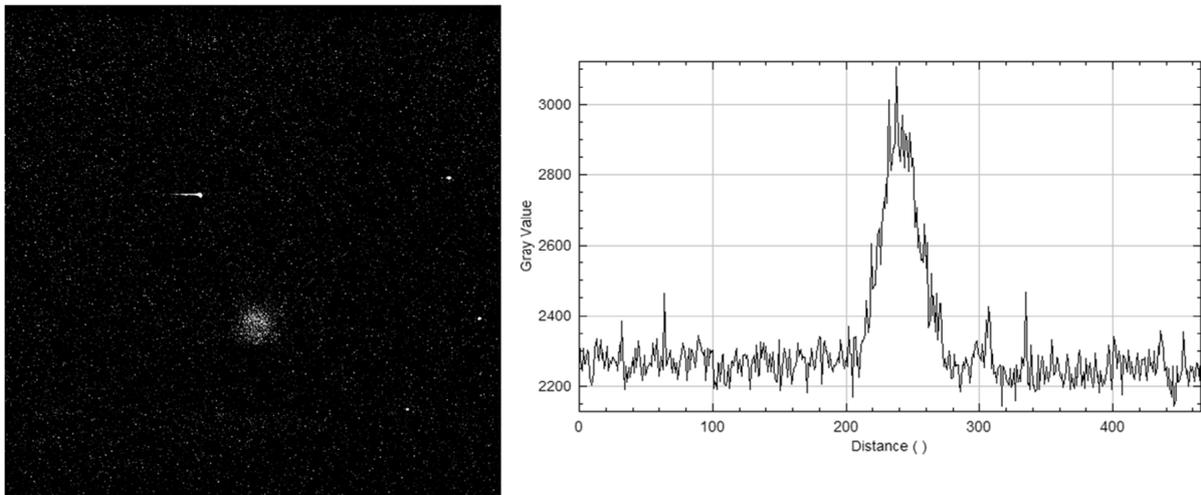


図 3.1.3-7 AD 膜シンチレータ（原料粉=ZnS:Ag+アルミナ（重量比 1:1 混合）
膜厚=10-20 μm）：5 分測定の結果

以上のように、いずれのサンプルについても5分測定で α 線の分布を確認できたが、プラスチックシンチレータの輝度との比は、いずれも0.30~0.31であった。輝度の比がほぼ同じである原因については、厚くすることで α 線起因の発光が外に抜けてこないためと予想されるが、今後追加で試験を行っていく。また、応用の話になるが、今回の測定において5分測定で α 線の分布を確認できたため、様々な形状のものにコーティングすることで応用可能（従来は平板状に限定）。複雑形状の物（排気フィルタ）、円筒状の物（配管）などで効果を発揮すると考えられる。

(3) 北大の新規シンチレータ用いた α 線の撮像試験

上述と同様、まず比較のため、基準となる市販のシンチレータ（プラスチックシンチレータ）を測定した。プラスチックシンチレータとして、厚み約50 μm のBC400を用いた。このシンチレータを線源の前面に置き測定を行った。図3.1.3-8に測定した結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。今回は1分測定で統一した（一部のシンチレータで信号が飽和したため）。結果であるが、輝度の最大値は3,963であった。この値を基準として以降の測定結果と比較した。

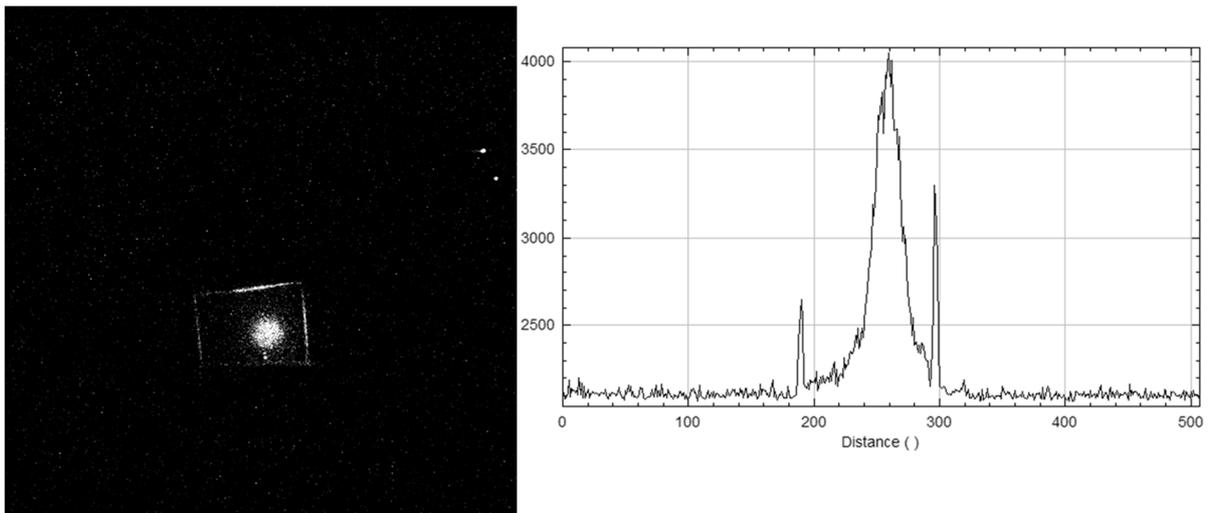


図3.1.3-8 プラスチックシンチレータを用いて測定した α 線分布（左）と輝度プロファイル（右）：1分測定の結果

図3.1.3-9に北大のシンチレータを線源にセットした写真を示す。シンチレータを図のように α 線源の有効領域と密接させ配置した。AD膜シンチレータの時と同様、シンチレータの面がレンズの焦点位置に来るように試料の位置を暗箱内で配置した。すべての測定で、同一位置に配置して測定を行った。

