



小特集 放射線照射環境下における材料物性値のその場測定

2. 材料の物性値に対する放射線照射誘起効果

2. Radiation-Induced Effects in Physical Properties of Materials

2.1 照射誘起発光を利用した光計測技術による放射線計測

2.1 Radiation Measurement Using Optical Devices with Radiation-Induced Luminescence

藤 健太郎, 中村 龍也

TOH Kentaro and NAKAMURA Tatsuya

日本原子力研究開発機構

(原稿受付: 2013年11月5日)

放射線による発光現象はサーベイメータなどで広く利用されていることは、福島での原子力発電所の事故以後、周知のことと思われる。発光を利用する機器はその目的・用途によって多種にわたり、対象とする放射線種(ガンマ線, 中性子線等)によって使用機器は全く異なる。さらに、測定対象の線量率や分布, 例えば, 原子炉炉心内のガンマ線分布を測定か, もしくは一般環境のガンマ線測定かによっても使用機器が全く異なる。ここではまず, 照射誘起発光をはじめとする光技術を用いた線量計測の基盤技術の一つである光ファイバの放射線環境下での照射効果, 利用について述べる。次に, 光ファイバ・照射誘起発光を利用した放射線の計測例として, 100 Gy/h 以下の線量率のガンマ線計測, 中性子散乱実験用の二次元計測, および高検出効率のシンチレータ型中性子検出器に関する報告を行う。

Keywords:

radiation-induced luminescence, gamma-ray, neutron, radiation resistance, optical fiber

2.1.1 はじめに

放射線の検出には物質と放射線との相互作用(核反応や電離作用等)が利用されており, その媒体にはシンチレータ(蛍光体, 照射誘起発光体)やガス, 半導体等多岐にわたる物質が利用されている。どのタイプの検出媒体も万能ということはなく, それぞれ長所(短所)があるため, 次に示す項目をすべて考慮に入れ, 用途に見合った検出媒体を適切に選定, 開発する必要がある。

- 測定対象とする放射線情報とその測定精度。線種, 線量率, エネルギー, 位置分布等
- 測定対象以外の放射線情報
- 温度, 湿度, 真空度, 磁場等の検出器の設置される環境情報
- 原理的実現性(難易度)
- メンテナンス性, 堅牢性, 経済性

大強度加速器や原子力システム等の大規模施設では大強度放射線が必ず伴っている。放射線は, 光が材料と相互作用する過程とはほぼ同様に物理的相互作用過程を引き起こし, なおかつ, 我々が最もなじみ深く感じる可視領域の光と比較して, 数千倍から数億倍のエネルギー単位をもって

相互作用が引き起こされることが知られている。この相互作用の結果, 計測制御・信号伝送システムは物理的に大きな損傷を受けることになる。この現象は, あらゆる電子機器に効果を及ぼし, 原子力システムと比較してかなり線量の小さい宇宙環境においてすら半導体素子のメモリエラー(single event upset: SEU)などの問題が発生する一つの原因となっていることは大きな問題である。

近年, 情報通信において光伝送が主流となってきていることは情報伝送密度における光システムの優位性を明示している。原子力研究ではその極初期から放射線と発光などの光現象との関係は注目されており, 福島の事故以後, 放射線のガス電離作用を利用したGMサーベイメータ(放射線測定器)のみならず, NaIシンチレータを用いた放射線測定器が様々な自治体等において広く使用されていることは周知のことと思われる。しかしながら, これらのものはいずれも, ~ 10 mGy/s 程度までの比較的弱い放射線強度の中での利用であり, $0.1 - 10^4$ Gy/s 程度の放射線強度を持つ原子力システム中核部分での光信号利用はほとんど試みられてこなかったのが実情である。単純な視認性を例にとっても, $0.01 - 1$ Gy/s 程度の放射線場を伴う使用済み核燃料取扱施設においては, 目での確認は放射線で黄色から

茶褐色に曇った分厚い鉛ガラスを通しての分解能の悪い観察しか行えてこなかったし、大型高出力密度の原子炉炉心では運転中（放射線強度としては 10^{2-4} Gy/s程度）は勿論、停止直後（0.1–1 Gy/s程度）も、目視による炉心状態の確認は10 mを超える水を通しての目視以外、考えることすら非常識なこととされているのが実情である。

