The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	福島復興のための蛍光ガラスを利用した放射能汚染モニタリング法に関する研究
Author(s)	図子, 直城
Citation	大阪大学, 2015, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://doi.org/10.18910/52214
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

博士学位論文

福島復興のための蛍光ガラスを利用した放射能汚染モニタリング法に関する研究

図　子　直　城

2015 年 1 月

大阪大学大学院工学研究科

要旨

本論文は，蛍光ガラスを利用した福島復興のための放射能汚染モニタリング法に関する研究ついてまとめたものである。

最初に，本研究の研究動機と目的について述べている。2011 年 3 月 11 日に発生した東北地方太平洋沖地震に伴う福島第一原子力発電所の損壊事故によって，福島県を中心とした広い範囲に放射性物質が放出拡散した。原子力発電所事故後 3 年以上が経過した現在，主要残留放射性核種である放射性セシウムの汚染モニタリングのために，簡便な放射能汚染モニタリング法が必要となっている。このような背景から，表題の研究に取り組んだことについて述べている。

次に，放射線安全管理の基本と概要について説明している。そして，平常時の放射線取扱施設における放射性同位元素の取扱いやモニタリング法と，今回の原子力発電所事故時の放射能汚染物質の取扱いや，特に放射性セシウムの汚染モニタリング法について比較している。そして，今回の広域の放射能汚染事故に対して，イメージングプレートを用いた，土壌の放射能汚染の深さ方向分布を測る簡便な方法を考案した。その実験結果より，イメージングプレートのような積算型線量計素子が土壌の放射能汚染モニタリングに上手く適用できることがわかった。そしてまた，長期間の測定や耐環境性を考慮すると，イメージングプレートより蛍光ガラスの方がより優れていることを述べている。蛍光ガラスの蛍光（ラジオフォトルミネセンス，RPL）の原理と，高精度の積算線量測定に優位な点について説明している。但し，これまでに蛍光ガラスが放射能汚染モニタリングに応用された例はなく，この目的に整合するように形状や蛍光測定法等について検討を行う必要がある。そこで，粒子輸送計算コードを利用したシミュレーション計算を通して，放射能汚染モニタリングに適した蛍光ガラスの形状や蛍光（RPL）測定法について考察を行っている。

次に，本研究で開発した放射性セシウムの汚染モニタリングシステムについて述べている。放射能検出に細いロッド状に加工した蛍光ガラス素子を製作し，その RPL 光分布をレーザー顕微鏡で測定するシステムを開発した。紫外レーザーによって蛍光ガラスロッドの局所部分を順に励起走査することで，蛍光ガラスロッド全体の RPL 分布を得ることができる。また，標準 RI 線源による応答比較から，蛍光ガラスロッド

とレーザー顕微鏡システムで，アルファ放射能とベータ放射能の弁別が可能であることを述べている。実用性については，福島県で採取した土壌に蛍光ガラスロッドを差し込んで放射能測定する方法で，深さ方向の放射性セシウム放射能の分布が得られることを示している。また，本方法を利用した応用研究の例として，放射性セシウムの土壌中での動態解明に関する実験と結果について説明している。

最後に，蛍光ガラスをビーズ状に加工して放射能汚染モニタリングに適用する方法について説明している。さらにまた，直径約 0.2 mm の蛍光ガラスビーズをフィルムに貼り付けることで，フレキシブルな蛍光ガラスシートとしても利用できるようにしている。そして，放射能汚染モニタリングが幅広く適用できるように，対象の状態に応じて，蛍光ガラス用の励起光源や RPL 検出器を適切に選択できるようなシステム構成としている。蛍光ガラスビーズ群あるいは蛍光ガラスシートの RPL 画像測定器としては，主にデジタルカメラを使用し，さらに遠隔で放射能汚染モニタリングを行う場合には，イメージインテンシファイアで画像増強を行うようにしている。そして，遠隔モニタリング（距離：数 m）の実験からは，蛍光ガラスシートの励起光源として紫外 LED アッセンブリを用いる場合で，放射性セシウムの汚染表面密度が 40 kBq/cm^2・day 程度から汚染モニタリングできること，励起光源に紫外レーザーを走査して使用する場合では，さらなる感度向上が見込まれることを明らかにしている。また，放射能汚染水モニタリングに浮遊型の蛍光ガラスビーズボールを用いる方法についても説明している。

目次

第 1 章 序論 1

1.1 研究の背景 1

1.2 本研究の目的 4

1.3 本論文の構成 7

参考文献 8

第 2 章 放射線安全管理の概要 10

2.1 緒言 10

2.2 放射線取扱施設の安全管理 10

2.3 原子力施設の事故時の放射線安全管理 13

2.4 積算型線量計を利用した放射能モニタリング 18

2.5 結言 20

参考文献 22

第 3 章 蛍光ガラスの放射能汚染検出への応用 24

3.1 緒言 24

3.2 銀活性リン酸塩ガラスの蛍光機構 24

3.3 蛍光ガラスの特長と放射能汚染検出への応用 27

3.4 蛍光ガラスへのベータ線及びガンマ線の線量応答計算 28

3.5 結言 32

参考文献 33

第 4 章 レーザー顕微鏡を利用した放射能汚染観測 34

4.1 緒言 34

4.2 線量計用蛍光ガラスの製作 34

4.3 蛍光ガラスロッド素子の製作 37

4.4 レーザー顕微鏡を用いた RPL 測定装置の構築 39

4.4.1 測定装置の概要 39

4.4.2 平均値型信号電流測定系と測定手順 42

4.4.3 光子計数のための電子回路系 43

4.5 レーザー顕微鏡システムの基本性能評価 45
4.5.1 蛍光ガラスのアニーリング試験 45
4.5.2 励起レーザーのビーム径と位置分解能 48
4.5.3 吸収線量－蛍光応答特性 52
4.6 蛍光ガラスロッド素子の特性 53
4.6.1 X 線照射試験 53
4.6.2 放射性同位元素線源による照射試験 54
4.7 福島県で採取した土壌の放射能汚染測定 56
4.8 土壌中の放射性セシウムの動態観測への応用 59
4.9 結言 61
参考文献 63
第 5 章 福島復興に向けた遠隔放射能汚染モニタリング法 64
5.1 緒言 64
5.2 蛍光ガラスビーズ及びシートの製作 65
5.2.1 製作方法の概要 65
5.2.2 蛍光ガラスのビーズ化過程とその観察 67
5.2.3 蛍光ガラスビーズの製作 69
5.2.4 蛍光ガラスビーズシートの製作 72
5.3 蛍光ガラスビーズシートの RPL 観測 74
5.3.1 RPL 観測システムの概要 74
5.3.2 RPL 光イメージング 78
5.4 蛍光ガラスビーズシートの RPL 観測実験 80
5.4.1 X 線照射及び RPL イメージ観測 80
5.4.2 線量に対する線形性の評価 83
5.4.3 空間分解能の評価 84
5.5 RPL 遠隔モニタリングシステムの構築 90
5.5.1 システムの概要 90
5.5.2 遠隔 RPL モニターの電子回路系 91
5.5.3 紫外励起光源の電子回路系 95

5.6 RPL 遠隔モニタリングシステム利用基礎実験 97
5.6.1 蛍光ガラスビーズシートの RPL 測定 97
5.6.2 放射性セシウム表面汚染に対する感度 100
5.6.3 放射能汚染水モニタリングへの応用 102
5.7 結言 106
参考文献 108
第 6 章 結論 109
謝辞 113
研究業績 115

第 1 章 序論

1.1 研究の背景

2011 年 3 月 11 日，三陸沖を震源とするマグニチュート 9.0 の大地震が発生した。この地震及びそれに伴い発生した津波により，東北地方や関東地方の海岸線を中心とした東日本の広い範囲に甚大な被害を受けた。福島県の東京電力福島第一原子力発電所では，地震と津波によって引き起こされた全交流電源喪失のために炉心の冷却機能が失われ，第一原子力発電所 1 号機では 11 日から，2 号機及び 3 号機からも 13 日以降断続的に放射性物質が大気中へ放出された[1]。放出された放射性物質は，風向や降雨など当時の気象条件に従って陸域や海域に広く拡散した。これらの地震，津波，原子力発電所事故は総称して東日本大震災と呼ばれ，震災から 3 年以上経過した現在も社会的にも重大な問題となっている。

図 1.1 は原子力規制庁が定期的に行っている航空機モニタリングによって得られた線量率マップ[2]の例である。ヘリコプターによって約 300 m の高度より放射線線量率の測定を行い，地表面から 1 m の高さでの空間線量率(μSv/h)への換算を行っている。図より，事故から約 3 年が経過した段階でも，原子力発電所から放出された放射性物質による影響が広がっていることが示されている。また，図 1.2 は筆者らが事故の約 2 か月後に自動車による走行サーベイを行った結果である[3]。測定場所は原子力発電所の北西方向であり，放出された放射性核種の沈着が大きいとされる地域を中心に行っているが，同じ地域でも分布に差があり，局所的に線量率が高くなっている地点があることが示されている。

原子力発電所の事故によって放出された放射性核種は核分裂生成物を中心として多岐にわたっていたが，事故より 3 年以上が経過したため短半減期の核種は減衰し，現在影響を与えている主要な核種はセシウム 134（半減期 2.07 年）及びセシウム 137（半減期 30.1 年）である。損傷した原子炉からの放射能放出量は，当時の原子力安全保安院（現原子力規制委員会）による試算では，セシウム 134 について 1.8×10^{16} Bq，セシウム 137 について 1.5×10^{16} Bq と見積もられている[4]。事故当初は，放射性セシウムに加えてキセノン 133（半減期 5.24 日）やヨウ素 131（半減期 8.02 日）等の放出

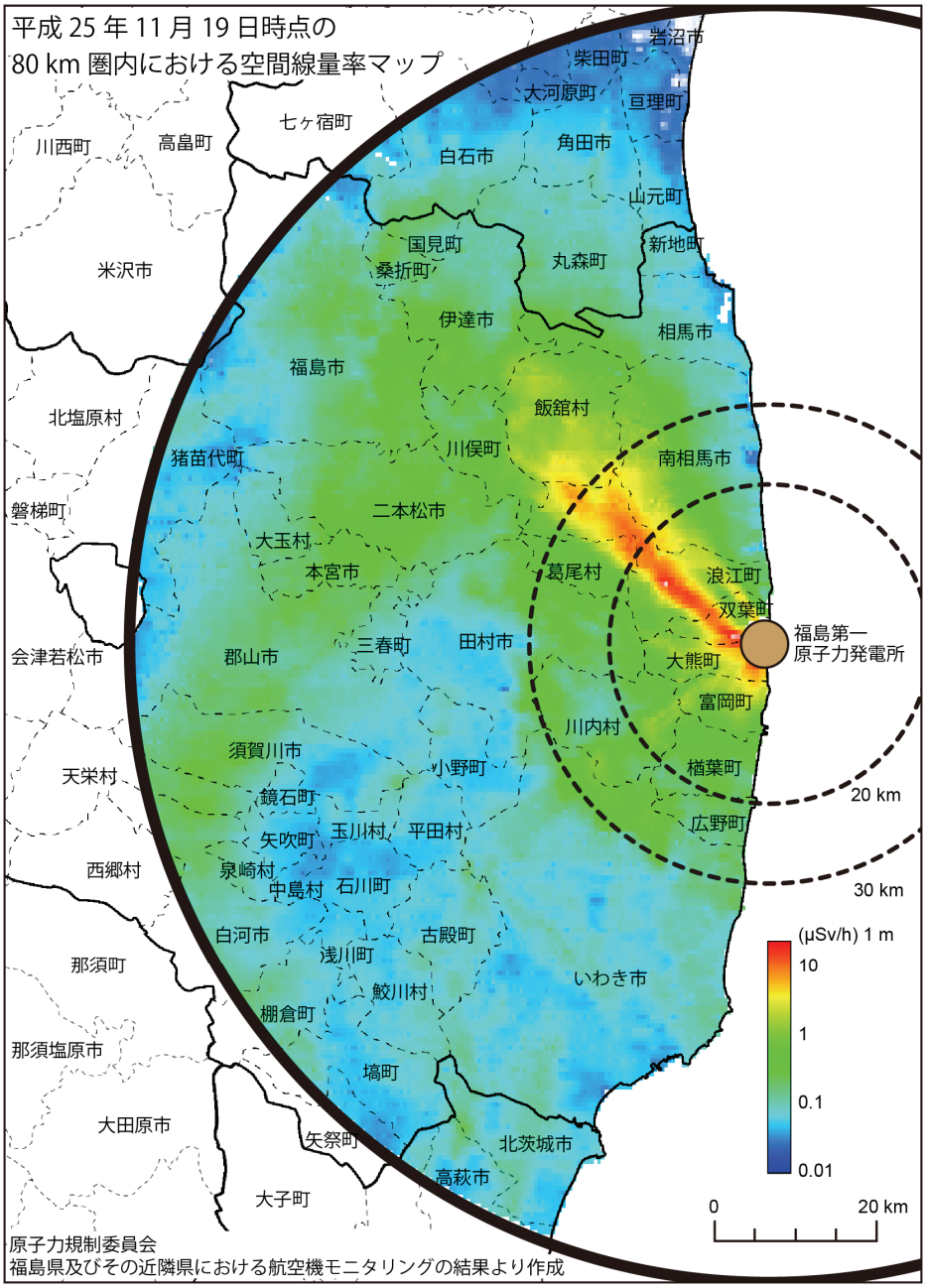

図 1.1 福島第一原子力発電所 80 km 以内の航空機による空間線量率モニタリング結果[2]

量が多かったことからこれらの核種も重要な測定対象とされていた。

この事故によって人々の生活地域に大量の放射性物質が拡散したため，様々な角度から線量率や放射能の測定が求められている。事故直後より広い範囲にわたって空間線量率のモニタリングをはじめ，土壌，食品，雨水などに含まれる放射能値が測定されてきた。そして，現在ではリアルタイムの空間線量率を含む多くの測定データが原子力規制委員会の Web サイトへと掲載される仕組みとなっている[5]。特に，食品中

図 1.2 事故から約 2 か月後の空間線量率の走行サーベイによる測定結果

の放射能については健康への影響が懸念されることから広く測定が行われ，事故後に規制値が設けられた後，さらに 2012 年 4 月 1 日より新たな基準値が設定された。現在も基準値を超過する食品は出荷制限等の処置がなされている。線量率や放射能の測定に加え，放射性物質を取り除く除染についても多くの研究が行われている。特に田畑土壌の除染は，農作物の基準値問題と密接に関わっているために重要な課題の一つであり，様々な方面から研究が進められている[6-8]。

過去，環境中の広範囲にわたる放射能汚染の例としては，第二次世界大戦中に広島と長崎に投下された原子爆弾や 1960 年代まで続いた大気圏核実験などの核兵器爆発によるものと，チェルノブイリ原子力発電所事故に代表される原子炉の大規模損傷によるものがあった。これらによって環境中に放出された放射性物質（半減期の観点からは特に放射性セシウム）の動態については，これらの事象による環境汚染に対しても行われており，Broadley らは植物の種類による放射性セシウム吸収ついて調査を行

っている[9]。また，植物の放射性セシウム汚染防止に，ゼオライトの放射性セシウム吸着作用が有用であることは知られていた[10-11]が，放射性セシウムの詳細な動態や効率的な除染については不明な点も多く，今回の事故直後より様々な取り組みが行われている。

図 1.1 に示したような広い範囲にわたる空間線量率分布測定は，事故の約 1 か月後には文部科学省と米国エネルギー省の協力で実施され，現在まで年に数回の頻度で航空機モニタリングによって行われている。一方，狭い範囲に限った放射線（放射能）モニタリングに着目すると，ホットスポットと呼ばれる空間線量率の局所的に高い地点（領域）の検知のため，一般のサーベイメータに加えてホットスポット検知用のガンマカメラが利用され始めている。しかし，広大な地域にわたり放射能汚染が広がっている現状では，より簡便に基準となる多くの地点の定点モニタリングを行える方法が求められている。

一方，大きな損傷を被った原子炉の廃炉に向けた取り組みも進められている。損傷原子炉の周辺にはまだがれきなどの放射能を有する障害物が多く残され，空間線量率も高く放射線作業従事者の長時間の立ち入りが困難である。現在は主に自走ロボットや浮遊装置等，遠隔操作ができる装置に一般用撮像装置や放射能観測用ガンマカメラ等を組み込んだシステムによる状況調査が行われている[12]。福島原子力発電所敷地内の高放射能汚染水の処理も重要な課題であり，上述のゼオライトによる吸着他を利用した汚染水処理システム等の稼働が始まっている[13]。しかし，全体としては損傷原子炉の詳細や周辺の放射能汚染状況は確認できていない部分が多く，本格的な復旧作業にはまだ至っていない状況である。復旧作業のための第一歩は放射能汚染分布の正確な把握である。また，広く福島復興に向けても生活地域の放射能汚染状況の把握が必須であり，基準となる多くの地点の定点放射能モニタリングを簡便に行う方法が重要と考えられる。

1.2 本研究の目的

福島県をはじめとする放射能汚染地域の効率的な除染活動において，また，損傷原子炉や関係建築物とその周辺の高レベル放射能汚染領域においては廃炉に向けた作

業を行う上で，放射性セシウムの詳細な汚染分布を調べることが求められている。放射性物質フォールアウト時の気象環境条件や沈着物質，例えば，土壌の性質などにより放射性セシウムの沈着濃度が異なるため，分布測定に際して画一的な方法を選択することが難しく，汚染対象の形状や性質，濃度に応じた測定方法が必要となっている。具体的な一例では，土壌中の放射能の深さ方向分布を簡便に効果的に調べることができれば，現在除染方法として用いられている表土削りや天地返しなどの方法を必要な場所のみで済ますことができ，作業時間の短縮と放射能汚染廃棄物の減量への貢献が期待できる。廃炉に向けての取り組みにおいても，周辺領域の放射能汚染分布データが廃炉作業効率の向上に貢献することは言うまでもない。

今回の福島原子力発電所損傷事故直後より，全国の大学や研究機関が連携して放射能汚染状況の調査に協力した。農作物，食品，土壌など様々な試料についての放射能測定が行われた。筆者の所属する研究室（先進ビームシステム工学領域）においても，放射性物質のフォールアウトによって汚染したと思われるホウレンソウなどの葉物野菜の放射能測定が依頼され，イメージングプレートによって放射能汚染分布の評価を行った。また，現地調査も実施し，土壌中の放射能分布についても分析を行った。第 2 章で詳しく述べるが，土壌試料の深さ方向の放射能汚染分布について，形状と被覆に工夫を施したイメージングプレートを差し込んで調べる方法を考案した[14]。このように，原子力発電所事故後初期の頃は，放射能汚染分布分析の方法としてイメージングプレートをよく利用していた。

イメージングプレートは高感度の放射線検出素子の一つであり，オートラジオグラフィーと呼ばれる放射能による二次元像を得る手法に一般的に用いられている[15]。しかし，イメージングプレートは可視光の曝露により蓄積した放射線量の情報が失われることから，イメージングプレートを屋外で独自に用いて土壌中の放射能分布の測定する際には可視光の侵入防止に細心の注意が必要である。これは実際の取扱いが難しいということである。また，イメージングプレートは線量データの読み取り操作によって自動的に線量データのリセット（消滅）が行われることや，フェーディングと呼ばれる経過時間による退行（線量数値の低下）が比較的大きいことも，長期間の積算測定を行う場合に大きな問題となる[16]。これらの点で，イメージングプレートを

簡便で効率的な放射能汚染モニタリング用の線量素子として適用するのは困難であることがわかる。

そこで，本研究では，実用的な放射能汚染モニタリング用の積算型線量素子材料として蛍光ガラス（銀活性リン酸塩ガラス）を選択することを考えた。この蛍光ガラスは，放射線を取り扱う作業従事者の個人被ばくモニタリング用線量計素子として広く用いられている。蛍光ガラスは線量データの読み取りの際に線量情報の消失が起こらず積算線量とある期間の被ばく線量を測定可能であること，繰り返しの読み取りが可能であること，また，ガラス固体であるためにある程度の機械的な強度も備えていることなど，前述した放射能汚染モニタリングに必要な条件をほぼ満たしている。

蛍光ガラスはこれまで個人被ばくモニタリングのほか，作業環境[17]や，自然環境中の放射線量モニタリング[18-19]に用いられた例はあるが，放射能汚染モニタリングに積極的に適用された例は見当たらない。そのために特別な工夫もされていないし，放射線量－放射能表面汚染の関係（応答特性）についての考察もほとんど行われていないようである。しかし，個人被ばく線量測定の現場では一般的となっている蛍光ガラス素子を工夫して，放射能汚染モニタリングに上手く適用できるようにすれば，比較的低コストでかつ導入が容易な素子として非常に有用になると予想される。本研究では，蛍光ガラス素子を除染活動に有用な，ひいては福島復興に不可欠である，多地点の放射能汚染定点モニタリングや高レベル地域の汚染モニタリングへの適用を目指した。

具体的には，放射能汚染土壌の表面及び深さ方向の汚染分布をモニタリングするために，蛍光ガラス素子の形状等に適切な工夫と加工を行った。さらに，従来の蛍光ガラス素子の場合と異なり，蛍光ガラス素子内での蛍光分布を正確に調べる必要があるため，専用の蛍光測定システムを開発した。また，放射能表面汚染分布測定については遠隔モニタリングを想定して，UV-LED 光源，レーザー光源，望遠鏡，デジタルカメラ（撮像器）などの基本光学コンポーネントを柔軟に組み合わせられるような仕組みとし，測定対象や観測環境に応じて最適なモニタリングシステムを構築できるようにした。蛍光ガラス素子についても汚染モニタリング状況に応じて複数の形状のものを製作した。

1.3 本論文の構成

本研究では積算型蛍光ガラス線量計素子を用いた放射能汚染モニタリング法の構築を行っている。論文は以下の計 6 章で構成されている。

第 1 章は序論であり，研究動機となった福島第一原子力発電所事故の概要やその影響について述べ，福島復興のために現在行われている取り組みについて概略を説明した。また，原子力発電所事故直後に行ったイメージングプレートを用いた放射能汚染分布測定の例と，本研究の目的である蛍光ガラス線量計素子の定点放射能汚染モニタリングへの適用について述べた。

第 2 章では，通常の放射線利用施設の安全管理と福島第一原子力発電所事故の場合のような事故時の放射線安全管理についての比較を行った。それぞれについて関係する放射能・放射線測定法の概説を行っている。また，福島復興について先ず必要な放射能汚染モニタリングの概要について説明した。イメージングプレートを用いた放射能汚染分布測定法について述べた。

第 3 章は蛍光ガラス線量計の原理とその特性について述べた。合わせて，シミュレーションによる放射性セシウムからの放射線の線量応答について計算し，汚染分布観測に適したガラス形状の検討を行った。

第 4 章では，放射能汚染土壌の深さ方向の汚染分布を測定するための土壌に差し込む蛍光ガラスロッド素子の開発について述べた。また，蛍光ガラスロッド素子用の線量読み取り装置を構築し，この手法の基本性能の評価を行った。さらに，福島県で採取した放射能汚染土壌についての測定例や，本測定法の応用例について示した。

第 5 章では，放射能汚染土壌や汚染がれき等の表面汚染分布を遠隔でモニタリングするための蛍光ガラス素子及び，開発した遠隔モニタリングシステムについて述べた。蛍光ガラス素子として，蛍光ガラスをビーズ状に加工しシートへ貼り付けることでフレキシブルな蛍光ガラスビーズシートを開発した。遠隔モニタリングシステムについては，蛍光ガラスビーズの蛍光分布を簡便に調べるシステムと，遠隔放射能汚染モニタリングの観測例について説明した。

第 6 章では，得られた結果や考察をもとに，本研究の総括として結論を述べている。

参考文献

[1] 東京電力，“福島第一原子力発電所事故の経過と教訓”，http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/outline/index-j.html (2013).

[2] 原子力規制委員会，“福島県及びその近隣県における航空機モニタリングの測定結果について”，http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/9000/8909/24/362_20140307.pdf (2014).

[3] 図子直城，“福島で学ぶ ―大学における新しい教育・研究プログラムの一環として―”，*ESI News*, Vol. 31, No. 2, pp. 14-16 (2013).

[4] 経済産業省，“東京電力株式会社福島第一原子力発電所の事故に係る１号機，２号機及び３号機の炉心の状態に関する評価について”，http://www.meti.go.jp/press/2011/06/20110606008/20110606008.html (2011).

[5] 原子力規制委員会，“放射線モニタリング情報”，http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/index.html (2014).

[6] 伊藤健一，宮原英隆，氏家亨，武島俊達，横山信吾，中田弘太郎，永野哲志，佐藤努，八田珠郎，山田裕久，“湿式分級洗浄および天然鉱物等による農地土壌等に含まれる放射性セシウム除去方法の実践的検討”，*日本原子力学会和文論文誌*，Vol. 11, No.4, pp. 255-271 (2012).

[7] 山西弘城，芳原新也，若林源一郎，稲垣昌代，堀口哲男，“福島県川俣町における環境放射線調査‐土壌中放射性セシウム濃度‐”，*Radioisotopes*, Vol. 62, No. 5, pp. 259-268 (2013).

[8] 山口紀子，高田裕介，林健太郎，石川覚，倉俣正人，江口定夫，吉川省子，坂口敦，朝田景，和穎朗太，牧野知之，赤羽幾子，平舘俊太郎，“土壌－植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因”，*農業環境技術研究所報告*，Vol. 31, pp.75-129 (2012).

[9] M.R. Broadley, N.J. Willey and A. Mead, “A method to assess taxonomic variation in shoot caesium concentration among flowering plants”, *Environmental Pollution*, Vol. 106, pp. 341-349 (1999).

[10] A. Abufasa and H. Yücel, “Removal of ^{137}Cs from aqueous solutions using different cationic forms of a natural zeolite: clinoptilolite”, *Separation and Purification*

Technology, Vol. 28, pp. 103-116 (2002).

[11] S. Kesraoui-Ouki, C.R. Cheeseman and R. Perry, “Natural zeolite utilisation in pollution control: A review of applications to metals' effluents”, *Journal of Chemical Technology and Biotechnology*, Vol. 59, pp. 121-126 (1994).

[12] 東京電力，“福島第一・第二原子力発電所の状況”，http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/index-j.html (2014).

[13] T. Hijikata, K. Uozumi, T. Tsukada, T. Koyama, K. Ishikawa, S. Ono, S. Suzuki, M. Denton and J. Raymont, “Early construction and operation of the highly contaminated water treatment system in Fukushima Daiichi Nuclear Power Station (II) – dynamic characteristics of KURION media for Cs removal in simulated contaminated water”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 51, Nos. 7-8, pp. 894-905 (2014).

[14] N. Zushi, Y. Ikeda, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, “A simple method with imaging plates for examination of soil contaminated with radioactive caesium”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 49, No. 7, pp. 663-666 (2012).

[15] 飯田敏行 監修，“先進放射線利用”，大阪大学出版会 (2005).

[16] 飯田博美 編，“放射線概論”，通商産業研究社 (2010).

[17] B. Burgkhardt, S. Ugi, M. Vilgis and E. Piesch, “Experience with phosphate glass dosemeters in personal and area monitoring”, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 66, Nos. 1-4, pp. 83-88 (1996).

[18] 文部科学省，“蛍光ガラス線量計を用いた環境γ線量測定法”，http://www.kankyo-hoshano.go.jp/series/lib/No27.pdf (2002).

[19] H. Nanto, Y. Miyamoto, T. Oono, Y. Takei, T. Kurobori and T. Yamamoto, “Environmental radiation monitoring using radiophotoluminescence in silver-doped phosphate glass”, Proc. Eurosensors XXV, Athens, Greece (2011).

第 2 章 放射線安全管理の概要

2.1 緒言

今日では，放射線や放射能の技術は，原子力発電だけでなく，工学，医学，生物学などをはじめとして幅広い分野で利用されている。これらの放射性同位元素を取り扱う施設においては，作業者や一般公衆の安全確保や環境への漏洩防止のための厳しい規則が定められている。そして，一般的には，管理区域と呼ばれる特定の区域が定められ，その中でのみ放射性同位元素を取扱うことで，公衆への無用な被ばくを防ぎ，作業従事者の被ばくを管理することに主眼が置かれている。一方，2011 年 3 月に発生した福島第一原子力発電所事故のように，広範囲に放射性物質が拡散した場合には，求められる放射線安全管理についても，範囲や対象や方法が大きく広がり，これまでとは異なる対応が必要である。特に，一般公衆の被ばくを可能な限り低減するための作業等に留意する必要がある。

本章では，放射線安全管理の概要について述べている。平常時と事故時の安全管理について，放射線及び放射能のモニタリング方法を中心に比較，説明している。2.2 節では平常時の放射線取扱施設における放射線安全管理の概要について簡単に説明している。2.3 節では事故が発生した場合の，特に，原子力施設の放射線安全管理について，また，福島地域で現在行われている放射線・放射能についての測定法について簡単に述べている。

また，筆者らは，今回の福島第一原子力発電所事故に際し，積算型線量計を用いる放射能汚染モニタリング法を考案した。イメージングプレートを用いた簡便な方法により，放射性物質の降下によって放射能で汚染した土壌の，深さ方向の放射能汚染分布を調べることを試みた。2.4 節で，この放射能分布測定法の概要と，放射能汚染モニタリングへの積分型線量計利用の有用性について述べる。2.5 節では本章の総括を行っている。

2.2 放射線取扱施設の安全管理

我が国における原子力の研究，開発及び利用に関する基本理念が，1955 年に制定さ

れた原子力基本法に定められている。そして，原子力利用は，平和の目的に限り，安全の確保を旨として，民主的な運営の下に自主的に行うことになっている。さらに，放射性物質の利用や事故時の災害防止に関して規定した核原料物質，核燃料物質及び原子炉の規制に関する法律（原子炉等規制法），及び放射性同位元素の使用や廃棄などの取り扱いに関して規定した法律（放射線障害防止法）を中心として，放射線安全管理に関する法体系が整備されている。

放射線防護の基準は，人体に対する基準と場所に対する基準の 2 種類に大きく分けることができる。このうち，人体に対する放射線防護に関しては，国際放射線防護委員会(ICRP: International Commission on Radiological Protection)が指針となる勧告を提供している。我が国の法令は，この指針で示されている考え方や基準値を基にして定められている。勧告は不定期に更新されるが，現在は 2007 年勧告[1]がもとになっており，人の被ばく限度として，職業被ばくについては 100 mSv/5 年かつ 50 mSv/年，一般公衆については 1 mSv/年の数値が基準として採用されている。

また，場所については，放射線業務従事者以外の人の立ち入りを制限し，無用の被ばくを避けるために管理区域が設定され，その基準要件が放射線障害防止法の施行規則第一章第一条で定義されている。そして，以下のような設定基準が設けられている。

- 外部放射線に係る線量が実効線量で 3 月について 1.3 mSv を超える
- 空気中の放射性物質の濃度では，3 月の平均濃度が濃度限度の 1/10 を超える（限度はアルファ線を放出する放射性同位元素に対し 4 Bq/cm^2，アルファ線を放出しない放射性同位元素に対して 40 Bq/cm^2 と定められている）
- 放射性物質により汚染される物の表面汚染密度が密度限度の 1/10 を超える
- 外部被ばくと放射性同位元素の吸入のおそれがある場合，各々の限度に対する割合の和が 1 以上になる

上記のおそれがある場所については管理区域となり，作業員の立ち入りや線量管理に関する規定が適用される。例えば，表 2.1 は，事業所内に管理区域を設けた場合の，各区域やその境界における線量限度の例である。このように区域ごとに限度を設けることで，放射線作業に従事する人や一般公衆の無用な被ばくを避ける仕組みとなっている。この例でもわかるように，事業所境界の線量限度は年間で 1 mSv（=250 μSv×4）

表 2.1 事業所の各区域及び境界における線量限度

区域	線量限度
使用施設内で人が常時立ち入る場所	1 mSv/週
管理区域の境界	1.3 mSv/3 月
事業所の境界	250 μSv/3 月

となり，一般公衆の線量限度と一致する。

管理区域内では，作業者の被ばく管理のために空気中の放射性物質濃度のモニタリング等が必要である。また，区域内から区域外への放射性物質の漏洩を防止するために，種々の放射能及び放射線モニタリングが管理区域内外で行われている。これらは，施設内などの場のモニタリングと呼ばれる[2]。

図 2.1 に，管理区域内における場のモニタリングの概要を示している。例えば，排気設備は気体状の放射性同位元素等を浄化または排気できる設備と定義され，その能力が作業室等の人が常時立ち入る場所の空気中放射性同位元素の 1 週間についての平均濃度が限度以下にできることと規定されている[3]。また，非密封放射性同位元素取扱施設では，排気の逆流による汚染防止のための空気の流れ（例えば廊下から実験室内）を作らなければならない。排気のモニタリングには，図 2.1 に示したようにガスモニタやダストモニタが利用される。ダストモニタは，排気系に設けたろ紙（フィルター）で捕集したダストの放射能を連続的に測定する装置で，捕集した空気の全体積を流量より求めることで，空気中の放射能濃度値を得ることができる。

管理区域外に物品を持ち出す場合や，実験室の机などの汚染検査を行う場合には，表面汚染のモニタリングが行われる。表面汚染モニタリング法には，直接法と間接法の二つの方法がある。直接法は汚染箇所や持出物品の表面を直接測定する方法であり，間接法はスミア法とも呼ばれ，乾燥したろ紙で表面をふき取った後，ろ紙からの放射線を計測する方法である。間接法は，ふき取り操作によって除去できる汚染，つまり舞い上がりを考慮するべき汚染の測定や，トリチウムのような低エネルギーベータ放出核種の測定に適している[2]。放射線検出器としては，GM 管式サーベイメータが主に用いられ，ガンマ線放出核種では NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータも利

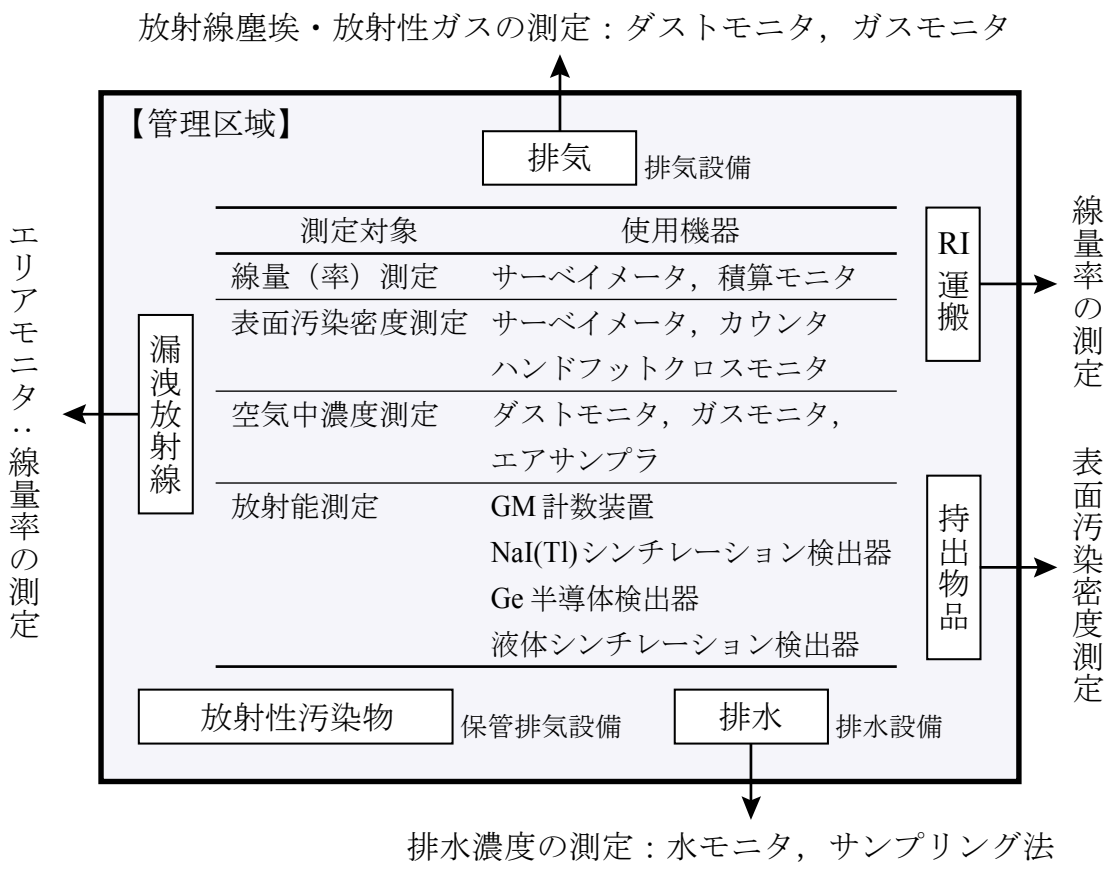

図 2.1 管理区域内の場のモニタリングの概要[2]

用される。

その他の例も含めて，一般的な放射線取扱施設における安全管理は，作業者や一般公衆の無用な被ばくを避けること，及び管理区域内の放射性同位元素を環境中に漏洩させないことに重点が置かれている。併せて，放射性同位元素の輸送や廃棄についても適切な管理を行い，紛失や盗取を防止する体系となっている。

2.3 原子力施設の事故時の放射線安全管理

前節で述べたように，通常時の放射線安全管理は，主に限られた範囲に放射性同位元素を留めるための方策である。この点の重要性は，事故等の異常が発生した場合についても同様である。ただし，事故等の異常時においては，さらに，安全保持，通報，影響の拡大防止，過大評価の 4 つの原則に基づく行動が求められる[5]。これらの原則は，それぞれ，人命の安全確保，迅速な連絡，汚染の拡大を最小限として放射性同位元素等の過度な吸入を避ける，そして，事故の危険性の見積もりを常に大きくとるこ

とを指す。

福島第一原子力発電所事故では，大量の放射性物質が外部（自然環境）へ飛散してしまったため，これまでのような放射線取扱施設の安全管理とは大きく異なる状況である。管理区域のような明確な範囲の線引きが困難である。そして，範囲を特定せずに，放射線量や放射能量やそれらの分布をモニタリングすることが必要となっている。

表 2.2 は，現在までに主に行われた，福島第一原子力発電所事故により放出された放射性物質に起因する放射線・放射能モニタリングについて簡単にまとめたものである。図 2.1 に示した一般の放射線取扱施設の安全管理のためのモニタリングと異なり，対象の範囲が大きく広いため，規模によってモニタリング法を選択する，あるいは新しく開発する必要が生じている。以下に，これまでに行われてきた，福島第一原子力発電所事故由来の放射性物質関連のモニタリングについて概観する。

線量（率）測定

線量率測定及び積算線量測定の方法は，測定対象の範囲によっていくつかに分けられる。最も広い範囲の対象には，航空機によるモニタリングが挙げられる。図 1.1 の

表 2.2 福島第一原子力発電所事故による放射能汚染の主なモニタリング手法

測定対象	範囲，対象試料	主な使用機器等・測定法
線量（率）測定	広い範囲（全域）	NaI(Tl)検出器による 航空機モニタリング
	広い範囲（道路上）	NaI(Tl)検出器による 自動車走行サーベイ
	狭い範囲，定点	NaI(Tl)検出器， モニタリングポスト
表面汚染密度測定	狭い空間 （視野範囲以下）	GM 計数管， ガンマカメラ
	原子炉建屋内	ガンマカメラを搭載した 自走（遠隔操作）ロボット
	植物表面，道路表面など	イメージングプレート
空気中濃度測定	希ガス(^{133}Xe)	NaI(Tl)検出器等
	放射性 Cs 付着微粒子	ダストサンプラ
放射能測定	食品	Ge 半導体検出器
	環境試料（土壌，海水等）	Ge 半導体検出器， NaI(Tl)検出器

線量率データは航空機モニタリングによるものであり，ヘリコプターで高度約 300 m より測定を行っている。高さ 1 m における空間線量率への換算は，テストポイントにおいて地上 1 m の計数率と上空の計数値を求めて換算している[6]。この方法で，約 600 m 円内の平均空間線量率を得ることができる。

航空機モニタリングに比べると狭い範囲に限られるが，走行サーベイ法を利用することで，比較的広範囲の詳細な線量率データを得ることができる。自動車に空間線量率測定器及び緯度経度情報が得られる GPS(Global Positioning System)機器を搭載することで，位置情報と空間線量率情報を対応付けたデータを得ることができる。測定範囲は道路上に限定されるが，生活地域内の空間線量率を知ることができ，測定点の距離間隔は数十メートル程度となる。現在，京都大学原子炉実験所グループの開発した KURAMA と呼ばれるシステムによる走行サーベイが行われており，路線バスに搭載しての定期モニタリング等の試みもなされている[7-8]。このシステムでは放射線検出器に NaI(Tl)や CsI(Tl)のシンチレーション式サーベイメータが使用されている。

さらに詳細な空間線量率分布データの取得には，NaI(Tl)シンチレーション式サーベイメータを携帯して人力による測定（歩行サーベイ）が行われるが，仕組みは走行サーベイと同様である。また，後述するガンマカメラによる環境放射線モニタリングも行われるようになってきている。それから，放射能の除染活動の効果を確認するために，ある一定範囲における除染前後の空間線量率を比較することも行われている。

定点の線量率モニタリングには，モニタリングポストが利用されている。福島原子力発電所事故以前より，原子力施設周辺の線量率モニタリングに使用されていたものに加え，事故後には可搬型モニタリングポストやリアルタイム線量率測定システムも使用されている。これらの機器で測定された線量率情報は，リアルタイムで地図上にマッピングされ，原子力規制委員会の Web サイトより閲覧することができる[9]。

<u>表面汚染密度測定</u>

前節で説明したとおり，通常，表面汚染密度の測定は，実験室内や持出物品など特定の範囲に限定される。一方，原子力発電所事故により大量に放出された放射性物質は，広域に亘って放射能表面汚染をもたらした。そして，今回の原子力発電所事故直後には，避難者（一般住民）の被ばく（放射能表面汚染）状況を確認するために，身

体や衣服表面の放射能汚染のスクリーニングが行われた。測定機器としては主に GM 管式サーベイメータが使用された。

現在，表面の放射能汚染の測定は，放射能濃度が局所的に高いホットスポットの検知が中心となっている。ホットスポットの検知には，主にベータ線の検出が可能な GM 管式サーベイメータ等が用いられている。また，アスファルト上に残留した放射性物質の詳細な分布測定や植物の表面汚染分布などの測定も行われており，これらの測定にはイメージングプレートがよく利用されている[10-11]。また，通常の CCD カメラが組み込まれているため，撮影した視野の可視光像に放射能汚染分布図を重ねて表示することもできるようになっている。

原子力発電所事故後，限られた範囲の放射能汚染分布を可視化する方法として，ガンマカメラが利用され始めている。ガンマカメラは一定方向より入射するガンマ線による寄与（線量）を 2 次元データ（画像）として取得する装置であり，コリメータ，NaI(Tl)や BGO の無機シンチレータと 2 次元的に並べた光電子増倍管の検出器群で構成されている。原子力発電所事故以前では，PET や SPECT といった核医学の分野で一般的な画像観測装置であったが[13]，事故以後，この装置技術が環境中の放射能汚染観測に用いられるようになった。それから，コリメータに代えて複層のシンチレータによって散乱角と検出エネルギーからガンマ線の入射方向を計算し，汚染源の分布画像を計算で求めるコンプトンカメラが，同様に放射能汚染モニタリングに使用され始めている[12]。

また，表面汚染分布に関連しているが，土壌中の深さ方向の放射能汚染分布についても測定が行われている。主にパイプでくり貫いた土壌試料を深さ毎に輪切りにし，その放射能を Ge 半導体検出器や NaI(Tl)シンチレーション検出器で測定しているが，フォトダイオードをライン上に並べた棒を，土壌中に差し込んで測定する簡便な方法も研究されている[14-15]。

<u>空気中濃度測定</u>

原子力発電所事故時に放出された放射性物質の多くは大気中に拡散した。キセノン 133（半減期：5.25 日）は，3 年以上が経過した現在は十分減衰している核種であるが，放出量が多い希ガスであったため気流に乗って拡散し，2011 年 3 月 20 日にはカナダ

のバンクーバー上空において 30-70 Bq/m^3 の濃度で検出された[16]。当該研究では，キセノン 133 は NaI(Tl)シンチレーション検出器によってエネルギー分析され，その計数率から放射能が求められた。