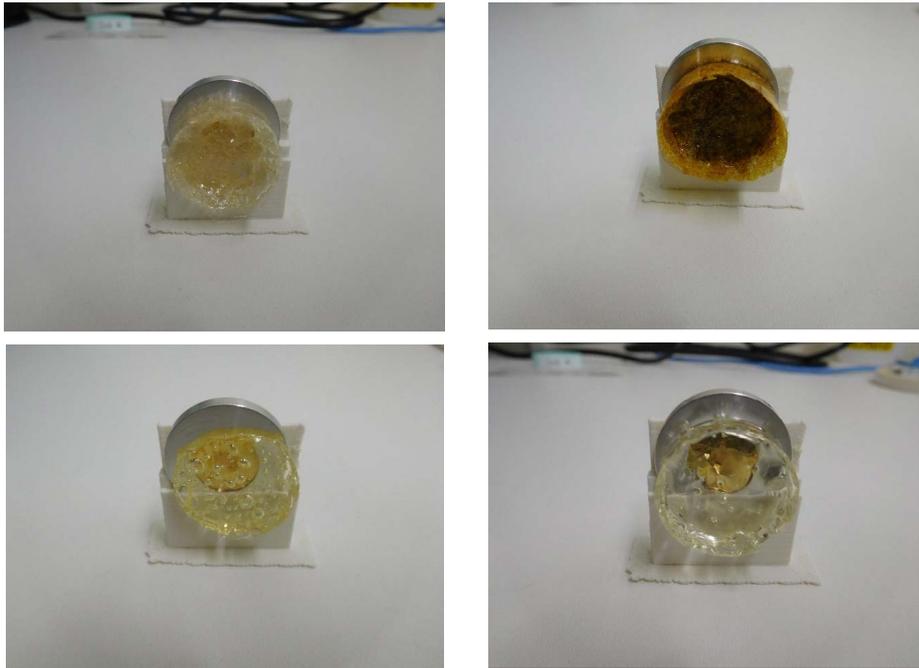


図 3.1.3-9 北大のシンチレータを線源にセットした写真

まず、ポリスチレン自立膜 10wt%Eu 配位高分子を測定した。図 3.1.3-10 に 1 分測定の結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。輝度の最大値は 22,904 であった。基準のプラスチックシンチレータとの強度比は、新規シンチレータ/プラスチックシンチレータ=5.78 であった。

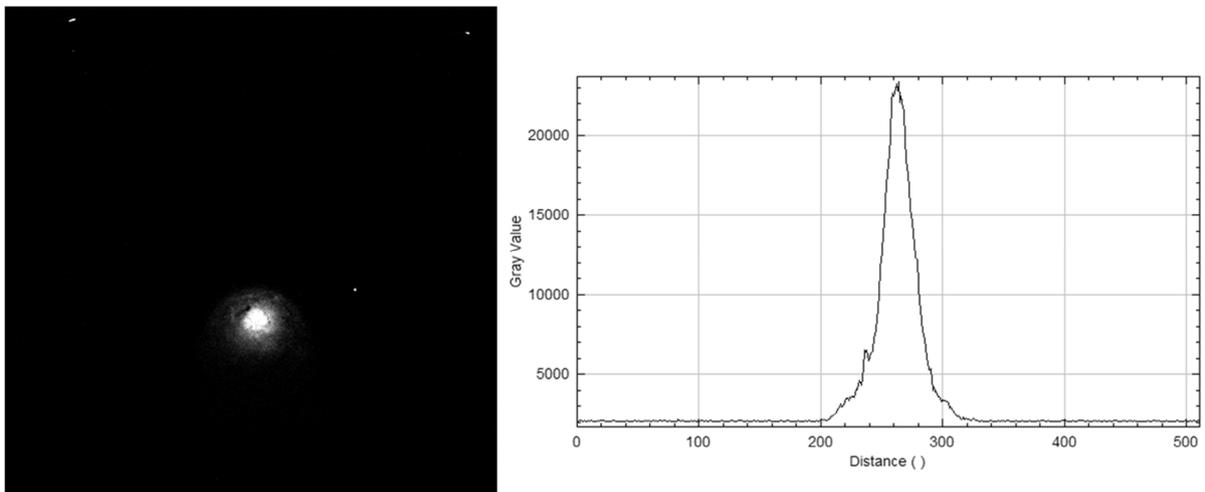


図 3.1.3-10 ポリスチレン自立膜 10wt%Eu 錯体 : 1 分測定の結果

次に、ポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体を測定した。図 3.1.3-11 に 1 分測定の結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。輝度の最大値は 6,003 であった。基準のプラスチックシンチレータとの強度比は、新規シンチレータ/プラスチックシンチレータ=1.51 であった。

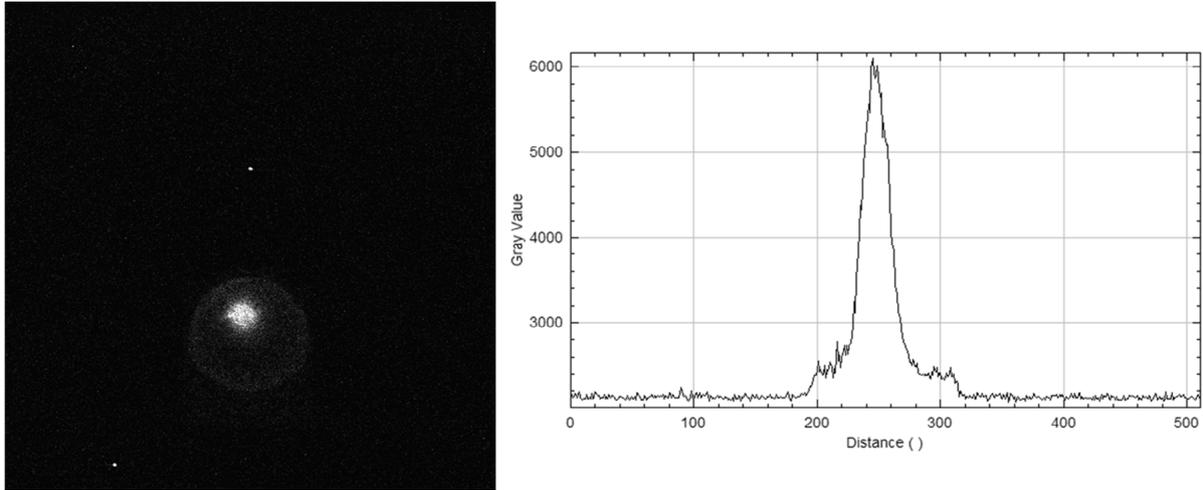


図 3.1.3-11 ポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体：1 分測定の結果①

続いて、ポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体の再現性を検討するために、異なるバッチの試料について測定を行った。図 3.1.3-12 に 1 分測定の結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。輝度の最大値は 27,394 であった。基準のプラスチックシンチレータとの強度比は、新規シンチレータ/プラスチックシンチレータ=6.91 であった。