光ファイバは光計測技術の重要な要素技術の一つであり、主として光信号の伝送媒体として使用される。細径・軽量、広い波長範囲で低損失といった特徴をもち、使用する波長によっては1 dB/km以下の伝送損失で信号伝達が可能である。また、光ファイバの主成分は絶縁物のSiO₂であるため外部からの電磁誘導に強いという特徴をもつ。そのため、従来の使用されてきたメタリックケーブルに変わる伝送媒体として広範囲に使用されている。また、従来のメタリックケーブルに置き換わる使用方法だけではなく、シンチレータと併用することで新たな応用が期待されている[1-3]。放射線による誘起発光現象を生じるシンチレータはガンマ線、中性子線等のすべての放射線に対して感度を有し、その強度、エネルギー情報を取得することができるため、放射線の線量管理のための優れた検出素子として利用できる。このシンチレータからの発光を直接光電子増倍管等の光検出器に入射させるのではなく、光ファイバを用いて遠隔地まで導光することで大強度、強電磁場環境下での放射線計測が可能となる。本報告ではまず、光計測システムの基盤技術である光ファイバの放射線特性、および耐放射線光ファイバの開発について述べたのち、ガンマ線および中性子線の計測手法に関する報告を行う。

2.1.2 耐照射光ファイバ開発

ここでは、一般的に用いられる熔融シリカを基本構成要素とする光ファイバについて述べる。筆者らは熔融シリカに微量なフッ素を添加した耐放射線光ファイバを開発してきた[4,5]。開発した耐放射線光ファイバは、従来広く使用されている耐放射線光ファイバである熔融シリカに微量の水酸基を添加した光ファイバに比べ、優れた耐照射特性を有することが確認されている（後述図1参照）。海外では、熔融シリカに水素を添加し、さらに光ファイバからの脱水素を防ぐために金属ジャケットを採用した耐放射線光ファイバの報告があり[5,6]、フッ素添加光ファイバとほぼ同等の耐放射線特性をもつことが確認されている。しかしながら、金属ジャケットを使用しても脱水素は完全には防げず、金属ジャケット自身の酸化による光学特性劣化の可能性もあるため、長期的な安定利用に適していない。また金属ジャケットの加工には高い技術を要するため、利用のためのハードルが高い。

材料に対する放射線照射効果は、原子はじき出し効果、電子励起効果、核変換効果に分けることができる。この内、核変換効果は一部の特殊な材料以外は中性子の積算照射量（フルエンス）が 10^{25} n/m²を超えるあたりから問題となるもので、光ファイバの寿命は後で述べるように、 10^{24} n/m²程度あることから、基本的には大きな問題とはならない。また、この程度の中性子フルエンスでの原子はじき出し効

果は0.1 dpa（displacement per atom：原子はじき出しの尺度で、材料構成元素一個あたり平均はじき出された回数）程度で、通常の金属系材料や、耐照射特性に優れるアルミナなどのセラミックスでは極端な特性劣化を引き起こす量よりは少ない量と見積られる。一方、金属材料では主として加熱としてしか効果のない電子励起効果は熔融シリカには大きな影響を及ぼす。これは、低いフルエンスでは孤立した電子の欠陥導入として現れ、それが光吸収中心として働くことに起因する。この結果、熔融シリカは茶色に着色するが、数十～数百メートルの長さで使用する光ファイバではこの着色は深刻な問題となる。孤立した電子欠陥とその光吸収挙動については、ガンマ線照射施設（主にCo-60線源、1.17, 1.33 MeVのガンマ線で線量率は最大5–10 Gy/s程度で最大積算線量としては約1–10 MGy程度）で研究が行われてきている。

一方、動いている原子炉炉心や核融合プラズマ近傍では、ガンマ線線量率は最大 10^{3-4} Gy/s程度と3–4桁高くなり、実用に必要とされる積算線量も1 GGy程度となる。このように高い線量率や積算線量では、孤立した電子欠陥は複合電子欠陥に変化すると同時に、電子欠陥から構造欠陥への転換が起きる。この現象を広義にラディオリシス（radiolysis）と呼ぶ。このような状態では、光吸収は孤立した電子欠陥のみではなく、より熱的に安定な複合電子欠陥により生ずるようになると同時に、構造欠陥による光散乱も重要になってくる。例えば、光ファイバの構造として重要なコア/クラッド界面の劣化は、いわゆるマイクロベンディング感受性（光ファイバの特徴である、曲げて使う時に曲げた部分から光が漏れる現象）を増大させ大きな光損失の原因となりうる。