一般的に，エアロゾル粒子を含む大気についてダストサンプリングによる大気浮遊塵の測定が行われており，原子力発電所事故直後にはヨウ素 131（半減期：8.02 日）が見られたが，既に減衰し現在は検出されることはない。今は，セシウム 137 を含む微粒子の舞い上がりによると考えられる放射能が一部で検出されている。このように，現在問題になっている大気中の放射性核種は，微粒子に付着しているものが中心であり，ダストサンプラ等によって捕集した微粒子の放射能を，定量分析する方法がとられている。

放射能測定

試料中の全放射能量及び放射能濃度の測定は，現在，線量率測定とともに主要な測定項目となっている。これは食品の放射能濃度測定が社会的にも重要となっていることによる。食品中の放射能（放射性セシウム）濃度の基準値は食品群により異なり，飲料水に対し 10 Bq/kg，乳児用食品に対し 50 Bq/kg，牛乳に対し 50 Bq/kg，一般食品に対し 100 Bq/kg の基準値が 2012 年 4 月 1 日より適用されている。

食品の放射能測定方法としては，出荷前の農作物をサンプリングして放射能測定を行う方法が挙げられる。この方法は野菜，畜産物，水産物など多くの食品に対して行われており，福島県の場合は専用の Web サイトにて測定結果が随時公開されている[17]。また，我が国における主要な穀物であるコメは，福島県の主要な農作物であることもあり，2012 年産のものより，開発されたベルトコンベア式の検査機によって全量全袋検査が行われている。

食品の放射能摂取については，マーケットバスケット方式と陰膳方式で調べられている。マーケットバスケット方式は販売されている食品を購入して放射能測定を行う方法で，陰膳方式は一人分の食事を余分に作ってその食事の放射能を分析する方法である。どちらも，食事による重金属や食品添加物の摂取量評価にも用いられる方式である。陰膳方式では市場に流通しない自家栽培の食品や山菜を含めて評価することが可能である。

食品以外でも，土壌，海水，上水，植物などの放射能測定が行われている。放射能測定機器としては，NaI(Tl)シンチレーション検出器及び Ge 半導体検出器が用いられている

2.4 積算型線量計を利用した放射能モニタリング

筆者らは福島第一原子力発電所事故発生の 1-2 週間後より，要請によって土壌や野菜などの福島県で採取された放射能汚染試料の測定や分析を行ってきた。その中で，土壌中の深さ方向の放射能汚染分布を簡便に測定する方法について，イメージングプレート（IP）を短冊状にカットしたものを土壌中に差し込む方法を提案した[18]。

IP は，BaFBr:Eu^{2+}などの輝尽性蛍光体が用いられている積算型の放射線検出素子であり[19]，医学や生物学などの分野をはじめ広く利用されている。放射線照射（曝露）によってプレートの蛍光体に潜像が作られ，これに He-Ne レーザーを照射（走査）すれは約 420 nm の蛍光が放出される。この蛍光の映す画像が放射線照射画像である。蛍光量に関係した PSL (photo-stimulated luminescence) 値が定量単位として使われる。

図 2.2 に土壌中の深さ方向の放射能汚染モニタリング法の概要図を示す。IP（BAS-TR2025, GE Healthcare）は 7 mm × 70 mm にカットしたものを 2 枚用意した。土壌に

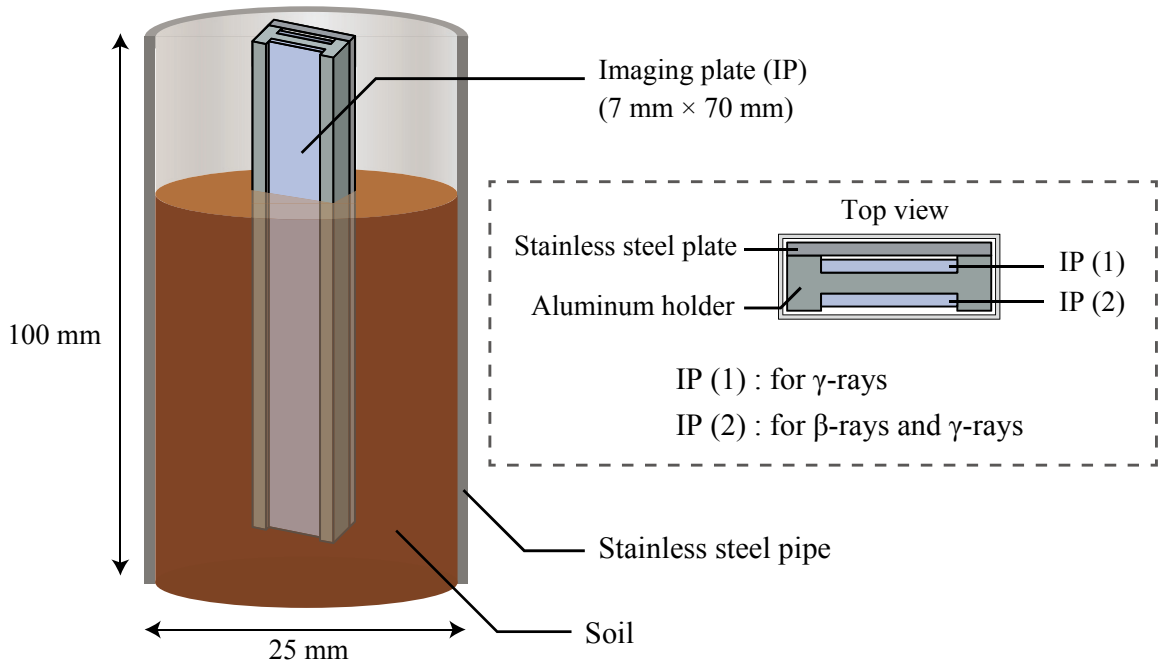

図 2.2 イメージングプレートを用いた土壌の深さ方向の放射能汚染モニタリング法の概要

差し込むために，2 枚の IP をアルミニウム板で製作したホルダーに取り付けた。2 枚の IP の内の 1 枚には，表面に厚さ 1 mm のステンレススチール板を取り付けてベータ線を遮蔽した。以後の議論では，この IP を IP (1)とし，もう一方を IP (2)とする。ホルダーに取り付けられた IP は, 厚さ 50 μm のポリエチレンフィルムで真空包装し，土壌や水分と直接接触しないようにした。

本方法で土壌の深さ方向の放射能汚染分布が測定できるかどうかを調べるために，試験用の土壌試料を製作した。福島県内で採取した放射性セシウム汚染土壌と大阪で採取した非汚染土壌を層状に重ねた土壌試料を作成した。汚染土壌の層は厚さ 7 mm として，その上下に非汚染土壌の層を持つ 3 層構造の試料とした。土壌試料は直径 25 mm のステンレス管内に入れ，その中に IP を差し込んだ状態で 24 時間放置した。24 時間後，IP を土壌から抜き出しホルダーから取り外して，市販の IP 用の蛍光読み取り装置(FLA-7000, GE Healthcare)を用いて線量の読み取りを行った。IP はベータ線だけでなくガンマ線にも有感であるため，IP (2)にはベータ線及びガンマ線の線量寄与が，IP (1)には主にガンマ線の線量寄与のみが表れる。そこで，土壌中からのベータ放射能のみの分布に近づけるため，IP (2)の各深さ地点の輝度より IP (1)の同地点の輝度を減算した。

図 2.3 に，IP 土壌差し込み法で測定した土壌試料の放射能汚染分布の結果を示す。グラフの横軸が深さに対応し, 色をつけた B 層部分がセシウム汚染土壌に相当する領域である。縦軸が PSL 値で線量，つまり放射能汚染度を意味する。ベータ線の線量寄与を示す IP (2) – IP (1)の分布が B 層部で大きくなっていることから，汚染土壌由来のベータ線を上手く測定できていることがわかる。IP (2)－IP (1)の分布が B 層より拡がっているのは，放射性セシウム汚染土壌粒子の浸透や，境界層付近でのベータ線照射の拡がり等の原因が考えられる。また，ベータ線の線量寄与を示す IP (2) – IP (1) の分布とガンマ線の線量寄与を示す IP (1)の分布との比較より，放射性セシウム放射能汚染については，ガンマ線の線量寄与に比べてベータ線の線量寄与の方が十分に大きいことが確かめられた。

このように，積算型放射線検出器の IP を利用する方法で，土壌中の放射性セシウムの深さ方向の汚染分布を上手く調べられることを示した。しかし，IP はフェーディ

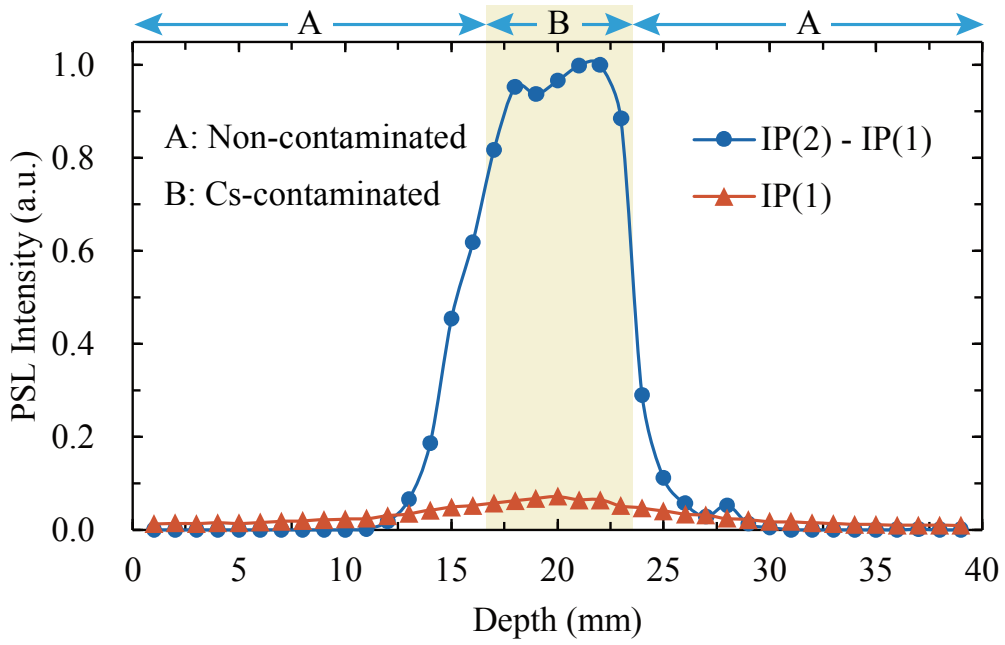

図 2.3 IP を用いて測定した土壌試料の深さ方向の放射能汚染分布

ングと呼ばれる時間とともに PSL 値が低下する退行が大きく，長期間の使用が困難であることや，遮光の必要があるために屋外での取り扱いが難しいなど，一般的な放射能汚染モニタリングへの適用には問題点が多い。実用的な放射能汚染モニタリングには，フェーディングの小さい安定で使い易い積算型の放射線検出素子が必要である。

2.5 結言

本章では，放射線や放射性同位元素を取り扱う施設における安全管理の基本について説明した。通常の放射線安全管理では，管理区域内で放射性同位元素を取り扱い，放射線作業者の過剰な被ばくと公衆の無用の被ばくを避けることを中心とした管理体系が構築されている。

一方，福島第一原子力発電所事故によって大量の放射性物質が環境に拡散した現状では，これまでとは異なる放射線安全管理が必要となっている。福島地域を中心に，現在までに行われてきた線量（率），放射能汚染，空気中放射性物質濃度等のモニタリング状況について概説した。特に，放射線安全管理には，基本となる放射能汚染モニタリングが重要と考えられる。

また，積算型放射線検出素子のイメージングプレートを利用して，土壌の深さ方向の放射性セシウムの放射能汚染分布を上手く測定できることを説明した。放射性セシウムのガンマ線ではなく，ベータ線の線量寄与を効率的に捉えることで汚染分布の測定精度が向上することを示した。しかし，イメージングプレートはフェーディングが大きく，福島地域で実際に使用するのは困難である。実用的な放射能汚染モニタリングには，フェーディングの小さい安定で使い易い放射線検出素子が求められる。

参考文献

[1] International Commission on Radiological Protection, “ICRP Publication 103”, *Annals of the ICRP*. Vol. 37, Nos. 2-4 (2007).

[2] 日本アイソトープ協会，“放射線取扱の基礎”，丸善出版 (2012).

[3] 飯田博美 編，“放射線概論”，通商産業研究社 (2010).

[4] 日本アイソトープ協会，“放射線安全管理の実際”，丸善出版 (2013).

[5] 福士政広，三枝健二，“放射線安全管理学”，医療科学社 (2008).

[6] 原子力規制委員会，“福島県及びその近隣県における航空機モニタリングの測定結果について”，
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/9000/8909/24/362_20140307.pdf (2014).

[7] M. Tanigaki R. Okumura, K. Takamiya, N. Sato, H. Yoshino and H. Yamana, “Development of a car-borne γ-ray survey system, KURAMA”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, No. 726, pp. 162-168 (2013).

[8] M. Andoh, Y. Nakahara, S. Tsuda, T. Yoshida, N. Matsuda, F. Takahashi, S. Mikami, N. Kinouchi, T. Sato, M. Tanigaki, K. Takamiya, N. Sato, r. Okumura, Y. Uchihori and K. Saito, “Measurement of air dose rates over a wide area around the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant through a series of car-borne surveys”, *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 139, pp. 266-280 (2015).

[9] 原子力規制委員会，“放射線モニタリング情報”，
http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/index.html (2014).

[10] K. Tanaka, H. Iwatani, A. Sakaguchi, Y. Takahashi, Y. Onda, “Local distribution of radioactivity in tree leaves contaminated by fallout of the radionuclides emitted from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, Vol. 295, pp. 2007-2014 (2013).

[11] 日本放射線安全管理学会 放射性ヨウ素・セシウム安全対策アドホック委員会 土壌分析班，“2. 福島第一原発事故によって汚染された土壌中の放射性物質の除去に関する中間報告”，*日本放射線安全管理学会誌*, Vol. 10, No. 2, pp. 152-171 (2011)

[12] C.W.E. van Eijk, “Inorganic scintillators in medical imaging”, *Physics in Medicine and Biology*, Vol. 47, pp. R85-R106 (2002).

[13] 武田伸一郎，渡辺伸，高橋忠幸，“「超広角コンプトンカメラ」による福島での実証実験”，*Isotope News*, No. 704, pp. 14-20 (2012).

[14] 鈴木心也，岩瀬広，登尾浩助，溝口勝，小林大樹，伊藤哲，“フォトダイオードを用いた土壌中の放射能鉛直分布測定器の開発”，*Journal of the Japanese Society of Soil Physics*, Vol. 125, pp. 29-33 (2013).

[15] N. Zushi, Y. Ono, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, “Measurement of depth-directional radioactive cesium distribution in soil with several detectors”, *Progress in Nuclear Science and Technology*, Vol. 4, pp. 741-744 (2014).

[16] L.E. Sinclair, H.C.J. Seywerd, R. Fortin, J.M. Carson, P.R.B. Saull, M.J. Coyle, R.A. Van Brabant, J.L. Buckle, S.M. Desjardins, R.M. Hall, “Aerial measurement of radioxenon concentration off the west coast of Vancouver Island following the Fukushima reactor accident” *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 102, pp. 1018-1023 (2011).

[17] 福島県，“ふくしま新発売”，
http://www.new-fukushima.jp/ (2014)

[18] N. Zushi, Y. Ikeda, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, “A simple method with imaging plates for examination of soil contaminated with radioactive caesium”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 49, No. 7, pp. 663-666 (2012).

[19] K. Takahashi, “Progress in science and technology on photostimulable BaFX:Eu2+ (X = Cl, Br, I) and imaging plates”, *Journal of Luminescence*, Vol. 100, pp. 307-315 (2002).

第 3 章 蛍光ガラスの放射能汚染検出への応用

3.1 緒言

福島第一原子力発電所の損壊によって，大量の放射性物質が自然環境中に放出拡散した。本研究では，この放射性物質の検出に，蛍光ガラスを利用することを検討した。蛍光ガラスは固体線量計の材料で，個人被ばく線量のモニタリング素子として，放射線利用分野に限らず医療現場等広く用いられている。蛍光ガラスを用いた個人被ばく線量計はガラスバッジと呼ばれ，放射線業務従事者に定期的に配布され，継続的に被ばく線量の測定が行われている。また，今回の福島第一原子力発電所事故に関連して，近隣のいくつかの市町村では，市民線量計として一般市民にも配布され，放射線業務従事者だけでなく一般市民の被ばく線量を測ることにも利用されている[1]。

蛍光ガラスの材料には，銀活性リン酸塩ガラスが用いられる。銀活性リン酸塩ガラスの性質については，40 年以上前から研究が行われ，横田らの研究によって蛍光の機構や特性が明らかとなっている[2-3]。

この章では，蛍光ガラスの蛍光機構や特性について概説するとともに，その応用，特に，放射能汚染検出への応用について述べている。

3.2 節では，吸収線量に比例して蛍光が放出される機構について，3.3 節では，蛍光ガラスの特長と放射能汚染モニタリングへの応用について述べている。また，3.4 節では，モンテカルロコード粒子輸送計算コードを用いて，蛍光ガラスによる放射能汚染検出のシミュレーション計算を行っている。3.5 節では本章の総括を行っている。

3.2 銀活性リン酸塩ガラスの蛍光機構

図 3.1 に，放射線照射された銀活性リン酸塩ガラスの紫外線励起による蛍光機構の模式図[4]を示している。銀活性リン酸塩ガラスの紫外線励起蛍光の機構は，次のように説明される。放射線照射された蛍光ガラス内では，放射線の電離作用により電子正孔対が生成されている。生成された電子と正孔は，それぞれ，最終的にガラス母材中にドープされている安定な Ag^{+}に捕獲される。そして，Ag^{0} と Ag^{++}を生成する。これらが蛍光中心となり，紫外線励起によってオレンジ色の蛍光を発する[5]。この蛍光は

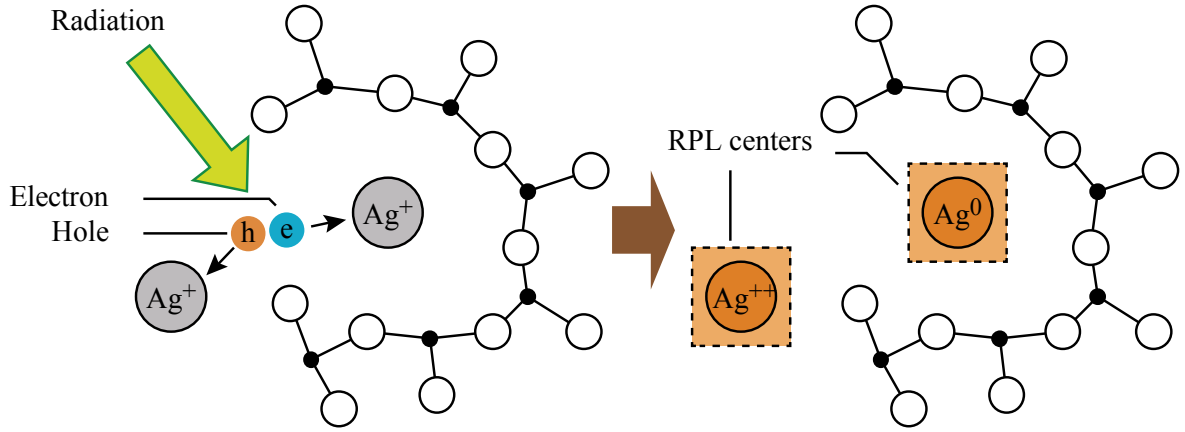

図 3.1 蛍光ガラスの放射線照射による蛍光中心生成の模式図[4]

ラジオフォトルミネセンス(Radiophotoluminescence; RPL)と呼ばれ，蛍光ガラスは RPL ガラスとも呼ばれる。一方，Ag^{+}は，紫外励起光による蛍光を示さない。

図 3.2 に，RPL の概要を表したエネルギー帯図を示している。この図に示したように，蛍光中心（Ag^{++}）は紫外光励起によってオレンジ色の蛍光を放出するが，この励起—RPL 光放出過程では，放射線吸収エネルギーの散逸を伴っていない。言い換えると，この蛍光中心は，紫外光励起によるオレンジ色の蛍光放出後も元の準位に戻るだけである。つまり，何度でも蛍光（線量）の読み出しが可能である。蛍光ガラスで高精度の線量測定が行える大きな理由である。

銀活性リン酸塩ガラスの蛍光中心の生成過程において，電子は Ag^{+}と結合して Ag^{0}となるが，正孔は一旦 PO_4 四面体に捕獲された後，時間の経過によってより安定な Ag^{+}との結合状態である Ag^{++}となる。この過程はビルドアップと呼ばれ，放射線照射後に時間経過とともに蛍光中心が増加することになる[6]。正確な測定を行うため，照射した蛍光ガラスを測定する前に，ビルドアップを促進するためのプレヒートと呼ばれる加熱処理を行い，蛍光中心を安定化させることが行われる。

生成された蛍光中心を除去し，蛍光ガラスの線量情報を消去するためには，高温による熱処理が必要である。この処理はアニーリングと呼ばれ，銀活性リン酸塩ガラスの場合は 400°C で 60 分程度の熱処理を行う。こうすることで蛍光中心が消滅し，蛍光ガラスを初期化再生することができる[7]。

紫外光励起によって蛍光ガラスより放出される蛍光には，吸収線量に比例する RPL 成分のほかに，吸収線量と無関係な成分が存在する。この成分はプレドーズまたはフ

ォトルミネセンス(Photoluminescence; PL)と呼ばれる。線量測定においては，RPL 成分と PL 成分を弁別し，RPL 成分のみを選択的に取り出すことでより高感度の線量測定を行うことができる。

PL 成分と RPL 成分の光波長の違いを利用して，両成分を弁別することができる。PL 成分の中心波長が約 400 nm であるのに対し，RPL 成分では約 600 nm である。この波長の違いにより，光学フィルター等を利用して両成分の弁別を行うことができる。

また，両成分の減衰時間の違いによる弁別も可能である。図 3.3 に，銀活性化リン酸塩ガラスの蛍光の PL 成分と RPL 成分の減衰時間の違いの様子を示している。ガンマ線を照射した蛍光ガラス試料と非照射の試料を，短パルス（10 ns 未満）の紫外線レーザーで励起した時の応答（蛍光）の様子である。図からわかるように，紫外線パルス励起直後の大きな蛍光は PL 成分であり，減衰時定数は 100 ns より短いと思われる。一方，ガンマ線照射試料では，減衰時定数が長い（2-4 μs）オレンジ色で描かれた成分が見られる。これが主に RPL 成分である。そして，図中に斜線で示した差分にあたる成分が吸収線量に比例する RPL 強度である。実際の時間減衰の違いによる弁別では，図 3.3 に示すように励起光をパルス化し，適当な応答時間（パルス励起後 2-8 μs）に対応する RPL 成分のみを抽出する方法が採られている。蛍光カラスによる高精度

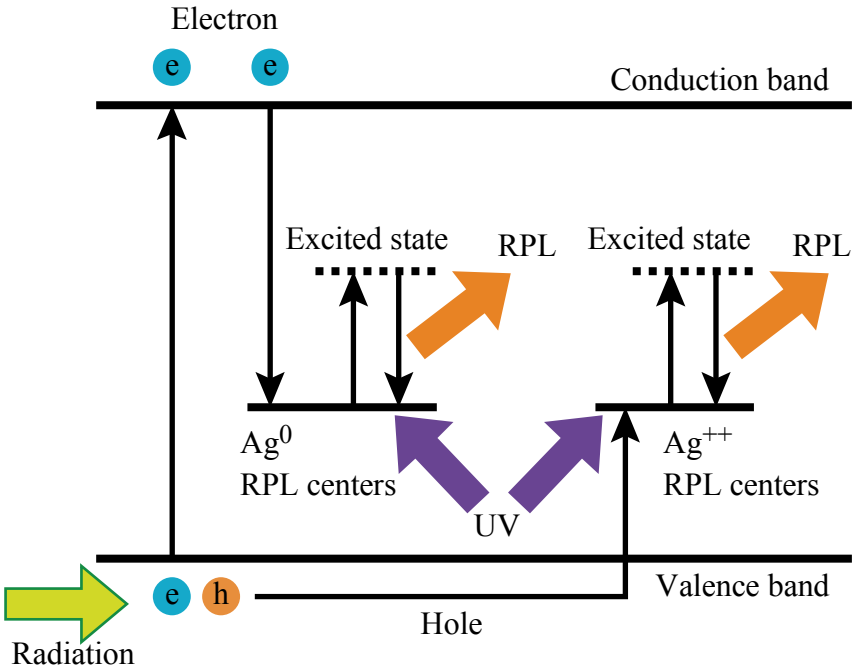

図 3.2 エネルギー帯の概要図による蛍光の模式図

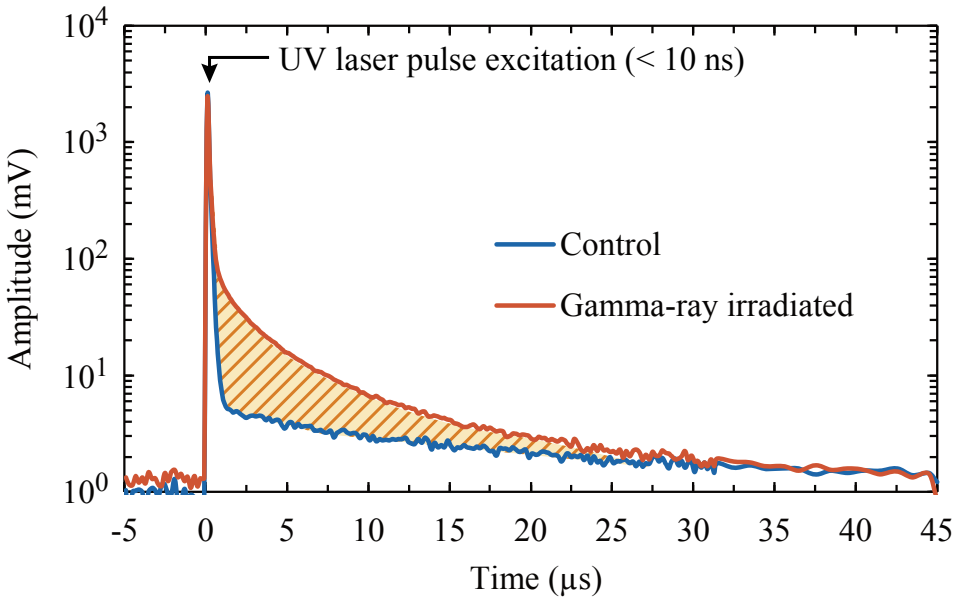

図 3.3 蛍光ガラスから放出される蛍光の時間スペクトル

の線量測定では，波長による弁別と減衰時間による弁別の両方が行われている。

3.3 蛍光ガラスの特長と放射能汚染検出への応用

個人被ばく線量モニタリングには，蛍光ガラス線量計の他に，熱蛍光線量計(Thermo-luminescence dosimeter; TLD)や OSL 線量計(Optically stimulated luminescence dosimeter; OSLD)等が用いられる。そして，蛍光ガラス線量計は，他の線量計と比較して，

(1) フェーディングが無視できるほど小さいこと

(2) 紫外線励起光照射により線量情報を消失しないこと

が，非常に優れた特長として挙げられている[8]。また，12 keV から 1.3 MeV までの広いエネルギー範囲において良好なエネルギー応答を示し[9], 長期間の安定性にも優れている。このように，積算型線量計としての利用に適した性能を有している。

放射能汚染検出への応用を想定した場合についても，蛍光ガラスは良好な特性を持っている。屋外での長期的な利用が想定されるが，積算線量計として優れた性能を持つ蛍光ガラスは，その他の線量計素子と比較して大いに適していると考えられる。例えば，前章でも述べたように，積算型線量計であるイメージングプレートを屋外で使

用する場合，フェーディングの問題に加えて遮光の問題が発生する。また，湿度や温度等の環境変化の影響も問題である。測定の観点では本質的ではないが，取扱いの容易さ（煩雑さ）も重要な項目である。実験室では全く問題とならない場合でも，実際上は大きな問題となる場合もある。

蛍光ガラスの取扱いの容易さは，図 3.2 に示したように，紫外励起―蛍光（線量読み出し）の後も，励起前の元の状態（準位）に戻ることによると考えられる。イメージングプレートを含む多くの積算型線量計は，発光中心が励起後に再結合等により失われてしまう。そのため，測定の厳密性が必要になり，いい加減な取扱いは許されなくなる。屋外での取り扱いには不向きとなる。放射能汚染モニタリングへの応用を考えた場合，蛍光ガラスの特長が非常に有効に思える。

3.4 蛍光ガラスへのベータ線及びガンマ線の線量応答計算

本研究において，放射能汚染モニタリングの対象と考えている核種は，現在の広域汚染の主要核種であるセシウム 134 及びセシウム 137 である。図 3.4 に，これら 2 核種の壊変図を示している。壊変に伴い，放出放射線のエネルギーは異なるが，2 核種ともベータ線とガンマ線を放出する。

本研究では，放射能汚染分布のモニタリングを目的としているため，より高い空間（位置）分解能が得られるように蛍光ガラスを成形加工することが必要である。そこで，本節では，先ず，蛍光ガラスの放射性セシウムからのベータ線及びガンマ線の応答（吸収線量）のシミュレーション計算を行った。シミュレーション計算には，モン

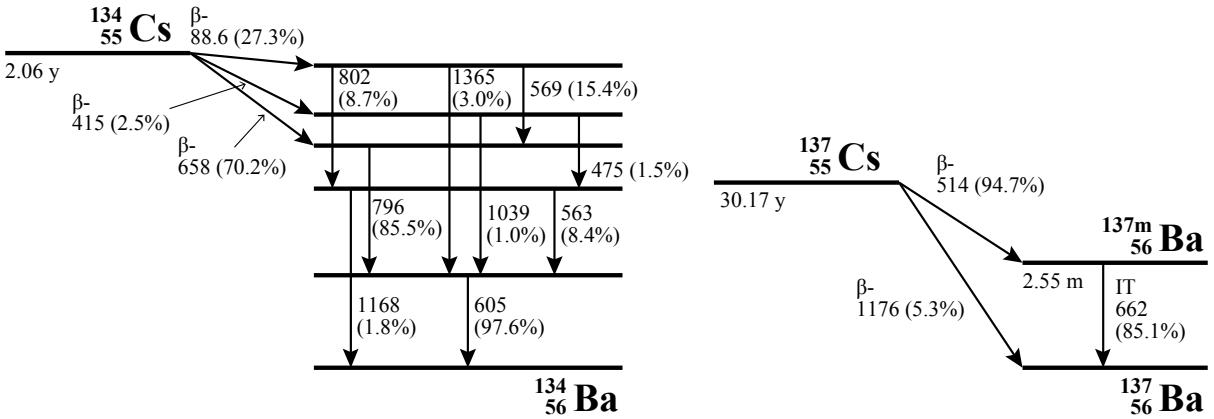

図 3.4 セシウム 134 及びセシウム 137 の壊変図（主要な壊変のみ）

テカルロ粒子輸送計算コード PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System)バージョン 2.64[10]を使用した。

本シミュレーション計算では，蛍光ガラスの応答の概略を掴むことが目的であり，セシウム 137 の点線源を蛍光ガラス表面に配置した場合の，蛍光ガラスのベータ線及びガンマ線の応答（吸収線量）を比較した。シミュレーション計算の体系図を図 3.5 に示している。蛍光ガラスのサイズを 10 mm × 10 mm × 3 mm とし，表面上に点線源を配置した。蛍光ガラスの組成は，次章で説明する銀活性リン酸塩ガラスの組成である，P: 31.55%, O:51.16%, Na: 11.00%, Al: 6.12%, Ag: 0.17%を用いて定義した[11]。

線源から放出される放射線のエネルギーのうち，ガンマ線は 662 keV として計算した。計算[12]によって求めたベータ線のエネルギースペクトルを図 3.6 に示す。ベータ線は連続的なエネルギー分布を持つが，図中に見られるピークはセシウム 137 の内部転換電子であり，ガンマ線のエネルギー(662 keV)より放出電子の結合エネルギーを減じたエネルギーを持つ単色の電子である。セシウム 137 から放出されるベータ線とガンマ線による蛍光ガラスの表面方向と深さ方向の吸収線量分布をそれぞれ計算して比較した。

計算方法としては，定義した蛍光ガラス内を 0.2 mm グリッドに区切り，T-deposit タリーによって各グリッドの吸収線量分布を計算した。T-deposit タリーは，ある領域における荷電粒子のエネルギーロスを調べるものである。ヒストリー数は 3×10^{7} である。この数値は，ガンマ線の深さ方向の吸収線量を計算した場合に，各深さにおける吸収線量の計算結果が持つ統計誤差が 5%未満になるように設定した値である。

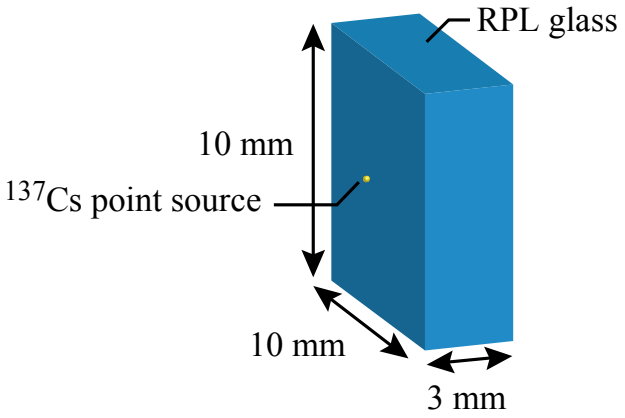

図 3.5 蛍光ガラスの放射性セシウム放射線応答の計算体系

図 3.7 に，蛍光ガラスの平面方向の吸収線量分布の計算結果を示している。表面から深さ 0.2 mm までの吸収線量を 0.2 mm 四方のグリッド毎に表している。ベータ線の吸収線量は線源を配置した中心で大きな数値を示すのに対して，ガンマ線の吸収線量はベータ線に比べてほぼ 3 桁小さく，また全体に広がった分布になっている。この違いはベータ線とガンマ線の線質の違いに起因し，ガンマ線に比べて平均自由行程の短

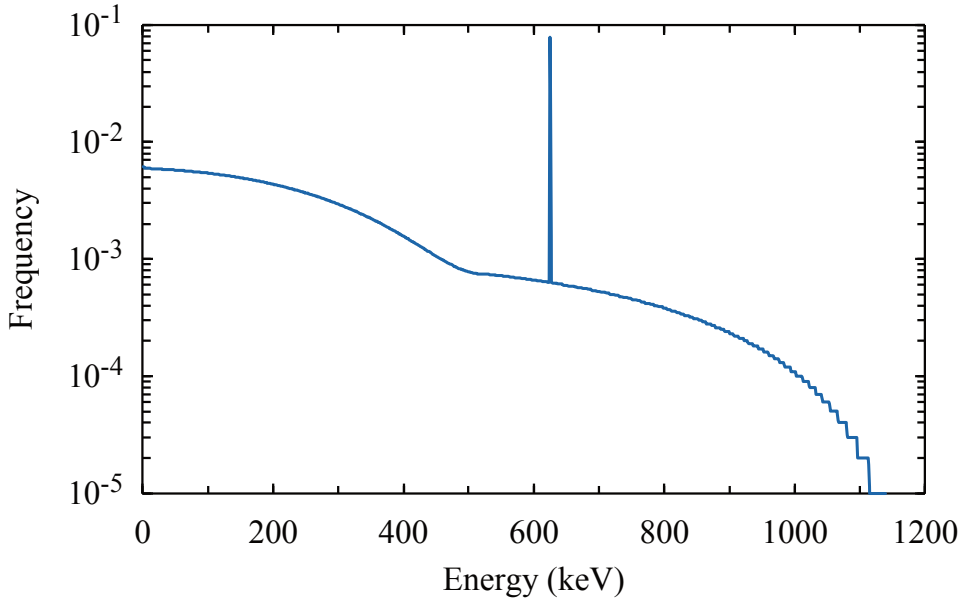

図 3.6 セシウム 137 のベータ線スペクトル

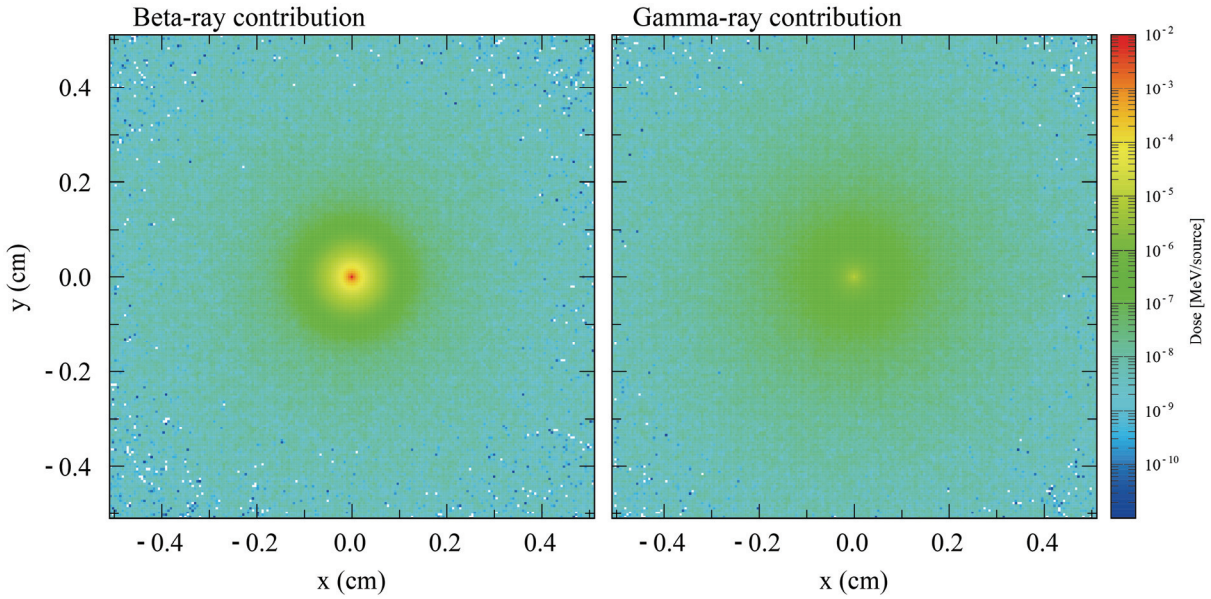

図 3.7 蛍光ガラス表面のベータ線及びガンマ線による吸収線量分布

いベータ線による吸収線量がより局所的になっているためである。

また，図 3.8 に，蛍光ガラスのセシウム点線源位置における深さ方向の吸収線量分布の計算結果を示しているが，深さ方向についても，立体角の効果（点源からの放射線の発散）と，ベータ線の場合はさらに蛍光ガラスとの相互作用による吸収の効果を合わせた結果になっていると考えられる。ベータ線の深さ方向の吸収線量分布の変化から，ベータ線のエネルギースペクトルの変化が伺える。

図 3.8 の下側のグラフは，ベータ線による寄与（吸収線量）とガンマ線の寄与（吸収線量）の比を示している。また，感度としては，ベータ線の寄与とガンマ線の寄与を合計し，それらの数値を表面からその深さまで積分した数値を併せて示した。深さ 3 mm の数値を 1 に規格化している。これらの結果より，薄い蛍光ガラスを用いることでベータ線による吸収線量対ガンマ線による吸収線量の比（以降，ベータ・ガンマ比と呼ぶ）を向上させることができ，0.6 mm の厚さで表面のセシウム 137 のベータ線

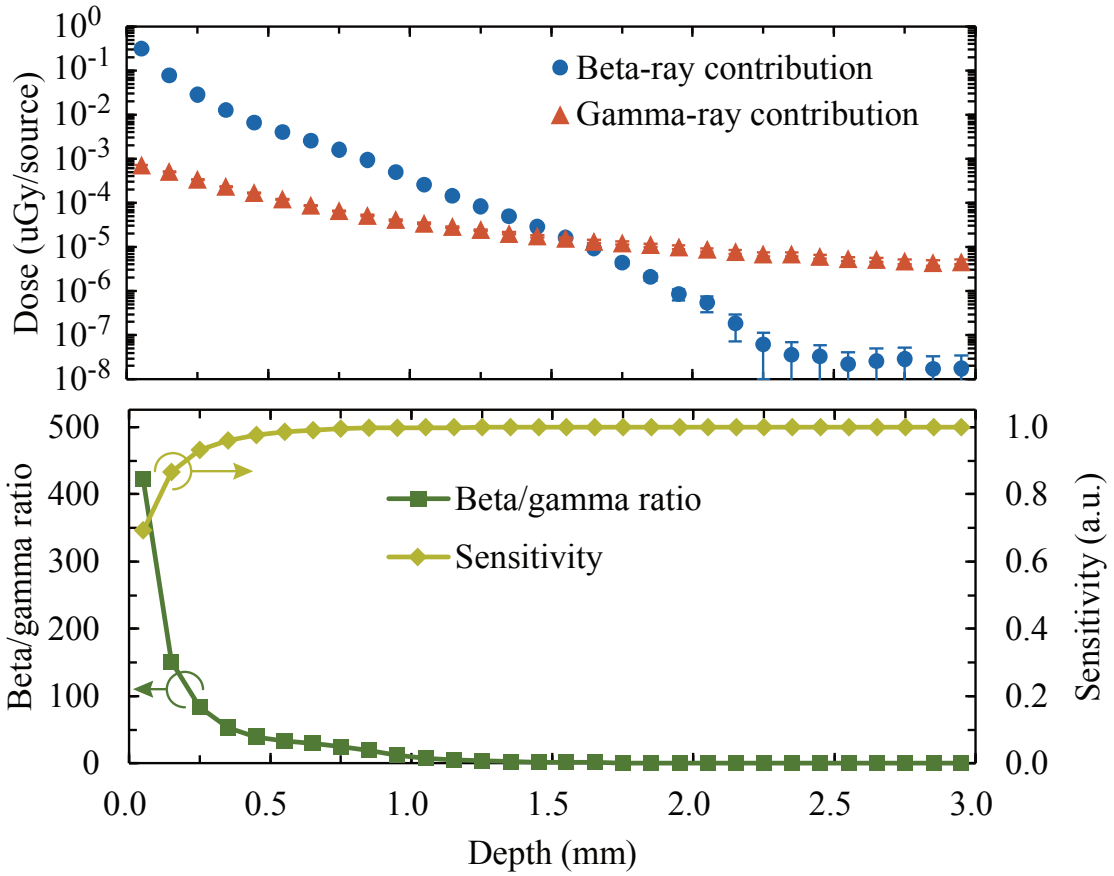

図 3.8 蛍光ガラスの深さ方向の吸収線量分布

を十分に高い効率で検出できる（0.6 mm の厚さの蛍光ガラスで，入射するセシウム 137 のベータ線のエネルギーの 99%を吸収できる）ことがわかった。また，厚さが 0.2 mm の場合はベータ・ガンマ比が 100 よりも大きく，高いバックグラウンドガンマ線環境下においても汚染分布が観測できると思われる。0.2 mm までの領域で入射するセシウム 137 放射線のエネルギーの 80%以上を吸収できることから感度も十分であり，汚染モニタリングには 0.2 mm 程度の厚さのガラスが適していると考えられる。

実際の拡がった放射性セシウム汚染環境下では，ガンマ線バッググラウンドレベルが本シミュレーション計算結果より高いと推定される。実際の放射能汚染モニタリングに際しては，薄い蛍光ガラスを用いて実験で十分に確かめる必要がある。

3.5 結言

本章では，放射性セシウム汚染モニタリングのために，放射能検出素子として使用する蛍光ガラスについて，その蛍光原理と特長について説明した。蛍光ガラスの材料である銀活性リン酸塩ガラスは，放射線照射によって非常に安定な蛍光中心を生成すること，また，それらの蛍光中心に対する線量読み取り操作によっても，蛍光中心が消失しないことを述べた。そして，この性質が，放射能汚染モニタリングに有効に利用できることを説明した。

また，ガンマ線ではなくベータ線を選択的に検出することで，放射性セシウムの表面汚染を効果的にモニタリングできることを説明した。

さらに，モンテカルロ粒子輸送計算コード PHITS を利用して，蛍光ガラスのセシウム 137 の放射線の線量応答（吸収線量）を計算した。そして，薄い蛍光ガラスの利用によって，放射性セシウムの放射能表面汚染のモニタリングができることを示した。厚さ 0.2 mm の蛍光ガラスによって，2 桁以上のベータ・ガンマ比でセシウム 137 の表面汚染における線量測定ができることを示した。ただし，福島地域のように広範囲に拡がった放射性セシウム汚染環境下では，ガンマ線バッググラウンドレベルが高いと推測され，実際の放射能汚染モニタリングシステムについては，感度と S/N 比等の性能を実験で十分に確かめる必要がある。

参考文献

[1] 福島市，“個人線量計（ガラスバッジ）”，http://www.city.fukushima.fukushima.jp/life/16/165/433/ (2014).