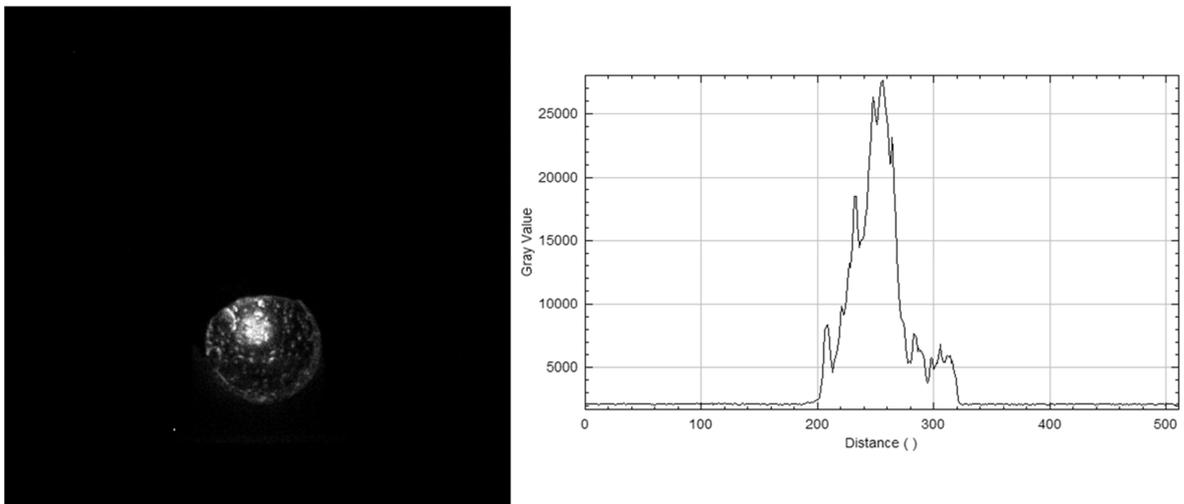


図 3.1.3-12 ポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体：1 分測定の結果②

さらに、別のポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体について測定した。図 3.1.3-13 に 1 分測定の結果を示す。左図が測定した α 線画像である。右図は画像から測定したプロファイルである。輝度の最大値は 11,865 であった。基準のプラスチックシンチレータとの強度比は、新規シンチレータ/プラスチックシンチレータ=3.0 であった。

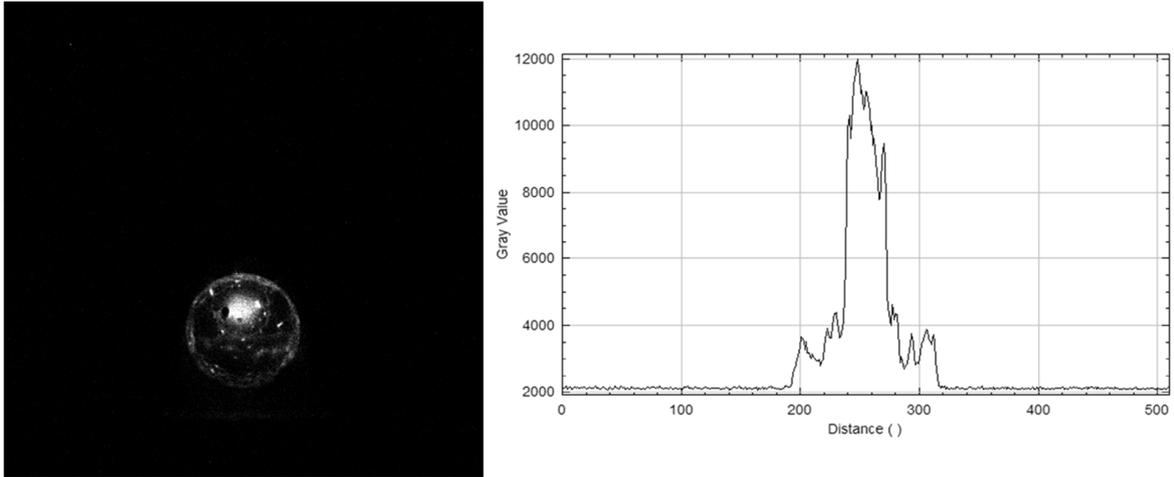


図 3.1.3-13 ポリスチレン自立膜 5wt%Eu 錯体：1 分測定の結果③

3.1.4 まとめ

新規 α 線検出用シンチレータ材料として、AD法によるZnS(Ag)厚膜の作製条件について検討した。ZnS(Ag)単独粉末及びZnS(Ag)/アルミナ混合粉末によるAD成膜体について、シンチレーション特性評価を実施した。その結果、 α 線に対する発光量は、令和4年度から向上した。令和6年度は、発光量を目的とする α 線イメージングに必要な水準に引き上げるべく、さらなる粉末調整、AD成膜条件及び膜・アニール等の条件の最適化を進める。

α 線計測用新規有機シンチレータの開発では、希土類錯体をポリスチレンに分散させた膜を用いて、市販のプラスチックシンチレータ（サンゴバン製、BC400、57 mm）よりも、最大で12.5倍大きいシンチレーション強度を得た。これは、1)効率的なポリスチレンから配位子へのエネルギー移動及び2)希土類錯体の高効率な発光に起因していると考えられる。今後は最適化することで、ZnSを超えるシンチレーション強度を示す発光体の開発を目標として研究を進める。

α 線撮像技術の開発においては、本事業において開発する新規シンチレータを用いた α 線の撮像試験を行った。AD法によるZnS膜については、5分測定で α 線の分布を確認できた。今回測定したサンプルは同様の輝度を示した。市販のプラスチックシンチレータの輝度との比は0.30～0.31であった。一方、希土類錯体については、1分測定で α 線の分布を確認できた。また、すべてのサンプルが市販プラスチックシンチレータより高い輝度を示した。ポリスチレン自立膜5wt%Eu錯体については、3分測定で飽和するほどの高い輝度を示した。今回測定したサンプルは同様の輝度を示した。最も高い輝度を示したシンチレータでは、比は6.91であった。サンプル形状などの影響のためか、サンプル毎に輝度のばらつきがあり、今後、追加で試験を行っていく。

3.2 $\alpha \cdot \beta$ 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 (北大)

【令和4年度までの概要】

SiO₂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 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[2] 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ための有効性を確認したが、金型形状の改良が必要であった。さらに、フォトルミネッセンス強度を増大させるためには、窒素雰囲気中 1,400 °C のアニールが効果的であることを明らかにした。