耐放射線光ファイバの照射による損傷例として、開発したフッ素添加光ファイバ（F-doped fiber）、および従来使用されている水酸基添加光ファイバ（OH-doped fiber）に対し、Co-60ガンマ線を照射した際に得られる照射誘起損傷を図1示す。ここで横軸は光ファイバを透過させる光の波長、縦軸はガンマ線照射によって減少した光透過量であり（照射誘起損失）、縦軸が大きければそれだけ損傷が大

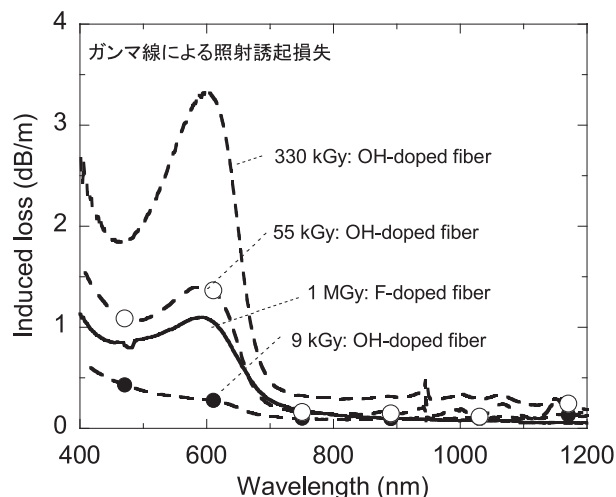


図1 ガンマ線による光ファイバの照射損傷（ガンマ線誘起損失）。

きいということを示す。実線、点線はそれぞれ F-doped fiber および OH-doped fiber の照射誘起損失である。F-doped fiber は耐放射線特性に優れており、ガンマ線を 1 MGy 照射してもその損傷量は 55 kGy 照射時の OH-doped fiber より小さいということが確認できる。ここで、F-doped, および OH-doped fiber において、ガンマ線による照射誘起損失が 1 dB/m (波長: 600nm) を超える積算線量を測定したところ、それぞれ 760, 30 kGy であった。このことから、OH-doped fiber に比べ、F-doped fiber の寿命は 1 桁以上長くなるということがわかる。光ファイバ通信等で広く使用されているプラスチック光ファイバでは耐放射線特性がさらに悪く、数 kGy の照射で図 1 中実線に示す F-doped fiber の損傷量を超えることが確認されている [7]。

図 1 に示すように、フッ素添加光ファイバは耐放射線特性をかなり改善したものであるが、それでも、700 nm 以下の可視領域でいわゆる E'欠陥 (シリカ中の酸素とシリコン結合が切断され、その部分に電子欠陥が結びついた構造、紫外領域にピークをもつ特徴的な光吸収をもつ) と NBOHC (Non Bridging oxygen Hole Center, 非架橋酸素正孔センター、シリコンとの結合を切断されたところに電子空孔を伴った構造、600–650 nm 付近に中心をもつ光吸収を伴う) による典型的な吸収が認められる。ただし、光吸収は 1 dB/m 程度と非常に低く、放射線強度が強い部分での光ファイバの使用を数メートルと押さえた場合には、損失は数 dB/m 程度となり十分実用化に耐えるものである。ただ、この場合にも起動中の原子炉炉心では、 10^{24} n/m² 程度の積算高速中性子フルエンス、随伴する積算ガンマ線線量として 10 GGy 程度では 20–30 dB/m 程度の損失となる。

2.1.3 照射誘起発光を利用した計測技術

筆者らのグループでは耐照射光ファイバを用いた放射線計測技術の開発を行ってきた。光ファイバは長距離信号伝送が可能であり、また蛍光体 (シンチレータ) は外部電源を必要とせず自己発光をもつことから、光ファイバとシンチレータを利用した放射線計測システムは高放射線環境下で有用である。また、光ファイバは軽量細径であるため、コンパクトな放射線計測システムが可能となる。開発研究の一例として、外径 1 mm のフッ素添加光ファイバ、および無機シンチレータ ($Y_3Al_5O_{12}:Ce$) を用いたガンマ線計測システムを試作し、ガンマ線照射試験を実施した。ガンマ線は物質を直接、電離・励起させる働きをもつことから、比較的容易に検出することが可能な放射線種である。しかしながら、光ファイバを使ったシステムではシンチレータだけではなく光ファイバ自身も発光するため注意が必要である。そこで我々は、シンチレータを設置する測定点での線量計測のため、差し引き法 (subtraction method)、および同時係数法 (coincidence method) を用いた線量評価が可能な信号処理システムを製作した。製作した計測システムの放射線センサ部の写真を図 2 に、照射試験により得られたガンマ線線量率依存性を図 3 に示す [3]。図 2 ではサイズ比較のため、BNC コネクタも同時に