[2] R. Yokota and H. Imagawa, “ESR studies of radiophotoluminescent centers in silver-activated phosphate glass”, *Journal of the Physics Society of Japan*, Vol. 20, No. 8, pp. 1537-1538 (1965).

[3] R. Yokota and H. Imagawa, “Radiophotoluminescent centers in silver-activated phosphate glass”, *Journal of the Physics Society of Japan*, Vol. 23, No. 5, pp. 1038-1047 (1967).

[4] 横田良助，“螢光ガラス線量計のメカニズム”，*応用物理*, Vol.38, No.11, pp. 1077-1083 (1969).

[5] Y. Miyamoto, T. Yamamoto, K. Kinoshita, S. Koyama, Y. Takei, H. Nanto, Y. Shimotsuma, M. Sakakura, K. Miura and K. Hirao, “Emission mechanism of radiophotoluminescence in Ag-doped phosphate glass”, *Radiation measurements*, Vol. 45, pp. 546-549 (2010).

[6] 藤村亮一郎，山下忠興，“放射線による固体現象と線量測定”，養賢堂 (1985).

[7] 飯田博美 編，“放射線概論”，通商産業研究社 (2010).

[8] S.-M. Hsu, S.-H. Yeh, M.-S. Lin and W.-L. Chen, “Comparison on characteristics of radiophotoluminescent glass dosemeters and thermoluminescent dosemeters”, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 119, No. 1-4, pp. 327-331 (2006).

[9] E. Piesch and B. Burgkhardt, “Photoluminescence dosimetry: the alternative in personnel monitoring”, *Radioprotection*, Vol. 29, No. 1, pp.39-67 (1994).

[10] T. Sato, K. Niita, N. Matsuda, S. Hashimoto, Y. Iwamoto, S. Noda, T. Ogawa, H. Iwase, H. Nakashima, T. Fukahori, K. Okumura, T. Kai, S. Chiba, T. Furuta and L. Sihver, “Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 50, pp. 913-923 (2013).

[11] 横田良助，“螢光ガラス線量計の最近の進歩”，*応用物理*, Vol.40, No.12, pp.1292-1307 (1971).

[12] 一宮勉，“制動放射線の遮蔽計算法―1 cm 線量当量対応―”，*Radioisotopes*, Vol. 39, pp. 404-419 (1990).

第 4 章 レーザー顕微鏡を利用した放射能汚染観測

4.1 緒言

本章では，本研究における線量計用蛍光ガラスの製作方法，および福島原子力発電所事故により放射能で汚染した土壌を中心に，レーザー顕微鏡を利用した放射能汚染観測法と観測結果について述べる。

既に述べたように福島第一原子力発電所の損傷によって環境に放出拡散した放射性物質のモニタリングには，広い範囲の定点観測が有用で効果的である。本研究では放射能汚染モニタリングのための検出素子として，線量測定において優れた特性を持つ蛍光ガラス線量計を選択している。そして，さらに第 2 章で述べたシミュレーション結果をもとに，蛍光ガラス線量計素子を放射能汚染モニタリングに適した形状に加工を行っている。

4.2 節では，個人被ばく線量計素子に用いられている蛍光ガラスの銀活性リン酸塩ガラスについて，基本的な製作手順を述べている。4.3 節では，製作した銀活性リン酸塩ガラスを放射能汚染土壌等の分析のためにロッド状に加工する方法について説明している。また，これまでは蛍光ガラスは放射能汚染モニタリングには適用されてこなかった。そのために，蛍光ガラスを利用する放射能汚染検査用の蛍光 (RPL) 測定装置を開発する必要があった。この RPL 測定装置の概要を 4.4 節で説明している。また，製作した RPL 測定装置に関する基本的特性や性能評価を 4.5 節に示している。4.6 節では，製作した蛍光ガラスロッド素子及び RPL 測定装置について，標準 X 線発生装置や放射性同位元素標準線源を用いて行った性能評価実験について述べている。4.7 節では，実際に福島県で採取した放射能汚染土壌を用いた深さ方向の放射能分布モニタリング実験の結果について述べている。さらに 4.8 節では，本システムを利用して実施した土壌中の放射性セシウムの動態解明に関する応用実験とその結果について述べている。

4.2 線量計用蛍光ガラスの製作

線量計用蛍光ガラスとしては，銀活性リン酸塩ガラスが主に用いられている。この

銀活性リン酸塩ガラスの元素重量比は, P: 31.55%, O:51.16%, Na: 11.00%, Al: 6.12%, Ag: 0.17%である[1]。この元素構成比の蛍光ガラスを製作するために，表 4.1 に示す 3 種の試薬を使用した。

表 4.1 蛍光ガラス（銀活性メタリン酸塩ガラス）製作のための試薬

試薬名	記号	重量比
メタリン酸ナトリウム	$NaPO_3$	51
メタリン酸アルミニウム	$Al(PO_3)_3$	53
塩化銀	AgCl	0.2

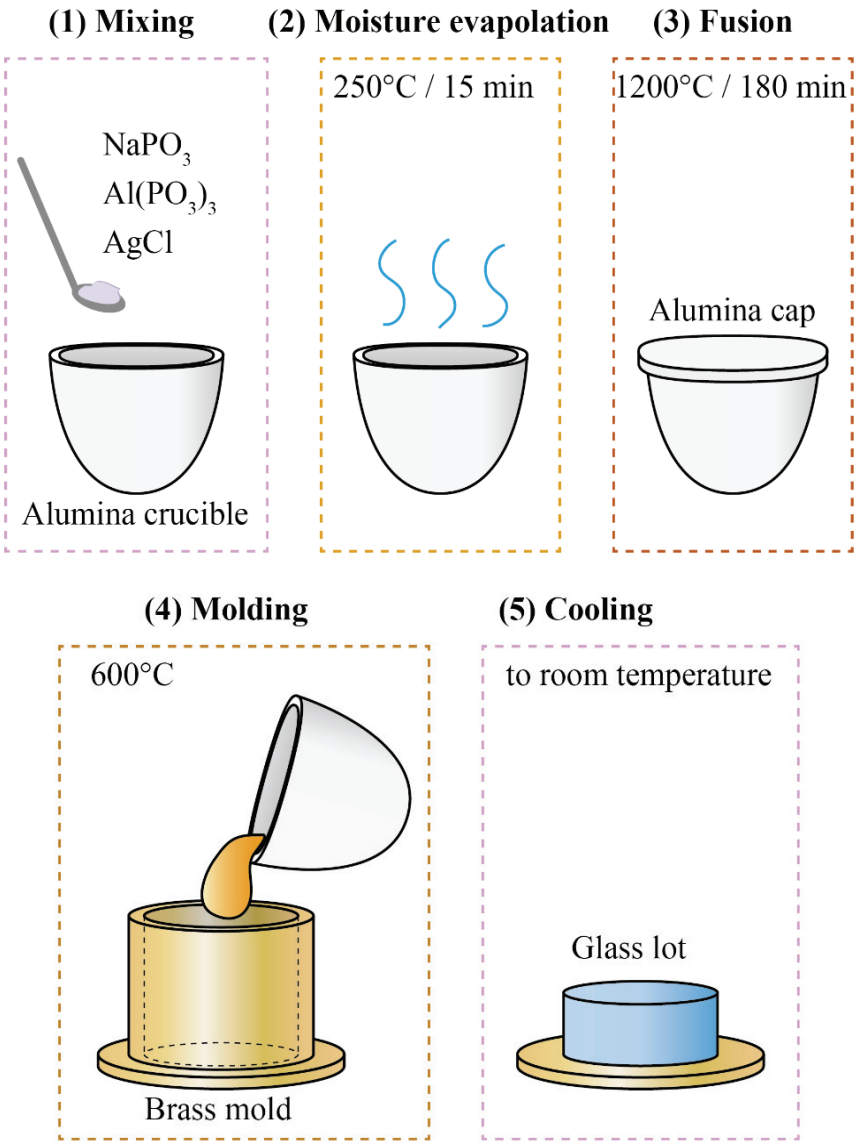

図 4.1 蛍光ガラスの製作プロセス

蛍光ガラスの製作過程を図 4.1 に示す。蛍光ガラスの製作では，先ず，表 4.1 に示した重量比で試薬をアルミナるつぼ（SSA-H，アズワン）内に投入混合した後，電気マッフル炉（HPM-1N，アズワン）を用いて加熱した。加熱過程では，るつぼのふたをしない状態で 250°C に加熱して 15 分程度温度を保持することで，試薬やるつぼに含まれる水分を蒸発させた。次にるつぼにふたをした後，1200°C まで徐々に加熱した。1200°C で 3 時間程度温度を保持し，その間に数回マッフル炉からるつぼを取り出して溶融ガラスを撹拌することで，十分均一に溶融させた。温度の保持時間はガラスの量に応じて変更した。

溶融ガラスを冷却する過程では，モールド（型）に溶融ガラスを流し込んで冷却させた。モールドには真鍮製の円筒管と底板を組み合わせて使用した。真鍮製モールド

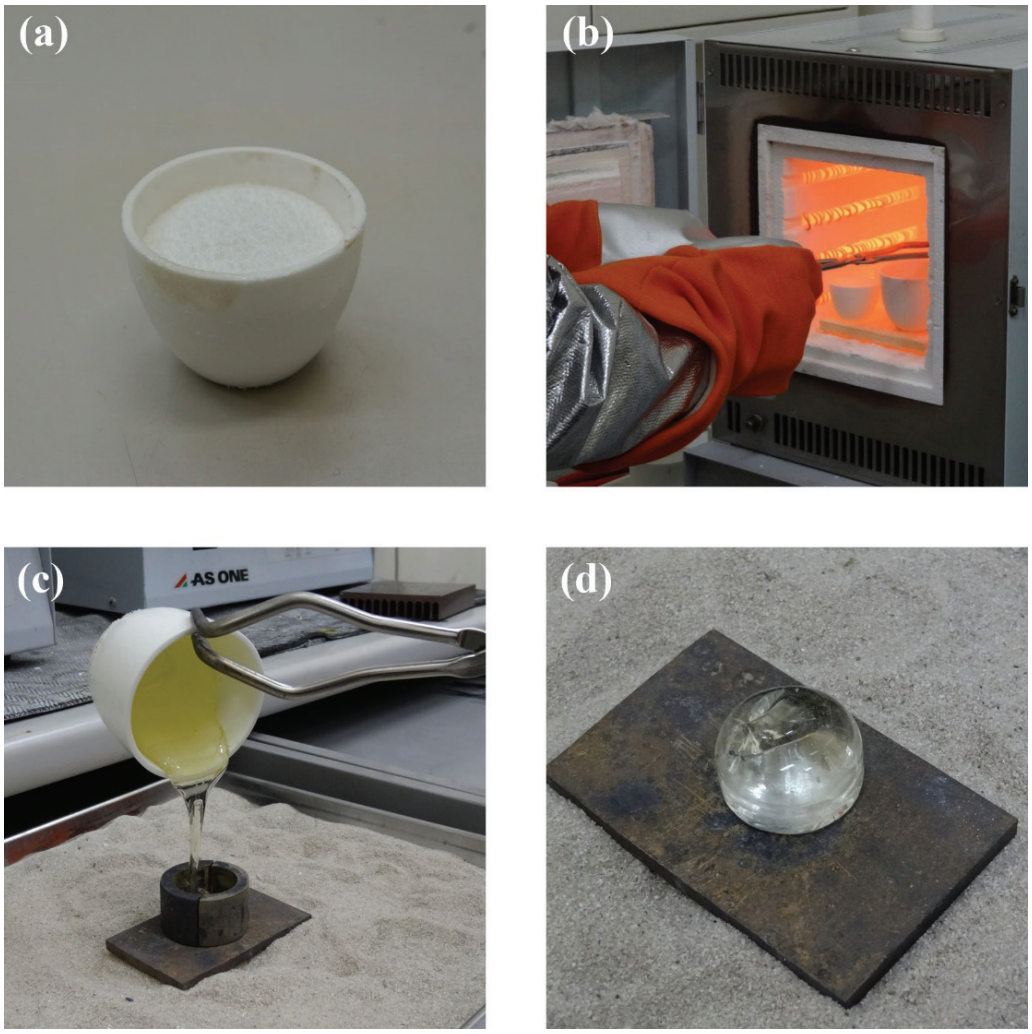

図 4.2 蛍光ガラスの製作作業の様子

は 600°C を超える温度では酸化が進み，溶融ガラスに不純物による汚染を引き起こす可能性があるため[2]，600°C に予熱した。溶融ガラスをモールドに入れた後は，室温までゆっくりと徐冷を行った。この徐冷はガラス内外の温度差が極力少ない状態のもとで徐々に室温に戻すことで，内部応力等を低減させるための作業である。ガラスの歪みによる負荷やそれに伴うひび割れを避けるために必要である。これらの一連の作業過程の写真を図 4.2 に示している。

4.3 蛍光ガラスロッド素子の製作

本節では，放射能汚染土壌等の深さ方向の汚染分布を測定するためのロッド型の蛍光ガラス素子の製作手順について述べる。ロッド型の蛍光ガラス素子は，前節で示した方法で先ず蛍光ガラス母材を製作した後に，再溶融させてロッド型に成形加工した。蛍光ガラスロッド素子の製作では温度管理が重要となるため，温度による影響を受け難いように大型の電気炉（K-2400，共栄電気炉製作所）及びるつぼを利用して製作した。

蛍光ガラスロッド素子を製作する過程の電気炉の温度制御パターンを図 4.3 に示す。線量計用蛍光ガラス母材を室温から 950°C まで加熱することで再溶融させ，その後

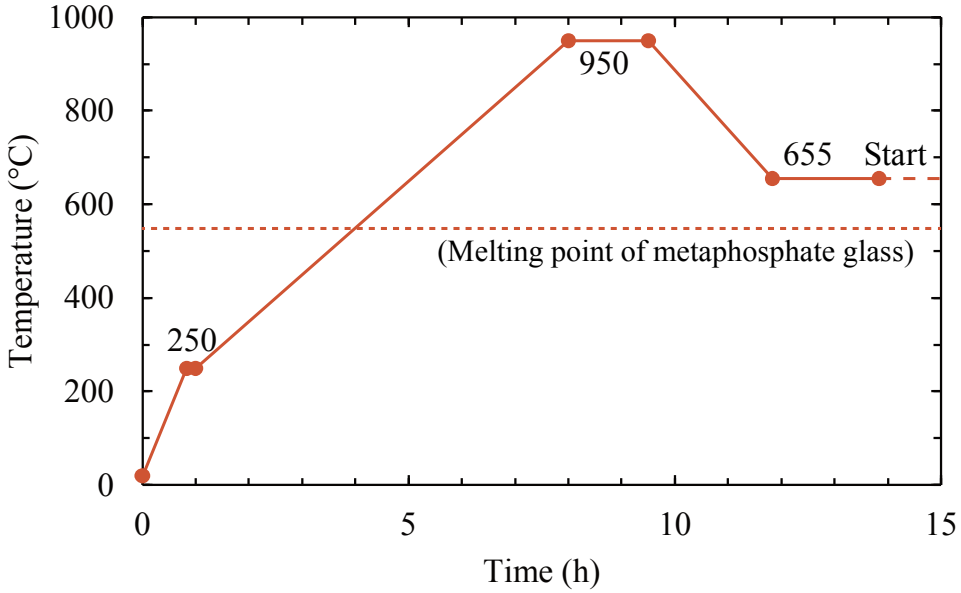

図 4.3 蛍光ガラスロッド製作時の温度制御パターン

655°C まで降下させて，さらに 2 時間ほど温度保持を行う。この温度保持によって蛍光ガラスの温度が均一となる。リン酸塩ガラスの融点は約 550°C であることから，るつぼ中の蛍光ガラスは粘性の高い液体状になっている。図 4.4 にこの時の蛍光ガラスの状態を示している。この状態から蛍光ガラスのロッド化作業を行った。ロッド化は，リン酸塩ガラスより融点の高いホウ珪酸ガラス棒を予熱しておき，電気炉の蓋を開けた状態で溶融ガラス液面に接触させてゆっくりと引き上げることで行った。引上げ後に冷却され固化した蛍光ガラスロッドを切断して蛍光ガラスロッド素子に加工した。蛍光ガラスロッド素子のロッド径は，蛍光ガラスの引上げ速度によって調節した。

第 2 章で述べたように，放射性セシウム等（β 壊変核種）の放射能汚染分布を高精度で測定観測するためには，薄いあるいは細い積算型線量計素子によって β 線/γ 線のエネルギー吸収比を向上させることが重要である。放射能汚染分析に蛍光ガラスロッド素子を利用する場合には，第 2 章のシミュレーション計算で示した適当な厚さ 0.2 mm，つまりロッド径が 0.2 mm では使用上破損し易く，本研究では蛍光ガラスロッドを土壌中に差し込む際に必要な強度も勘案し，主にロッド径 0.6 mm の蛍光ガラスロッド素子を使用することにした。本研究で主に用いた蛍光ガラスロッド素子の写真を

図 4.4 温度調整により一様に溶融したガラス（炉温度 655°C）

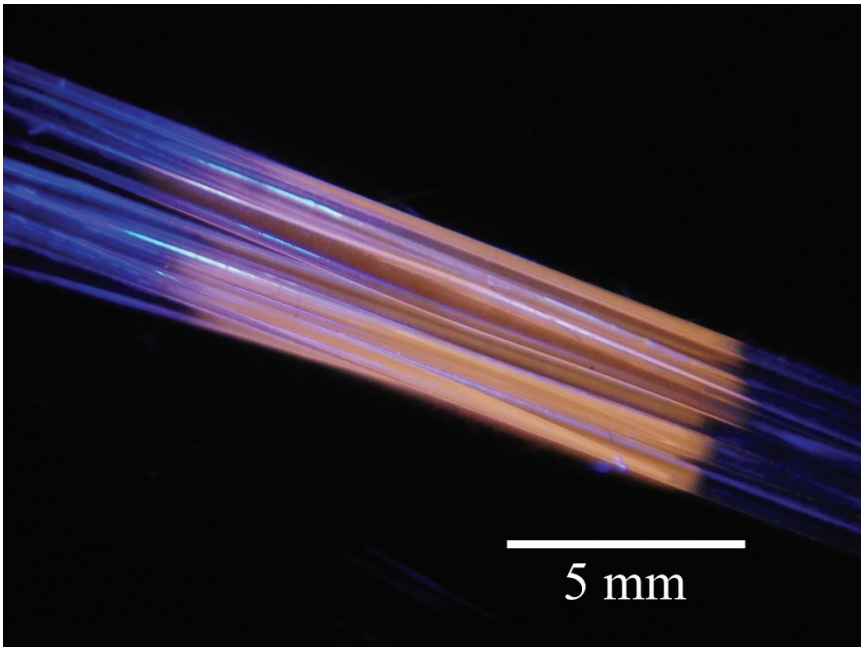

図 4.5 製作した蛍光ガラスロッドの写真
（中央部に X 線を照射し，紫外光下で撮影）

図 4.5 に示す。写真は束ねた蛍光ガラスロッド素子に X 線を照射した後，紫外光下で発する RPL 光を撮影したもので，銀活性リン酸塩ガラス特有のオレンジ色の蛍光が確認できる。この写真から，ロッド状に加工した蛍光ガラス線量計素子からも RPL の読み取りが十分可能であることがわかる。

4.4 レーザー顕微鏡を用いた RPL 測定装置の構築

4.4.1 測定装置の概要

従来の蛍光ガラス線量計システムではロッド型素子も用いられるが，線量計素子全体の吸収線量の正確な測定を目的としてきたため，ガラス素子全体に励起光を照射し，全体的な蛍光強度の測定を行っている[3]。これに対して，本研究では放射能汚染分布を測定するために，蛍光ガラス線量計素子の特定部分の線量情報を得る必要があり，そのためには特定部分にのみ紫外励起光を照射して RPL 測定を行う必要がある。また，広い範囲の測定には，さらに微視的な紫外線励起－RPL 測定のプロセスを走査して行う必要がある。本節では，放射能汚染分布測定用に開発した蛍光ガラス線量計用 RPL 測定システムの概要について述べる。

図 4.6 に，レーザー顕微鏡を用いた放射能汚染分布分析用蛍光ガラス線量計 RPL 測定システムの概略図を示す。蛍光ガラス線量計に対する紫外線励起及び RPL 観測のために，倒立型レーザー顕微鏡（iX81，オリンパス）を中心としたシステムを構築した。蛍光ガラス線量計用の励起光源として波長 375 nm の半導体レーザー（PhoxX375-20，Omicron）または波長 355 nm の紫外 Q スイッチ式 Nd:YAG レーザー（FTSS355-Q, CryLas）を使用した。紫外光はバンドパスフィルタ（BP330-385，オリンパス）を通してダイクロイックミラー(DM400，オリンパス)で反射され，さらに対物レンズを通してステージ上に置かれた蛍光ガラスロッド素子の特定部分に集光されるようにした。蛍光ガラス素子は XY ステージ上に水平に置かれ，XY ステージはステージコントローラを介して PC により制御された。つまり，蛍光ガラスロッド素子の長さ方向に走査され，線量（∝放射能汚染度）が読み出された。励起光の照射に伴って放出される RPL の一部は励起光とは逆に対物レンズを通してレーザー顕微鏡システムへ

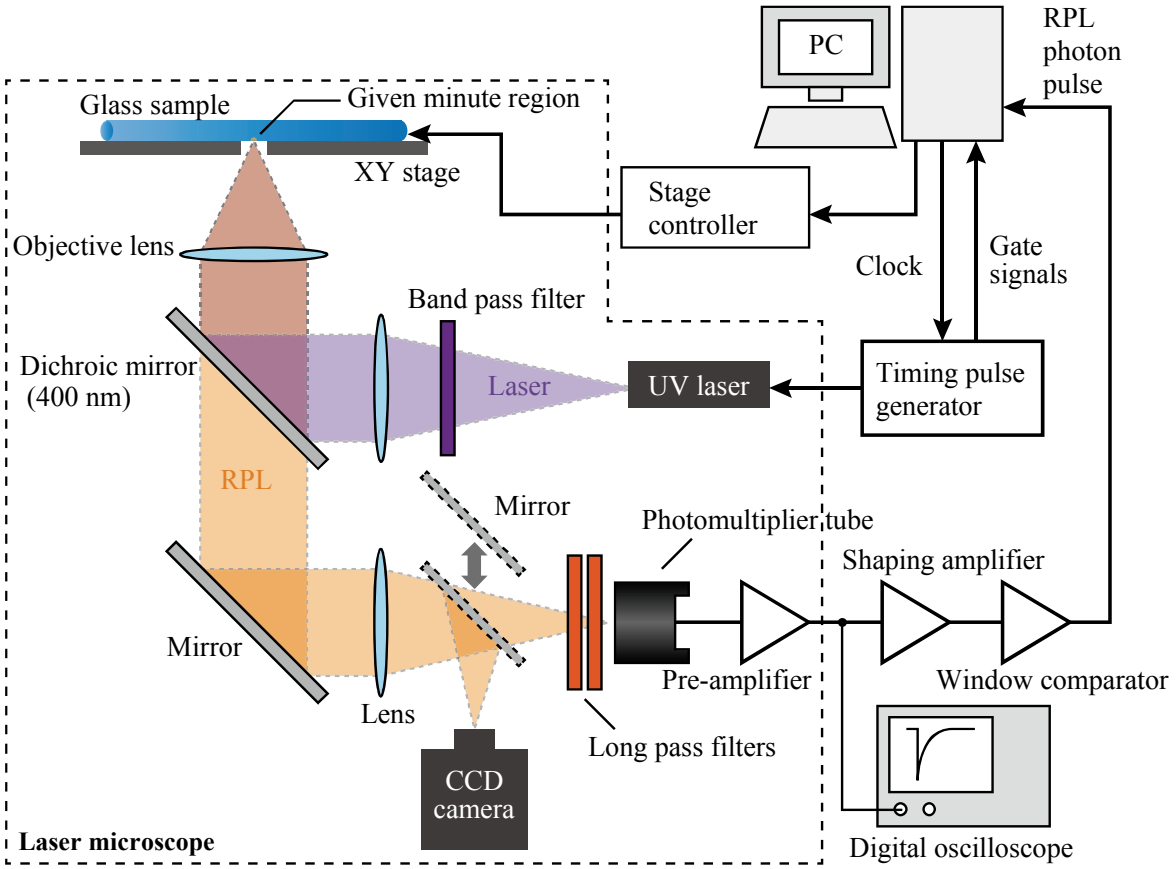

図 4.6 レーザー顕微鏡を用いた RPL 分布測定システムの概要図

入射するが，波長が長いためにダイクロイックミラーを通過し，光学ロングパスフィルターを通して光電子増倍管（R7400P, 浜松ホトニクス）へと入射する構成とした。図 4.7 に製作したシステムの写真を示す。実際の測定時には装置システム全体を暗幕で覆うことでバックグラウンド光の入射を防いでいる。

RPL 光を光電子増倍管で検出増幅しているが，後続の電子回路では測定の状況に応じて 2 つの方法の内，都合の良い一つの方法（電子回路）を選択できるようにしている。一つは出力信号を電流値として測定する方法である。もう一つは入射する光子を一つずつ計数する方法である。この方法は光子計数法（フォトンカウンティング法）と呼ばれ，非常に高感度な測定法である。但し，光子計数を行えるのは単独光子による信号が時間的に分解可能な場合のみであり，ほとんど同時に複数の光子が頻繁に入射するような状況には適用できない。これは RPL 光検出についての観点から，紫外励起光パルスの強度が強過ぎてはならないことを意味する。このような状況から，光子計数に適した低い出力が可能な半導体レーザーと，電流測定に適する YAG レーザーを用意し，それらを蛍光ガラス線量計素子の状況（線量つまり放射能汚染度）に応じて使い分けられるようにしている。

光子計数法の長所として，出力がデジタル値であるために処理が容易であることが

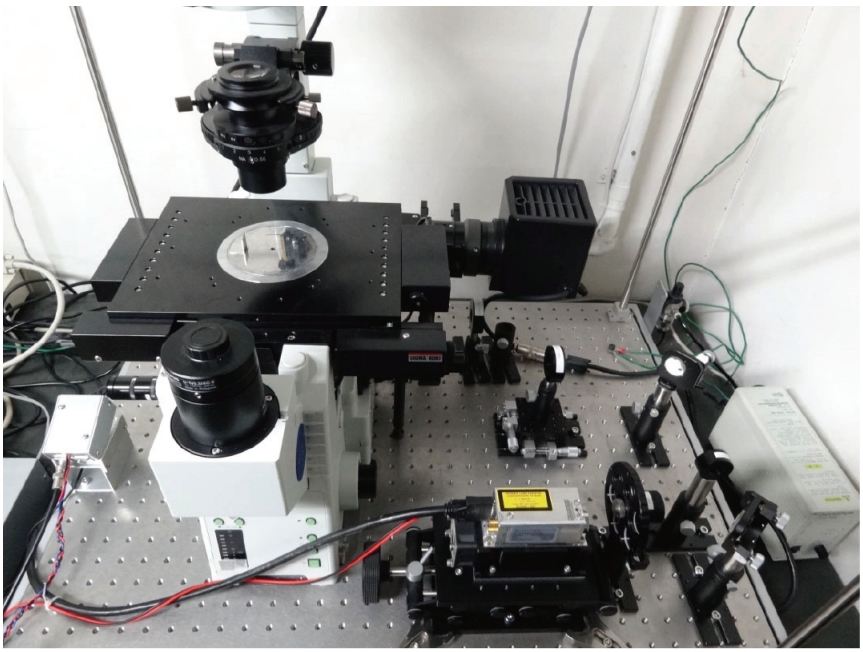

図 4.7 製作したレーザー顕微鏡を用いた RPL 測定システム写真

挙げられる。特に本装置では後述するステージの移動も含め，全て PC による制御によって自動で測定を行うことが可能である。光子計数法は本来，離散的な光子を測定できるほど高感度であることも同法の長所の一つであるが，今回の RPL 光測定にあたっては離散的な光子の入射状況を作り出すために励起光の出力を抑制している。

電子回路系については電流測定の場合は光電子増倍管のアノードからの信号電流（平均値型信号）を読み取るだけの単純な構成とした。一方，光子計数のための電子回路系については RPL 光測定の最適化を図るために工夫を施した。電子回路系について，それぞれ次項以降で説明する。

4.4.2 平均値型信号電流測定系と測定手順

前項で述べたように，RPL 光強度が十分大きい場合には光電子増倍管のアノードからの電流出力信号をそのまま利用することが可能である。微小信号を高速増幅するような特別の電子回路系を必要としない。本研究では，光電子増倍管からの出力信号をデジタルオシロスコープ（LT584，LeCroy）に直接入力した。併せて，レーザーパルス励起光の発生タイミング信号を同じデジタルオシロスコープに入力し，光電子増倍管の出力信号をレーザーパルスに同期させて測定した。そして，デジタルオシロスコープの加算平均機能を使用することで，光電子増倍管の出力信号のより高精度の読み取りを行った。

測定手順を下記に示す。PC より自動で XY ステージ，紫外レーザー，デジタルオシロスコープの制御を行っている。

(1) XY ステージを移動させ，蛍光ガラス素子の読出し地点を設定する
(2) 紫外レーザーをパルス照射し，デジタルオシロスコープで光電子増倍管の出力信号をレーザーパルスに同期させて測定する
(3) 紫外レーザーの繰り返しの照射で得られる光電子増倍管からの RPL 信号をデジタルオシロスコープで 1000 回分加算平均して平均データを取得する
(4) デジタルオシロスコープから PC へ蛍光ガラス素子の RPL 強度データ（平均パルス波形）を送信
(5) PC で RPL パルス波形データから RPL 強度（線量つまり放射能汚染度）を算出（RPL パルス波形データで，RPL 強度成分（励起後 2-8 μs の積分値）からバッ

クグラウンド成分（励起後 40-46 μs の積分値）を減算）

この手順を繰り返すことで，蛍光ガラス線量計素子の各測定点の RPL 強度を求めた。つまりは放射能汚染分布を求めた。

4.4.3 光子計数のための電子回路系

光子計数を行う場合の電子回路系は，単純な平均値型電流測定の場合と比較して複雑となる。図 4.6 に示したように，前置増幅器からの出力信号は波形整形のための線形増幅器を経た後，比較器に入力される。製作した比較器の回路図とその動作ロジックを図 4.8 に示す。線形増幅器によって増幅されたパルス信号に低レベル閾値及び高レベル閾値を設けることで，光電子増倍管の内部熱雑音や宇宙線などによる外部雑音の成分を除去できる。線形増幅器からの出力の立ち上がり時間に応じて適当な遅れ時間を設け，そのタイミングで波高が適当な範囲内の信号のみ選択できるようにした。この範囲内の信号を RPL 光子による信号とし，PC へ転送した。

本実験で蛍光ガラス素子の励起光源として用いたレーザーモジュールは，外部から TTL 信号でパルス動作が可能である。レーザーパルスの発生タイミングは，PC より出力されるタイミング信号を基準とした。レーザーパルスの発生タイミング及び RPL 光測定のタイミングの関係を図 4.9 に示す。レーザーモジュールへパルス駆動信号が入力されてから実際にレーザーパルスが発生するまでに 1.5 μs の遅延があるため，実際のレーザーパルスの発生に合わせて RPL 光の測定時間領域の最適設計を行った。図 4.9 の Gate 1 及び Gate 2 の開いている時間領域内の論理（計数）信号が PC へ入力された。それぞれのゲート開放時間内に発生した論理信号を，それぞれ RPL 信号，バックグラウンド信号として計数した。RPL 光の測定時間領域を示す Gate 1（開）内に入射する光子が 1 励起パルスあたり 1 個か 0 個になるような設定を行うため，より少ない計数が想定されるバックグラウンド測定の時間領域を示す Gate 2（開）の幅を広くとった。双方のゲート開の時間幅を比較すると，Gate 1 が 6 μs なのに対して Gate 2 は 24 μs であるので，バックグラウンドの減算は，その計数値を 1/4 倍して実施した。

本蛍光ガラス線量計用 RPL 光測定システムの基本コンポーネントは，全て PC で自動制御されている。XY ステージコントローラによる蛍光ガラス線量計素子のレーザー照射位置の制御や，RPL 光の高精度測定については，任意の繰り返し周波数の基準

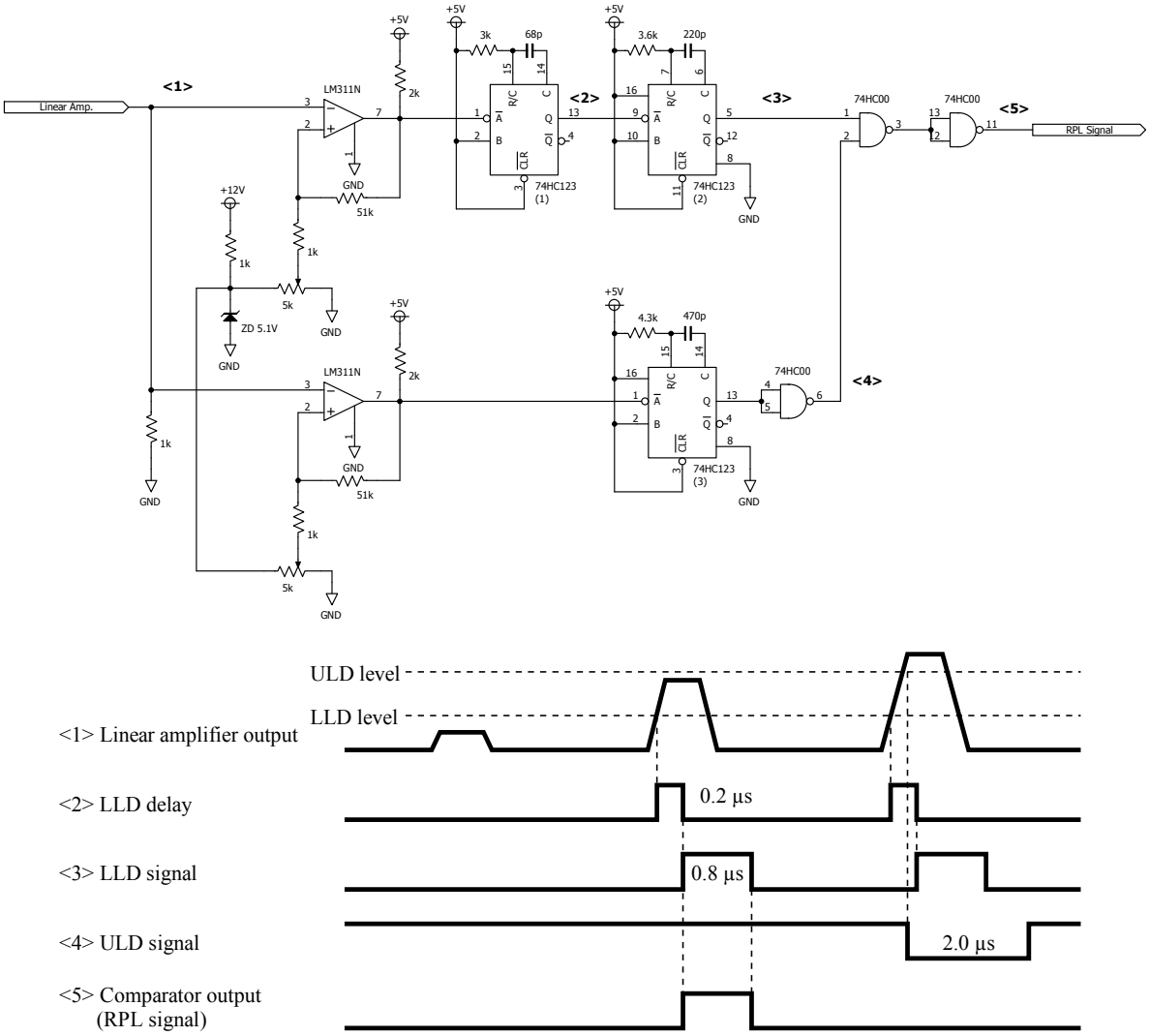

図 4.8 RPL 光子計数のための比較器回路（上）と閾値に関するタイミングチャート（下）

タイミング信号の生成，ゲート開閉による RPL 光信号及びバックグラウンド信号の高速処理，計数演算等を一括で行えるように専用のソフトウェアプログラムを設計・製作した。このソフトウェアによって，対象の蛍光ガラス線量計素子の各位置（各座標）における RPL 強度（∝線量，最終的には放射能汚染度）を 2 次元分布として容易に表示できるようにした。

前節と本節で述べたように，平均値型電流測定のための電子回路系と光子計数のための電子回路系は要求される性能が異なるため，電子回路系の構成も異なるものとなっている。しかし，本質的な RPL 光測定の手順は同一であり，紫外励起パルスの蛍光ガラス線量計への照射により得られた蛍光信号のパルス波形（時間応答波形）につい

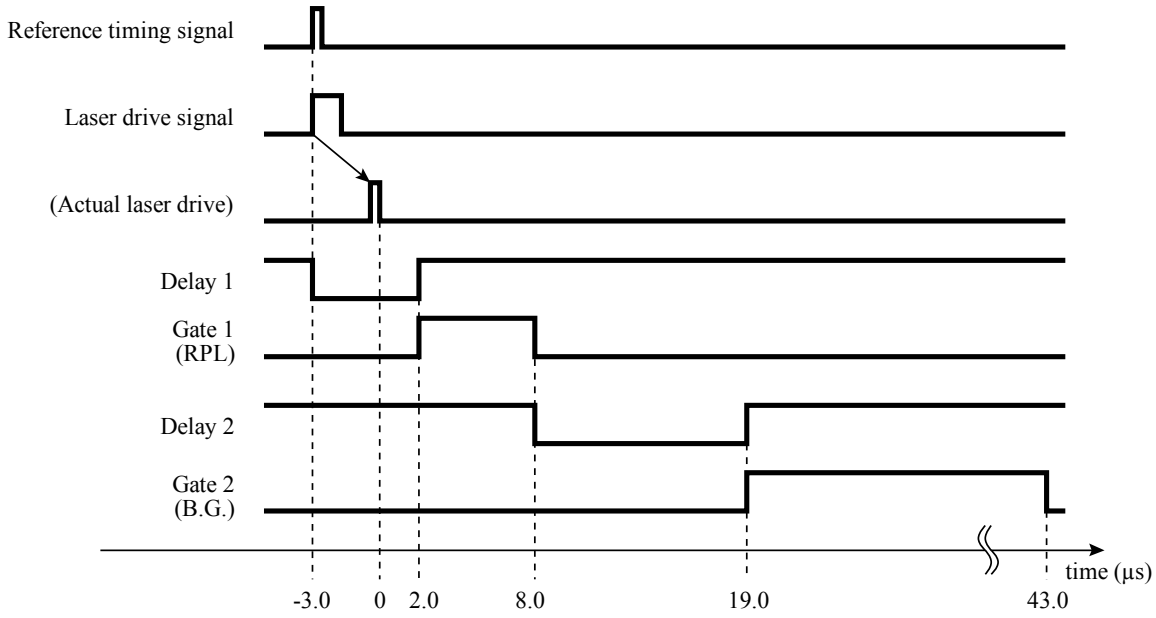

図 4.9 レーザーパルス駆動及び RPL 光測定のタイミングチャート

て，正確に RPL/PL 弁別（信号/バックグラウンド 弁別）を行っているのが本測定装置の重要な点である。

4.5 レーザー顕微鏡システムの基本性能評価

4.5.1 蛍光ガラスのアニーリング試験

本節では，製作したレーザー顕微鏡システムの性能評価のために行った，蛍光ガラス線量計についてのいくつかの基礎的な実験とその結果について述べる。新しく製作したレーザー顕微鏡システムは，これまでの蛍光ガラス線量計用の RPL 光測定装置とは異なる性能が要求されるため，4.3 節で述べたロッド型蛍光ガラス線量計素子だけでなく，広く一般的に用いられる板状蛍光ガラス線量計素子（GD450，千代田テクノル）を使用して実験を行った。

最初に，励起レーザーの照射エネルギーによるアニーリングに関する試験を行った。第 3 章で述べたように，蛍光ガラス線量計では通常の RPL 光の読取り操作では線量情報は消失されず，蛍光ガラス線量計のアニーリング（初期化）は 400°C 以上の高温による熱処理によって行われる。本研究では従来の線量読取装置と異なり，紫外レーザーを蛍光ガラスロッドの一部分に集光させることから，蛍光ガラスに局所的に大き

なエネルギーの付与が行われ，線量情報の一部が失われる可能性が考えられる。そこで，紫外パルスレーザー照射で検出される蛍光ガラス線量計の RPL 強度の時間推移を測定した。

最初に，強度の大きい Nd:YAG レーザー（λ = 355 nm）を用いて実験を行った。実験条件としてレーザーの繰り返し周波数を 1 kHz とした。デジタルオシロスコープの機能で 1000 パルス分の信号を平均するため，前後の数え落とし分を考慮して 1.2 秒（1200 パルス）ずつ蛍光ガラスロッドの同一部分の励起を行った。励起スポット径は約 1.5 μm である。励起光減光用の ND（減光）フィルターを取り付けない場合と 1/10 に減衰させる ND フィルターを取り付けた場合の比較を行った。試料として使用した蛍光ガラスロッドの吸収線量は約 100 mGy であった。

レーザーパルスのエネルギーは Si フォトダイオード(S2281，浜松ホトニクス)を用いた光度検出器を XY ステージ上へ設置し，得られた平均出力及び繰り返し周波数から求められた。1 パルスあたりのエネルギーは ND フィルターを取り付けていない場合で 0.8 μJ，ND フィルターを取り付けた場合で 0.08 μJ であった。

図 4.10 に測定結果を示す。ND フィルターを使用していない場合，約 2 秒間の励起レーザーの照射で 10%以上，約 8 秒間の照射で 30%以上の検出信号（RPL 強度）の減

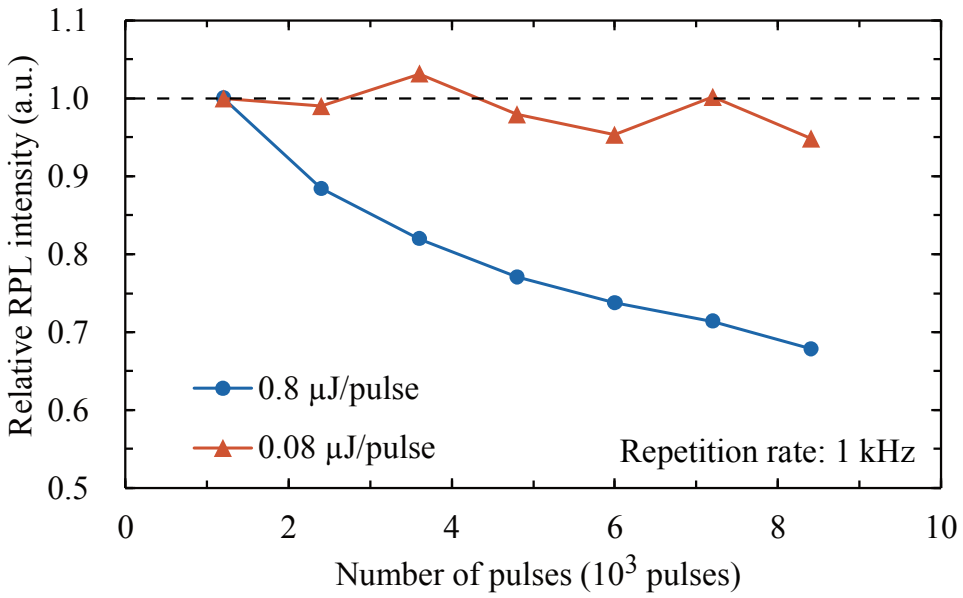

図 4.10 Nd:YAG レーザー励起による蛍光ガラス線量計のアニール試験

少が見られたことから，励起光が集光されて照射されている部分でアニーリングが発生していると推測される。一方，ND フィルターを用いて励起光を減衰させた場合は検出される RPL に大きな減衰は確認されなかった。実験は前節に示した手順で行うことを想定しているので，一か所への励起レーザー照射は 1 秒程度であり，ND フィルターの利用により RPL 光測定の際の線量情報の消失は十分無視できる程度であると考えられる。以後の実験では，ND フィルターを使用して測定を行った。