【令和5年度実施内容及び成果】

(1) La-GPS 多結晶薄板の作製工程の確立

La-GPS 多結晶薄板の製造工程は、以下の通りである。

- ・ SiO₂ 原料の粉砕 (令和4年度に条件確立)
- ・ 原料粉の混合 (令和4年度に条件確立)
- ・ 成形
- ・ 反応焼結
- ・ 切断
- ・ アニール
- ・ ガラス基板への接着
- ・ 研削/研磨

令和5年度においては、成形以下の各工程について検討した。以下に、それらの詳細を述べる。

・ 成形

令和4年度に静水圧プレス前の金型を使用した一軸プレスの有効性を見出したが、金型の形状のさらなる検討が必要であった。令和5年度においては、令和4年度のものとは形状の異なる2種類の金型(図3.2.1-1)を試作し、その有効性を検討した。

静水圧プレス用のゴム容器としては、ラテックス製の手袋を使用するため、その結び目を逃がすための切り欠きがいずれの金型にも設けてあり、金型2号においては切り欠き方向の寸法がその垂直方向と同じであるのに対して、金型3号では切り欠きの方向の寸法をその垂直方向よりも10 mm大きくとってある。金型2号の場合には、結び目の箇所の影響を受け、結果として得られる多結晶は試料全体を完全に50 mm角とすることができず、僅かに欠ける部分が存在した。これに対して、金型3号を使用した場合には結び目の影響を受けることなく、図3.2.1-2に示すように欠ける箇所の全くない50 mm角の多結晶を得ることができた。

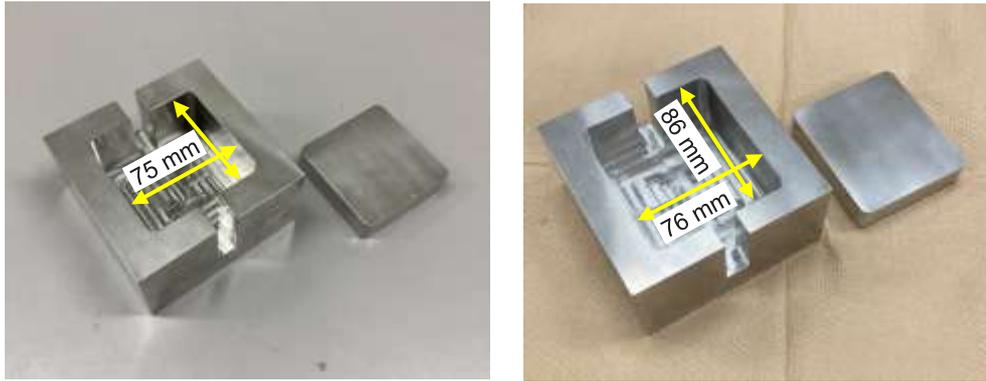


図 3.2.1-1 試作した金型（左：金型 2 号、右：金型 3 号）

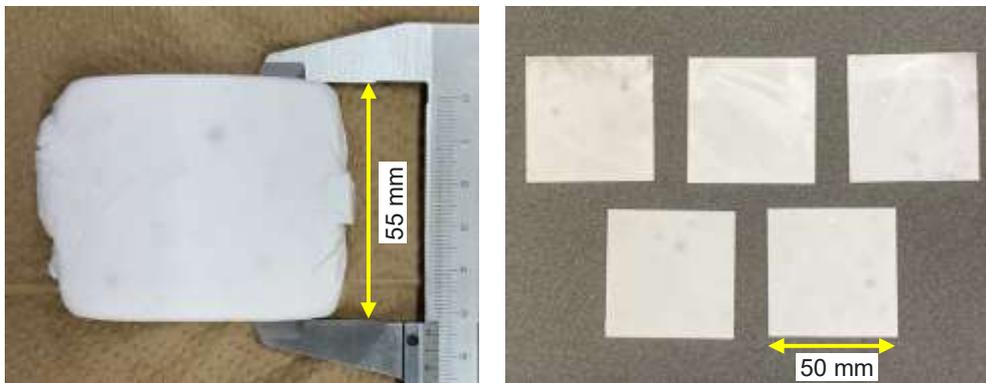


図 3.2.1-2 金型 3 号を使用した場合の多結晶体全体（左）と切断後の薄板（右）

・反応焼結

令和 4 年度においては、昇温時間：4 h、焼結温度：1,670 °C、保持時間：20 h の条件で反応焼結を行った。反応焼結においては、昇温速度及び保持時間が得られる多結晶体の微構造に大きな影響を及ぼす可能性があるため、昇温時間を 5-20 h、保持時間を 5-40 h として種々の組み合わせを検討した。なお、保持温度が 1,670 °C では、焼結時の液相生成量が増え、試料と下地である白金-ロジウム板との間に一部融着が起こるため、焼結温度は 1,655 °C で固定した。

図 3.2.1-3 に得られた多結晶体の微構造を示す。保持時間を 20 h とした場合、昇温時間が 10 h の時に均一性が最もよい微構造が得られた。一方、昇温時間を 10 h で固定した場合、保持時間とともに均一性が失われる方向に粒成長が進行した。粒成長は多結晶体の透明性という観点からは有利であるが、機械的強度が低下するために薄板の作製には不向きである。また、いずれの試料も焼結後の線収縮率は 17.5% で同等ではあることから、相対密度はいずれもほぼ同等（約 90%）と考えられる。したがって、粒成長を伴わない微構造の均一性という観点から、昇温時間：10 h、保持時間：5 h が最適な組み合わせであると判断した。