撮影しており、細径の放射線検出部であることが確認できる。図 3 より、本システムはガンマ線線量率に対し優れた直線性を有することがわかる。図 3 中の線量率上限は使用したガンマ線照射場の最大強度であり、システムとしては更に 2 桁以上、すなわち 10^2 Gy/h まで計測可能であることが見積もられている。測定できた線量率下限は 10^{-4} Gy/h のオーダーであったが、その値は室内光による生じる大きなバックグラウンドにより制限されていることがわかっている。そのため、フッ素添加光ファイバおよびシステム全体の遮光の高度化により更に低い線量率での計測が可能であると見込まれる。

中性子線照射下での利用に関し、筆者の所属する J-PARC センターでの照射誘起発光技術の利用について述べる。J-PARC センターは JAEA と高エネルギー加速器開発機構 (KEK) が共同で建設・運用している施設である。主な施設としては陽子加速のためのリニアック、3 GeV、50 GeV シンクロトロン、および陽子ビームにより生成する二次粒子を利用した実験施設である物質・生命科学実験施設 (MLF)、ハドロン実験施設、ニュートリノ実験施設である。筆者は、陽子と水銀との核破砕反応により生成する中

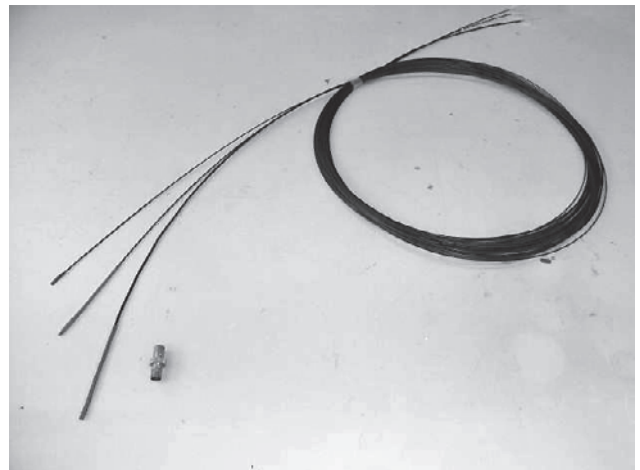


図 2 フッ素添加光ファイバとシンチレータを利用したガンマ線計測システムの検出部の写真。

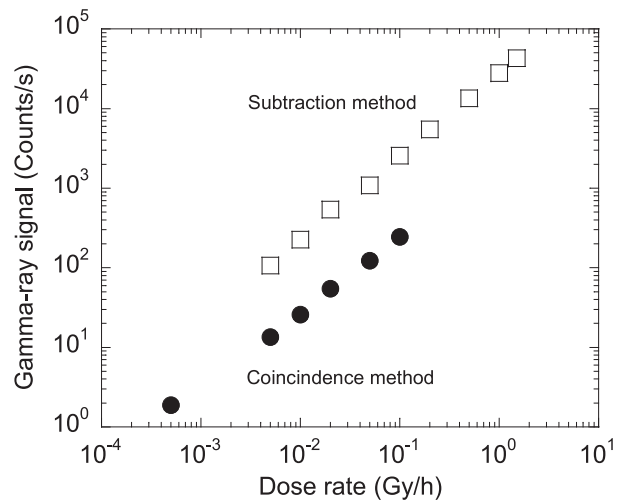


図 3 ガンマ線線量率依存性。

中性子を利用する MLF に所属しており、本報告では MLF における R&D について述べる。MLF は大強度のパルス中性子を利用する施設であり、主に中性子散乱実験に利用されるビームライン (BL) を 23 本有している。試料位置での中性子束は BL ごとに異なるが、 10^{11} n/m²s 程度であるため、測定試料および散乱された中性子を測定する検出器群は大きな遮蔽体に囲まれた照射室内に設置される。