次に，励起光源に半導体レーザーを用いて同様の実験を行った。使用した半導体レーザーはソフトウェアより出力の制御が可能なので，いくつかの出力値において蛍光ガラス線量計のアニーリング試験を行った。レーザーエネルギーは前述の実験と同様にフォトダイオードを用いて求めた。また，光子計数法を用いる場合は，統計誤差を低減するため繰り返し回数を大きくする必要がある。本実験では RPL 強度を光子計数法で測定する場合を想定して，励起レーザーパルスの繰り返し周波数を最大の 20 kHz として，10 秒毎の RPL 信号数を積算し，その時間変化について調べた。

測定結果を図 4.11 に示す。図に示されているように，レーザーのエネルギーが異なる 3 ケースの内で輝度が最も大きい場合（8.6 nJ/pulse）においては，測定開始より RPL 光測定値の時間的な変化が確認され，励起レーザーのパルス数が 1.2×10^{7}（測定経過

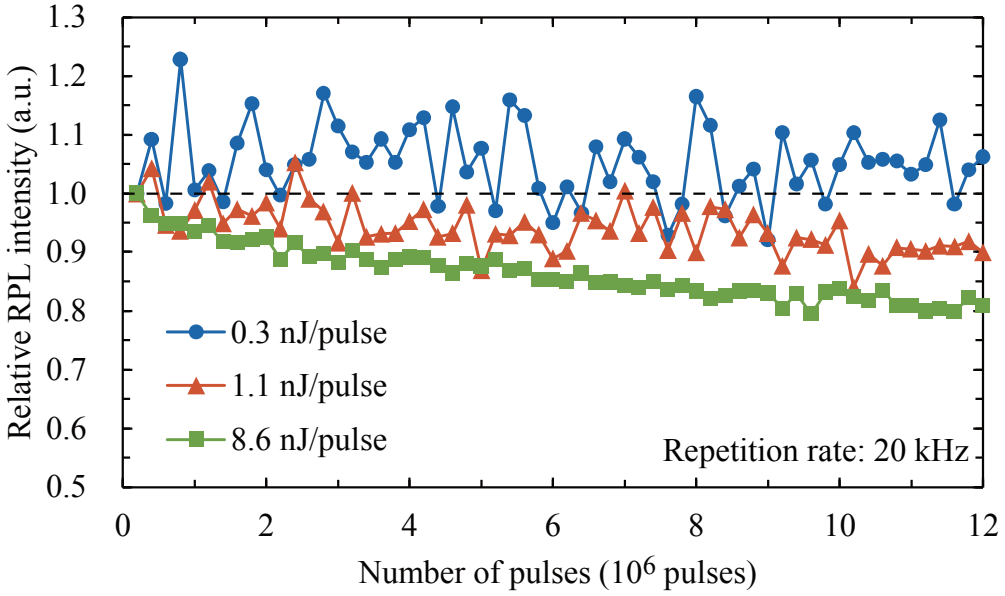

図 4.11 半導体レーザー励起による蛍光ガラス線量計のアニール試験

時間 10 分）で測定 RPL 強度が 15%程度減少した。励起レーザーの強度を 1.1 nJ/pulse とした実験でも同じ励起パルス数で約 10%の RPL 強度の減衰が見られたが，短期的には明確な減衰は見られなかった。概しては，励起光源に YAG レーザーを用いた実験の場合と同様に，1 点（領域）当たりの RPL 光の測定時間は短く，この時間内における RPL 強度の低下（RPL 中心の消失）は十分無視できると考えられる。さらに強度の低いレーザー励起では RPL 強度の減少傾向は見られなかったが，測定 RPL 光子の数量が減少するため，統計的なばらつきが相対的に大きくなった。

以上の一連の実験結果より，蛍光ガラス線量計の RPL 光測定時のアニーリングと励起レーザーパルスの輝度との大体の関係を掴むことができた。本研究で製作したレーザー顕微鏡においては，励起レーザーのパルスエネルギーに対するアニーリングの程度は，通常の蛍光ガラスの線量読み取り装置[4]と比べて大きい値となっている。対物レンズによって励起光を集光することで輝度（エネルギー密度）が増加し，局所的にアニーリングを発生しやすい状態になっていると考えられる。

4.5.2 励起レーザーのビーム径と位置分解能

図 4.6 に示しているように，本装置は光電子増倍管の前にミラーを挿入することができる構造としている。ミラーを挿入した場合，測定試料からの光及び励起用レーザーの反射光が CCD カメラに入射し，PC の画面上に表示することができる。XY ステージ上に板状のホウ珪酸ガラスを置いた状態でレーザーを照射し，レーザーの反射光を CCD カメラで観測した。CCD カメラで観測されたレーザーのビームスポット画像からの求めた輝度分布の結果を図 4.12 に示す。この図から，輝度分布の半値幅は 1.1 μm であることがわかった。

蛍光ガラス線量計素子における蛍光（RPL）観測による位置分解能は，以下の方法で求めた。先ず，板状の蛍光ガラス線量計素子上に，微細な電子ビームを用いて数本の平行直線を描画した。この平行直線パターンを，製作したレーザー顕微鏡（RPL 光読み取り装置）で RPL 光による 2 次元画像を観測した。電子ビームによる描画には，走査型電子顕微鏡（JSM-5600LV, JEOL）を使用した。この電子顕微鏡の電子ビームの描画（電子ビーム照射位置）は，外部信号による制御が可能であり，2 系統のアナログ電圧によって照射位置の X 座標と Y 座標を決定することができる。PC とアナログ

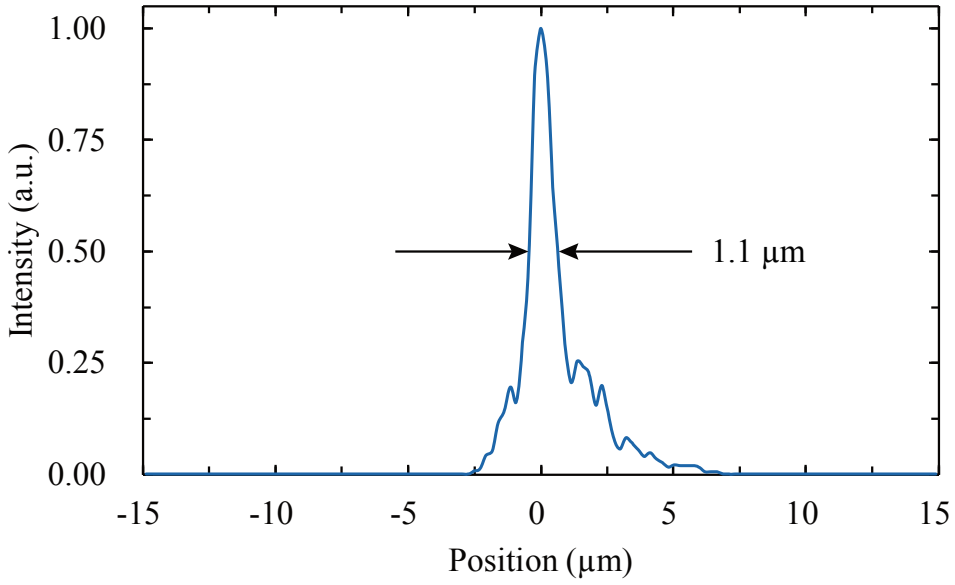

図 4.12 CCD カメラで観測したレーザー励起ビームスポット（反射光）の輝度分布

出力ボードを使用して，任意位置に電子ビームを照射できるシステムを製作し，電子ビームで一定の間隔を隔てた 2 本の直線を，蛍光ガラス線量計素子上に描画（照射）した。電子の加速電圧は 3 kV とした。

電子ビームを照射した蛍光ガラスを，蛍光顕微鏡（iX71，オリンパス）で観測した。その結果，照射電子ビームの幅は半値幅で 3.8 μm であった。一方，本研究で製作したレーザー顕微鏡装置を用いて，電子ビームで同様に描画した直線を横断する方向に RPL 光強度の読み取りを行った。その結果を図 4.13 に示している。RPL 光測定は 0.1 μm ステップで蛍光ガラス試料を移動させ，電子ビーム描画直線と垂直方向に 40 μm，平行方向に 0.5 μm の範囲について行った。各測定点における紫外励起光照射は 2 秒間で，レーザーパルスのパルス幅は 0.7 μs，繰り返し周波数は 20 kHz として RPL 光の測定を行った。本システムの測定で得られた電子ビーム描画直線の半値幅は 4.0 μm であり，上述の蛍光顕微鏡による観測結果とよく一致した。また，同様の条件の下で 2 本の電子ビーム描画直線（中心間距離；10.9 μm）の RPL 強度分布を横断的に測定した。その結果を図 4.14 に示している。また，このような蛍光ガラスを利用した RPL 光測定画像の解像度について調べるために，2 本の電子ビーム描画直線間の間隔を変えた同様の実験を行った。そして，それらの測定結果をもとに求めた，本システムの

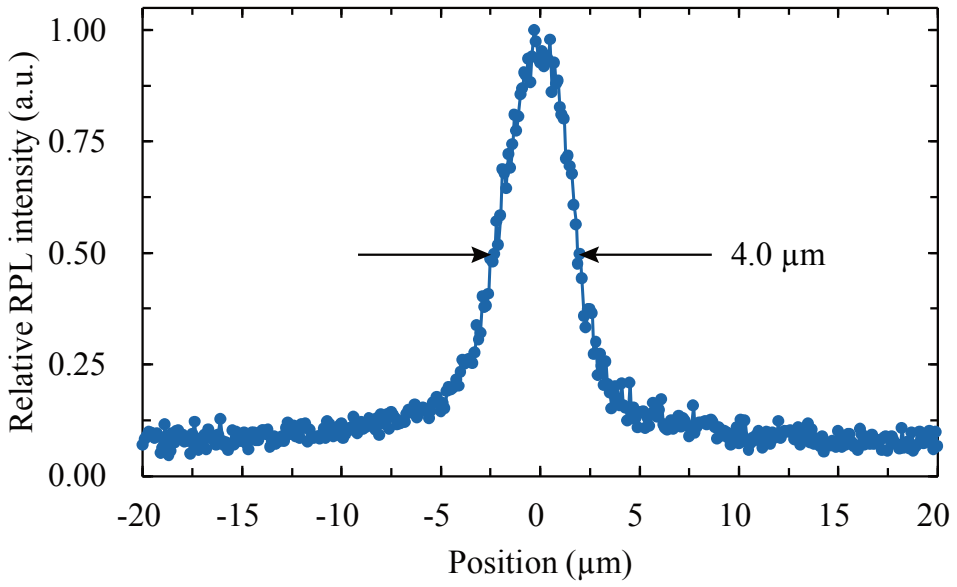

図 4.13 蛍光ガラス上を描画した電子ビームの RPL 強度分布

（製作したレーザー顕微鏡で観測）

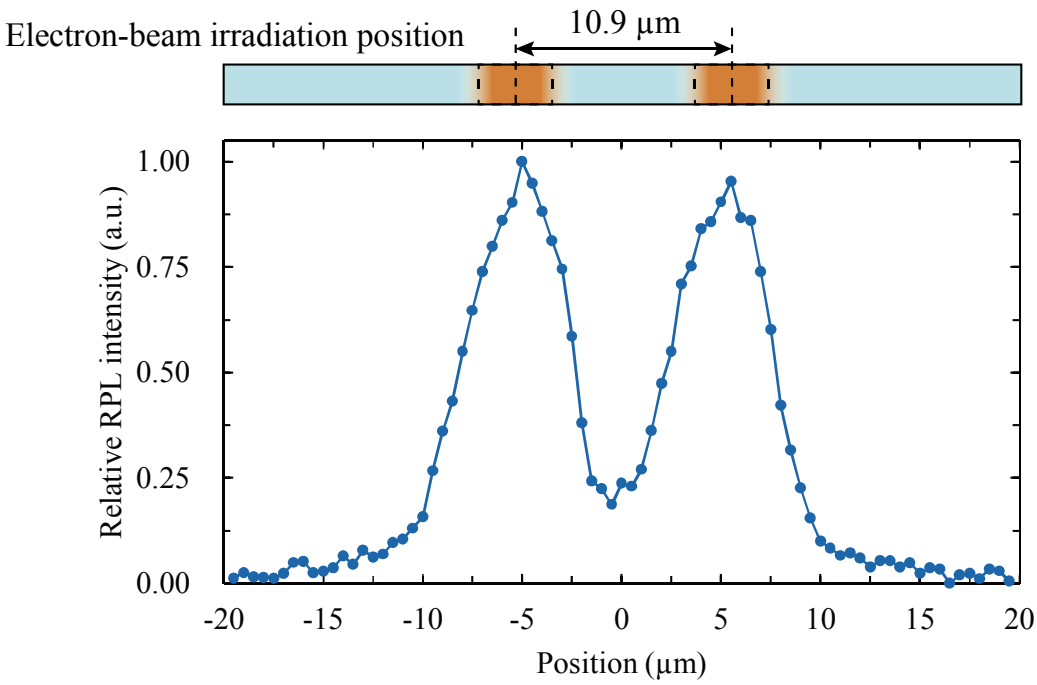

図 4.14 蛍光ガラス上に電子ビームで描画した 2 本の直線の RPL 強度分布

（レーザー顕微鏡システムで測定）

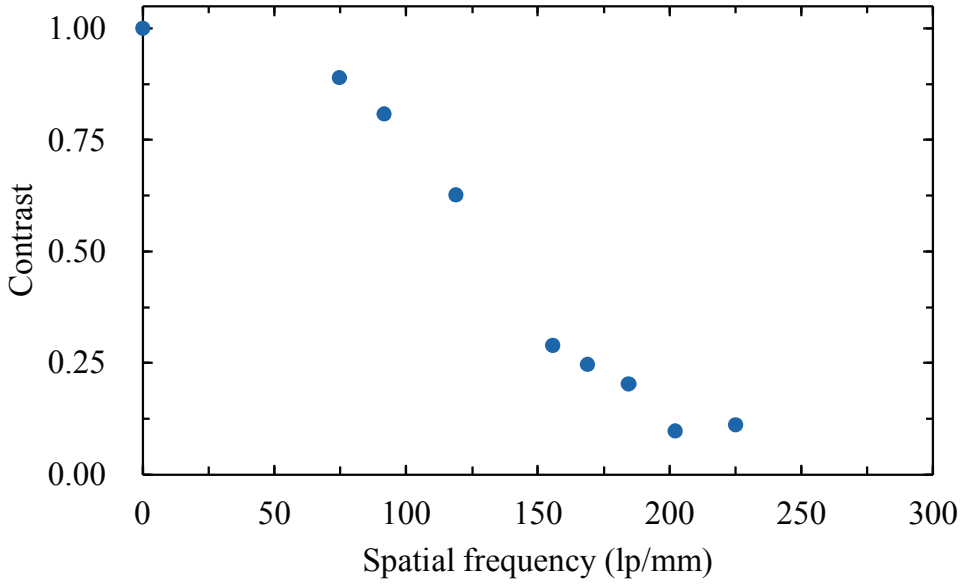

図 4.15 レーザー顕微鏡による RPL 測定システムの CTF 曲線

CTF（Contrast transfer function，コントラスト伝達関数）曲線を図 4.15 に示している。CTF は，主に医療画像診断をはじめとする写真の鮮鋭度評価に利用される関数で，矩形波チャートを用いてコントラストの減弱の程度を評価したものである[5-6]。この実験では，電子ビーム描画直線の蛍光（RPL）が線幅 3.7 μm（平均値）の階段状であると仮定し，異なる 2 直線間距離において RPL 輝度分布のコントラスト比を求めた。空間周波数を 1 mm あたりの線対数で定義すると，単位は lp/mm (lp = line pairs)と表記される。ある空間周波数 ν の場合のコントラスト比は，次式で求められる。

$$C(\nu) = \frac{L_{\max}(\nu) - L_{\min}(\nu)}{L_{\max}(\nu) + L_{\min}(\nu)} \tag{4-1}$$

$$L_{\max}(\nu) = \frac{L_{\max 1}(\nu) + L_{\max 2}(\nu)}{2} \tag{4-2}$$

ここで$L_{\max}$，$L_{\min}$はそれぞれ，空間周波数 ν における 2 線の最大輝度及び最小輝度を示す。$L_{\max 1}$及び$L_{\max 2}$は 2 線のそれぞれの最大輝度である。通常は，コントラスト比 0.5 以上であれば十分 2 線分解可能と考えられ，本装置の場合は，分解可能な 2 線の中心間距離が 8.4 μm，線幅を引いた線間隔は 4.5 μm であった。本研究の目的である放射能の汚染分布観測に対しては，十分な分解能を有していることがわかる。

4.5.3 吸収線量－蛍光応答特性

蛍光ガラス線量計素子試料の（放射線）吸収線量に対する本レーザー顕微鏡システムの応答（測定蛍光強度）の関係について調べた。複数個の板状蛍光ガラス素子試料に ^{60}Co ガンマ線を一様に照射した。各蛍光ガラス線量計素子の吸収線量は計算により求めた。また，吸収線量の高低はガンマ線照射時間により調整した。蛍光ガラス線量計素子を一様に照射していることから，各素子の RPL 光の測定点数は 1 点で代表することもできるが，蛍光ガラス表面の傷や汚れ等の影響を除去するため，蛍光ガラス試料表面を 5 μm のステップで 2 次元的に走査して 25（= 5 × 5）点の測定を行い，それらの測定値の平均値を求めた。

蛍光ガラス線量計素子試料の吸収線量と本システムで測定された RPL 強度の関係を図 4.16 に示す。バックグラウンド成分を完全に除去（減算）していないが，低吸収線量であっても蛍光ガラス線量計の線量を，本 RPL 光測定システムで求めることができることがわかる。

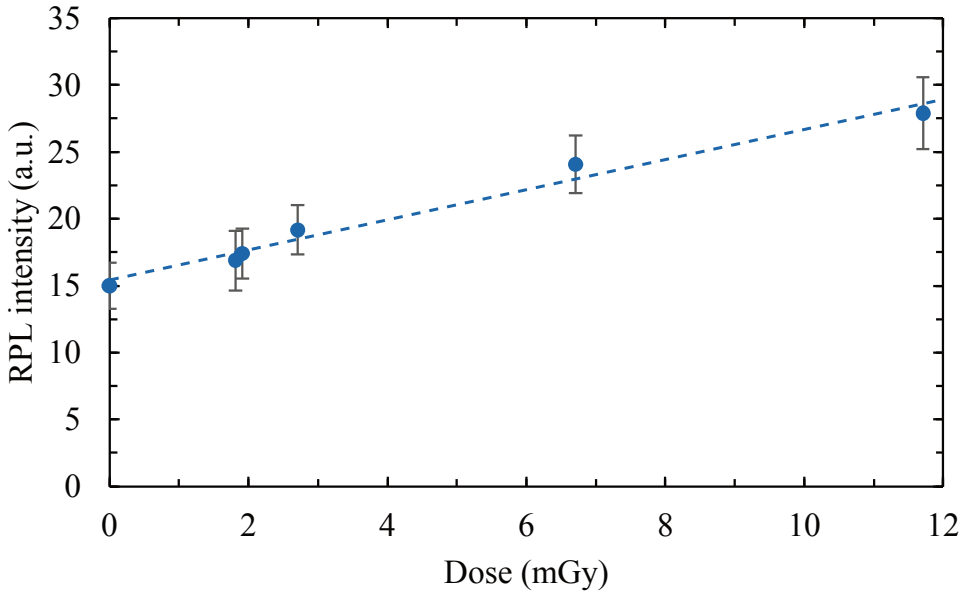

図 4.16 板状蛍光ガラス線量計の吸収線量と本システムで測定された RPL 強度の関係

4.6 蛍光ガラスロッド素子の特性

4.6.1 X 線照射試験

本節では蛍光ガラスロッド素子の線量測定法と素子の特性について述べる。本節で述べる実験においては，蛍光ガラスの励起光源として主に YAG 紫外レーザーを選択した。理由は蛍光ガラス線量計素子の詳細な二次元の RPL 光測定は行わないことと，素子について測定点数が比較的少ないことによる。径の太い短い円柱状の蛍光ガラス素子では，円柱の端面方向より励起光を入射し，径方向から RPL 光の読出しを行う方法が考えられるが，今回のように径の細い長い蛍光ガラスロッドの場合は，軸方向から励起光を入射させるのは困難である。

本節では先ず，細長い蛍光ガラスロッド素子の RPL 光の測定・定量的評価が可能かどうか，およびプレドーズの大きさの確認を第一の目的として，X 線を均一に照射した蛍光ガラスロッド素子の RPL 光測定を行った。同一素子試料に X 線を照射し，RPL 光を測定するという手順を繰り返した。X 線管には Ag ターゲットを使用し，管電圧 40 kV で X 線照射した。RPL 光の測定にあたっては，0.1 mm 間隔で 10 点の測定を行った後，10 点での測定値の平均値を求めた。

図 4.17 に X 線の照射時間と得られた RPL 強度の関係を示す。X 線未照射ガラスの

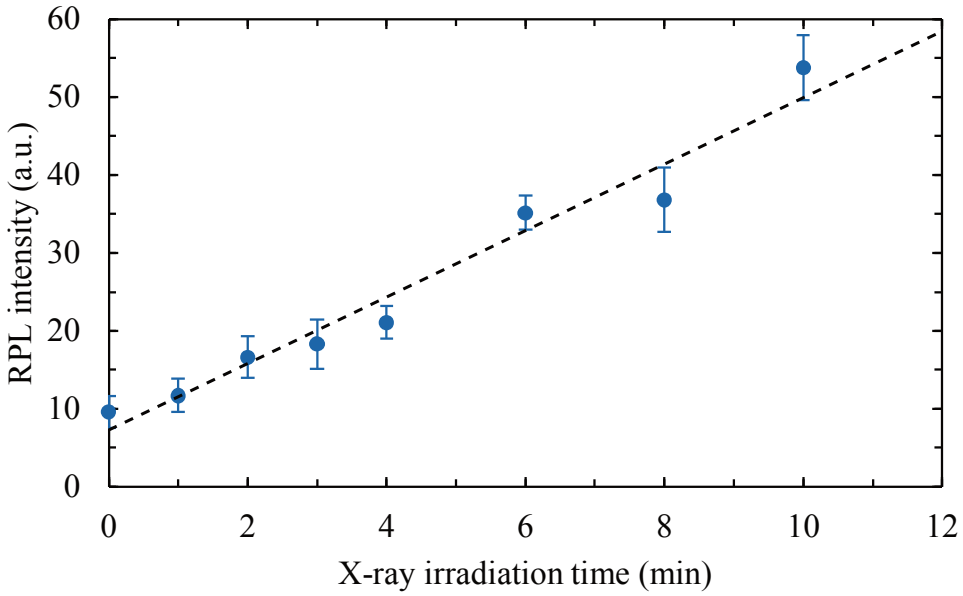

図 4.17 製作した蛍光ガラスロッド線量計の X 線照射時間と RPL 光強度の関係

測定 RPL 強度がプレドーズ（減算が可能である）である。ロッド形状の径方向より励起レーザーを入射させるためにロッド表面で反射や屈折が発生し，そのことに由来するばらつきが認められるが，線量の測定評価は十分行えることが確認できた。

4.6.2 放射性同位元素線源による照射試験

製作した蛍光ガラスロッド素子の飛程の短い放射線（アルファ及びベータ放射能）に対する応答について調べるため，放射性同位元素の標準線源を用いた照射実験を行った。本実験は，本研究の目的である放射能汚染モニタリングについての模擬実験の一つでもある。放射線源として，^{241}Am 標準アルファ線源及び ^{137}Cs 標準ベータ線源を用意した。

実験体系を図 4.18 に示す。図 4.6 に示したように，この放射能汚染観測装置では倒立型のレーザー顕微鏡を使用しているため，蛍光ガラス線量計の励起光は素子試料の下方から導入される。また，蛍光ガラス線量計素子の RPL の読出し方向も同様に下方向となる。そして，励起光の導入方向，RPL 読み出し方向と直角に標準アルファ線源あるいは標準ベータ線源をセットした。標準線源と蛍光ガラスロッド素子試料の間にはコリメータを配置した。

本実験ではアルファ線照射用とベータ線照射用に蛍光ガラスロッド素子試料を 2 本別々に用意した。一本は ^{241}Am アルファ線源を用いて照射を行い，他方は ^{137}Cs ベー

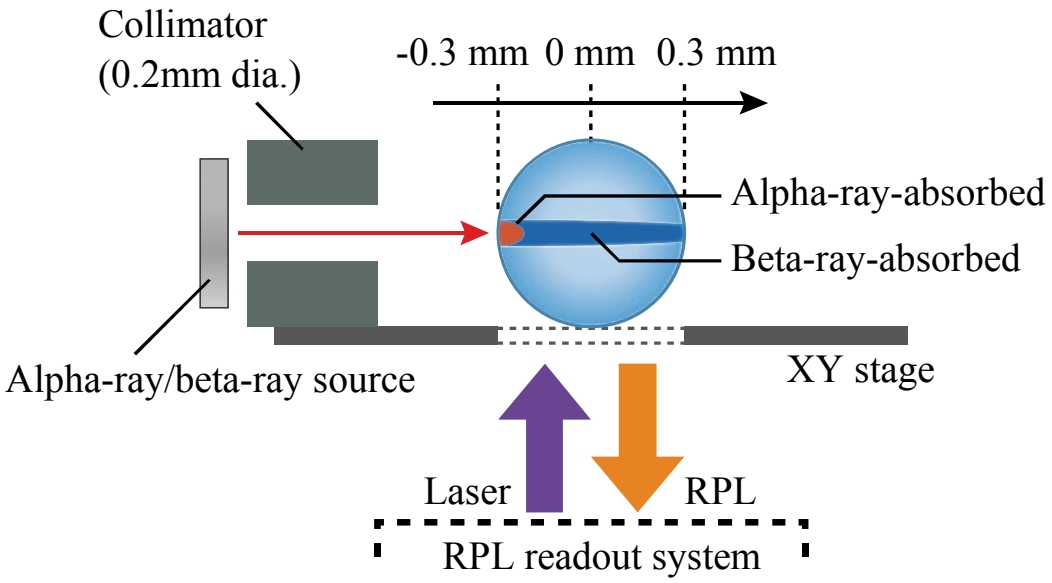

図 4.18 蛍光ガラスロッド素子の α・β 線照射実験の体系図

タ線源を用いて照射を行った。アルファ線はガラス中の飛程が短いため，照射効果が蛍光ガラスロッドの線源側の表面のみに分布する一方，ベータ線はアルファ線と比べて飛程が長いため，直径 0.6 mm のガラスロッド内では比較的広い範囲に効果寄与があると推測される。これらの 2 種類の線源による効果の差を確かめるため，RPL 光の読み取り方向として励起レーザーを蛍光ガラス素子の径方向（図 4.18 の左右方向）に走査することで，径方向の RPL 光強度分布の測定を試みた。

図 4.19 に RPL 光強度分布の測定結果を示す。蛍光ガラスロッド素子は直径 0.6 mm であり中央部（位置）を 0 mm としているため，X 軸の値が-0.3 mm から+0.3 mm までの位置に蛍光ガラスが配置されている。アルファ線源を用いて照射した蛍光ガラスロッドでは，線源のある照射側（図の X 軸の負方向）に強い蛍光（RPL）が見られ，中央部にはほとんど蛍光が見られなかった。一方，ベータ線源を用いて照射した蛍光ガラスロッドでは，中央部をはじめ蛍光ガラスロッドの領域中に広く分布する蛍光（RPL）が認められた。アルファ線照射ガラスの蛍光（RPL）分布に見られるピークの半値幅が約 0.05 mm であることが確認された。

図 4.19 中の点線は，蛍光ガラスロッド中のアルファ線とベータ線による吸収線量

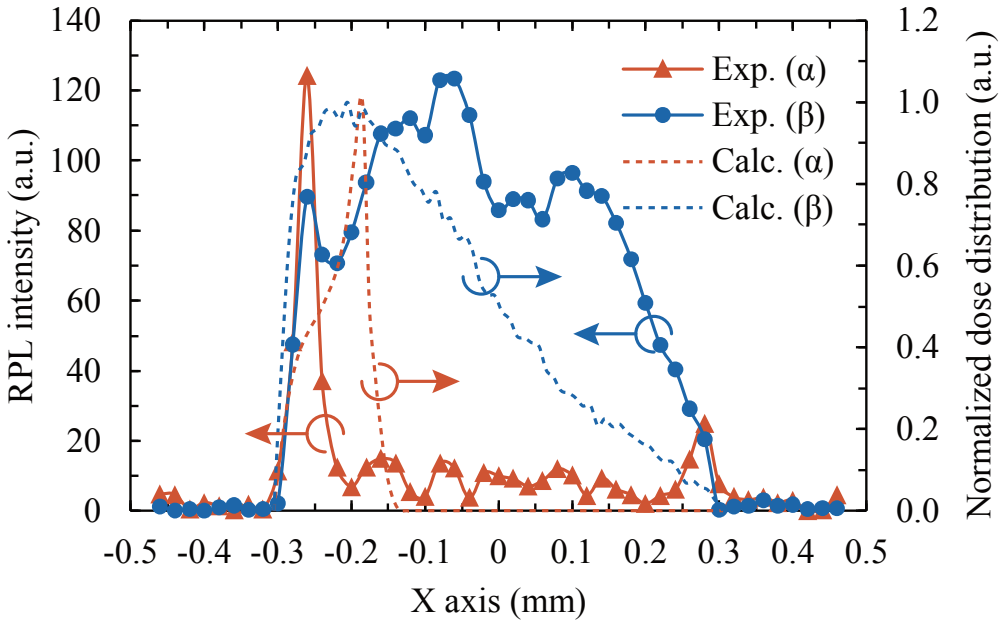

図 4.19 α・β 線源で照射した蛍光ガラスロッド素子の径方向の
RPL 強度分布の実験結果と計算結果

のシミュレーション計算結果を示している。シミュレーション計算は，粒子輸送計算コード PHITS を用いて行った。^{241}Am アルファ線源からは複数のエネルギーを持つアルファ線，内部転換電子，ガンマ線等が放出されるが，アルファ線及び放出率の高い 59.5 keV のガンマ線を計算に組み込んだ。また，^{137}Cs 標準ベータ線源ではベータ線及び 662 keV のガンマ線を計算に反映させた。蛍光ガラスの吸収線量分布の計算結果と RPL 強度分布の測定結果の比較では，アルファ線源及びベータ線源についてもともに傾向は概ね一致するものの，アルファ線の蛍光（RPL）のピーク位置やベータ線の蛍光分布（偏り小）などが異なる結果となっている。また，本来照射寄与のないはずであるアルファ線源の照射部と反対方向（X 軸の正方向）の端で小さなピークが見られることなどから，これらの正確な解析には RPL 光の発生位置からの正確な輸送（オプティクス）を取扱う必要があると思われる。しかし，今回の実験結果より，放射線入射方向を限定したうえで本装置を用いて測定を行った場合，アルファ線では照射側に強い蛍光，ベータ線ではガラスロッド内でばらつきはあるものの径方向に対して概ね一様な蛍光が得られることがわかった。つまり，放射線入射前面及び中央部の蛍光ガラスの RPL 強度を測定・比較することで，アルファ線とベータ線の識別が行えることが示唆された。これは原子力発電所事故に関連した放射能汚染モニタリングにおいては，ガンマ線の放出が少ないために測定が難しいプルトニウム等の超ウラン元素とベータ放出核種の識別が行えることを示しており，損傷原子炉近傍の放射能モニタリングや除染活動や大いに役立つ可能性を示している。

4.7 福島県で採取した土壌の放射能汚染測定

製作した蛍光ガラスロッド素子，及び RPL 強度分布測定用レーザー顕微鏡システムを用いて，福島県で採取した土壌の放射性セシウム汚染分布の測定を行った。

土壌試料は福島県内で 2011 年 11 月に採取したものである。土壌サンプルを採取する際には，直径 25 mm のステンレスパイプで土壌をくり抜くようにすることで，深さ方向の攪乱（かき混ぜ）が起きないようにした。そして，土壌試料に蛍光ガラスロッド素子を差し込む方法で，深さ方向の放射能（放射性セシウム）汚染分布測定を試みた。

図 4.20 に，土壌の深さ方向の放射能汚染分布の測定体系を示す。蛍光ガラスロッド素子は，そのまま土壌に差し込むと，折損に加えて表面に傷がつくことや，土壌中の水分等の影響によって性能が劣化するおそれがある。蛍光ガラス表面の傷は，励起光の散乱や反射を引き起こすことでバックグラウンド成分を増大させ，正確な RPL 光の測定を妨げる原因となる。多量の水分に長期間曝された場合には，蛍光ガラス表面の白色化が起こり，RPL 強度の測定精度が低下する。そこで，今回の土壌の深さ方向の放射能汚染分布測定では，凹のように溝をつけたアルミニウム製ホルダーに蛍光ガラスロッド素子を取り付けることで，折損を防ぐ構造とした。また，このホルダーにより土壌中の放射性物質からの放射線入射方向を制限することで，前項で示した荷電粒子放射線（アルファ線，ベータ線）とガンマ線の識別が可能となる。さらに，土壌粒子等との接触により蛍光ガラス面が傷つくことと水分の影響を避けるため，蛍光ガラスロッド素子とアルミ製ホルダーを厚さ 50 μm のポリエチレンフィルムを用いて真空包装した。包装に用いたポリエチレンフィルムは十分に薄く，放射性セシウムのベータ線検出にはほとんど影響を与えない。包装後のホルダーに入れられた蛍光ガラ

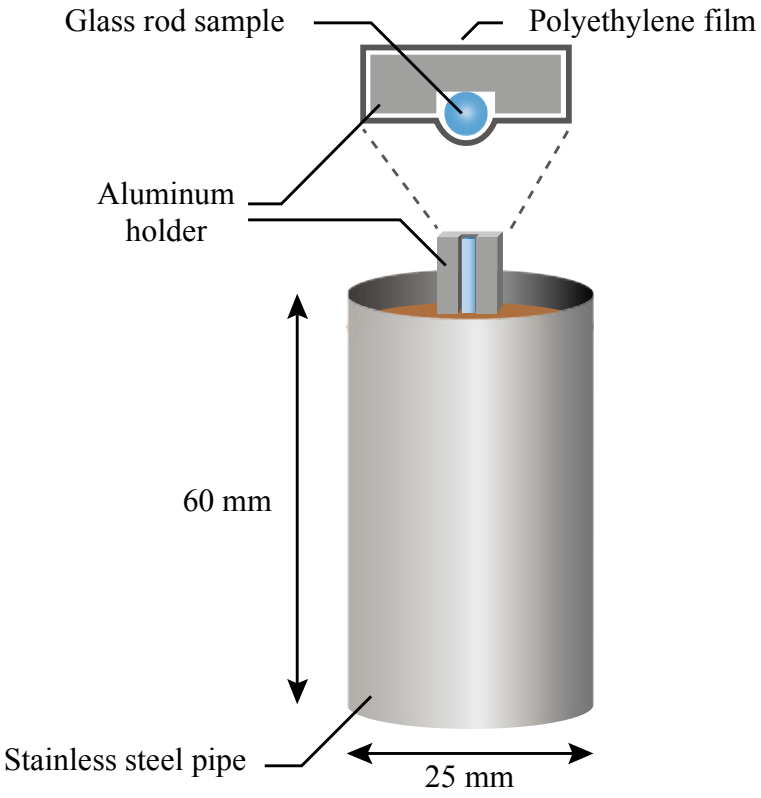

図 4.20 蛍光ガラスロッド素子による土壌中の放射能汚染の深さ方向分布測定体系図

スロッド素子を試料土壌中に差し込み，24 時間静置した。放射能分布の測定に際しては，土壌試料よりフィルムで保護されている蛍光ガラス線量計素子を取り出した後，ポリエチレンフィルム及びアルミ製ホルダーを外し，蛍光ガラス線量計素子をエチルアルコールで超音波洗浄した。そして，前述のレーザー顕微鏡システムで，蛍光ガラス線量計素子の深さ方向の RPL 強度分布を測定した。また，その測定結果を他の方法による結果と比較するために，円柱状の土壌試料を厚さ（深さ）4 mm ごとに輪切りにし，それぞれを NaI(Tl)シンチレーション検出器を用いて放射性セシウム濃度を定量した。

放射能汚染土壌についての測定結果を図 4.21 に示している。蛍光ガラスロッド素子による RPL 強度分布と NaI(Tl)シンチレーション検出器による放射能濃度の測定結果が良く対応することが確認できた。また，これまでの研究で，表面から浸透した放射性セシウムの深さ方向分布は指数関数で近似でき，深さ t における放射能濃度 $A(t)$ は次式で表されることが報告されている[7-8]。

$$A(t) = A_0\, e^{-t/\beta} \tag{4-3}$$

ここで，A_0は表面の放射能濃度，β は緩衝深度と呼ばれ，土壌の物理的，化学的性質や経過時間に依存する量である。今回の測定で得られた β の数値は 0.72 g/cm^2 であり，

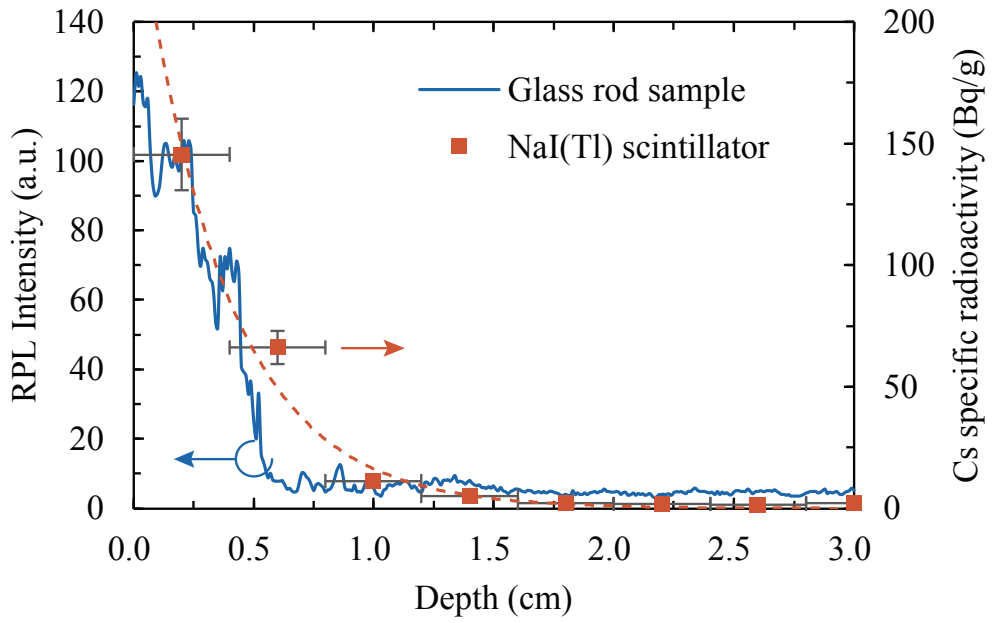

図 4.21 放射性セシウム汚染土壌試料の放射能濃度測定結果

この値は，同時期に採取された他の土壌についての報告（0.5-1.5 g/cm^2）ともほぼ一致した[8]。これらのことから，本測定方法で土壌の深さ方向の放射能汚染を上手くモニタリングできることがわかった。また，NaI(Tl)シンチレーション検出器及び蛍光ガラスロッドによる測定に関して，深さ 10 mm ± 2 mm の位置にある土壌（放射性セシウムの濃度；10 Bq/g）の分析は 1 日で十分可能であった。この放射能濃度は比較的高汚染地域の土壌中放射能濃度に相当するが，蛍光ガラス線量計はフェーディングが十分小さいことから，線量蓄積の測定時間を増やすことで測定下限をさらに下げることができる。

本放射能汚染モニタリング法を現地で適用するにあたって必要なものは，ホルダーに取り付けた蛍光ガラスロッド素子のみであり，測定地点の状況に合わせて曝露時間を増減させることで，多地点の定点観測を簡便に行えると考えられる。

4.8 土壌中の放射性セシウムの動態観測への応用

前節までの実験より，蛍光ガラスロッド素子を放射能汚染土壌中に差し込む方法によって，土壌中の深さ方向の放射性セシウム分布をモニタリングできることを示した。本節では，前節に関連したいくつかの応用実験について述べる。

環境中に放出された放射性セシウムが，土壌をはじめとする環境中でどのような動態を示すのかについては未解明の部分が多い。特に圃場のセシウムの吸着除去は農作物の栽培のため，さまざまな手法を用いて試験が行われている重要な分野の一つである。前節のレーザー顕微鏡システムと蛍光ガラスロッド素子を用いて畑土壌からの放射性セシウムの移行や吸着に関するいくつかの実験を行った。その一例を以下に示す。

図 4.22 は土壌を対象に実施した放射性セシウム移行実験の概要である。前節の実験と同様にステンレス円筒管内に土壌試料を用意した。本実験では移行に関して明確に判別できるよう，非汚染土壌試料の上に放射性セシウム汚染試料を厚さ 5 mm で層状に構成した 2 層構造の土壌試料を 3 種類，それぞれ試料 A，B，C を用意した。放射性セシウム汚染土壌として福島県の 1 地点で実際に採取した試料を撹拌したうえで用いているが，調製したものではないため各試料中の絶対放射能量は異なる点に注意が必要である。各土壌試料に蛍光ガラスロッド素子をホルダーに取り付けて差し込

んだ後，試料 B には常温の精製水を 50 ml 滴下，試料 C には常温で 0.1 mol/l の濃度とした水酸化カリウム溶液を 50 ml 滴下した。曝露時間は 72 時間とし，それぞれの蛍光ガラスロッド素子の軸方向（深さ方向）の RPL 強度分布を測定した。

深さ方向の RPL 強度分布の測定結果を図 4.23 に示す。特定の処理を行わなかった試料 A の RPL 強度分布は，深さ 5 mm までのセシウム汚染試料層と対応する分布となっており，これはイメージングプレートで層状の実験を行った 2.4 節の傾向とも一致した。一方，液体を滴下した試料 B，試料 C では RPL 光量の値が相対的に小さくなった。これは試料が水分を含むことにより土壌中のベータ線の一部が遮蔽されているためと考えられる。精製水を滴下した試料 B では RPL 強度分布には大きな変化は見られず，わずかにより深い方向へ分布が移行した程度であった。これに対して，水酸化カリウム水溶液を滴下した試料 C では明らかな移行が見られた。試料 B とは異なり，RPL 強度のピークを示す位置がセシウム汚染土壌層から明確に移行していることがわかる。この放射性セシウムの移行は精製水では見られずに水酸化カリウムで見られたことから，主に水酸化カリウム中の K^+イオンと土壌中の Cs^+イオンが交換した