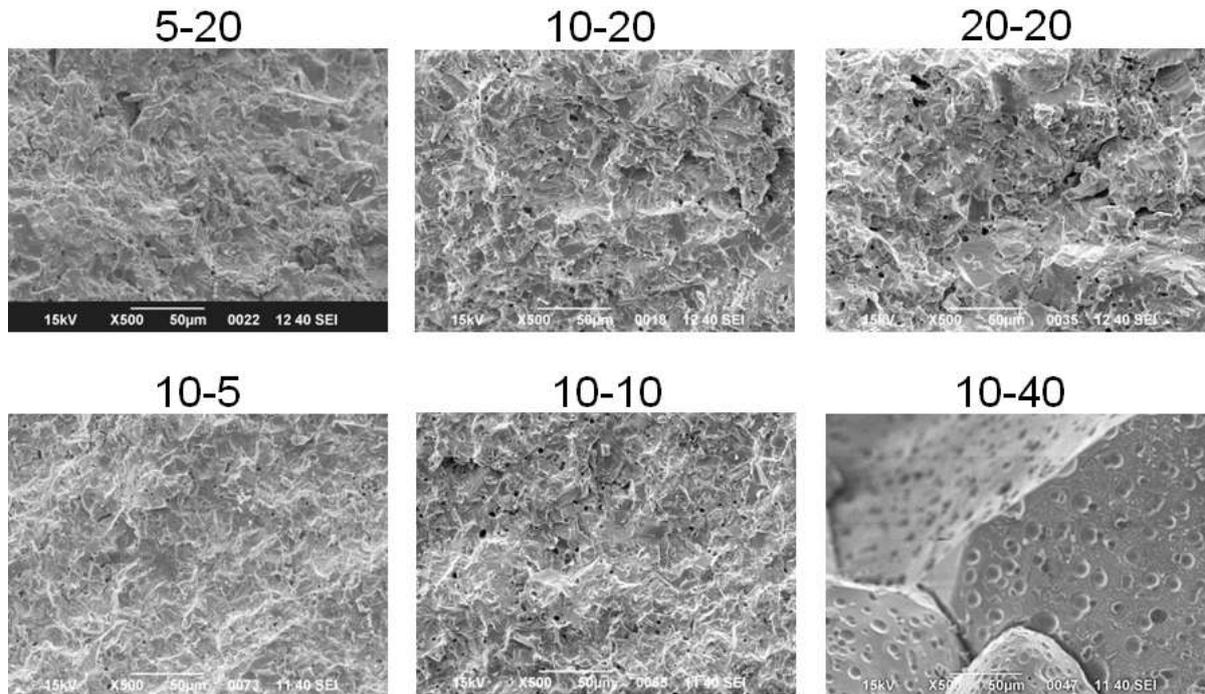


図 3.2.1-3 種々の昇温時間と保持時間の組み合わせにおける多結晶体の微構造
：ハイフン前の数字が昇温時間、ハイフン後が保持時間（単位：h）

・切断

使用した切断機は、マルトー製中型切断機クリスタルカッター（Neo Expensive）である。まず、試料全体を 50 mm 角に切断した後、試料の接着面を変えて、厚さ約 1 mm に切断する。いずれの切断においてもダイヤモンドブレードの回転数は 3,000 rpm であり、試料の移動速度は 2 mm/min である。試料の移動速度を 5 mm/min とすると、試料を接着するセラミック基板の損傷が起こりやすく、それが寸法精度に影響を及ぼす恐れがあるため、切断速度は 2 mm/min が推奨される。

・アニール

令和 5 年度においては、さらなる発光量の向上を目的として、酸素分圧を令和 4 年度より低下させた窒素雰囲気下でのアニールを試みた。具体的には、管状炉における窒素気流の上流側に酸素ゲッターとして金属鉄粉を設置することにより、試料周りの酸素分圧を低下させ、1,400 °C で 12 h のアニールを試みた。図 3.2.1-4 に示すように、酸素分圧を低下させても、発光量は通常の高純度 4 N 程度の窒素ガス雰囲気基でアニールした試料とほぼ同等であった。結論として、アニールには最も一般的に市販されている 4 N 程度の純度の窒素ガスで十分であるといえる。

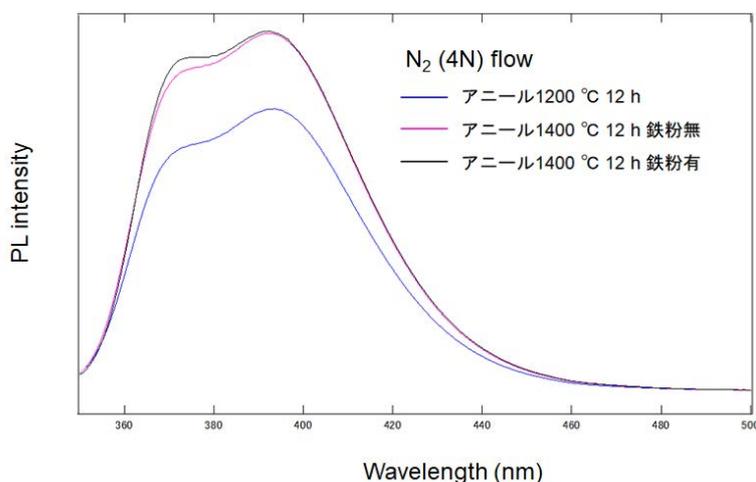


図 3.2.1-4 種々のアニール条件によって得られた多結晶体のフォトルミネッセンス

・ガラス基板への接着

エポキシ樹脂（主剤：GA-R-1、硬化剤：GA-H-1、キヤノン化成製）を用いて、アニール後の多結晶体をガラス基板に接着した。接着をより強固にするために、接着に先立ち多結晶体及びガラス表面にシランカップリング剤の塗布を試みたが、いずれにも濡れが悪く、不均一な塗布となってしまった。エポキシ樹脂で接着した際、シランカップリング剤がよく付着した箇所とほとんど付着していない箇所との間で接合強度の差はなく、隙間のない接着ができたが、肉眼でも認識できる程度のムラができ、 β 線シンチレーションにおいて僅かな差異が生じた。この詳細については後述する。

・研削/研磨

自動研磨機（エコメット 30、ビューラー製）を用いて、多結晶全体を約 100 μm まで研削/研磨した。具体的な研磨工程は以下の通りである。まず、平均粒径 35 μm のダイヤモンドラップ盤により、試料全体を目標である厚さ 100 μm まで研削した。引き続き、SiC 耐水研磨紙（#800）による研磨を 10 min、さらに SiC 耐水研磨紙（#4,000）による研磨を 20 min 施した。これによって、光散乱が低減された表面状態が得られた。

(2) La-GPS 多結晶の対 β 線シンチレーション特性

まず、フォトルミネッセンス強度において差異が見られたアニール温度 1,200 $^{\circ}\text{C}$ と 1,400 $^{\circ}\text{C}$ の多結晶体が、ベータ線シンチレーションにおいては有意な差を示すかどうかを検討した。 ^{90}Sr 照射によるシンチレーションのエネルギースペクトルを図 3.2.1-5 に示す。 β 線の場合はそのエネルギーに大きな幅があるため、 γ 線シンチレーションに見られるような全吸収ピークは現れないが、1,400 $^{\circ}\text{C}$ アニール試料のほうが高エネルギー側のイベント数が多く、 β 線シンチレーションにおいても高温アニールの優位性を確認できた。