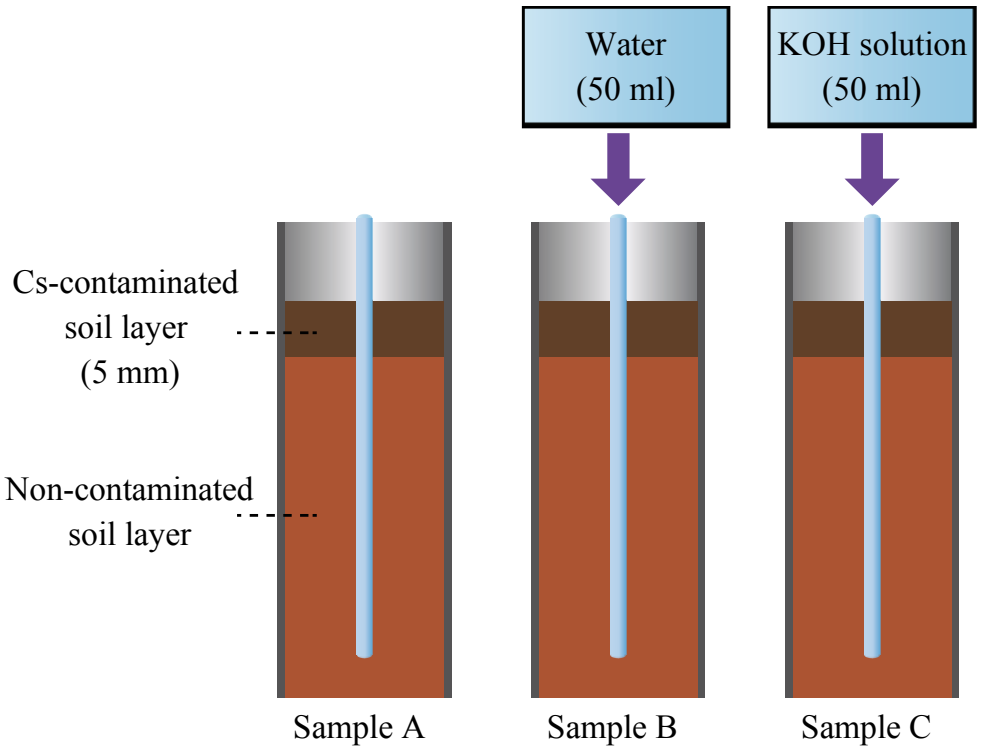

図 4.22 水酸化カリウムによる土壌中セシウムの移行実験例

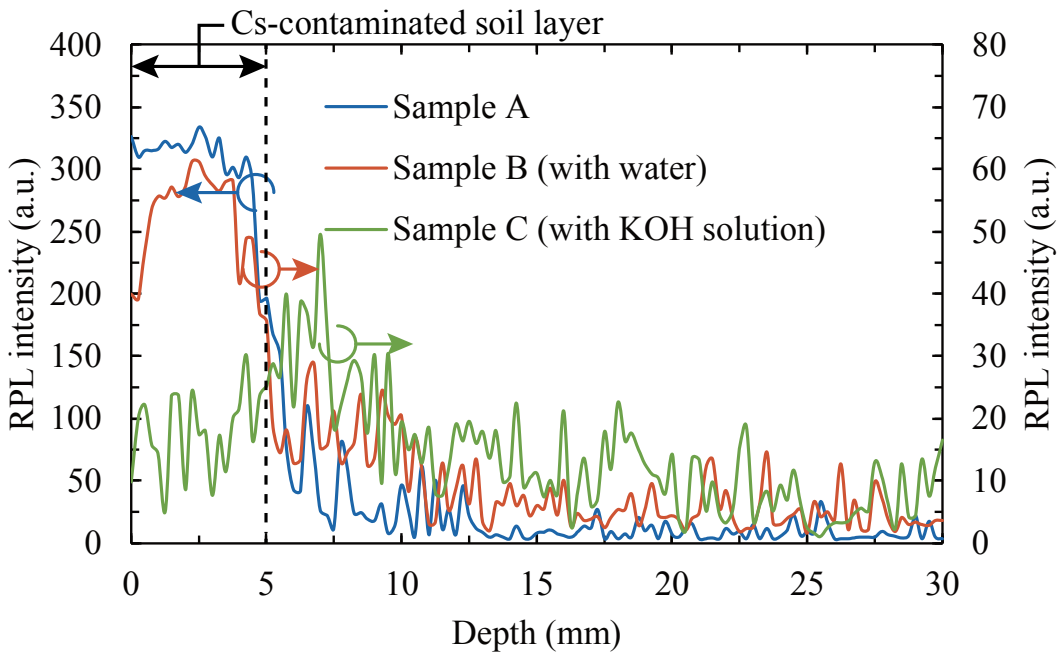

図 4.23 水および水酸化カリウム溶液による土壌中の放射性セシウム移行

ことによるものと考えられる。

本実験は 2011 年 11 月（事故より 8 か月後）に採取した土壌を用いて同年 11 月から 12 月にかけて行った実験であり，カリウムイオンによる移行が明確に見られている。しかし，事故より 3 年以上経過した現在では放射性セシウム移行の傾向が変化してきていることが各研究より明らかとなってきている。土壌中の放射性セシウムはさまざまな状態で存在しているが，土壌中への吸着力が弱いものは保持されている土壌から降雨等により徐々に溶脱し，吸着力の強いものが長く土壌中へと滞留することは，既に核実験由来の放射性物質を対象とした研究により明らかとなっている[9-10]。現在の土壌中に存在する形態は吸着力の強い置換態及び固定態と呼ばれる形態が主になってきており，事故直後と比較して動態が変化している部分もあると考えられる。このような研究にも，深さ方向の放射能汚染モニタリングが容易である蛍光ガラスロッド素子と RPL 測定用レーザー顕微鏡システムが有効に利用できると思われる。

4.9 結言

本章では，原子力発電所事故により環境に広く拡散した放射性セシウムによる汚染

のモニタリング法について検討を行った。特に，土壌中の深さ方向の放射能汚染分布の測定法についての研究の成果をまとめた。第 2 章で述べた放射能汚染検出についてのシミュレーション計算の結果をもとに，土壌中の深さ方向の放射能（放射性セシウム）汚染分布測定に適した蛍光ガラスロッド素子とその RPL 強度分布を高感度で測定するレーザー顕微鏡を製作し，対象土壌に差し込むことで深さ方向の汚染分布を簡便に測定できることを示した。レーザー顕微鏡システムは，蛍光ガラス線量計の励起光である紫外レーザーを対物レンズで集光することで蛍光ガラスロッドの微細領域からの RPL 光の読み出しと高感度の検出を行っている。また，RPL 光の測定においては，波長と発光減衰時間を正確に捉えて高い信号対雑音比を実現している。

標準線源を用いた実験により，蛍光ガラスロッド素子で放射線の入射方向を限定することによって，Pu 等の超ウラン元素のアルファ放射能と放射性セシウム等のベータ放射能の識別ができることを示した。また，蛍光ガラスロッド素子を用いたレーザー顕微鏡システムの放射能汚染測定の位置分解能は約 0.05 mm であった。

実際に福島県で採取した土壌試料による実験から，本モニタリング法によって土壌中の深さ方向の放射能分布を得られることを示した。NaI(Tl)シンチレーション検出器による測定結果との比較より，蛍光ガラス線量計素子の 1 日の曝露では 10 Bq/g の放射性セシウムの放射能濃度の検出が可能であった。蛍光ガラス線量計はフェーディングが小さく，曝露時間を長くすれば放射能濃度測定の感度を上げることができる。

また，本モニタリング方法を放射性セシウムの土壌中での動態解明のための基礎実験に上手く適用することができた。層状に構成した放射性セシウム汚染土壌試料に精製水及び水酸化カリウム水溶液を滴下し本モニタリング法により，カリウムイオンによる放射性セシウムの移行を上手く観測することができた。

参考文献

[1] 横田良助，“螢光ガラス線量計の最近の進歩”，*応用物理*, Vol.40, No.12, pp.1292-1307 (1971).

[2] 山根正之，“セラミックス基礎講座 4 はじめてガラスを作る人のために”，内田老鶴圃 (2005).

[3] F. Araki, T. Ikegami, T. Ishidoya and H.D. Kubo, “Measurements of Gamma-Knife helmet output factors using a radiophotoluminescent glass rod dosimeter and a diode detector”, *Medical Physics*, Vol. 30, No. 8, pp. 1976-1981 (2003).

[4] D. Maki, F. Sato, Y. Kato, T. Yamamoto and T. Iida, “Improvement of a dose reading system for radiophotoluminescence glass dosimeters”, *Radioisotopes*, Vol. 60, pp. 55-61 (2011).

[5] 長束澄也，“X 線診断写真における階調再現”，*日本写真学会誌*, Vol. 68, No. 5, pp. 377-380 (2005).

[6] 高橋健治，佐々木聡，柳澤佳寿美，木村滋，表和彦，平山令明，中村吉男，“クリスタリット”，*日本結晶学会誌*, Vol. 35, No. 4, p. 302 (1995).

[7] H. Kato, Y. Onda and M. Teramage, “Depth distribution of ^{137}Cs, ^{134}Cs, and ^{131}I in soil profile after Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant Accident”, *Journal of Environmental Radioactivity*, Vol. 111, pp. 59-64 (2012).

[8] 谷畑勇夫，“福島の土壌調査から理解できること”, *Radioisotopes*, Vol. 62, pp. 724-740 (2013).

[9] 斎藤公明，青木和弘，谷畑勇夫，“3 土壌中における放射性物質の深度分布の確認”，
http://fukushima.jaea.go.jp/initiatives/cat01/pdf05/02-03.pdf (2012).

[10] 津村昭人，駒村美佐子，小林宏信，“土壌及び土壌―植物系における放射性ストロンチウムとセシウムの挙動に関する研究”，*農業技術研究所報告 B*，Vol. 36, pp. 57-113 (1984).

第 5 章 福島復興に向けた遠隔放射能汚染モニタリング法

5.1 緒言

第 4 章までは，福島第一原子力発電所の損傷によって発生した自然環境の放射能汚染とレーザー顕微鏡を利用した汚染観測方法について述べてきたが，本章では，損壊した原子炉や関連機器，また，その周辺領域の放射能表面汚染状況（分布）を遠隔でモニタリングする方法について述べる。

現在，問題となっている広範囲に拡散した放射性セシウムは，その多くが作用物質の表層部分に沈着している。例えば，作用物質が土壌の場合，周囲の環境や経過時間にも依存するが，降下した放射性セシウムの 90%以上が概ね深さ 5 cm までの領域（層）内に沈着しているという多くの結果が報告されている[1-3]。そして，土壌や構築物等の表面の放射能汚染状況については，作業者がサーベイメータを用いて近づいて，あるいはガンマカメラ等を用いて離れて測定・観測を行っている。また，空間線量率の非常に高い損傷原子炉近傍については，自走ロボットにガンマカメラを搭載する方法で放射能表面汚染状況の測定・観測が行われている[4]。ただし，周辺全体が放射能汚染しているような状況では，ガンマ線のコリメーション性能が低下し解像度が悪くなるようである。

放射線安全管理の観点からは，放射能汚染状況を正確に把握できれば必要な汚染領域のみを除染すればよく，除染作業時間の短縮や放射能汚染廃棄物の減容化等への貢献は非常に大きいと考えられる。しかし，高線量域の多地点の観測やその分析を，作業者自らによる近接測定や多数の高価な測定装置やシステムを利用する方法で行うのは，放射線被ばくと経費の観点から非常に困難と言わざるを得ない。

そこで，このような問題点を解決するために，蛍光ガラスをビーズ状に加工して放射能汚染領域に散布あるいは塗布し，離れた地点から励起用紫外線を当てて放射線量を示す特定の蛍光を観測することで，放射能汚染の程度を認識する方法を考えた。また，この蛍光ガラスビーズをフィルム上に貼り付けることで，放射能汚染測定用のシート状素子として使用することも可能である。蛍光ガラスをシート型に加工すること

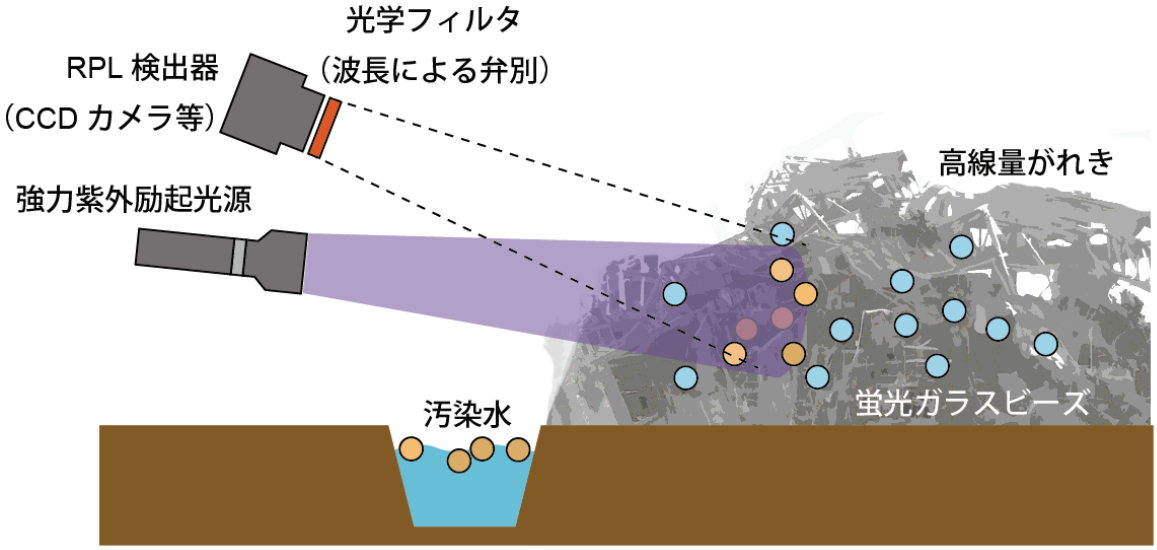

図 5.1 蛍光ガラスビーズやシートを用いた放射能汚染モニタリングのイメージ

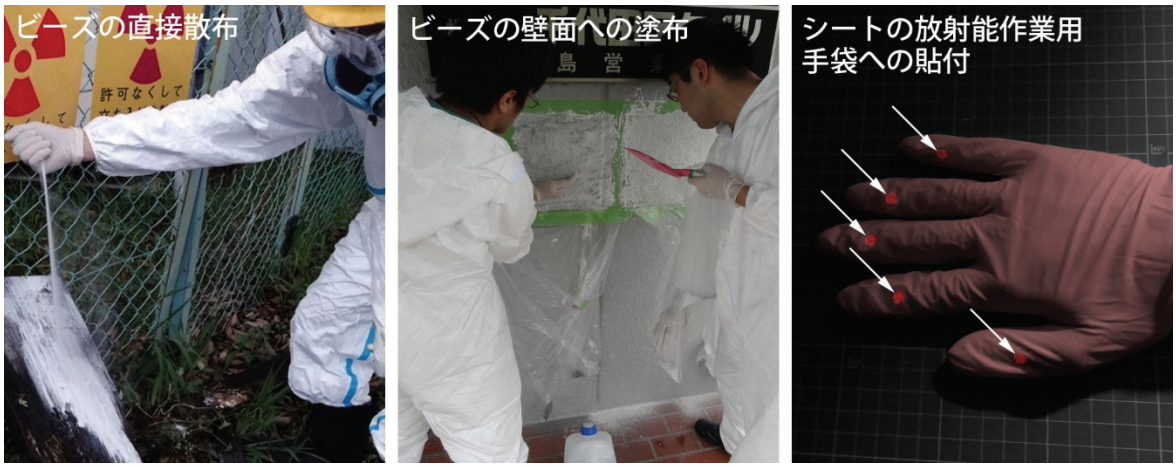

図 5.2 ビーズ型やシート型蛍光ガラスの放射能汚染モニタリング（試験）への適用の様子

で，蛍光ガラス板のままでは割れるおそれがあり適用が困難であった凹凸面の放射能汚染モニタリングにも利用することができる。図 5.1，図 5.2 に，蛍光ガラスビーズや蛍光ガラスビーズシートを用いた放射能汚染モニタリングのイメージと筆者らによるフィールド試験の様子を示している。

5.2 蛍光ガラスビーズ及びシートの製作

5.2.1 製作方法の概要

蛍光ガラスビーズの製作にあたっては，先ず，4.2 節に示した手順によって円筒形

状の蛍光ガラス母材を製作した。さらに，製作した蛍光ガラス母材を粉砕し，得られた蛍光ガラス粉末の内，粒径が 125 μm から 250 μm のものを篩い分けて回収した。この蛍光ガラス粉末をもとに，蛍光ガラスビーズの製作を行った。

図 5.3 に蛍光ガラスビーズの製作過程の概要を示す。主な基本過程の手順は，

(1) 蛍光ガラス粉末と黒鉛粉末との混合
(2) 混合粉末の加熱処理（蛍光ガラス粉末の球状成形）
(3) 球形蛍光ガラスの篩い分け（適正形状の蛍光ガラスビーズの選別）
(4) 洗浄（表面付着黒鉛粉末の除去）

に分かれるが，透明度の高い球状の蛍光ガラスビーズに成形するためにはさらに複雑な工程を経る必要がある。以下にその工程の詳細と関連の技術について説明する。

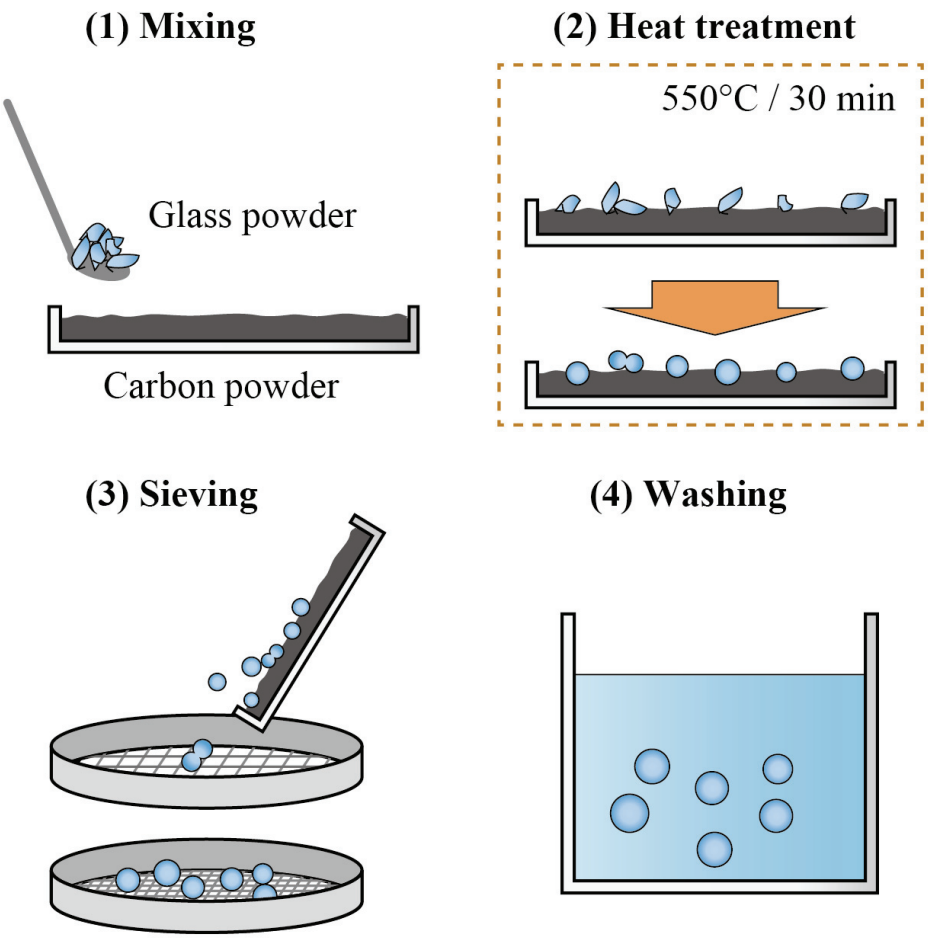

図 5.3 蛍光ガラス粉末のビーズ化手順の概要

5.2.2 蛍光ガラスのビーズ化過程とその観察

図 5.3 に示した手順の中で最も重要な過程は加熱処理過程である。蛍光ガラスの粉末がビーズ化（球状化）するには，蛍光ガラス粉末をその融点よりわずかに高い温度に加熱することが必要である。蛍光ガラス粉末は適切な温度に保持されれば次第に軟化し，自らの表面張力によって球状に変化（成形）する。蛍光ガラス粉末の最適なビーズ化条件について調べるために，蛍光ガラス粉末試料 1 個を加熱しながらその状態変化を観測できるシステムを製作した。そして，蛍光ガラス粉末試料や加熱の条件を変えながら蛍光ガラスビーズの成形の様子を観測した。なお，実験室では蛍光ガラスビーズを大量に製作することが難しいので詳しく述べないが，本項で述べる方法以外に，燃焼ガスジェットを用いて蛍光ガラス粉末を瞬間的に加熱して溶融成形する方法[5]についても研究し，十分可能であることを確認している。

図 5.4 に製作した蛍光ガラスビーズ成形観測システムの概略図を示す。蛍光ガラス粉末の加熱炉は，小型のアルミナ製るつぼ（C-1，ニラコ）にニクロム線を巻きつけた構造で，ニクロム線の電流を変化させることでるつぼ内の温度を制御することができる。アルミナ製るつぼ内には炭素粉末（CCE07PB，高純度化学研究所）を敷き詰めた。

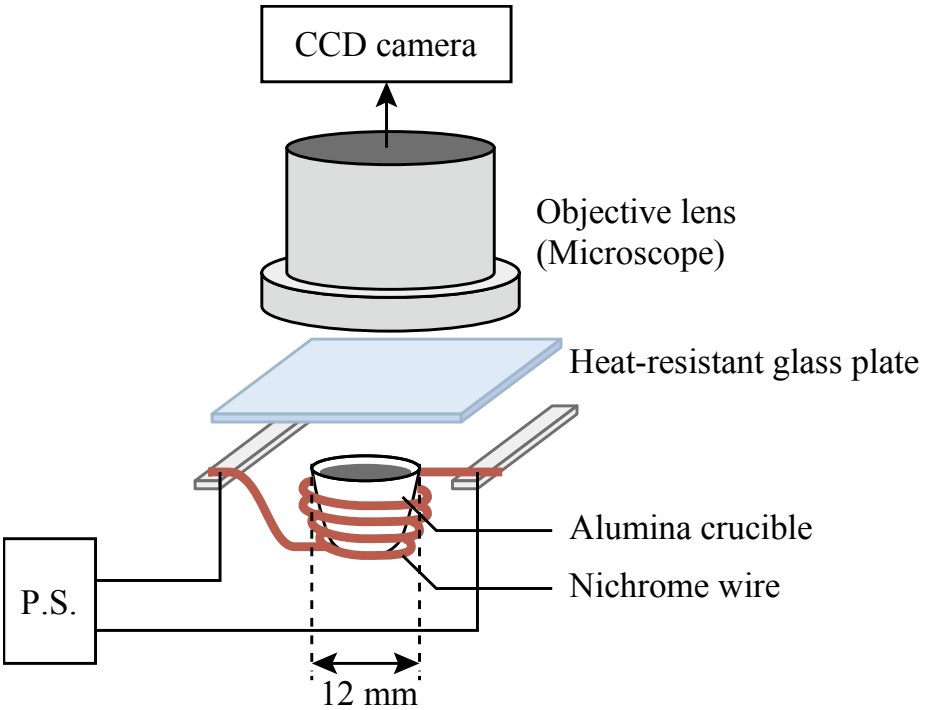

図 5.4 単一粉末の加熱過程観察のための顕微鏡システム

炭素粉末を敷き詰めることで，蛍光ガラス粉末を溶融させた際にるつぼと付着するのを防ぐことができる。蛍光ガラス粉末のビーズ化の様子を観察しやすいように，敷き詰めた炭素粉末上には蛍光ガラス粉末試料 1 個だけを配置した。るつぼ内の様子は，実体顕微鏡（SZX10，オリンパス）を通して観察することができる。るつぼを加熱する際の熱が直接顕微鏡の対物レンズに伝わることを抑えるために，るつぼと実体顕微鏡の対物レンズ部の間に耐熱ガラスを挿入した。この処置によって，蛍光ガラス粉末の加熱過程の状態を，顕微鏡を通してリアルタイムで観察することができた。本実験では，実体顕微鏡により得られる画像データを取得するためにさらに CCD カメラに接続し，インターバル撮影を行うことで加熱過程における状態変化を画像として捉えることができた。るつぼ内の温度は，直流安定化電源（PS10-40A，TEXIO）の電圧及び電流によって調整・制御した。

加熱による蛍光ガラス粉末の形状変化の様子の画像を図 5.5 に示す。図中の画像は，蛍光ガラス粉末試料の径の大きさが約 1 mm の例である。ニクロム線に印加した電圧及び電流の平均値はそれぞれ 5.0 V，13.3 A であり，るつぼ加熱時の消費電力は約 66 W であった。K 熱電対を使用して当該条件でのるつぼ内温度を測定した結果，約 2 分で 620°C に達して安定したことから，蛍光ガラスの温度も 620°C 程度であったと考えられる。約 6 分の加熱で粉末が球状に変形していく様子を観察することができた。図 5.5 の画像では球状となった蛍光ガラスビーズ表面に炭素粉末が多く付着している様子が示されているが，蛍光ガラスビーズを取り出して洗浄することで炭素粉末を除去することができた。

本実験により，蛍光ガラス粉末が炭素粉末上で上手くビーズ化することを確認することができた。蛍光ガラスビーズの形成に適当な温度条件等も実験的に求めることができた。次項では蛍光ガラスビーズを実験室レベルで量産（1 回あたり数グラム程度）しているが，大型のるつぼを使用する場合には熱伝達の条件が異なる。特に大型のるつぼを使用する場合は，中心部と端部の温度差によりビーズ化する領域としない領域に分かれる可能性があるため，本実験の場合より少し低い温度で長時間の加熱処理が良いと思われる。本実験による最適な条件の結果をそのまま量産時の最適な加熱条件とすることはできないが，後の実験の基礎的データとして使用した。

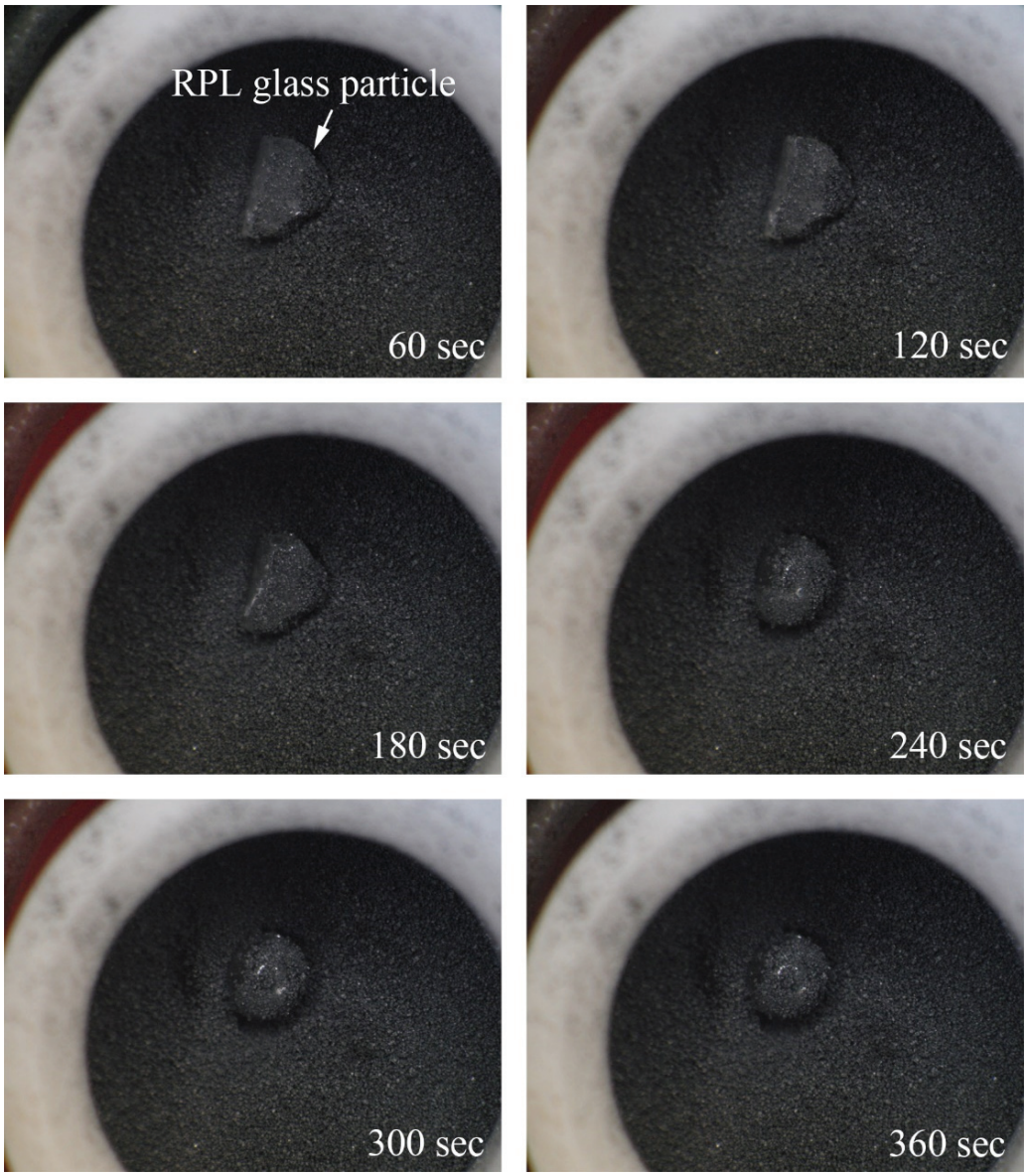

図 5.5 蛍光ガラス粉末のビーズ化過程の例

5.2.3 蛍光ガラスビーズの製作

前項では，蛍光ガラス粉末を加熱処理によって蛍光ガラスビーズを製作する最適な条件を求めたが，この項ではそれらの結果をもとに，数グラム程度の蛍光ガラスビーズを量産するシステムとその手順について述べる。

先ず，篩い分けにより選別した蛍光ガラス粉末を精製水中で超音波洗浄した後，十分に乾燥させた。また，蛍光ガラス粉末に混合させる炭素粉末は，蛍光ガラス粉末選別用の篩より目の細かい篩径 75 μm の篩を使用して選別した。選別した炭素粉末も，

電気炉を用いて同様に十分に乾燥させた。

次に，蛍光ガラス粉末と炭素粉末を，重量比 3:10 で混合した。炭素粉末を混合する理由は，蛍光ガラス粉末がるつぼに付着するのを防ぐことと，蛍光ガラス粉末同士が付着するのを防ぐためである。炭素粉末は，蛍光ガラス粉末に比べて十分小さい粒径のものを使用することで離型剤のような役割を果たす。混合した粉末をアルミナ製の角型るつぼ（SQU-10025，アズワン）に入れ，同じるつぼで蓋をする方法で 2 段重ねとして電気炉に入れた。電気炉は 550°C に予熱しておき，るつぼを入れて 550°C で約 30 分間保持した。るつぼを取り出し，自然冷却させた。これらの粉末混合比や加熱温度や保持時間等は，前項で述べた蛍光ガラスビーズの生成基礎実験で得られた結果をもとにしている。

混合粉末の加熱処理後の生成蛍光ガラスビーズと炭素粉末の選別には，篩径 250 μm と 75 μm の 2 種類の篩を使用した。加熱処理前の蛍光ガラス粉末の粒径が 125-250 μm，炭素粉末の粒径が 75 μm 以下であるため，篩径 250 μm の篩上に残るガラス塊は，蛍光ガラス粉末同士が加熱により付着した状態の塊で，篩径 75 μm の篩を通過するものは炭素粉末である。炭素粉末は再利用が可能である。篩径 250 μm の篩を通過し，篩径 75 μm の篩上に残るガラス塊が目的の蛍光ガラスビーズとなる。この分離選別された蛍光ガラスビーズ成分を回収した。

分離選別された直後の蛍光ガラスビーズは，図 5.6 (a)に示すように表面に炭素粉末が付着した状態である。表面に付着している炭素粉末を除去するために，先ず流水で洗浄し，さらに精製水中で超音波洗浄を行った。その後，十分に乾燥させた。図 5.6 (b)の写真は，洗浄乾燥後の蛍光ガラスビーズであり，付着していた炭素粉末が十分に除去できていることが確認できた。

図 5.7 に示した写真は，このようにして量産した蛍光ガラスビーズの表面を走査型電子顕微鏡で観察した画像である。蛍光ガラスビーズの表面にはいくつかの陥没したような跡が見られるが，これらは蛍光ガラスビーズの付着を防ぐために混合した炭素粉末の影響であると考えられる。蛍光ガラスの RPL 光測定の観点からは，励起光や蛍光（RPL 光）の散乱を防ぐために蛍光ガラスビーズの表面状態は傷のない完全な球面が望ましいが，そのような蛍光ガラスビーズを量産することは非常に難しい。本研究

では，蛍光ガラスビーズの量産のためにいろいろな離型剤について試験を行った結果，炭素粉末が得られる蛍光ガラスビーズの表面状態が最も良好で，取り扱い易さの点でも優れていることを確認した。

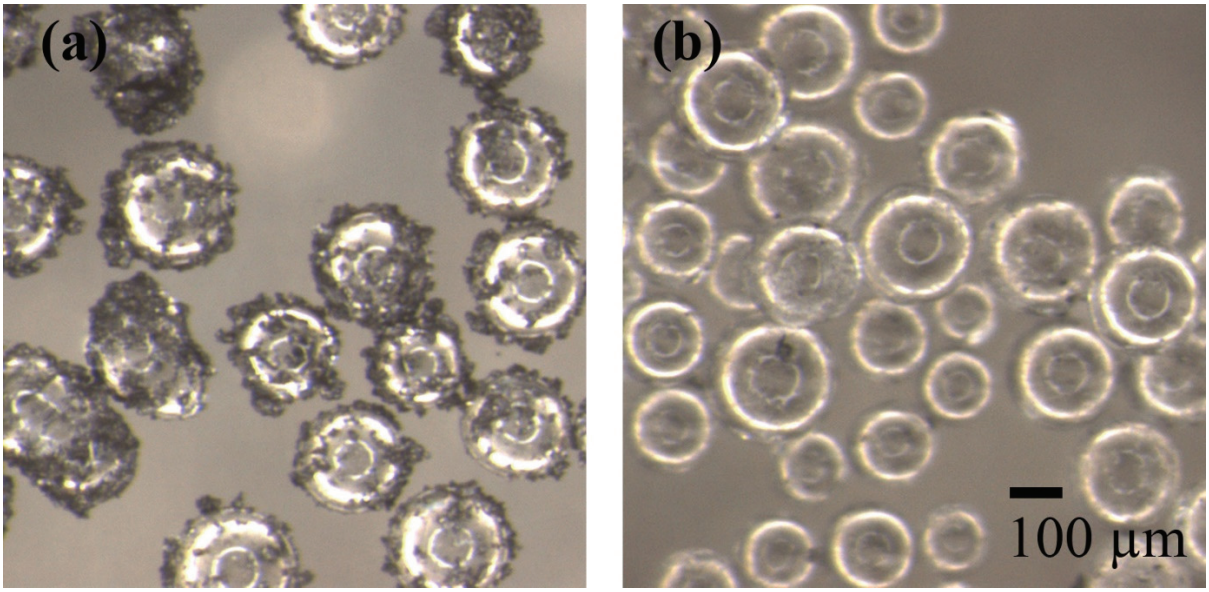

図 5.6 ガラスビーズの洗浄効果　(a) 洗浄前　(b) 洗浄後

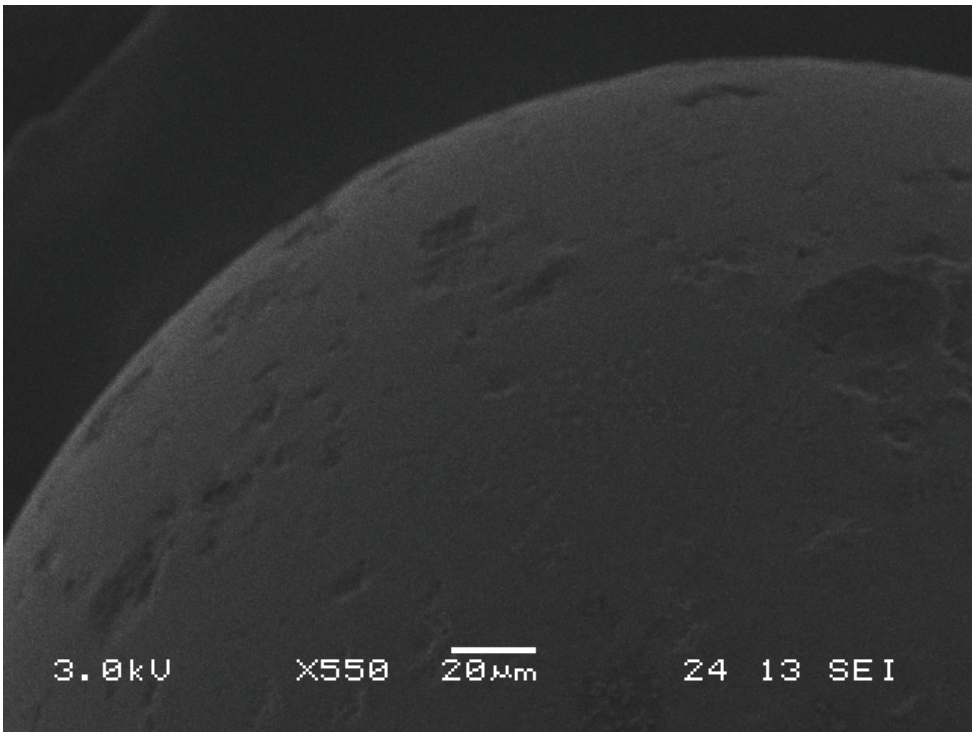

図 5.7 単一蛍光ガラスビーズ表面の電子顕微鏡写真

5.2.4 蛍光ガラスビーズシートの製作

前項で製作した蛍光ガラスビーズは，5.1 節で述べたように放射能汚染地域で散布あるいは塗布することで，放射能汚染モニタリングに利用できると考えられる。さらに，蛍光ガラスビーズを柔軟な透明シートに付着させれば，そのシートを張り付けることで対象物の放射能汚染度をより効果的にモニタリングすることができると考えられる。蛍光ガラスビーズを集合させた蛍光ガラスビーズシートは，蛍光ガラスビーズそのままよりも対象をより厳密に限定でき，正確で効率の高い放射能汚染モニタリンリングを可能にすると考えられる。この項では，蛍光ガラスビーズを用いて蛍光ガラスビーズシートを製作する方法について述べている。

図 5.8 に，製作した蛍光ガラスビーズシートの写真を示している。板状の蛍光ガラスとは異なるフレキシブルな形状となっていることがわかる。図 5.9 に，写真の蛍光

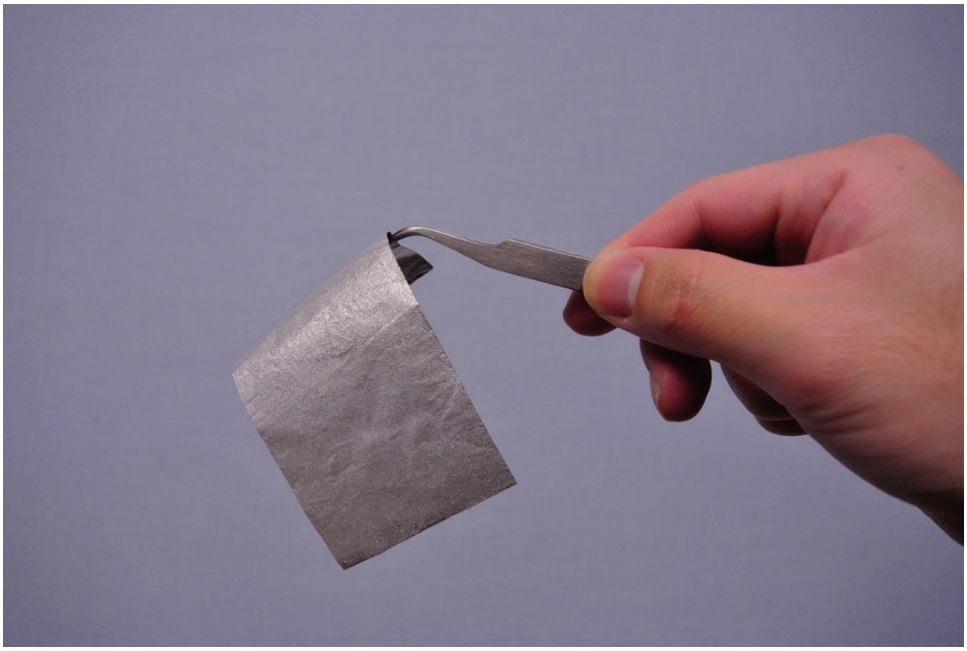

図 5.8 蛍光ガラスビーズシートの写真

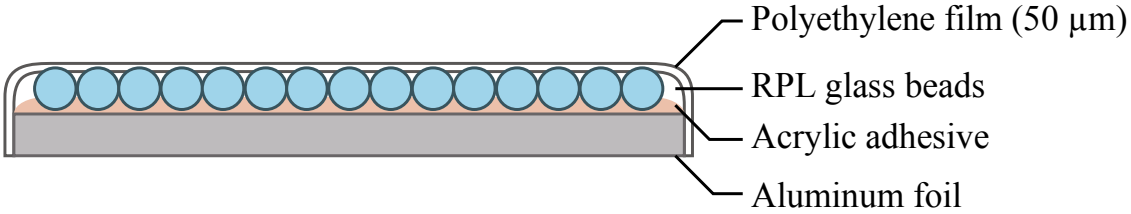

図 5.9 蛍光ガラスビーズシートの構造の断面模式図

ガラスビーズシートの断面の構造模式図を示している。ベースとなる部分にはアルミニウム箔を利用した。前項の方法で製作した蛍光ガラスビーズをアクリル系接着剤でアルミニウム箔に接着した。さらに，蛍光ガラスビーズの表面をポリエチレンフィルムで被覆した。アルミニウム箔は安価で環境に対する耐久性もあり，また，蛍光ガラスビーズからアルミニウム箔の方向に放出された RPL 光を前面に反射させる役割も果たしている。アルミニウム箔は保持材としてだけでなく，RPL 光の検出効率を向上させる役割を担っている。また，アルミニウム箔の厚さは十分に薄く，放射性セシウムのベータ線は箔の裏面から透過し，蛍光ガラスビーズにエネルギーを付与することが可能である。そのため，本シートのアルミニウム箔面を放射能汚染物質の表面に貼り付ければ，励起光源を用意すればそのまま状態で放射能汚染度のモニタリングを行うことができる。勿論，貼りつけた蛍光ビーズシートを回収して，適当な RPL 光測定装置を用いてより詳細に放射能汚染分布の分析を行うことも可能である。

図 5.10 に，製作した蛍光ガラスビーズシートの光学顕微鏡写真の例を示している。蛍光ガラスビーズの径は 75 μm-250 μm である。一部に楕円形のビーズも見られるが，概ね球形のビーズを充填できていることがわかる。

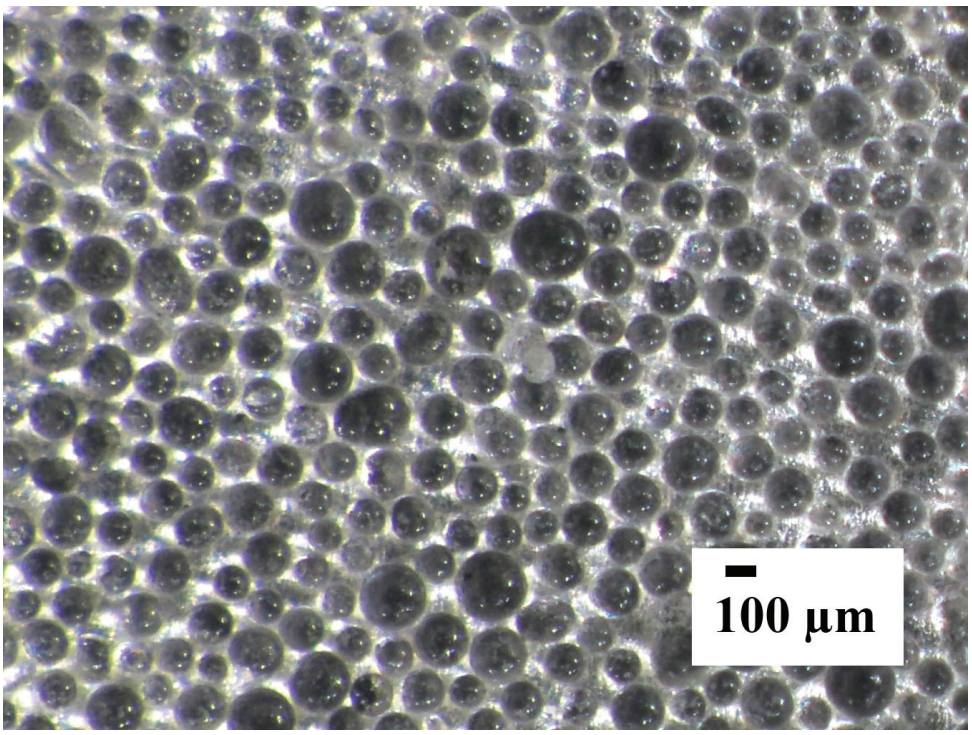

図 5.10 製作した蛍光ガラスビーズシート表面の光学顕微鏡写真

製作した蛍光ガラスビーズシートについて，蛍光ガラスビーズ成分（表面層）の平均面密度は約 0.02 g/cm^2 であった。厚さ 200 μm の薄い蛍光ガラス板を完全充填状態（100%）とすると，製作した蛍光ガラスビーズシートのビーズ充填率は約 40%であった。

5.3 蛍光ガラスビーズシートの RPL 観測

5.3.1 RPL 観測システムの概要

本章では，福島復興のために先ず必要である放射能汚染モニタリングの方法について検討を行っている。そして，第 2 章，第 3 章で述べたように，厚さの薄い蛍光ガラス線量計を上手く利用することによって，特に，放射性セシウムの放射能表面汚染を簡便にモニターすることができる。つまり，薄い蛍光ガラス線量計の RPL 強度（線量）からベータ放射能強度を推測することができる。

3.2 節，4.4 節で述べたように，蛍光ガラス線量計の RPL 強度の測定（放射線量の読み取り）には，蛍光ガラスを励起する紫外光源と線量に比例した RPL 光を検出する蛍光測定器が最小限必要である。個人被ばく線量モニタリング用の RPL 強度（線量）の読み取り装置では，蛍光ガラスの励起光源には紫外レーザー，蛍光検出器には光電子増倍管が用いられ，紫外励起光をパルス化して光電子増倍管による RPL 光検出を同期させ，測定感度の向上を図っている。簡便な測定の例では，球状の蛍光ガラスを水銀―キセノンランプで励起して RPL 光を CCD カメラで測定した報告がある[6]。

本研究では，福島復興に向けての放射能汚染モニタリング利用が目的であり，モニタリング装置を屋外で簡便に用いる場合も建屋内で詳細な分析に利用する場合もあると考えられる。そこで，このような様々な利用ケースを想定して，本章で取り上げている蛍光ガラスビーズシートの RPL 観測装置のシステム構成は，測定対象や周囲の状況に応じて適切に変更・選択できるようにした。

図 5.11 に，放射能汚染モニタリング用蛍光ガラスビーズシートの RPL 光観測システムの概要図を示した。蛍光ガラスビーズシートの励起光源には，屋外での簡便なモニタリングのケースを想定して，紫外レーザーに加えて紫外 LED アッセンブリ（多数の LED によって広い範囲を照射する）を選択できるようにした。蛍光検出器とし

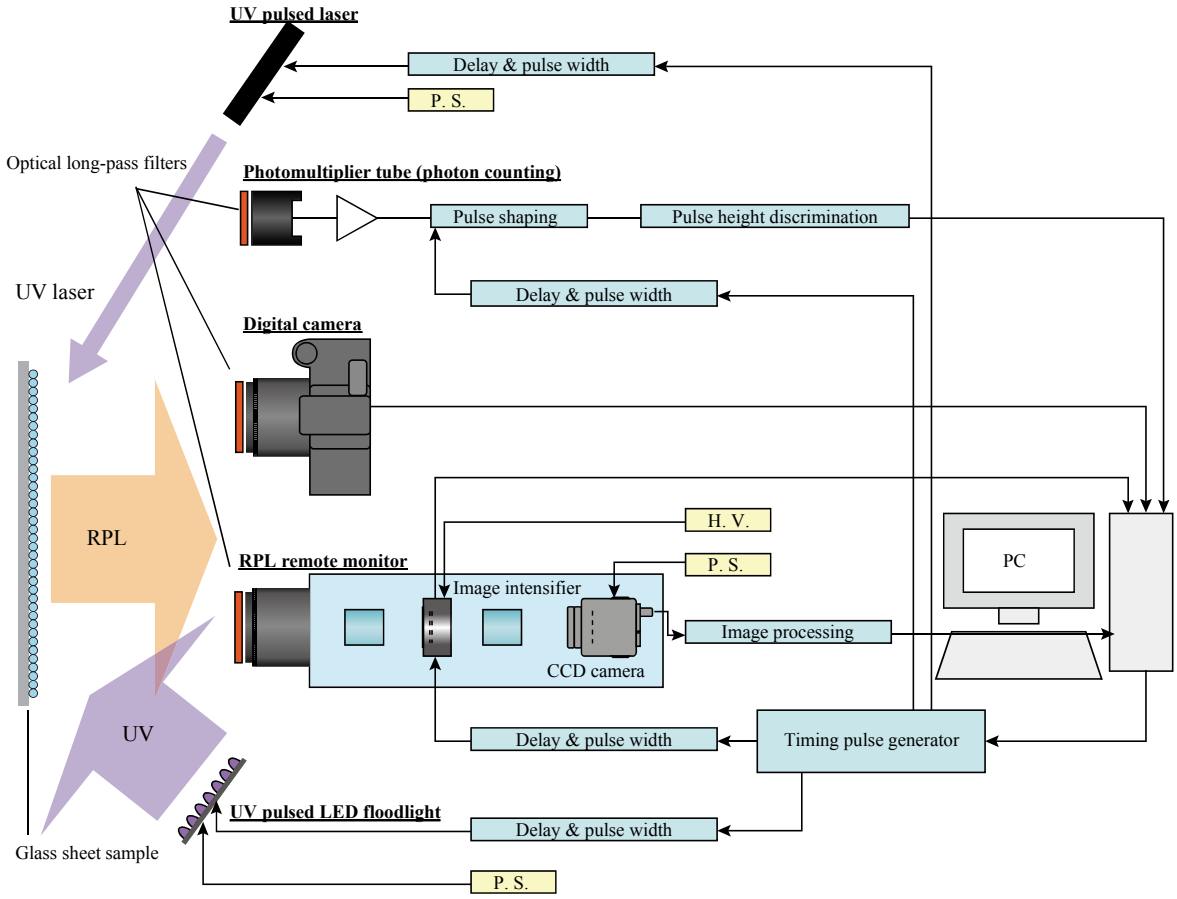

図 5.11 表面汚染用 RPL モニタリングシステムの全体図

ては，光電子増倍管以外にデジタルカメラや遠隔測定用にイメージインテンシファイアを追加して構築した RPL リモートモニターが選択可能である。それぞれのシステムの基本コンポーネントの特徴について，また特に，屋外での多地点の定点モニタリングを想定した場合の利点や欠点を含めて以下で述べる。

パルス紫外レーザー

蛍光ガラスの励起方法として一般的に利用されている。出力のパルス紫外光は強度が高く，指向性が高いために蛍光ガラスビーズシートまでの距離が遠くても十分に利用可能である。そして，レーザーの種類により出力エネルギーが異なり，パルス当たりのエネルギーは 10^{-10} - 10^{-6} J/pulse 程度のものが利用される。制御法に関しては，TTL 論理信号でパルス駆動できるものがほとんどで，他の関連装置をパルスレーザーに同期させるのは比較的容易である。高強度かつ高繰り返しの励起照射では，蛍光ガラスビーズのアニーリングに留意する必要がある。一方，強い指向性のために蛍光ガラス

ビーズシートの広範囲の励起照射は難しく，レーザーの光路を走査する別のコンポーネント（例えばガルバノスキャナー）が必要となる。屋外での利用（励起照射）においては，不可視光線であるため人には認識され難く，当事者以外の人を含めて不慮の反射等の事故の危険があり，照準について十分な危険防止対策が求められる。高価であり，多数が必要であるシステムには不向きである。

紫外 LED アッセンブリ

紫外レーザーと比較して非常に安価である。また，蛍光ガラスビーズシートの広範囲の励起照射についても容易に行うことができる。単一の紫外 LED では放射角度依存性が大きいため，放射角の広いものを多数並べて用いることで，広い範囲で均一の励起照射を行うことができる。また，紫外線励起照射の輝度の増加が可能である。紫外 LED の点灯は電源と電流制限抵抗のみで実現でき，必要電子回路は非常に単純である。1 素子当たりの紫外線出力は紫外レーザーより大幅に小さいが，屋外での使用に関しては安全面からの特別な制限がないため利用し易い。また，紫外 LED へ印加する電圧をパルス状にすることでパルス紫外光源として利用できるため，紫外レーザー使用の場合と同様に，PL 光（バックグラウンド光）の成分除去を行った RPL 光観測も可能である。

光電子増倍管

広く用いられる光検出素子（光子－電子変換素子）であり，RPL 光測定にも利用される。高感度であることが最大の特長である。変換電子の増倍率はダイノードへの印加電圧に応じて 10^7 程度まで増大させることができる。また，この電子増倍は非常に高速に行われ，光子 1 個の入射に基づく微弱パルス信号も十分な信号・雑音比で増幅する。つまり，フォトンカウンティング用途にも使用可能である。蛍光ガラスビーズシートの RPL 光の高精度測定に関しては，4.4.3 項で詳しく述べているように，光電子増倍管の出力信号波形から RPL 成分（蛍光ガラスの励起タイミングから 2-8 μs 遅れた成分）を抽出して利用することもできる。あるいは，ダイノードへのパルス電圧印加の時刻の制御によって，同様の高精度の RPL 光測定が可能である。

欠点としては，高電圧の印加が必要であるために比較的大規模な電子回路が必要であることと，専用の緻密な測定電子回路を構築する必要があることである。また，光

電子増倍管は基本的には 1 点（地点）についての光強度測定であり，2 次元的な光強度分布は得られない。高圧回路が組み込まれたものや位置有感型のものも若干存在するが，本研究用には位置分解能も不十分で高価である。

デジタルカメラ

これまでは感度の不足で，蛍光ガラス用の本格的な RPL 光検出器としてはほとんど用いられてこなかったが，紫外励起光源の性能向上の下では，2 次元的な RPL 光分布が得られる有望な画像検出器である。紫外励起光源次第であるが，安価で利用法が簡便なことから，蛍光ガラスビーズシートとの組み合わせ（マッチング）が非常に良いと考えられる。適当なレンズに最適な光学フィルターを取り付けることで，一般的なデジタルカメラを蛍光ガラス研究にも上手く利用することができる[7]。感度や視野角はレンズとデジタルカメラの性能によるところが大きい。

デジタルカメラの通常の使用法では，第 4 章で蛍光ガラスについて述べたような，数マイクロ秒の露光を紫外励起パルスと同期させて行うのは無理である。従って，デジタルカメラシステムでは, 放射能汚染度の高い地域で連続紫外励起光の下で RPL 光（画像）の観測を行うことが考えられる。この場合には，RPL 光に整合したバンドパスフィルタで PL 光成分を除去することになる。デジタルカメラは，また，放射能汚染地域の現場撮影（状況把握のため）に不可欠な機器であることは言うまでもない。

イメージインテンシファイア

蛍光ガラスビーズシートを利用した遠隔放射能汚染モニタリングシステムの構成コンポーネントである。暗視カメラ等にも利用されている素子であり, 微弱光画像（暗い画像）を検出増幅して 2 次元画像（明るい画像）を出力・観測することが可能である。原理は，先ず，入射光子を光電面にて電子に変換し，その電子の位置（光電面での画像）を保存したままマイクロチャネルプレート(MCP)に加速入射させる。そして，MCP 内ではアバランシェ増幅によって大量の電子を発生させる。従って，MCP の出力端での電子の位置（MCP 画像）も光電面での画像と同じである。さらに，増倍させた大量の電子を加速して蛍光面に衝突させ再び光子に変換することで増幅された明るい画像を得ることができる。蛍光面の画像も光電面の画像と同じである。電子の増倍率は MCP の段数に依存し, 1 段では約 10^4, 2 段では 10^7 程度の増倍率が得られる。

また，光電面への印加電圧をパルス動作させることで高速の時間的制御（電子シャッター動作）が可能である。この画像増幅器を利用すれば，屋外で蛍光ガラスビーズシートまでの距離が遠い場合でも高感度の画像観測が行える。非常に高価である。

遠隔の放射能汚染モニタリングでは，測定対象や周囲の状況に合わせて，これらのコンポーネントを適切に組み合わせて蛍光ガラスビーズシート用 RPL 観測システムを構築した。以降ではこれらのコンポーネントを組み合わせて構築した観測システムとその観測結果の例について述べる。

5.3.2 RPL 光イメージング

多地点で放射能汚染に関する定点モニタリングを行うには，その測定・観測方法が簡便であることが非常に重要である。簡便であれば多くの地点で多くの対象について効率よく放射能汚染についての測定・観測を行うことができる。前項では，蛍光ガラスビーズシートの RPL 光を観測するための適切なシステムの構築について述べたが，本項では，それらのシステムによる RPL 画像観測の基本について述べる。蛍光ガラスビーズシートの励起光源には紫外 LED アッセンブリを，RPL 光検出器にはデジタルカメラを選択している。

図 5.12 に，蛍光ガラスビーズシートを対象にした最も基本的な RPL イメージング

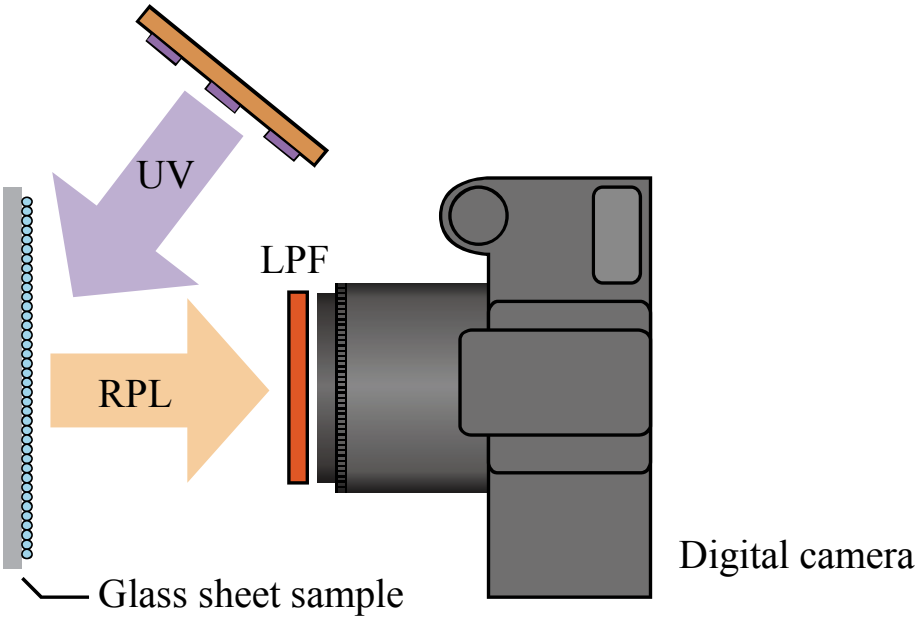

図 5.12 RPL イメージングシステムの概略図

システムの概略図を示す。RPL 光検出器としては，市販のデジタルカメラ（EOS70D, Canon）に光学ロングパスフィルタ（H25A, Hoya）を取り付けたものを使用した。蛍光ガラスビーズシート用の励起光源は, 広放射角のチップ型紫外 LED（NS365L-6SVG, Nitride Semiconductor, λ = 365 nm）9 個を 3 行×3 列に並べて製作した。直流駆動の紫外励起 LED 光源の全体回路図を図 5.13 に示している。非常に簡単な構成で, 紫外 LED 9 個の明滅は懐中電灯のようにボタンスイッチで行う。紫外 LED の純電圧降下は約 4.0 V であるので，各 LED に流れる電流は約 0.55 A（= (24-4.0×3) / 22 A）である。使用した紫外 LED の順方向電流の最大定格は 700 mA で使用範囲内であるが, かなりの発熱があり LED アッセンブリ全体をファンで冷却している。

デジタルカメラによって得られる画像の明度や質は撮影条件に大きく依存する。例えば，露光時間（シャッタースピード），絞り（F 値），感度（ISO 感度相当値）などにより写真の明度（露出）が決定される。例えば，明度を 2 倍にする場合，露光時間を 2 倍にする，F 値を$1/\sqrt{2}$倍する，ISO 感度相当値を 2 倍する，の 3 つの方法が考えられるが, 本章の実験では比較を明快にするため, F 値及び ISO 感度は常に固定とし，露光時間のみで明度の調整を行った。そして，F 値は，被写界深度を深くし，より広い範囲で焦点が合うようにできるだけ大きい値とした。また，本章の実験では性能や特性の比較をわかり易くするために, 蛍光ガラスビーズシートとデジタルカメラ及び紫外励起 LED 光源までの距離を常に一定としていた。

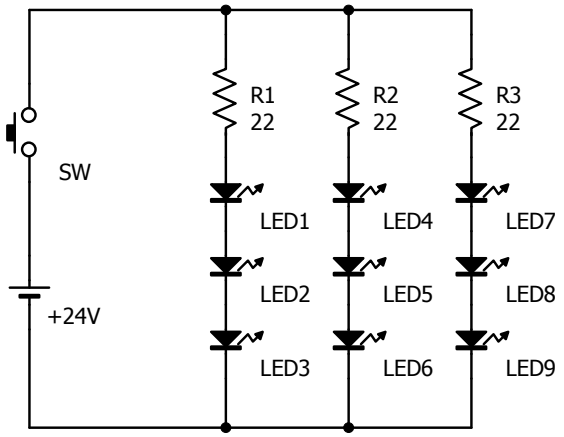

図 5.13 RPL イメージングシステムの励起光源回路

5.4 蛍光ガラスビーズシートの RPL 観測実験

5.4.1 X 線照射及び RPL イメージ観測

5.2 節で述べた方法で製作した蛍光ガラスビーズシートを X 線で照射し，前節で述べたデジタルカメラを用いた RPL 観測システムで X 線ビームの RPL イメージング観測を行った。

蛍光ガラスビーズシートの X 線照射にはタングステンターゲットの X 線管を使用した。X 線管の管電圧は 25 kV，管電流は 125 μA で 10 分間照射した。X 線照射の際に，蛍光ガラスビーズシート上に直径 9 mm の穴を開けた厚さ 5 mm のアルミニウム板を配置し，X 線ビーム生成用のコリメータとした。X 線照射された蛍光ガラスビーズの吸収線量は約 5 Gy であった。X 線照射後，蛍光ガラスビーズシートを表 5.1 に示した撮影条件の下で X 線ビームの RPL 画像の観測実験を行った。観測実験は暗室で行った。照度計の計測により，励起光照射時の暗室の照度は 0.1 lx 未満であった。

蛍光ガラスビーズシートによる X 線ビームの RPL 画像の観測結果を図 5.14 に示している。白色光下の，つまり紫外励起照射を行わない場合の画像を(a)に示しているが，蛍光ガラスビーズシートの表面の状態が観測されているものの RPL 特有のオレンジ色の蛍光が全く見られない。これに対して，画像(b)の紫外励起光下での撮影では，蛍光ガラスシートの中央部に X 線ビームスポットに対応するオレンジ色の RPL 画像を確認することができる。つまり，蛍光ガラスビーズシートに紫外線を当てれば，シートのどの場所に放射線が当たっていたかがわかるということである。蛍光ガラスビーズシートを放射能汚染モニタリングに利用している場合では，紫外線を照射することで放射能汚染分布を蛍光ガラスビーズシート上に映すことができるということであ

表 5.1 RPL イメージ像観測実験の体系及びデジタルカメラの撮影条件

条件	値
蛍光ガラスシートとカメラ間の距離	20 cm
蛍光ガラスシートと励起光源間の距離	20 cm
カメラ F 値	F14
カメラ ISO 感度相当値	ISO 200

る。(b)の画像の X 線ビームスポット周囲の青色がかった部分は，X 線で照射されていない部分の紫外励起発光である。(c)の画像は，(b)の画像の RGB 成分のうち R 成分のみを抽出した画像であり，青色の成分を除去したため，より明瞭に RPL 画像が確認できる。X 線ビームで照射された部分がより明瞭に観測されている。(d)の画像は，カメラレンズに光学ロングパスフィルタを取り付けて撮影した結果で，(c)の画像と同様に明瞭な X 線ビームスポット像が写っているのがわかる。

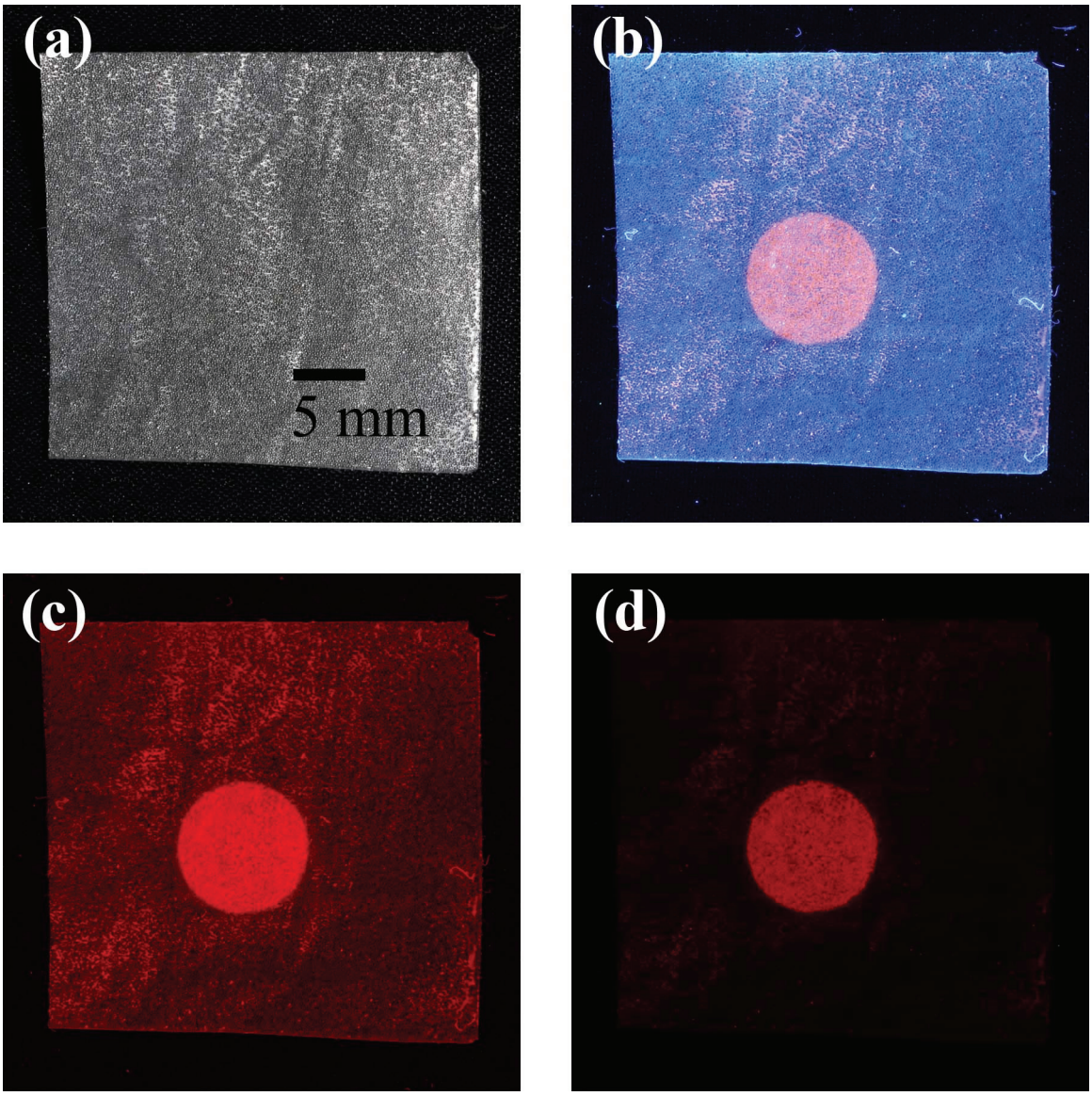

図 5.14 蛍光ガラスビーズシートによる X 線ビームスポットの RPL イメージ

(a): 白色光下で撮影　(b): 紫外励起光下で撮影（光学フィルター無し）

(c): (b)の画像の R 成分のみを抽出　(d): 紫外励起光下で撮影（光学フィルター有り）

図 5.14 の X 線ビームスポット画像(b)，(c)，(d)に関して，直径方向の輝度プロファイルの比較を図 5.15 に示す。(b)の画像では RPL 光以外の光成分が多く含まれているため，X 線ビームスポット周囲の輝度が画像(c)，(d)のスポット部の輝度より高くなっている。(d)の画像では(c)の画像と比較して，X 線ビームスポット部の輝度が低くなっているが，ビームスポット周囲の輝度がさらに低いことから X 線照射部と非照射部の輝度比が高く，信号対雑音比の良い測定になっていることがわかる。

輝度値の算出においては，デジタルカメラの観測画像データが入力光強度に非線形の応答になっていることに注意が必要である。本研究では一般的なデジタルカメラを使用しているため，目視した際に自然な階調に見えるようにガンマ補正と呼ばれる非線形の応答を示すようになっている。入出力の関係を線形応答にする機能がカメラ本体や付属ソフトウェアにない場合は，輝度が線形に変化する光源を使用して補正曲線を実験的に求める必要がある。本実験では，赤色 LED の明るさを段階的に変化させ，照度計の数値と得られる画像データの数値の関係を確認したうえで輝度（RPL 強度）の定量評価を行っている。

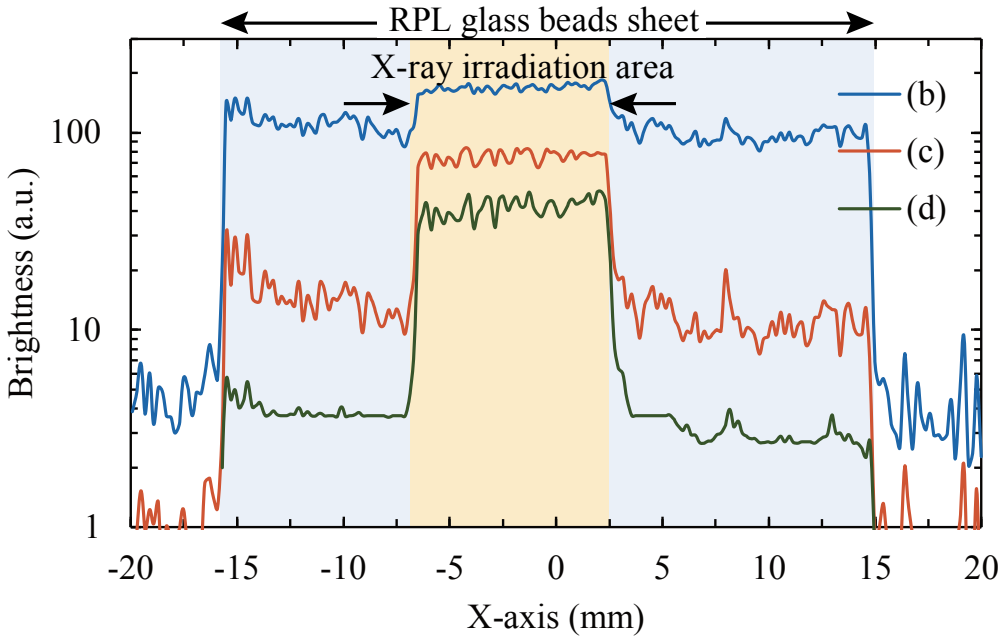

図 5.15 図 5.14 の X 線ビームスポット画像(b)(c)(d)の直径方向の輝度プロファイルの比較

5.4.2 線量に対する線形性の評価

蛍光ガラスビーズシートとその RPL 観測システムの線量応答を調べるための実験を行った。前項で述べた同様の RPL 観測実験を，X 線の照射線量を変化させて実施した。異なる線量の X 線を照射した蛍光ガラスビーズシートの輝度を測定した。輝度値を算出する際に，前項で述べた非線形補正を行った場合と行わなかった場合について比較した。

蛍光ガラスビーズの吸収線量と，前項で述べた RPL 光観測システムによる測定輝度値の関係を図 5.16 に示している。図からわかるように，測定輝度値について RPL 光観測システムの非線形性を補正することで，良好な線形性の関係を得ることができる。このことから，RPL 観測システムの測定条件を同一にすれば，簡便で使い易いデジタルカメラで撮影した画像データより定量的な線量測定が可能である。さらに，放射能表面汚染モニタリングに適用すれば，表面汚染度の定量評価ができるということになる。また，図 5.16 の直線関係から，今回製作した蛍光ガラスビーズシートと，最も基本的なデジタルカメラの RPL 観測システムの組み合わせによる線量測定下限値は，約 2.5 Gy であることがわかった。ただし，この線量測定下限値は周囲の背景光，紫外励起光の強度，蛍光ガラスビーズシートと RPL 光観測装置間の距離等に依存し

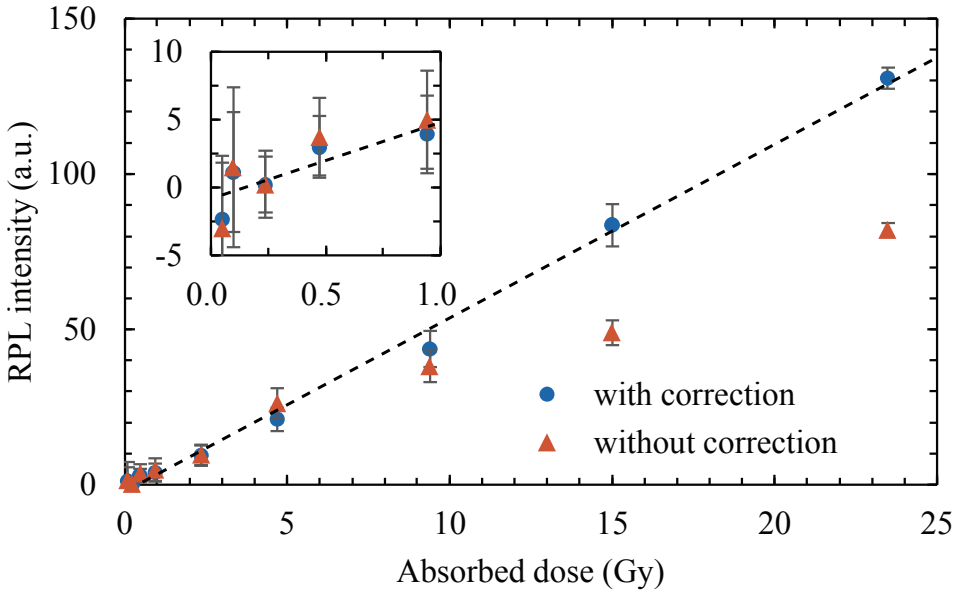

図 5.16 蛍光ガラスビーズの吸収線量と前項で述べた
RPL 光観測システムによる測定輝度値の関係

あくまでも一例である。また，蛍光ガラスビーズシートの改良，例えば，シートを厚くする（蛍光ガラスビーズの粒径を大きく，多層にする），あるいは蛍光ガラスビーズの充填率を高めることによって，システム全体の線量感度を高めることも可能である。

5.4.3 空間分解能の評価

蛍光ガラスビーズシートは，荒っぽく見れば，厚さのばらついている薄い蛍光ガラス板のようであるが，本当にそう考えて良いであろうか？蛍光ガラスビーズシートの光学的な性質を含めた RPL 特性についてより正確に調べるために，目の細かい遮へい網を通した X 線照射実験を行った。X 線照射後の蛍光ガラスビーズシートの RPL 画像を，前項の紫外励起 LED アッセンブリとデジタルカメラによるシステムで観測した。

図 5.17 に，蛍光ガラスビーズシートの X 線照射実験の体系図を示している。X 線ビーム生成用の穴径 9 mm のアルミニウム板コリメータと，蛍光ガラスビーズシートの間に銅メッシュを挿入した。銅メッシュはワイヤー径 0.2 mm，50 メッシュ（線間隔 0.508 mm）のものを使用した。X 線照射は前項の実験と同様，管電圧 25 kV，管電流 125 μA の条件で行った。また，蛍光ガラスビーズシートの RPL 画像の測定も，前

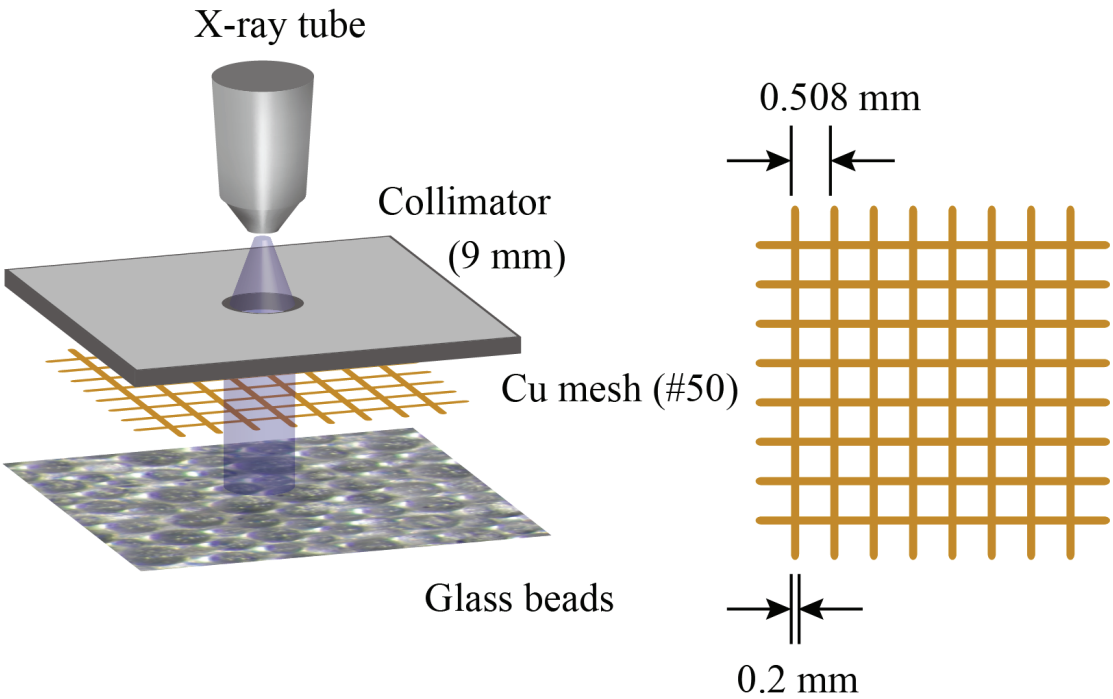

図 5.17 蛍光ガラスビーズシートの空間分解能評価のための X 線照射実験体系図

項と同様のイメージングシステムを用いて同様の条件で行った。

蛍光ガラスビーズシートと上記のシステムで観測された X 線ビームの RPL イメージを図 5.18 に示す。観測画像(a)，(b)は，デジタルカメラについての測定条件がそれぞれ図 5.14 の(b)，(d)の場合に対応している。銅メッシュのワイヤーによって X 線ビームが遮へいされるため，銅ワイヤー直下の蛍光ガラスビーズには X 線照射の寄与（線量）が小さくなると推定されるが，実際に観測された画像においてもコリメータによるビームスポット内に銅メッシュの影がはっきりと確認できる。また，使用している蛍光ガラスビーズの直径がおよそ 0.2 mm であることから，銅メッシュで遮へいされていない X 線照射区画（0.51 mm×0.51 mm）内には，約 4-6 個の蛍光ガラスビーズが入っている計算になる（図 5.20 参照）。

蛍光ガラスビーズシートを用いた RPL イメージングの空間分解能の評価を行うために，図 5.18 の画像 (b)内の直線 a に沿って，前項と同様の方法で RPL 輝度分布について調べた。得られた結果を図 5.19 に示している。X 線が透過しているメッシュ線の間隙は RPL 輝度値が高く，X 線が遮へいされている銅ワイヤー部は RPL 輝度値が低い値となっていることが改めて示され，銅ワイヤーの位置を十分に識別できることが

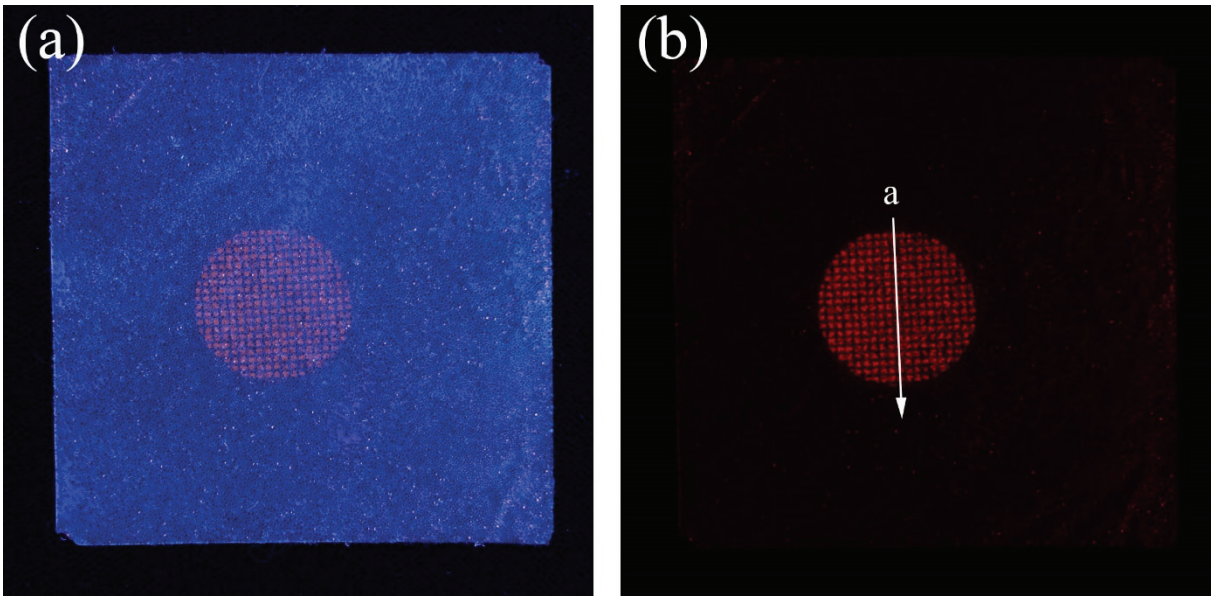

図 5.18 蛍光ガラスビーズシートで観測された銅メッシュ通過 X 線ビームの RPL イメージ

(a): 光学フィルターなしの撮影　(b): 光学フィルター有りの撮影

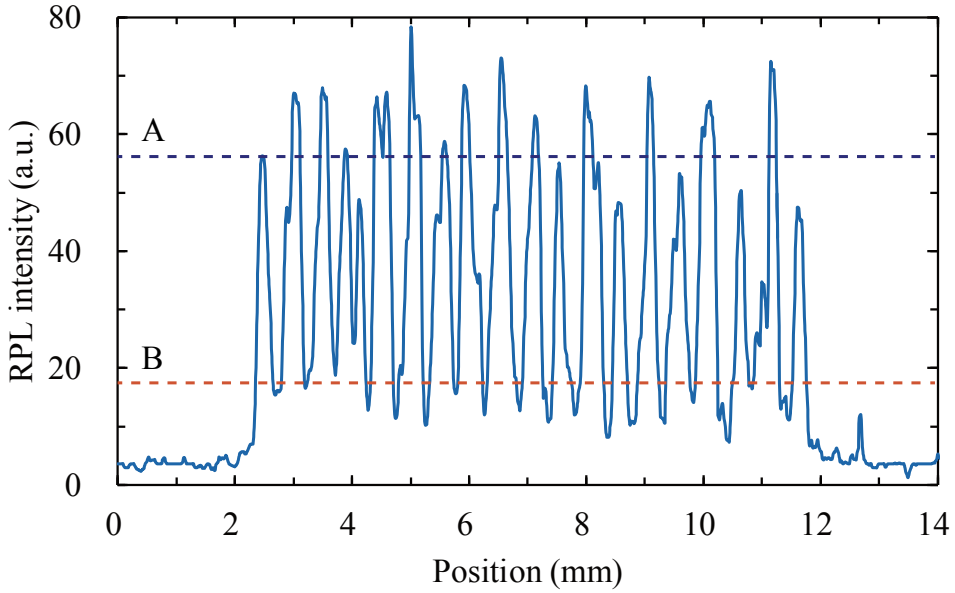

図 5.19 蛍光ガラスビーズシートによる銅メッシュ通過 X 線ビームの
RPL イメージの輝度分布

わかる。また，銅ワイヤーの直径が 0.2 mm 程度なので，蛍光ガラスビーズシートを利用した本 RPL イメージングシステムの空間分解能は 0.2 mm 以下であると考えられる。

図 5.19 中の点線 A, B は，それぞれ，銅メッシュの間隙位置（X 線が照射されている）における RPL 輝度の平均値，及び銅メッシュ位置（X 線が遮へいされている）における RPL 輝度の平均値である。特に，銅メッシュの間隙位置においては，RPL 輝度値の偏差が大きい結果になっている。同様の蛍光ガラスビーズシートを蛍光顕微鏡で撮影した結果の画像を図 5.20 に示している。この画像で示されているように，蛍光ガラスビーズシート内のガラスビーズの位置はランダムであり，間には空隙もある。この蛍光ガラスビーズの位置のばらつきが，測定 RPL 輝度値のばらつきの大きな要因と考えられる。また，より微細に観察すると，単一の蛍光ガラスビーズ内で，X 線が照射された領域と，照射されなかった領域に分かれている事象があることがわかる。そして，このケースについては，X 線で照射されなかった領域の RPL 強度が，周囲の X 線非照射の蛍光ガラスビーズの RPL 強度よりやや高いという結果になっていた。これは，単一の蛍光ガラスビーズを二つの領域に分けて一方にのみ X 線を照射した

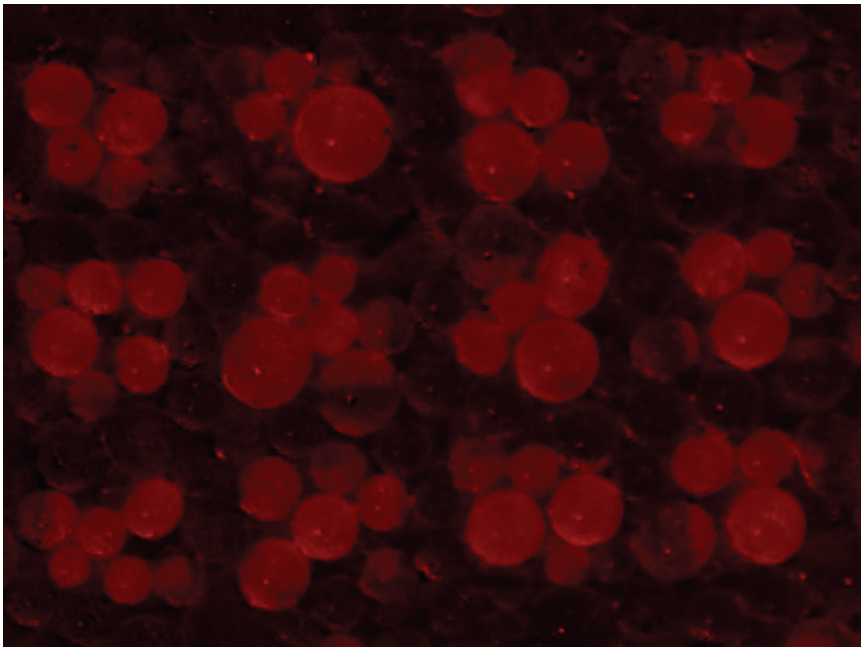

図 5.20 同様の蛍光ガラスビーズシートの蛍光顕微鏡による撮影画像

場合でも，蛍光ガラスビーズ球面で反射や散乱が起きるため，X 線非照射領域からも RPL 光が得られているように見えるためであると推測される。

さらに詳細に調べるために，単一蛍光ガラスビーズの RPL 強度分布を第 4 章で示した RPL 分析装置を用いて測定した。蛍光ガラスビーズの紫外励起源として半導体パルスレーザーを使用した。測定では，励起パルスレーザーの繰り返し周波数を 20 kHz，1 地点当たりの RPL 測定時間を 2 秒とした。測定した RPL 二次元分布の結果を図 5.21 に示す。試料の蛍光ガラスビーズは直径約 100 μm で，管電圧 40 kV の X 線を照射した。図中の光学像は，図 4.6 に示した CCD カメラによって撮影した。RPL 蛍光が認められた領域の大きさはガラスビーズの粒径とよく対応していることと，RPL 光量の分布は一様ではなくビーズの球形に沿った形となっていることがわかった。なお，図 5.21 の RPL 分布図で，RPL 分布が蛍光ガラスビーズの左上方向にやや長く伸びているが，これは紫外レーザーのスポットがやや右下方向に裾を引く分布となっているためと考えられる。