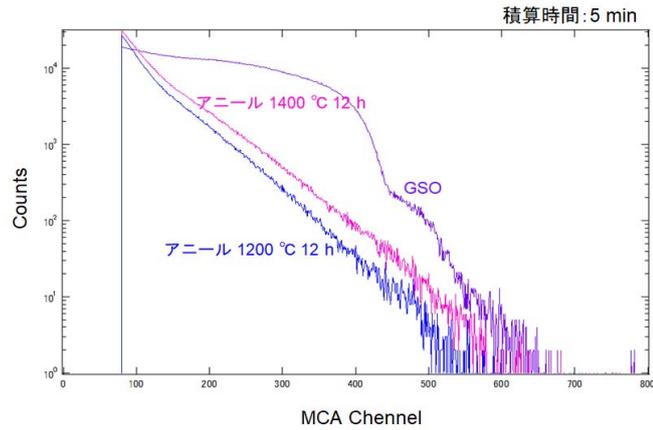


図 3. 2. 1-5 ベータ線 (^{90}Sr) シンチレーションの結果

次に、上述した接着状態の差異がシンチレーション光の集光強度に及ぼす影響について検討した。ここで、輝度ではなく集光強度という用語を用いたのは、CCDカメラに到達するシンチレーション光は、エポキシ樹脂の接着層及びガラス基板を通して観察されるためである。図 3. 2. 1-6 に示すように β 線によるシンチレーションであることを確かめるために、線源 (^{90}Sr) と多結晶体との間に β 線遮蔽用の白金板を設置し、CCDカメラによって発光のイメージを取得した。いずれの箇所においても白金板のある位置は発光が観察されず、 β 線によるシンチレーションが起きていることが確認できた。集光強度の評価には、画像解析ソフトウェア (Image J) による画素値 (gray value) を用いた。カップリング剤の付着のよい箇所の画素値は、付着の悪い箇所のそれよりも約 15%大きい結果となった。カップリング剤なしでも十分な集光強度を得ることが可能であるが、La-GPS の性能を最大限に発揮するためにはカップリング剤の塗布が必要である。

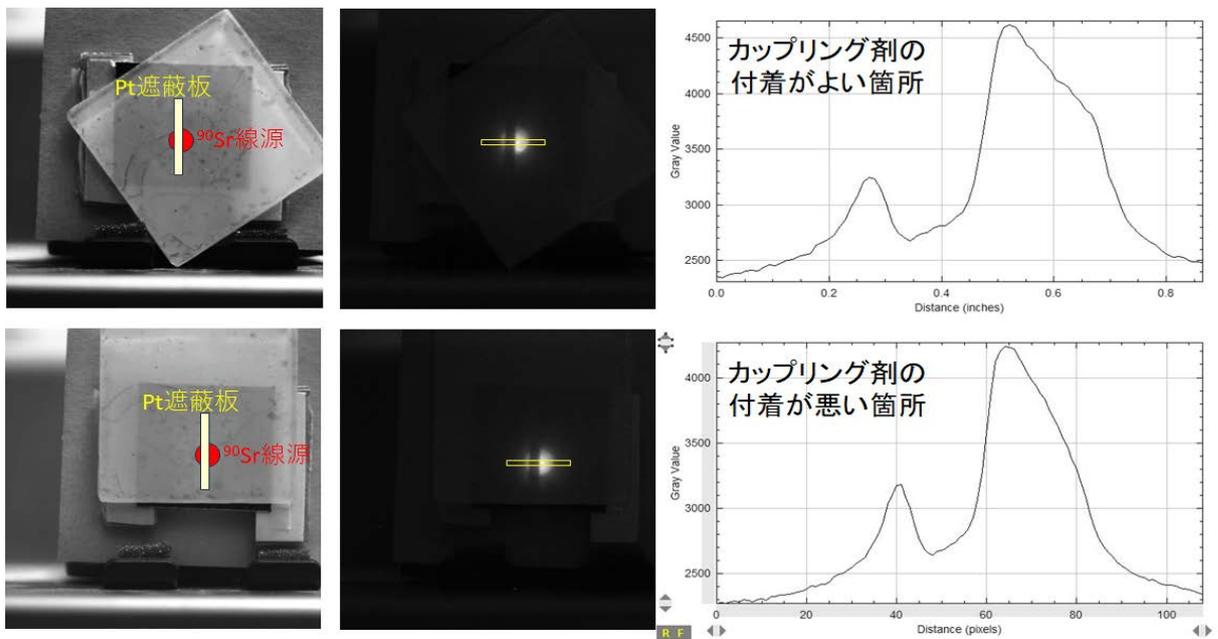


図 3. 2. 1-6 ベータ線 (^{90}Sr) シンチレーションにおける集光強度の分布

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、連携先：原子力機構）

【令和4年度までの概要】

令和4年度には、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った。ホスウィッチ計測に対応する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。

【令和5年度実施内容及び成果】

北大及び原子力機構は令和4年度の検討結果を踏まえ、エネルギー・分布計測装置の試作を行った。図3.2.2-1に試作したエネルギー・分布計測装置を示す。装置はホスウィッチ検出器、データ処理装置、バッテリー、PC等で構成されている。重量：約5 kg、連続稼働時間：約5 hとなっている。図3.2.2-2にホスウィッチ検出器の構造を示す。深さ方向に異なるシンチレータ（プラスチックシンチレータ+La-GPS）を用い α 線と β 線を識別する。



図 3.2.2-1 試作したエネルギー・分布計測装置

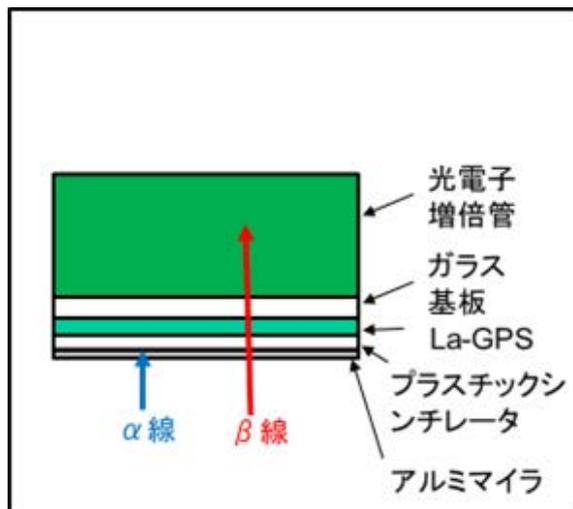


図 3.2.2-2 ホスウィッチ検出器の構造

図 3.2.2-3 に、エネルギー・分布計測装置の開発に伴う改良点の検討について示す。バッテリー部の収納や交換部の検討や、肩ベルトの検討を行った。エネルギー・分布計測装置の筐体の薄型化・小型化を行った。さらに、現場で使うことを想定し、簡易的なソフトウェアの検討及び汚染防止用養生方法の検討を行った（図 3.2.2-4）。この検討結果を開発する装置に反映した。