この蛍光ガラスビーズの直径方向の RPL 強度分布を図 5.22 に示した。RPL 光の測定範囲がレーザーの照射軸上に限られることから，励起できる RPL 蛍光中心の量はレーザーの光軸上にある蛍光ガラスの体積，すなわち当該領域のガラスの厚さに比例

すると考えられる。半径 r のガラスビーズについて，中心から距離 l の地点のガラスの厚さ t は次式で表すことができる。

$$t = 2\sqrt{r^2 - l^2} \tag{5-1}$$

図 5.22 の計算として示した曲線は，この式を用いて半径 50 μm の場合を求めたも

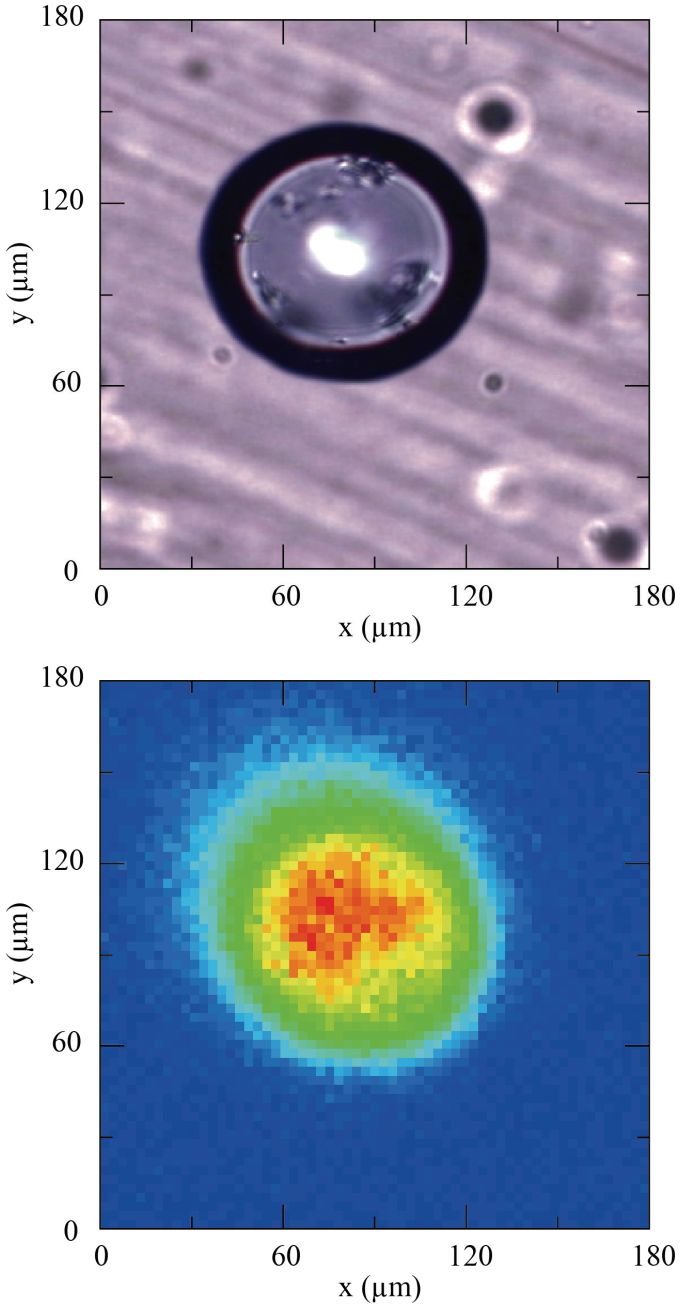

図 5.21 第 4 章で構築した RPL 分析システムによる単一蛍光ガラスビーズの測定結果
（上：CCD カメラ画像，下：RPL 分布画像）

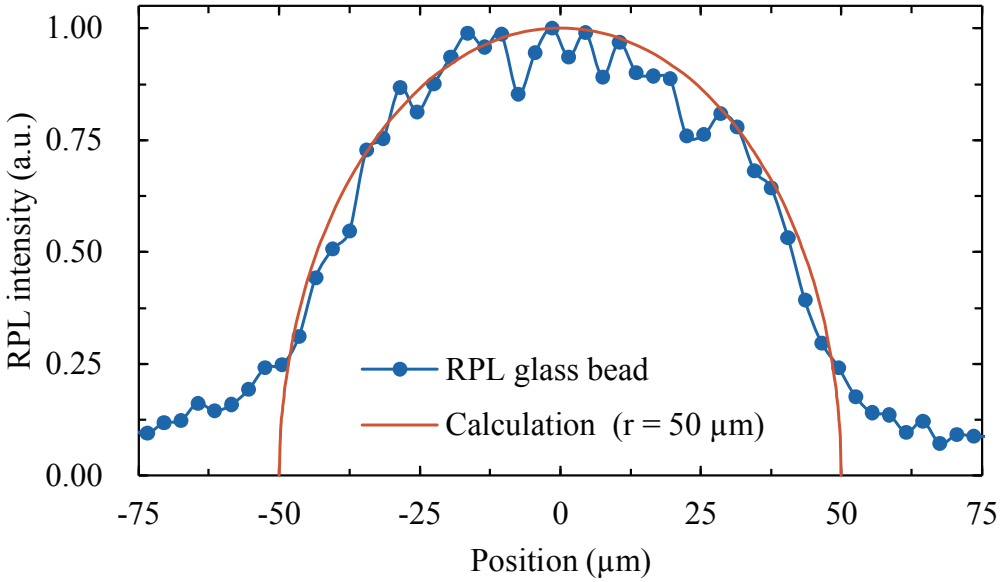

図 5.22 レーザー顕微鏡システムで観測した蛍光ガラスビーズの断面方向の RPL 強度分布

のである。この計算結果と実際の測定結果とは概ね一致しているが，蛍光ガラスビーズの端部から外の領域では，実験値が尾を引いた分布になり計算値よりも大きい値になっている。この原因は，レーザースポットの拡がりに加え，ガラスビーズの表面に対して鋭角に入射することになるレーザーの乱反射や散乱の影響，つまり，照射軸上以外の部分からの RPL 光を読み出しているためと推測される。RPL 強度分布のばらつきは，顕微鏡観測におけるような放出 RPL 光の乱反射や散乱と，本実験による入射励起レーザーの乱反射や散乱の両方の要因が合わさっていると考えられるが，それらには蛍光ガラスビーズの表面状態が大きく影響するため，定量的な評価は困難である。

以上蛍光ガラス線量計の特性についていろいろと比較検討してきたが，本研究で製作した球状の蛍光ガラスビーズは，高精度に研磨された個人被ばく線量測定用の蛍光ガラス板に比べて RPL 蛍光の放出分布の揺らぎが大きく，そのために線量測定の下限値が大きくなっている。しかし，本研究の目的としている放射能汚染モニタリングには，放射線業務従事者の被ばくモニタリングほどの感度や性能（厳密性）が求められないことや適用・応用の融通性や経済性等の別の観点から，蛍光ガラスビーズやシートに十分に優位性があると思われる。本研究の方法で製作する蛍光ガラスビーズシートには研磨工程がなく低コストで特に実用性が高い。そして，ここまでの議論で得

られた線量応答特性や位置分解能などの結果より，蛍光ガラスビーズシートとそれを利用した RPL イメージングシステムは，定点の放射能汚染モニタリングに十分有効に利用できると考えられる。

5.5 RPL 遠隔モニタリングシステムの構築

5.5.1 システムの概要

前節までに述べてきたデジタルカメラによる RPL イメージングは，蛍光ガラスビーズシートを近接撮影する方法で行う。この方法では作業者が放射能汚染源に近づくことになり，高レベルの放射能汚染地域では作業者の被ばくが問題になるおそれがある。特に，大きく損壊した福島第一原子力発電所の損傷原子炉近傍や関連施設周辺の高放射能汚染領域では，作業者の放射線被ばく防止に，また，放射能汚染のモニタリングに多大の努力が払われている。そこで，本節では，放射能汚染物あるいは汚染地点から離れて遠隔で汚染の程度をモニタリングする具体的な方法について検討を行った。この方法のわかり易いイメージ図を本章の図 5.1 に示している。

図 5.23 に，蛍光ガラスビーズシートを利用した放射能汚染遠隔モニタリングシステムの概要図を示している。広範囲の照射を考慮して大型化した紫外 LED アッセン

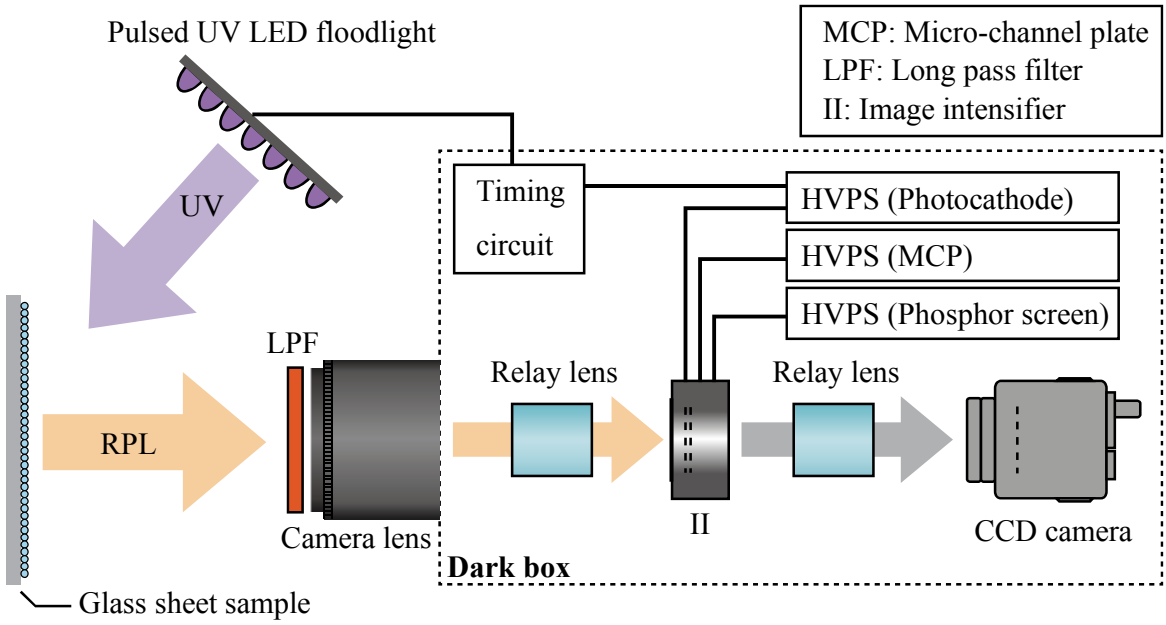

図 5.23 RPL 遠隔モニタリングシステムの概要図

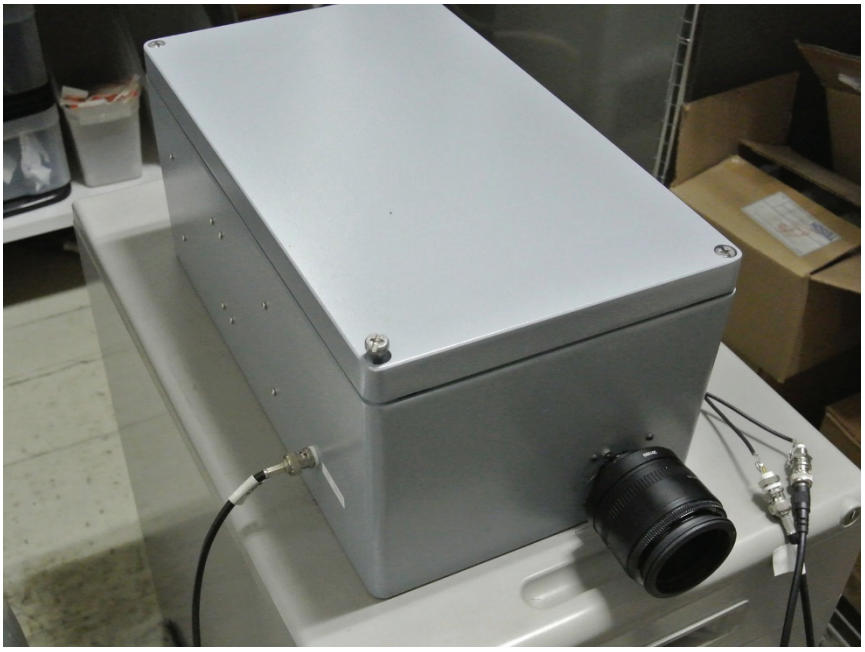

図 5.24 RPL 遠隔モニターの外観

ブリを励起光源として選択した。蛍光ガラスビーズシートの性状形状は，前節までとほぼ同じである。蛍光ガラスビーズシートと RPL 光検出器間の距離が大きくなるため，検出器に届く RPL 光子数が幾何学的効率の低下によって減少する。この光子減少分を補うために，光子増幅機構を持つイメージインテンシファイアを検出器系に組み入れた。図 5.24 の写真は，この RPL 遠隔モニターの外観で，アルミダイキャスト製のボックス（暗箱）にカメラレンズを取り付けた構造となっている。ボックスの反対側の面には操作パネルや信号線用のコネクタが取り付けられている。この RPL 観測装置と紫外励起 LED アッセンブリは，パルス同期動作させることで RPL イメージングの高感度化を図っている。次項では構成コンポーネントの電子回路系について述べる。

5.5.2 遠隔 RPL モニターの電子回路系

遠隔 RPL モニターの電子回路系は，主に駆動タイミングパルス生成回路，イメージインテンシファイア駆動用の電源回路等で構成されている。RPL 遠隔モニターの内部の様子の写真を図 5.25 に示す。写真左下に光学系，上に電源を含む制御電子回路系，右に操作系が配置されている。

RPL 蛍光の増幅のために使用した近接型イメージインテンシファイア（V8070D-74-

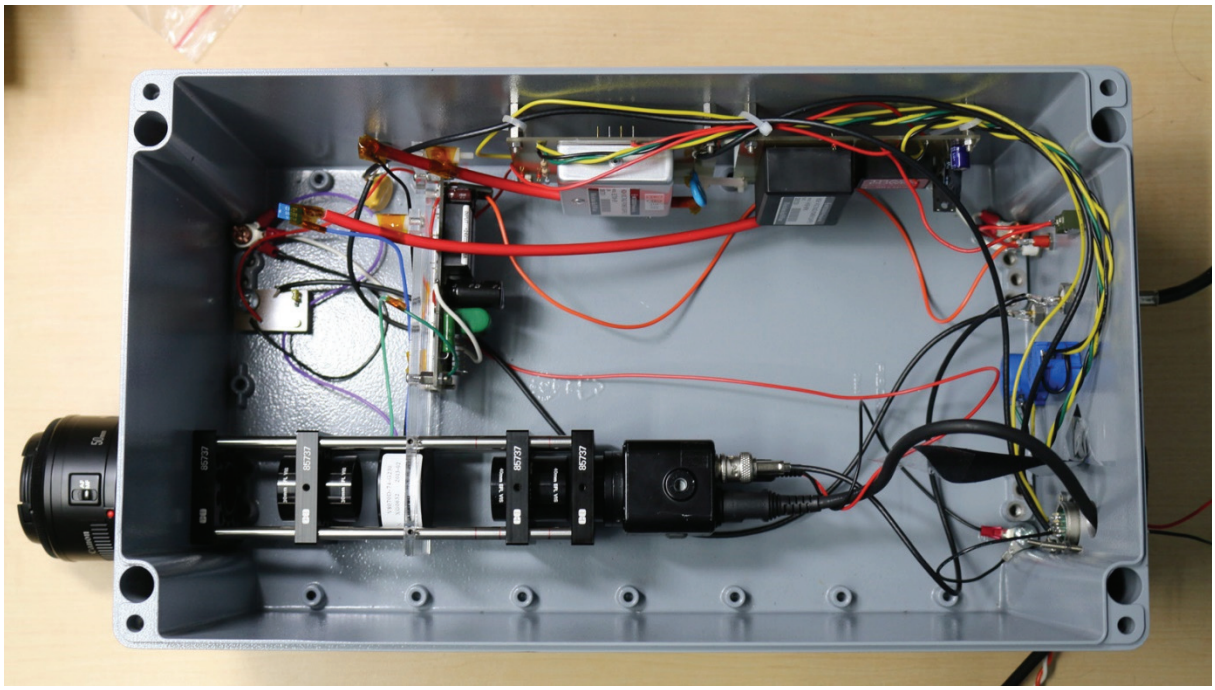

図 5.25 RPL 遠隔モニターの内部構造

G230，浜松ホトニクス）には 3 種類の高電圧を印加する必要がある。それぞれ，入射光子を電子に変換する光電面に印加するカソード電圧，電子数を増倍させるマイクロチャネルプレート(MCP)に印加する MCP 電圧，MCP の出力電子を加速して蛍光面に衝突させるスクリーン電圧の 3 種類である。この内のカソード電圧は，パルス状にすることによりイメージインテンシファイアをパルス動作させることができる。カソード電圧が MCP の入力面より十分に高い正電位であれば光電面で発生した電子は光電面に引き戻され MCP の入力面まで到達できない。カソード電圧を MCP の入力面に対して非動作時は+30 V，動作時は-200 V にすることでイメージインテンシファイアのパルス動作が可能となっている。また，電子数の増倍度は MCP 電圧により調整される。図 5.26 に，本実験で使用したイメージインテンシファイアの印加電圧－ゲイン特性を示している。最大 1.8 kV の印加電圧で 10^6 オーダーの増倍度を得ることができる。

図 5.27 に，タイミングパルスの生成及びイメージインテンシファイアのパルス駆動のための電子回路図を示している。電子回路図中央のマイクロコントローラ(PIC16F84A, Microchip)で，蛍光ガラスのための紫外励起光の生成及びそれに伴う RPL 光の測定の基準（時刻）となるパルス信号を発生させている。この基準パルスによっ

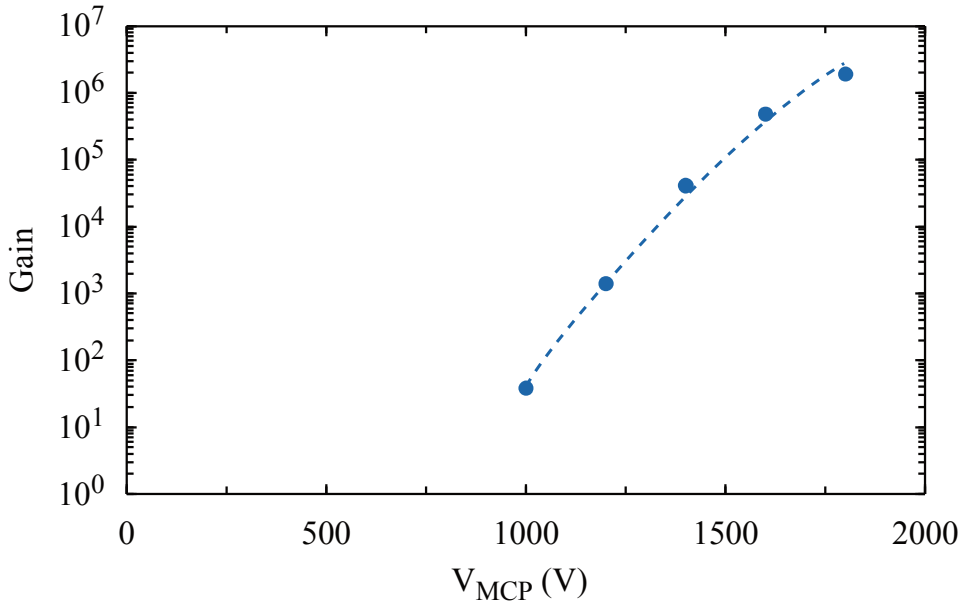

図 5.26 イメージインテンシファイアの電圧ゲイン特性

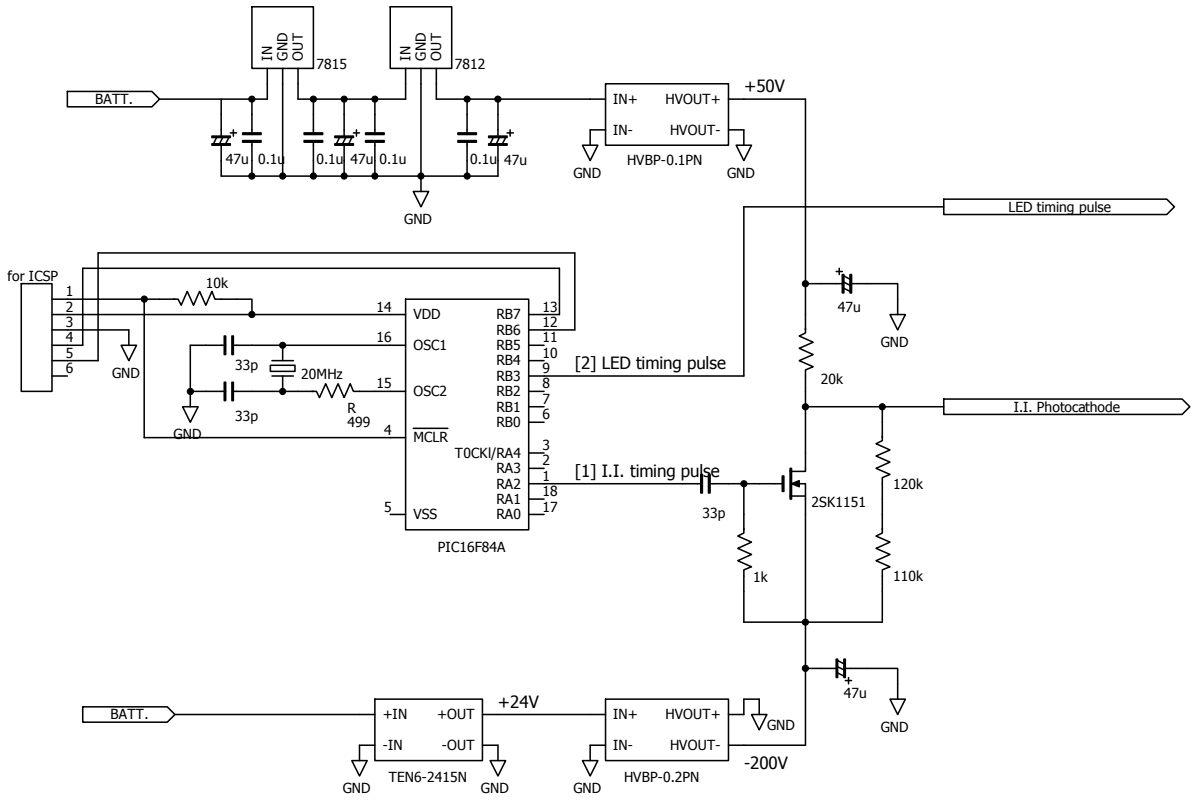

図 5.27 タイミングパルス生成回路の回路図

て MOSFET をスイッチング動作させ，+30V から-200V の振幅でカソード電圧を発生させている。基準パルス信号の繰り返し周波数は 1 kHz とした。なお，本装置は屋外

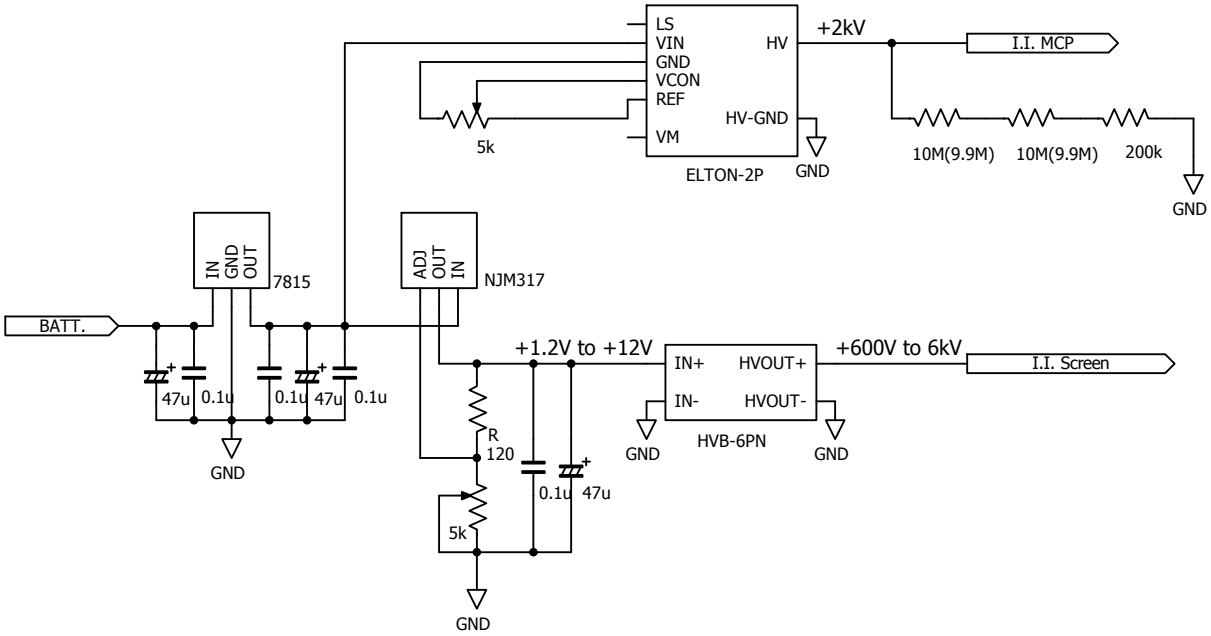

図 5.28 イメージインテンシファイア駆動用高圧電源回路の回路図

利用を想定しているため，バッテリーでの駆動が可能な構成とした。バッテリーの出力電圧は 23-27 V 程度であるため，この範囲の電源電圧の変化に対応できるようにしている。また，イメージインテンシファイアの駆動に必要な MCP 電圧，スクリーン電圧のための電子回路を図 5.28 に示している。どちらにも高圧電源モジュールを使用し，ポテンショメータによって出力電圧を可変とした。MCP 電圧は抵抗で分圧することで，印加電圧値を得られるようにした。

時間ゲートで制御されたイメージインテンシファイアの出力画像を，CCD カメラ（WAT-120N, Watec）で撮像した。撮像においては，カメラ付属のコントローラによって加算するフレーム数を選択することができる。1 フレームは 1/30 秒であり，最大 256 フレームまで選択できるため，実質的にシャッタースピードを約 8 秒まで調整可能である。得られた画像は PC に取り込むことで，本実験の RPL イメージの保存を行った。

また，フォトダイオードを用いた光検出器を暗箱内に組み込んだ。暗箱の光路近くに取り付けた光検出器からの信号をモニターすることで，動作中の暗箱の開放などの人為的ミスによるイメージインテンシファイアの過電流による破損を防止できるようにした。

5.5.3 紫外励起光源の電子回路系

蛍光ガラスビーズを励起するための紫外 LED アッセンブリのパルス駆動の電子回路図を図 5.29 に示す。RPL 画像の同期撮像のための基準（時間）信号は，図 5.27 に示した電子回路で生成している。RPL 画像の撮像を背景光のある環境下で行うことが想定されるため，紫外パルス励起後直ぐの RPL 画像データより，紫外パルス励起後 RPL 成分が十分に減衰した背景画像データを減算する必要があると考えた。そこで，図 5.29 に示しているように，中央のマイクロコントローラによって基準パルスを遅延させ，紫外パルス励起光の発生時刻とイメージインテンシファイアの動作開始時刻の時間差を適当に変更できるような回路構成とした。基準パルスの遅延の程度は，図中のロータリースイッチで設定できるようにした。図 5.30 に，紫外パルス励起時刻とイメージインテンシファイアの動作開始時刻（RPL 光測定時刻）の関係を示している。図中の[3-a]から[3-e]までのタイミングをスイッチで選択でき，イメージインテンシファイアは，それぞれ図中に示した時間差で動作する。[3-a]のケースが RPL 光を高い信号対雑音（RPL/PL）比で測定する時刻設定であり，[3-d]の場合は RPL 光が十分に減衰したバックグラウンド光を測定することになる。[3-e]のケースは，紫外励起光の混在の影響について調べるために，紫外励起パルス時刻とイメージインテンシファイア

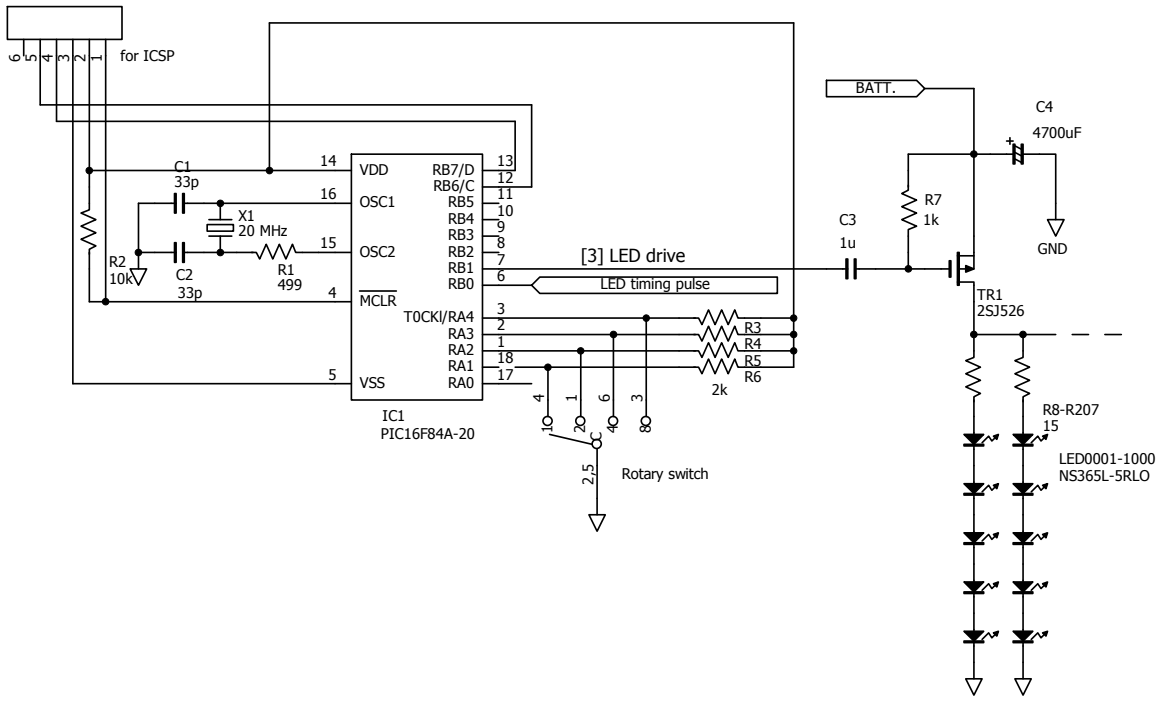

図 5.29 LED パルス駆動回路の回路図

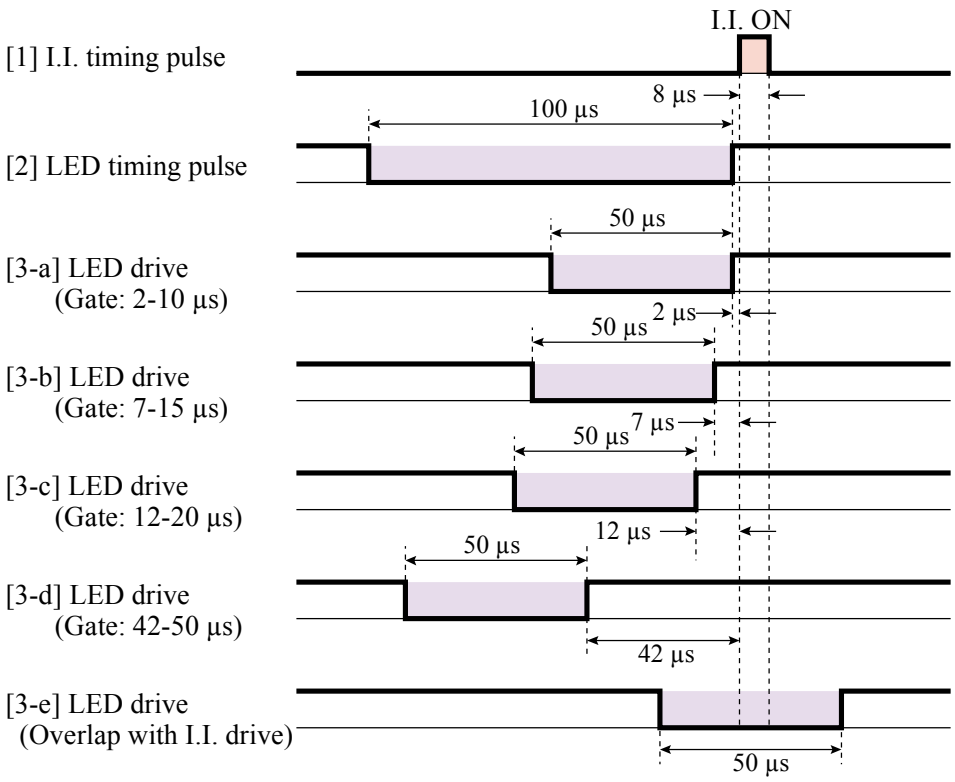

図 5.30 励起光源と蛍光検出器の同期パルスのタイミング図

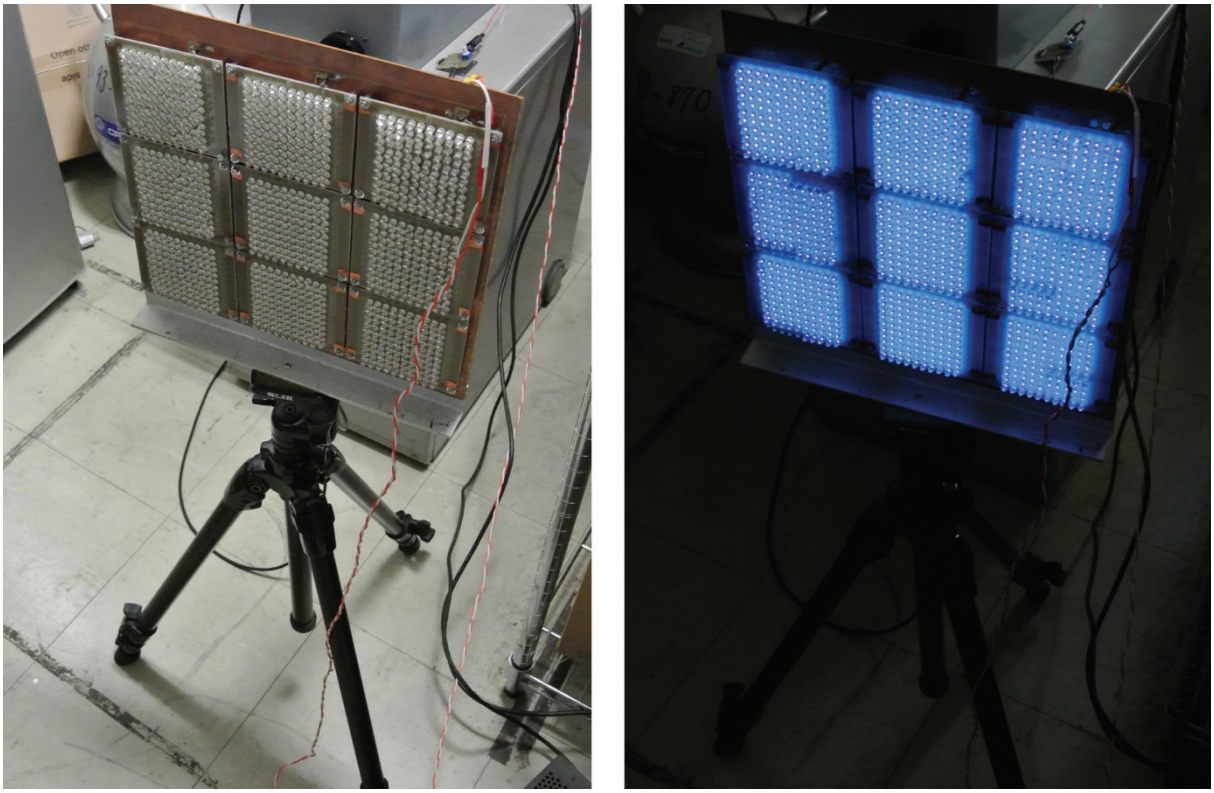

図 5.31 紫外 LED を 990 個用いて構成した励起光源の外観（消灯時及び点灯時）

の動作時刻を重ねた設定である。紫外 LED のパルス駆動は，P 型 MOSFET のスイッチングで行うため，Low の論理信号が出力されている時に励起パルス光が点灯する回路構成となっている。

遠隔放射能汚染モニタリングシステムのために製作した紫外励起 LED 光源の写真を図 5.31 に示している。比較的指向性の高い砲弾型紫外 LED（NS365L-5RLO, Nitride Semiconductor, λ = 365 nm, $2\theta_{1/2}$ = 15°）990 個を並べることで，ある程度離れた位置から蛍光ガラスビーズシート等へ一様な紫外光照射が行えるようにした。この紫外励起光源は，図の写真でわかるように，同上の紫外 LED を集合させて製作した小基板 9 枚で構成されている。1 つの小基板には 110 個（10 行 11 列）の LED が実装されている。LED は 5 個を直列に接続して 1 組として電流制限抵抗を取り付けている。使用した LED の電流値の最大定格は直流動作の場合で 25 mA，パルス動作の場合はデューティー比 10%以下，パルス幅 100 μs 以下の場合で 100 mA となっている。本実験のパルス動作では，デューティー比 5%，パルス幅 50 μs であることを考慮したうえで，できるだけ高輝度の照射を行うために電流制限抵抗を 15 Ω とした。LED の順方向電圧降下値は 3.6 V なので，パルス動作時に LED に流れる電流値は，0.4 A（＝[24 – (3.6×5)] / 15 A）である。

5.6 RPL 遠隔モニタリングシステム利用基礎実験

5.6.1 蛍光ガラスビーズシートの RPL 測定

製作した RPL 遠隔モニタリングシステムの RPL 光検出性能を調べるために，蛍光ガラスビーズシートを使用した RPL 観測についての基礎実験を行った。

前節で述べたように，製作した RPL 遠隔モニタリング装置では，対象の蛍光ガラスビーズに対して，紫外光パルスの励起時刻とイメージインテンシファイアによる RPL 光の観測時刻の時間関係をいくつかのパターンに変更調整することができる（図 5.30 参照）。蛍光ガラスの RPL 光の減衰時間は既知であるので，それぞれの観測時刻で得られた画像の平均輝度と，当該時刻の RPL 光の積分値（測定時間領域）を比較することで，本装置の RPL 光検出性能について評価できると考えられる。そこで，X 線を一様に照射した蛍光ガラスビーズシートと X 線未照射のシートを用意し，紫外励起後

の観測時刻を変更させながら RPL 画像を取得した。蛍光ガラスビーズシートと RPL 光検出器及び紫外励起光源の距離をともに 1.5 m に設定し，イメージインテンシファイアの MCP 電圧を 1.6 kV（電子増倍度：6 × 10^5）とした。測定は消灯した室内で行ったが，本システムは屋外の夜間での利用を想定しているため完全な遮光状態ではない状況で実施した。実験環境の照度計による測定値は約 10 lx で，蛍光ガラスビーズシートや実験装置器具類は目視可能な状況であった。

測定結果と RPL 光の減衰から計算した結果を図 5.32 に示している。測定結果については，蛍光ガラスビーズシートの各測定時刻（[3-a]-[3-d]）における RPL 観測画像の平均輝度より求めて表示した。また，計算値については，蛍光ガラス線量計素子（GD-450，千代田テクノル）の RPL 光の時間減衰スペクトルよりバックグラウンド成分を除去し，当該測定時刻及び時間に対応する RPL 強度の積分値を示した。両者の傾向は良く一致していることから，本遠隔モニタリング装置で RPL 光の観測が上手くできる，また，バックグラウンド光が十分に小さい場合の観測画像は RPL イメージと見なせると考えられる。

次に，低エネルギーX 線ビームを照射した蛍光ガラスビーズシートの RPL 遠隔観測を試みた。蛍光ガラスビーズシートは 5.4 節で使用したもの同種で，同条件の X 線

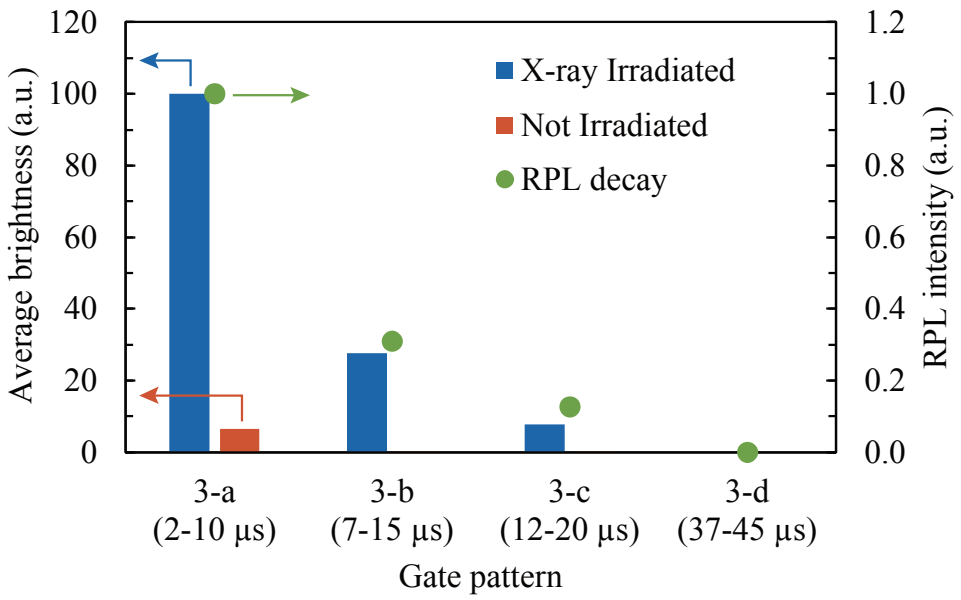

図 5.32 紫外励起後異なる時刻で観測した RPL 画像の平均輝度と RPL 強度の計算値の比較

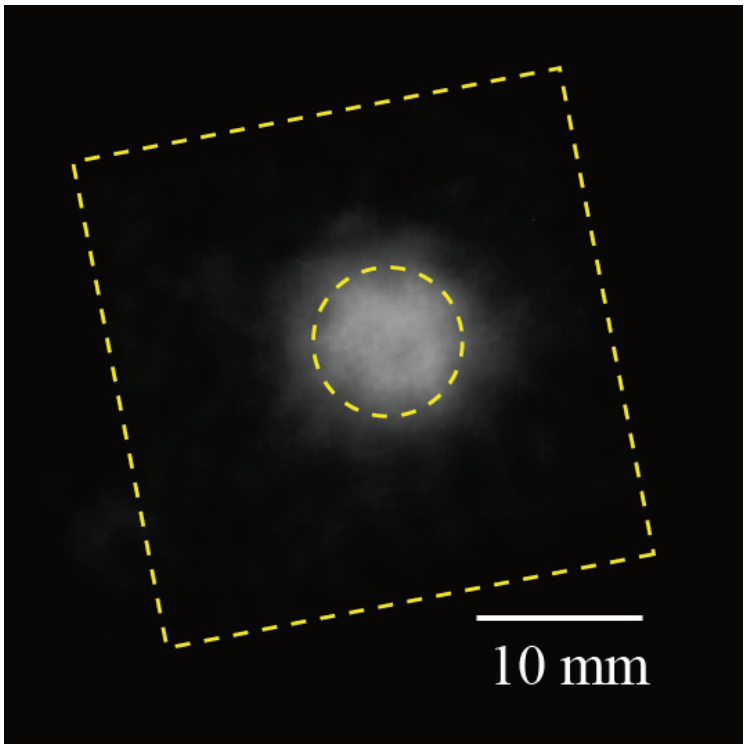

図 5.33 X 線コリメート照射シートの遠隔 RPL モニターによる測定画像

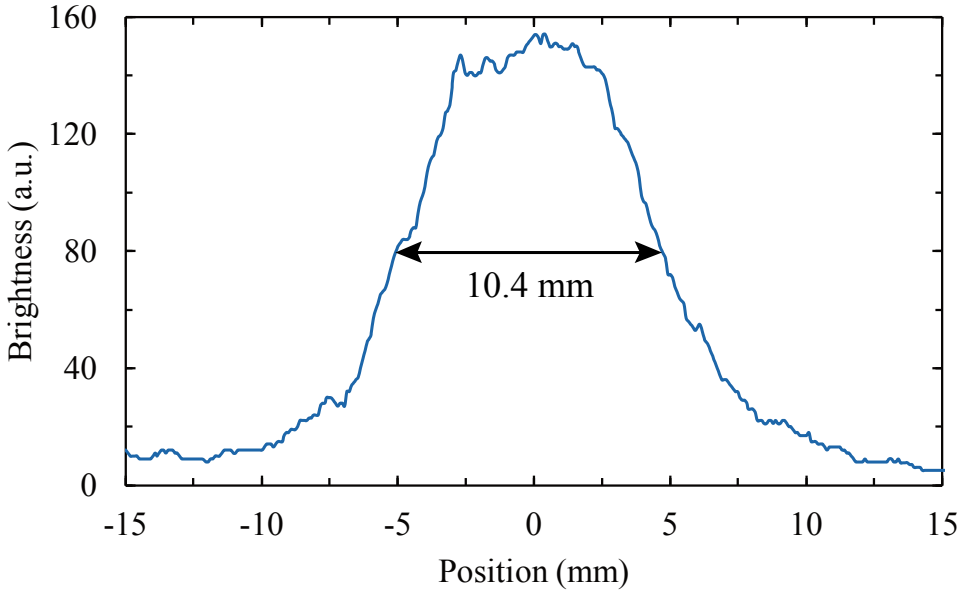

図 5.34 直径 9 mm の X 線コリメート照射の遠隔 RPL モニターによる輝度プロファイル

照射を行った。X 線ビーム生成用のコリメータの径は 9 mm であった。RPL 画像の測定距離は 1.7 m，MCP 電圧は 1.6 kV など，測定条件は前項の実験と同一である。