現場での使い勝手も含めた改善点を抽出

図 3.2.2-3 エネルギー・分布計測装置の開発に伴う改良点検討



図 3.2.2-4 エネルギー・分布計測装置の開発に伴う改良点議論・課題抽出の様子

La-GPS 等のシンチレータと組み合わせ、エネルギー分布測定、位置分布測定等の基礎試験を行い、ホスウィッチ検出器試験にデータを供するために必要な一連の検討を行った。

クロスモニタの基本性能評価を行った。図 3.2.2-5 に基本性能評価の概念図を示す。ホスウィッチ検出器の上に α 線源（ ^{241}Am 線源）を置き測定を行った。

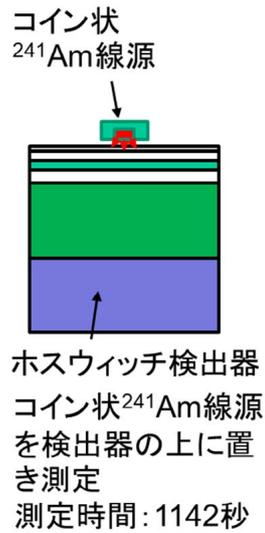


図 3. 2. 2-5 基本性能評価の概念図

図 3. 2. 2-6 に、²⁴¹Am 線源の 5.5 MeV α 線エネルギースペクトルを示す。5.5 MeV α 線のピークを確認することができた。エネルギー分解能をガウスフィットで評価したところ、エネルギー分解能：24.6%という結果を得た。また、図 3. 2. 2-7 に、²⁴¹Am 線源の 5.5 MeV α 線 2 次元位置分布を示す。α 線源の円形の α 線分布を確認することができた。

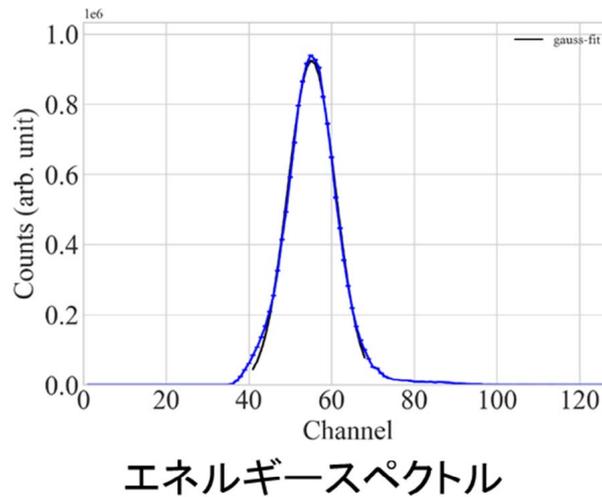


図 3. 2. 2-6 ²⁴¹Am 線源の 5.5 MeV α 線エネルギースペクトル

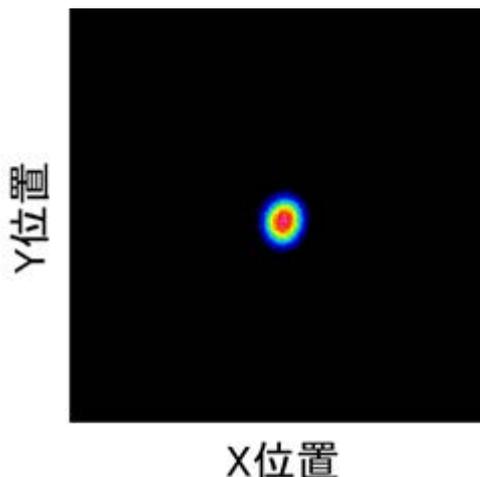
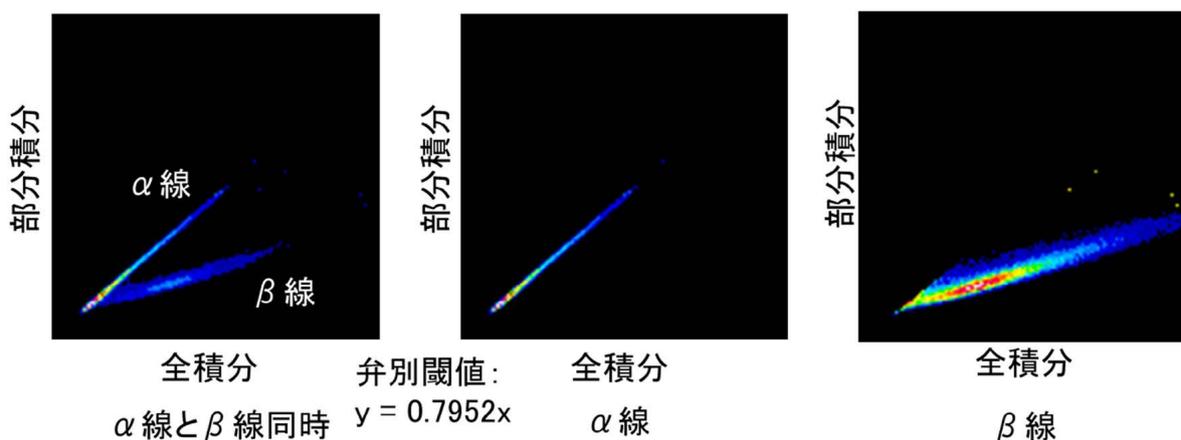


図 3. 2. 2-7 ²⁴¹Am 線源の α 線の 2 次元位置分布

3. 2. 3 ホスウィッチ検出器の性能評価（連携先：原子力機構）

【令和 5 年度実施内容及び成果】

ホスウィッチ検出器（プラスチックシンチレータ+La-GPS）に対し、 α 線と β 線を同時照射し弁別性能評価した。弁別の方法は、検出器出力波形の全積分と部分積分を取得し、その 2 次元プロットを表示することで確認した。 α 線と β 線を同時に照射すると、図 3. 2. 3-1 の左のように、 α 線と β 線のプロットが分かれていることが確認できる。上のプロットは α 線で、下のプロットは β 線である。ここで、弁別閾値 ($y = 0.7952x$) と設定し、 α 線と β 線の弁別を行った。図 3. 2. 3-1 に示すように、 α 線のプロットと β 線のプロットを明確に識別することができた。



(α 線と β 線を同時に照射すると α 線と β 線 2 つのプロットが確認できる)

図 3. 2. 3-1 全積分と部分積分の 2 次元プロット

3.2.4 まとめ

ホスウィッチ用シンチレータの開発では、La-GPS 多結晶薄板の製造工程を総合的に検討した。成形時の金型、焼結条件、切断工程、アニール条件、研削/研磨工程を最適化し、50 mm 角の La-GPS 多結晶薄板をほぼルーチンに製造する工程を確立した。また、 β 線検出用材料として、十分な性能を発揮できることを確認した。アニール後の多結晶体をガラス基板に接着する条件についてはさらなる検討が必要であるが、令和 5 年度における事業の進展によって、令和 6 年度における La-GPS 多結晶薄板の量産及びホスウィッチ検出器への実装に対する目途が立った。

α ・ β 汚染可視化クロスモニタの開発では、現場での使い勝手も含めた改善点を抽出・改良型の装置に反映した。さらに、試作したクロスモニタの基本性能を評価し、 α 線エネルギーと位置分布情報を得た。令和 6 年度では、追加の試験を行い装置の改良や性能評価を継続していく。

ホスウィッチ検出器の評価試験では、検出器出力波形の全積分と部分積分から、 α 線と β 線の明確に弁別することに成功した。令和 6 年度は、実機を試作し、1F における有用性の実証を行っていく。

3.3 研究推進

令和5年6月27日、本事業の構成メンバーで1Fの視察を行い、廃炉事業の進捗状況を知るとともに、管理区域外に戻る際の被ばく検査を実体験することにより、本事業が目指す検査装置の重要性を再認識した(図3.3-1)。翌6月28日、原子力機構いわき事務所において、令和5年度第1回全体ミーティングを行い、各機関における進捗状況を報告し、問題点の抽出並びにそれらに対する解決案を議論した。



図 3.3-1 1F 視察時の様子

令和5年11月2日、産総研(つくば)において、令和5年度第2回全体ミーティングを行い、6月以降の進捗状況について議論した。

令和5年11月21日、オンラインにて井口P0(プログラムオフィサー)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。

令和6年3月19日、北大において、令和5年度第3回全体ミーティングを行い、令和5年度の事業の総括を行い、令和6年度に向けての方向性を議論した(図3.3-2)。また、このミーティングには技術評価者として原子力機構・高崎浩司氏のオンラインによる参加があり、本事業の進捗状況が評価されるとともに、本事業で開発する装置の廃炉現場における具体的な利用方法等の提案があった。



図 3.3-2 第3回全体ミーティングの様子

原子力機構の森下を筆頭著者とする、以下の論文が出版された。

Morishita, Y. et al, Development of a large-area alpha imaging detector for hand and foot monitors, Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A, vol.1057, 2023, 168702-1-8.

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新規 α 線検出用シンチレータ材料として、令和4年度に引き続き、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、ZnS(Ag)単独粉末及びZnS(Ag)/アルミナ混合粉末によるAD成膜体について、シンチレーション特性評価を実施した。その結果、 α 線に対する発光量は令和4年度から向上した。令和6年度は、発光量を目的とする α 線イメージングに必要な水準に引き上げるべく、さらなる粉末調整、AD成膜条件及び膜・アニール等の条件の最適化を進める。 α 線計測用新規有機シンチレータの開発では、希土類錯体をポリスチレンに分散させた膜を用いて市販のプラスチックシンチレータ(サンゴバン製、BC400、57 mm)よりも最大で12.5倍大きいシンチレーション強度を得た。これは、(1)効率的なポリスチレンから配位子へのエネルギー移動及び(2)希土類錯体の高効率な発光に起因していると考えられる。令和6年度は、最適化することでZnSを超えるシンチレーション強度を示す発光体の開発を目標として研究を進める。 α 線撮像技術の開発においては、本事業において開発する新規シンチレータの評価を重点的に行った。AD法によるZnS膜については、5分測定で α 線の分布を確認した。市販のプラスチックシンチレータの輝度との比は0.30~0.31であった。一方、希土類錯体については、1分測定で α 線の分布を確認した。すべてのサンプルが、市販プラスチックシンチレータより高い輝度を示すことを明らかにした。令和6年度においては、これら新規シンチレータ材料の α 線撮像機への実装を試み、その実用性を検討する。

ホスウィッチ用シンチレータの開発では、La-GPS多結晶薄板の製造工程における、成形用金型、焼結条件、切断工程、アニール条件、研削/研磨工程を最適化し、50 mm角のLa-GPS多結晶薄板をほぼルーチンに製造する工程を確立した。また、 β 線検出用材料として、十分な性能を発揮できることを確認した。令和6年度では、確立した工程に基づいてLa-GPS多結晶薄板を量産し、ホスウィッチ検出器への実装を行う。 α ・ β 汚染可視化クロスモニタの開発では、現場での使い勝手も含めた改善点を抽出・改良型の装置に反映した。さらに、試作したクロスモニタの基本性能を評価し、 α 線エネルギーと位置分布情報を得た。令和6年度では、追加の試験を行い装置の改良や性能評価を継続していく。ホスウィッチ検出器の評価試験では、検出器出力波形の全積分と部分積分から、 α 線と β 線の明確に弁別することに成功した。令和6年度は、開発した検出器を1Fに持ち込んで測定を行い、その実用性について検討する。

参考文献

- [1] Matsubayashi, Y. et al., Relationship between dielectric strength and mechanical properties of alumina films fabricated by aerosol deposition, *Ceramics International*, vol. 48, 2022, pp. 28815–28821. <https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2022.02.008>
- [2] Tsubota, Y. et al., Crystal growth and scintillation properties of $\text{La}_{0.2}\text{Ce}_{0.05}\text{Gd}_{1.75}\text{Si}_2\text{O}_7$ (La-GPS) single crystal with triclinic structure, *Optical Materials*, vol. 36, 2014, pp. 665–669. <https://doi.org/10.1016/j.optmat.2013.11.007>

This is a blank page.