図 5.33 に，本遠隔 RPL モニターで観測された蛍光ガラスビーズシート上の X 線ビームスポット画像を示す。図中に黄色点線は，四角枠が蛍光ガラスビーズシートのサイズ（30 mm × 30 mm），中央の丸い枠が X 線の照射範囲（直径 9 mm）をそれぞれ示している。観測された RPL 画像の大きさは，実際の X 線照射範囲よりやや拡がっていた。RPL 画像の X 線のビーム径の半値幅を求めるために，図の X 線ビームスポットの直径方向の輝度分布を求めた。その結果を図 5.34 に示している。半値幅は約 10.4 mm であった。コリメータの直径 9 mm より半値幅は大きくなっているが，1.7 m 離れた位置から数 mm の解像度で RPL 観測ができることを示している。この結果は，蛍光ガラスビーズシートと遠隔 RPL モニターを利用することで，十分に放射能汚染モニタリングが行えること示唆している。今回の結果が示しているように，本研究で構築している種々の放射能汚染モニタリングシステムは，それぞれ特長が異なり，放射能汚染の程度や状況に合わせて，蛍光ガラスの形状，励起光源の種類，RPL 光観測器の種類の組み合わせを最適に選択することが重要である。

5.6.2 放射性セシウム表面汚染に対する感度

蛍光ガラスビーズシートを利用した RPL 遠隔モニタリング法の応答特性について調べるために，5.4 節で述べた内容とほぼ同様の実験を実施した。蛍光ガラスビーズシートと RPL 遠隔観測システムの幾何学的な位置関係を固定して，蛍光ガラスビーズの吸収線量とシステムで観測される RPL 強度の関係について調べた。蛍光ガラスビーズシートを複数用意し，同一強度の X 線で照射時間を変えながら RPL 強度（線量）の測定・比較を行った。

測定結果を図 5.35 に示している。蛍光ガラスビーズシートと RPL 検出器及び紫外励起光源の間の距離は，1.7 m である。今回の実験条件下においては，0.1-30 Gy の範囲で明瞭な線形性が認められたが，測定下限線量（感度）は，紫外励起光強度や蛍光ガラスビーズシートと RPL 光検出器及び励起光源間の距離等の条件に依存する。図 5.35 の結果は，今回の実験条件においての数値であることに注意する必要がある。ただ，蛍光ガラス線量計の線量測定の原理が明快であることから，その線形性については実験条件が少々異なっていても十分保持されていると考えられる。そして，蛍光ガラスビーズシートの線量分布から放射能表面汚染分布への読み換えも十分可能と考

えられる。

本実験は比較的低いエネルギーの X 線（管電圧 25 kV）を照射した蛍光ガラスビーズで実験を行っているが，実際の放射能汚染源は放射性セシウムである。そして，特に，ベータ線の線量寄与が重要となることはこれまでに述べてきたとおりである。そこで，いくつかの仮定の下で蛍光ガラスへの放射性セシウムからのベータ線及びガンマ線の線量寄与を計算し，表面汚染と吸収線量の換算を試みた。

放射能表面汚染の対象としては，主に土壌や建築物・構造物やがれき等の破壊物等の表面が想定される。本項でのモンテカルロコード PHITS を用いたシミュレーション計算の例としては，最も広い放射能汚染対象である土壌を採り上げた。平面上に土壌層を，さらにその上にガラス層を定義した。土壌の成分としては様々な文献をもとに得られた構成元素の中央値[8]より，主要な元素とそれらの元素比を入力した。

また，本実験で主に対象としている土壌やコンクリートなどの物質は空隙が多く，土壌中の空隙を容積で除した空隙率は，種類にもよるが 55-80%とされている[9]。線量寄与の視点からは，ベータ線は空隙を通過して遠く深くまで寄与できることになり，その程度は含水率等にも依存する。これらの全てを考慮したシミュレーション計算は非常に複雑で実施が困難である。よって，ここでは土壌を均一な層とし，密度は一般

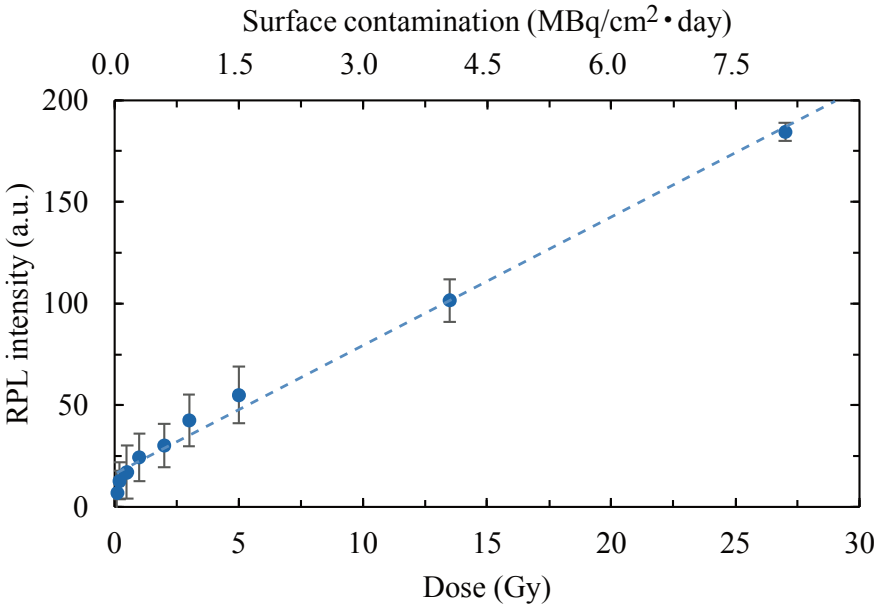

図 5.35 吸収線量に対する RPL 強度と表面汚染への換算

的な土壌のかさ密度の 2.0 g/cm^3 とした。同様に，本実験で用いた蛍光ガラスビーズシートは，蛍光ガラスビーズの集合であり，本来なら蛍光ガラスビーズの形状や充填率等を考慮すべきであるが, 厚さ 0.2 mm の蛍光ガラス層に簡単化して計算を実施した。

土壌中の放射能濃度分布についても状況によって異なっている。4.8 節で行った実験では, ほとんどの放射性セシウムは深さ 5 mm までに分布していたと推定されるが, 土壌の種類や経過年数，除染などの人為的な活動にも大きく影響される。一方，がれき表面等では放射性物質（放射能汚染源）が浸透し難いため，深さ 1 mm 未満の表層に留まったままであると推定される。今回の計算では深さ 1 mm までの層に一様に分布していると仮定して計算を行った。

セシウム 137 の放射能（ベータ線及びガンマ線）の蛍光ガラスへの線量寄与をシミュレーション計算した結果, 1 壊変当たりの吸収線量は, 3.5×10^{-11} Gy/decay となった。この数値をもとに，さらに具体的に 1 日かつ 1 cm^2 当たりの吸収線量に書き直した数値を，図 5.35 の上側の横軸に示している。今回の実験条件下での観測下限線量は 0.1 Gy であったが，この数値は放射能汚染観測下限値（1 日の曝露で検出可能な放射能汚染面密度下限値）を意味し，35 kBq/cm^2・day となる。ただし，この数値はあくまで上述の仮定と今回の実験条件の下での数値である。例えば，蛍光ガラスビーズシートの励起光源を紫外レーザーへ変更すれば励起光強度が数桁増加し，観測システムが同じ位置関係であっても観測下限値はずっと小さい数値になるはずである。また，蛍光ガラスは線量測定におけるフェーディング（退行）が非常に小さく，蛍光ガラスビーズシートの放射能汚染源への曝露時間を長くすることで放射能汚染観測の下限を下げることが可能である。

この項の議論を総括すると，蛍光ガラスビーズシートと RPL 光遠隔モニターを用いて放射能表面汚染を十分にモニタリングできる。そして，このモニタリングシステムの屋外での利用を想定した場合，観測体系は現場の状況にも依存し，繰り返しになるが，励起光源の種類，RPL 光観測器の種類の組み合わせを最適に選択することが肝要である。

5.6.3 放射能汚染水モニタリングへの応用

東日本大震災に伴って被った福島第一原子力発電所事故より 3 年以上が経過した

現在も，放射能汚染水の処理問題が深刻である。損傷原子炉のための大量の冷却水や，原子炉施設に流れ込んだ地下水が放射性物質を含んでいるため，それらの処理が困難になっている。漏水によって放射能汚染範囲が拡大し，海洋へそのまま流出する問題が発生している。本項では製作した蛍光ガラスビーズを，放射能汚染水のモニタリングに利用する方法について検討を行った。

まず，製作した蛍光ガラスビーズを直接水中へ投入し，RPL 蛍光が検出可能かどうかについて調べた。蛍光ガラスビーズを X 線で照射（約 50 Gy）した後，水中に投入した。水中に蛍光ガラスビーズを投入した容器の写真を図 5.36 に示している。蛍光ガラスビーズは密度が約 2.6 g/cm^3 であり，水中では左図のように沈んだ状態になる。振り混ぜることで右図のように均一に拡散した状態にすることができる。このような状態の蛍光ガラスビーズに紫外励起光を照射し，デジタルカメラで撮影した写真を図 5.37 に示している。水中に蛍光ガラスビーズを入れたビーカーに，マグネチックスターラーを入れ，撹拌しながら撮影を行った。放射線照射された蛍光ガラス特有のオレンジ色の RPL 蛍光が見られ，水中でも蛍光ガラスで線量の観測が可能であることが確認できた。

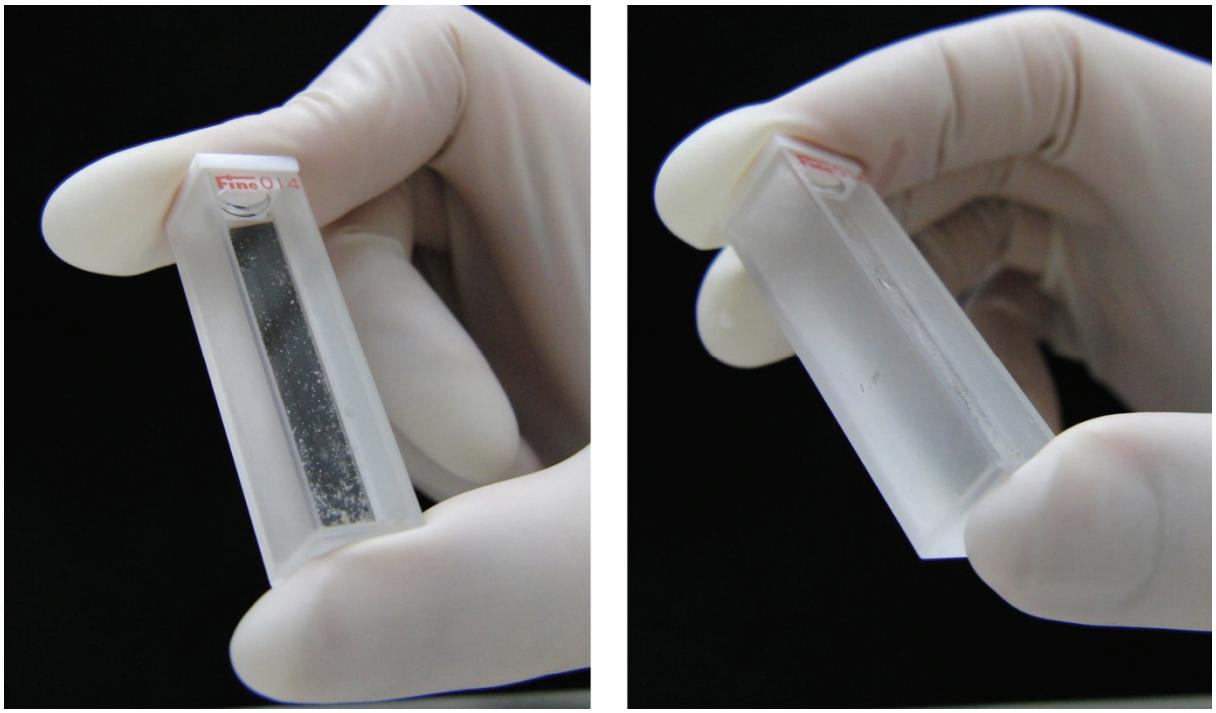

図 5.36 水中での蛍光ガラスビーズ（左：振り混ぜる前，右：振り混ぜた後）

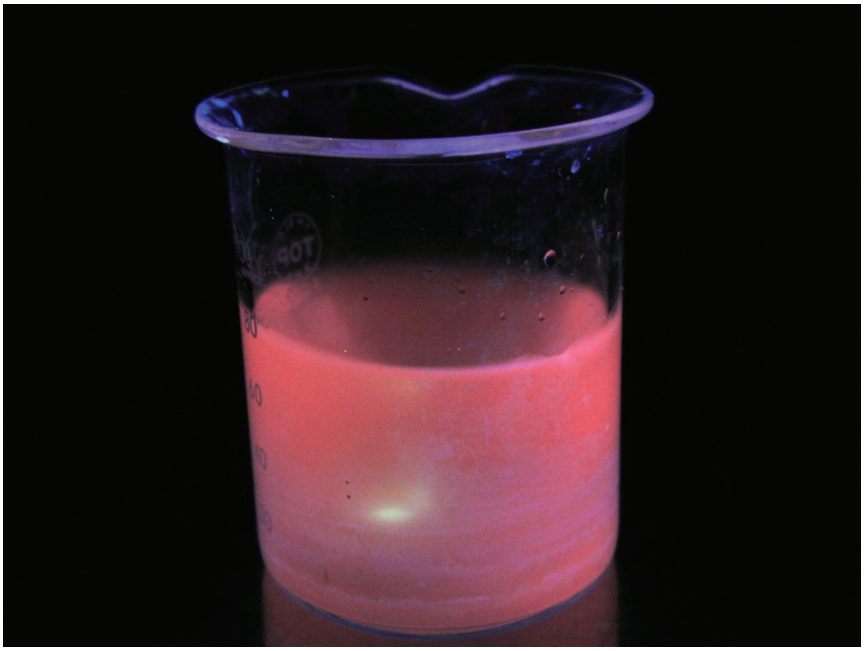

図 5.37 蛍光ガラスビーズを投入した水中からの蛍光

放射能汚染水中の蛍光ガラスビーズは，放射性物質に接近できるため，汚染水の外（例えば配管外壁等）からのモニタリング法と比較して，放射能に高感度であると考えられる。また，一般的なデジタルカメラによる観測が十分可能であることから，さらに，蛍光ガラスビーズを短期間で廃棄する（安価であり消耗品とする）考え方を取り入れれば，連続的なモニタリングも可能になると思われる。

一方，蛍光ガラスビーズを直接汚染水に投入して RPL 光の観測を行う方法では，汚染水の透明度が高くなければならないことや，水そのものによる蛍光ガラスの変性劣化や，沈降した蛍光ガラスビーズの回収等いくつかの問題が懸念される。そこで，これらの問題に対処するために，蛍光ガラスビーズをフロート（浮遊）型にして浮かせて，放射能汚染水のモニタリングに利用する方法が提案されている[10]。

図 5.38 に，蛍光ガラス素子をフロート型にした蛍光ガラスボールの構造を示している。蛍光ガラスビーズまたは蛍光ガラス粉末をポリスチレン製のボールに封入した構造になっている。蛍光ガラスボールの平均比重が水の密度の 1.0 g/cm^3 を上回らないように，蛍光ボールは二重構造になっていて，内部には浮きの役割を果たすポリプロピレン製ボールが入れられている。このような構造にすることで，汚染水が濁っている場合でも，蛍光ガラスボールの水面上の浮遊部分で RPL 光の遠隔観測が可能で

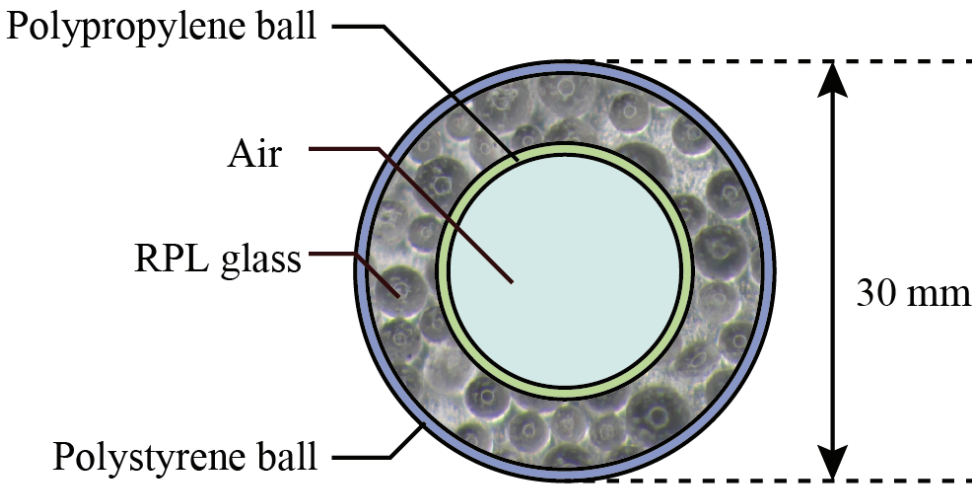

図 5.38 フロート型蛍光ガラスボールの概要

ある。また，汚染水による蛍光ガラスの変性劣化の心配も無い。蛍光ガラスボールの回収も非常に簡単である。

図 5.39 に，フロート型蛍光ガラスボールをコバルト 60 のガンマ線で照射し，紫外励起 LED 光源とデジタルカメラで観測した RPL 画像の例を示している。水を入れたビーカー内に浮かんでいる 3 個の蛍光ガラスボールの内，一つはガンマ線非照射であり，残り二つはガンマ線を 100 Gy 程度照射している。蛍光ガラスボールの周囲に巻かれている白色の帯は，紫外励起光の強度を評価するためのものである。紫外励起光下の写真より明らかなように，コバルト 60 のガンマ線で照射された 2 個のボールから明確にオレンジ色の RPL 光が認められる。この RPL 光の輝度から汚染水の放射能濃度の概算が十分に可能と考えられる。

本項では，現在，福島第一原子力発電所の復興で大きな問題となっている放射能汚染水の問題に着目した。そして，その放射線安全確認・確保の方法について検討を行った。蛍光ガラスビーズをもとにさらに蛍光ガラスボールを製作し，RPL 光遠隔モニターと組み合わせることで，放射能汚染水の遠隔モニタリングに上手く利用できることを示した。

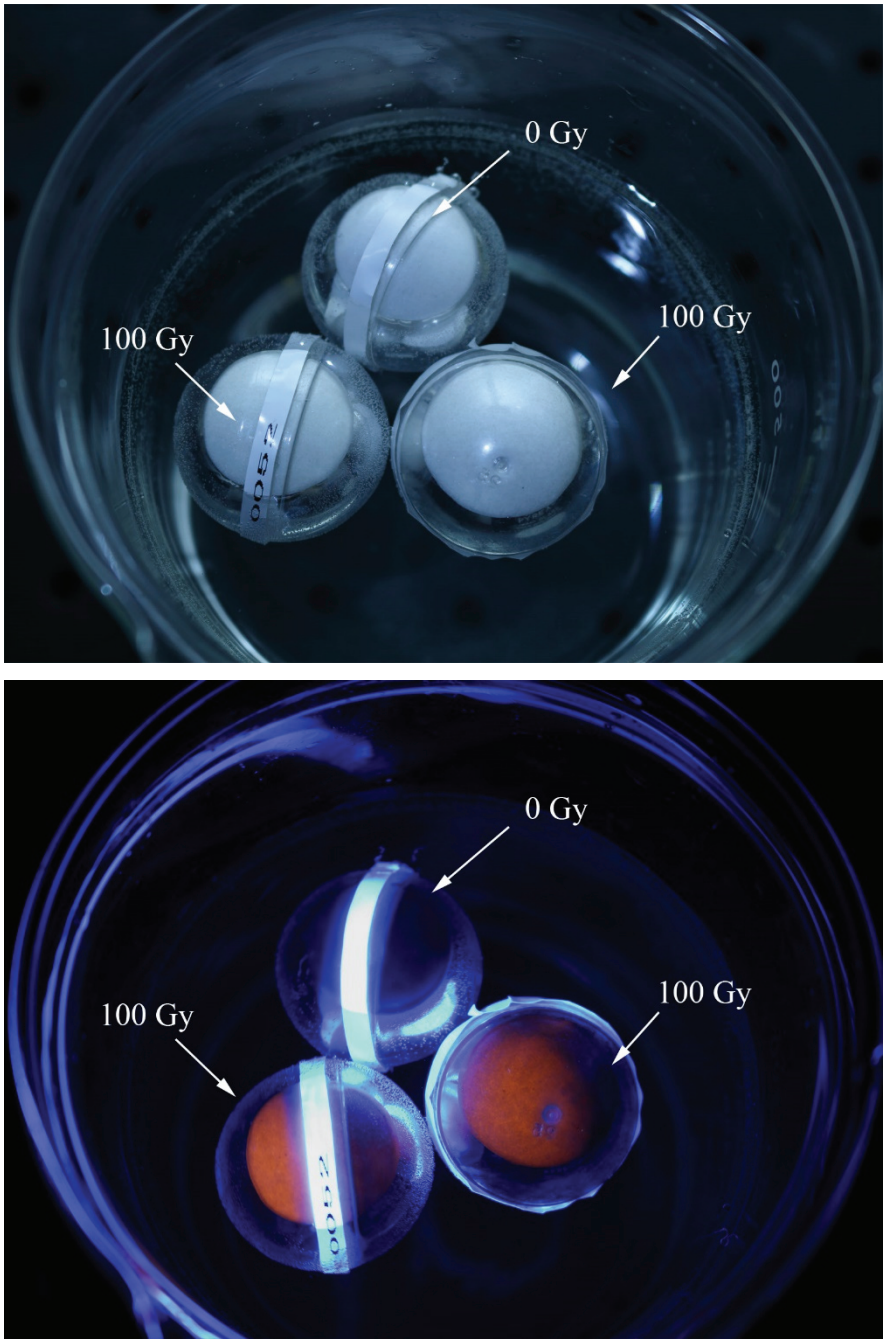

図 5.39 フロート型ガラスボールの蛍光（上：白色光下，下：紫外光下）

5.7 結言

本章では，主に放射性セシウムによる表面汚染を，効果的にモニタリングする方法について検討した。前半では，放射能汚染の検出素子として用いる蛍光ガラスを，粉

末状からより高性能の球状（ビーズ）へと改良を加えた。また，その形状や性状の改良過程の様子について，前章で開発したレーザー顕微鏡システムを用いて詳しく調べた。そして，最終的に，蛍光ガラス粉末のビーズ化に最適な温度や時間他の条件を，実験的に定めた。そして，それらの蛍光ガラスビーズ製作条件の下で，第 2 章で述べたベータ・ガンマ比の高い蛍光ガラス素子として，直径 0.2 mm 程度の蛍光ガラスビーズを上手く作ることができた。励起光や RPL 光の乱反射を低減した利用し易い形状に，上手く加工することができた。また，蛍光ガラスビーズを薄い保持材に接着することで，さらに利用し易いシート状にすることができた。その結果，測定対象の表面の凹凸にも適用する，フレキシブルな蛍光ガラスビーズシートの形状にすることができた。

本章の後半では，蛍光ガラスビーズや蛍光ガラスビーズシートの RPL 光（画像を含む）の測定・観測方法，及びそれらの特性や性能について調べた。そして，最終目的である放射能汚染モニタリングに適用する場合ついて，蛍光ガラスビーズやシートと，それらの RPL 光を測定・観測するシステムの最適化について検討を行った。また，放射能汚染モニタリングを模擬している，いくつかの代表的な RPL 測定・観測システムについて性能評価を行った。蛍光ガラスビーズやシートの紫外励起源に UV LED アッセンブリを，RPL 画像の観測にデジタルカメラを利用する，安価で簡便なシステムの性能について詳細に調べた。また，さらにイメージインテンシファイアを組み込み，RPL の波長特性だけでなく時間減衰特性まで考慮して，測定感度の向上を図った，遠隔モニタリングシステムについても性能評価を行った。また，放射能汚染水のモニタリングに利用するために製作した蛍光ガラスボールの性能についても調べた。

参考文献

[1] 塩沢昌，田野井慶太朗，根本圭介，吉田修一郎，西田和弘，橋本健，桜井健太，中西友子，二瓶直登，小野勇治，“福島県の水田土壌における放射性セシウムの深度別濃度と移流速度”，*Radioisotopes*, Vol. 60, No. 8, pp. 323-328 (2011).

[2] A. Maekawa, N. Momoshima, S. Sugihara, R. Ohzawa and A. Nakama, “Analysis of ^{134}Cs and ^{137}Cs distribution in soil of Fukushima prefecture and their specific adsorption on clay minerals”, *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, available online (2014).

[3] J. Koarashi, M. Atarashi-Andoh, T. Matsunaga, T. Sato, S. Nagao and H. Nagai, “Factors affecting vertical distribution of Fukushima accident-derived radiocesium in soil under different land-use conditions”, *Science of the Total Environment*, Vol. 431, pp. 392-401 (2012).

[4] 東京電力，“福島第一・第二原子力発電所の状況” http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/index-j.html (2014).

[5] F. Sato, Y. Toyota, D. Maki, N. Zushi, Y. Kato, T. Yamamoto and T. Iida, “Development of bead-type radiophotoluminescence glass dosimeter applicable to various purposes”, *Radiation Measurements*, Vol. 55, pp. 68-71 (2013).

[6] K. Nakagawa, K. Yoda, T. Shiraki, K. Sasaki, M. Miyazawa, T. Ishidoya, K. Ohtomo and M. Hamada, Radiophotoluminescence dosimetry using a small spherical glass: A preliminary phantom study”, *Radiation Protection Dosimetry*, Vol. 123, No. 2, pp. 254-256 (2007).

[7] N. Zushi, F. Sato, Y. Kato, T. Yamamoto and T. Iida, “Flexible sheet with radiophotoluminescence glass beads for remotely monitoring high beta-surface-contamination”, *Radiation Measurements*, Vol. 71, pp. 217-219 (2014).

[8] H.J.M. Bowen, “Environmental Chemistry of the Elements”, Academic Press (1979).

[9] 農林水産省，“土壌の基礎知識” http://www.maff.go.jp/j/seisan/kankyo/hozen_type/h_sehi_kizyun/pdf/ntuti4.pdf (2014).

[10] F. Sato, N. Zushi, T. Maekawa, Y. Kato, I. Murata, K. Shimizu, T. Yamamoto and T. Iida, “Visualization of high radiation field by radiophotoluminescence photography”, *Radiation Measurements*, Vol. 68, pp. 23-30 (2014).

第 6 章 結論

本論文は，福島復興に向けた蛍光ガラス（銀活性リン酸塩ガラス）を用いた新しい放射能汚染分布モニタリング法について述べたものである。本研究で開発した新しい形状の蛍光ガラス及びそのラジオフォトルミネセンス（RPL）の測定システムは，広範囲の放射能汚染の定点モニタリングに有効に適用することができる。測定対象の汚染は，線量率の低い地域から事故炉の建屋内のような立ち入りが困難な場所まで幅広いため，蛍光ガラスの持つ線量測定のダイナミックレンジの広さと長期測定の性能の良さが有効である。放射性セシウムのベータ線の線量寄与がガンマ線のそれより十分に大きくなるように蛍光ガラスを成形加工することで，精度の良い放射能汚染分布を簡便に得ることができた。本論文の内容を各章ごとに以下に記す。

第 2 章では，放射線安全管理の基本と福島第一原子力発電所の事故によって発生した，広範囲の放射能汚染の現状について説明した。そして，福島地域における放射能汚染モニタリングには，放射性セシウムのガンマ線ではなくベータ線を効率的に捉えることが重要であることを述べた。放射能汚染土壌を例に，工夫加工したイメージングプレートでベータ線の線量を選択的に測定する方法で，深さ方向の放射性セシウム汚染分布を上手くモニタリングできることを示した。しかし，イメージングプレートはフェーディング（退行）等の問題があり，福島地域の現場で実際に使用するのは困難である。実用的な放射能汚染モニタリングには，フェーディングが小さく，環境変化にも安定で使い易い積算型放射線検出素子が必要であることを説明した。

第 3 章では，蛍光ガラスが放射性セシウム汚染モニタリングに効果的に利用できることを説明した。蛍光ガラスの線量測定の原理と特長について述べ，放射性セシウム汚染分布の測定に有効であることを説明した。蛍光ガラスの特長である，紫外線励起の線量読み出し操作により蛍光中心が変化しないこと，繰り返しの積算測定が可能であること，長期間の安定性に優れていること等から実用的に優れた放射能汚染モニタリングができることを説明した。

また，モンテカルロ粒子輸送計算コード PHITS を用いて，蛍光ガラスの放射性セシウムのベータ線及びガンマ線の線量応答（吸収線量）をシミュレーション計算し，薄

い蛍光ガラスを用いることで放射性セシウムのベータ線を十分に選択測定できることを示した。有効厚さ（感度領域の厚さ）が 0.2 mm 程度の蛍光ガラス線量計素子を利用することによって，放射性セシウムの放射能汚染モニタリングを効果的に行うことができることを明らかにした。

第 4 章では，福島第一原子力発電所事故により発生した広範囲の放射性セシウム汚染に対する実用的なモニタリング法について具体的に検討を行った。放射能汚染検出のシミュレーション計算の結果をもとに，土壌の深さ方向の放射能（放射性セシウム）汚染分布測定に適した蛍光ガラスロッドを製作し，その RPL 測定システムを構築した。土壌中に差し込む直径 0.6 mm の蛍光ガラスロッドを製作する方法を確立した。また，蛍光ガラスの RPL の位置分布を測定するために，レーザー顕微鏡を基にした RPL 測定システムを構築した。

励起レーザーの径は，RPL 測定システムに組み込んでいる CCD カメラによって測定した。微細の電子線を照射した板状蛍光ガラスの 2 線間コントラスト比の測定結果より，本システムの位置分解能は 2 μm 程度であり，蛍光ガラスの局所的な RPL 分布の測定には十分な性能であることがわかった。製作した蛍光ガラスロッドの特性について，広い範囲で吸収線量と RPL 強度の線形関係が確認され，蛍光ガラスロッドと紫外レーザー顕微鏡システムが放射能汚染分布モニタリングに十分適用できることが示唆された。また，標準アルファ線源及びベータ線源を用いた実験の結果より，蛍光ガラスロッドへのアルファ線，ベータ線の入射方向を限定することで，アルファ線とベータ線の弁別が可能であることがわかった。このことは，原子炉周辺の土壌中の超ウラン元素の検出に応用できることを示唆している。

実際に福島県で採取した土壌試料を用いた実験結果より，本手法が深さ方向の放射性セシウムの汚染モニタリングに適用できることが確かめられた。さらに，応用例として，土壌中の試薬による放射性セシウムの移行実験にも本手法が十分に適用できることがわかった。

第 5 章では，放射性セシウムによる表面汚染分布を，効果的にモニタリングする具体的な方法について検討した。表面汚染を対象とする場合，表面に凹凸がある場合や，湾曲面を持つ対象のモニタリングも想定される。板状の蛍光ガラスでは適さないこれ

らのモニタリングのために，蛍光ガラスを粉末状にして加熱することでビーズ化し，ビーズを保持材に接着してシート型素子として用いる方法を考案した。

蛍光ガラス粉末のビーズ化について最適な加熱条件を実験的に求め，蛍光ガラスビーズの量産を可能にした。また，蛍光ガラスビーズを貼りつけたシート上の RPL 画像を観測し，放射能汚染分布モニタリング素子としても用いることができることを確認した。

シート上の表面汚染分布の RPL 画像の読み取りは，蛍光ガラスロッドの場合とは異なり，2 次元的な画像情報を得ることが求められる。本研究では，状況に応じて励起光源及び RPL 検出装置を選択できるようにした。その中で，主に 2 種類の組合せについてモニタリングシステムの構築と実験を行った。一つは一般的なデジタルカメラを RPL 画像検出素子として用いるシステムで，励起光源に直流紫外 LED アッセンブリを使用することで，簡便な操作でシート中の RPL 画像を観測することを目的とした。この蛍光ガラスビーズシートとデジタルカメラによる測定システムを用いた実験より，吸収線量に対して線形性が得られること，蛍光ガラスビーズの直径である 0.2 mm 程度の空間分解能を持つことがわかった。また，RPL 強度のばらつきは，蛍光ガラスビーズの大きさや位置に基づき，また，励起光や RPL 光の球表面での散乱や乱反射にも関係していることを示した。本研究で製作した蛍光ガラスビーズシートを汚染モニタリングに十分適用できることが分かった。

また，高線量域での遠隔モニタリングを想定し，感度増強機構を持ち，パルス動作が可能な RPL 画像観測システムを構築した。励起光源として紫外 LED アッセンブリを用いることで，蛍光ガラスビーズシートを広い視野角で均一な励起照射ができるようにした。また，パルス駆動させて RPL 画像を信号対雑音比の優れた時間領域を選択加算平均することで高感度化を図った。製作したシステムによる実験より，10 mm 未満のスポット RPL 画像を十分観測できること，吸収線量に対して線形性を持つことを確認した。

以上，蛍光ガラスビーズシートを用いた代表的な二つの RPL 画像モニタリングシステムが，放射性セシウム表面汚染モニタリングに十分適用可能であると考えられる。また，関連の応用実験として，放射能汚染水のモニタリングを想定した，フロート型

の蛍光ガラスボールからの RPL 観測を試み，ほぼ計算通りの満足な観測結果を得ることができた。

本研究では，放射能汚染状況に応じて，放射能検出素子の蛍光ガラスの性状や形状の最適化を図るとともに，それらの素子に整合した RPL 光測定システムの構築を行った。これらの技術開発によって，これまで放射能汚染モニタリングには用いられてこなかった蛍光ガラスを，福島第一原子力発電所事故による放射能汚染測定観測にも十分適用することができると考えている。

福島第一原子力発電所事故による放射能問題は，広大な地域の除染に向けても，また，事故炉の廃炉に向けても，長い道のりとなっている。本研究で行った技術開発が，除染や廃炉など，一日でも早い問題の解決に向けて役立つことを期待し，本論文の結びとする。

謝辞

本論文にかかる研究の遂行及び論文の作成に際し，御指導，御鞭撻を賜りました大阪大学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻 飯田 敏行 教授に深甚なる感謝の意を表します。

本論文の作成に際し，大変貴重な御指導，御助言を賜りました，本学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻 上田 良夫 教授，環境エネルギー工学専攻 村田 勲 教授に深甚なる感謝の意を表します。

本学在学中に御指導，御鞭撻を賜りました，本学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻 田中 和夫 教授，兒玉 了祐 教授，本学レーザーエネルギー学研究センター 村上 匡且 教授，中井 光男 教授に深く感謝を申し上げます。

本研究を進めるにあたり，御指導と貴重な御意見を頂きました，本学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻 加藤 裕史 准教授に厚謝の意を表します。本研究や実験を行うにあたり，御指導，御助力を頂きました，本学大学院工学研究科環境エネルギー工学専攻 佐藤 文信 助教に厚謝の意を表します。

本研究に関連する実験にあたり，実験環境や実験装置について御指導や御協力を頂きました，本学大学院工学研究科技術部副工学技術長 伊達道 淳 先生に感謝致します。

本研究の遂行にあたり，蛍光ガラスに関して多くの御協力を頂きました，株式会社千代田テクノル大洗研究所 山本 幸佳 所長（大阪大学名誉教授）に深く感謝致します。また，本研究に関連する実験の遂行にあたり多くの御協力を頂きました，株式会社千代田テクノル大洗研究所 宮本 由香 博士に深く感謝致します。また，現地実験にあたり御協力頂きました，株式会社千代田テクノル大洗研究所，ならびに福島復興支援本部の皆様に感謝の意を表します。

本研究において，蛍光ガラスに関する実験にあたり御指導いただきました，平成 21 年度大阪大学大学院工学研究科博士後期課程修了 加田 渉 博士，平成 22 年度同課程修了 牧 大介 博士，平成 23 年度同課程修了 井原 陽平 博士ならびに平成 21 年度同前期課程修了 久門 聡 氏，平成 22 年度同課程修了 永井 貞光 氏，石井 哲也 氏，

平成 23 年度同課程修了 豊田 康英 氏，平成 24 年度同課程修了 樺島 啓介 氏，池田 祐希 氏，平成 25 年度同課程修了 小野 嘉久 氏に心から感謝の意を表します。

研究をはじめさまざまな面で助けていただいた，本学大学院工学研究科前期課程，今井 洋太 氏，熊倉 翔 氏，﨑山 朝喜 氏，緑川 隆史 氏，南出 洋佑 氏，矢野 佑樹 氏，奥村 友紀 氏，長家 知生 氏，西岡田 卓也 氏，前川 達郎 氏，本学工学部電子情報工学科 上田 和輝 氏，澤本 有一郎 氏，萩野 尚吾 氏，他，本学大学院工学研究科電気電子情報工学専攻先進ビームシステム工学領域の諸兄らに感謝の意を表します。

最後に，長年にわたる学業や研究生活を支えてくれた家族に心から感謝の意を表します。

研究業績

I. 主要論文（査読あり）

[1] N. Zushi, Y. Ikeda, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, “A simple method with imaging plates for examination of soil contaminated with radioactive caesium”, *Journal of Nuclear Science and Technology*, Vol. 49, No. 7, pp. 663-666 (2012).

[2] N. Zushi, Y. Ikeda, F. Sato, Y. Kato, K. Shimizu, N. Sato, T. Yamamoto and T. Iida, “Measurement of beta-radioactivity distribution in soil by use of fiber-type radiophotoluminescence glass dosimeter”, *Radiation Measurements*, Vol. 55, pp. 75-78 (2013).

[3] N. Zushi, Y. Ono, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, “Measurement of depth-directional radioactive cesium distribution in soil with several detectors”, *Progress in Nuclear Science and Technology*, Vol. 4, pp. 741-744 (2014).

[4] N. Zushi, F. Sato, Y. Kato, T. Yamamoto and T. Iida, “Flexible sheet with radiophotoluminescence glass beads for remotely monitoring high beta-surface-contamination”, *Radiation Measurements*, Vol. 71, pp. 217-219 (2014).

II. 関連論文（査読あり）

[1] Y. Ihara, N. Zushi, K. Kabashima, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, “An airflow pulse ionization chamber system supported with FPGA-based electronic technique for measurement of alpha-radioactivity in atmosphere”, *Radiation Safety Management*, Vol. 10, No. 1, pp. 30-36 (2011).

[2] N. Zushi, Y. Ihara, K. Kabashima, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, “Effect of air condition on alpha-radioactivity measurement by airflow pulse ionization chamber”, *Progress in Nuclear Science and Technology*, Vol. 3, pp. 131-134 (2012).

[3] F. Sato, N. Zushi, T. Nagai, T. Tanaka, Y. Kato, T. Yamamoto and T. Iida, “Development of radiophotoluminescence glass dosimeter usable in high temperature environment”, *Radiation Measurements*, Vol. 53-54, pp. 8-11 (2013).

[4] F. Sato, Y. Toyota, D. Maki, N. Zushi, Y. Kato, T. Yamamoto and T. Iida, “Development of bead-type radiophotoluminescence glass dosimeter applicable to various purposes”, *Radiation Measurements*, Vol. 55, pp. 68-71 (2013).

[5] F. Sato, N. Zushi, T. Maekawa, Y. Kato, I. Murata, K. Shimizu, T. Yamamoto and T. Iida, "Visualization of high radiation field by radiophotoluminescence photography" *Radiation Measurements*, Vol. 68, pp. 23-30 (2014).

III. 国際会議発表

[1] N. Zushi, Y. Ihara, K. Kabashima, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, "Effect of air condition on alpha-radioactivity measurement by airflow pulse ionization chamber", Sixth International Symposium on Radiation Safety and Detection Technology, Langkawi, Malaysia, July 12-14 (2011).

[2] N. Zushi, Y. Ikeda, F. Sato, Y. Kato, K. Shimizu, N. Sato, T. Yamamoto and T. Iida, "Measurement of radioactive cesium distribution in soil by use of radio-photoluminescence glass dosimeter covered with thin polyethylene film", 7th International Workshop on Ionizing Radiation Monitoring, Oarai, Japan, December 3-5 (2011).

[3] N. Zushi, F. Sato, Y. Kato and T. Iida, "Measurement of depth-directional radioactive cesium distribution in soil with several detectors", 12th International Conference on Radiation Shielding & 17th Topical Meeting of the Radiation Protection and Shielding Division of the American Nuclear Society, Nara, Japan, September 2-7 (2012).

[4] N. Zushi, F. Sato, Y. Kato, T. Yamamoto and T. Iida, "A dose monitoring sheet with radiophotoluminescence glass beads and its applications", 17th International Conference on Solid State Dosimetry, Recife, Brazil, September 22-27 (2013).

[5] N. Zushi, Y. Ono, F. Sato, Y. Kato, T. Yamamoto and T. Iida, "Detection of radiophotoluminescence from a dose monitoring sheet with glass dosimeter beads", 9th International Workshop on Ionizing Radiation Monitoring, Oarai, Japan, November 30-December 1 (2013).

IV. 本論文に深く関係する特許

[1] 飯田敏行，山本幸佳，佐藤文信，牧大介，図子直城，"ビーズタイプ蛍光ガラス線量計素子を用いた放射線吸収線量の可視化方法及び装置，そのためのビーズタイプ蛍光ガラス線量計素子の製造方法及び装置，ビーズタイプ蛍光ガラス線量計素子，並びに放射線吸収線量可視化用シート"，特開 2014-130022.

V. その他

[1] 図子直城,“福島で学ぶ ―大学における新しい教育・研究プログラムの一環として―”, *ESI News*, Vol. 31, No. 2, pp. 14-16 (2013).