中性子は物質を直接、電離させることができないため、中性子の検出には中性子との核反応により生成する二次粒子を使用している。中性子と核反応を引き起こしやすい (中性子反応断面積が大きい) 物質には He-3, B-10, Li-7, Gd-157 等があるが、中性子散乱実験では、従来 He-3 ガスと中性子との核反応を利用する中性子検出器 (ここでは簡単のため He-3 計数管と呼ぶ) が広く利用されてきた実績があり、MLF でも多くの BL で He-3 計数管を採用している。しかしながら、検出器位置での計数率が低く、He-3 計数管よりも細かい位置分解能が必要な散乱実験を行う BL ではシンチレータを利用した中性子検出器を採用している例があり、ここでは BL18 SENJU 用に開発した検出器について述べる。

SENJU 用検出器の主な性能としては、ピクセルサイズ: 4×4 mm², 有感面積: 256×256 mm², 中性子検出効率: 40% (1.6 Å), ガンマ線感度: 6.0×10^{-6} (60Co), パルス対分解能: 5 μs である [8]。図 4 に検出器システムの外観写真を示す。検出器システムはヘッド部、信号処理部、およびデータ収集部で構成され、このシステムが SENJU 内には 31 組、試料を中心に円筒状に並べて設置されている。検出ヘッド内にシンチレータ、波長シフトファイバが収められ、これらにより中性子検出および、二次元位置決定が行われる [8]。検出ヘッド内のシンチレータ、および波長シフトファイバの写真、および拡大模式図を図 5 に示す。白い板状ものがシンチレータ、ライン状のものが波長シフトファイバ、黒枠は固定用フレームである。中性子により誘起されたシンチレータの発光は、等間隔に縦横に直交させてメッシュ状に並べられた波長シフトファイバによって集光される。集光された波長シフトファイバの位置情報を読み取ることによって、中性子の二次元入射位置を決定している。その他詳細な中性子検出・位置決定手法は文献 [8] を参照されたい。

また近年、世界的な He-3 ガスの供給不足によりその入手

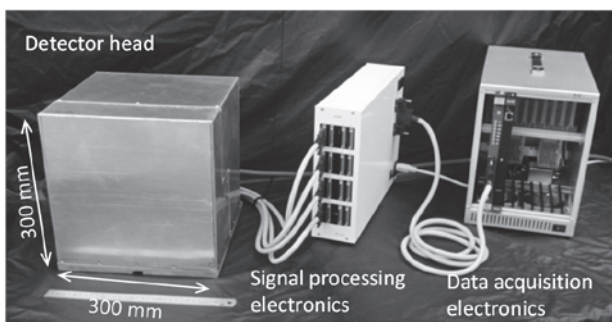


図 4 J-PARC/MLF BL18 SENJU 用に開発された中性子二次元検出器システム。

が非常に困難になってきている。MLF には数百~数千リットルの He-3 を必要とする BL がいくつかあり、それらの BL では必要とする量の確保の見通しが立っていない。このことから、He-3 計数管に置き換わる新たな中性子検出器 (以後、代替検出器と呼ぶ) の開発が急務であり、筆者らは SENJU 等での開発実績を基に、2009 年度から中性子散乱実験での使用を目的として ZnS/¹⁰B₂O₃ セラミックシンチレータと波長シフトファイバによる位置敏感型の代替検出器開発を進めている [9]。この開発成果は核セキュリティ分野、特に MOX 燃料中の U, Pu の検認に使用する保障措置装置や門型ゲート等での特定核物質検知装置における代替検出器開発にも応用されている。開発中の高検出効率型 He-3 代替検出器の写真を図 6 に示す。図 6 上部は試作機外観、下部は試作機の内部構造である。SENJU と同様にシンチレータおよび波長シフトファイバを使用しており、シンチレータ製作や構成要素のパウンダリ法、信号処理等に従来培ってきた技術を応用している。

2.1.4 まとめ

放射線が非常に高く、また障害物などにより遠くからの視認性が困難な場所では何が起きているかを的確に把握することはシステムの安全性確保に極めて重要であり、このことは福島事故でいみじくも強く認識された。光ファイバはそもそもコンパクトで可塑性に優れ、アクセスが容易でない部分での視認、計測に優れており、光ファイバを含む光計測技術は、従来使用されてきた電子/電気信号を用いたシステムでは利用困難であった分野で適応性の高い技術であると考えられている。本報告で紹介したガンマ線・中性子計測は光計測手法を用いたほんの数例にすぎず、それ以外の利用例も多岐にわたる。本節の初めに述べたよう

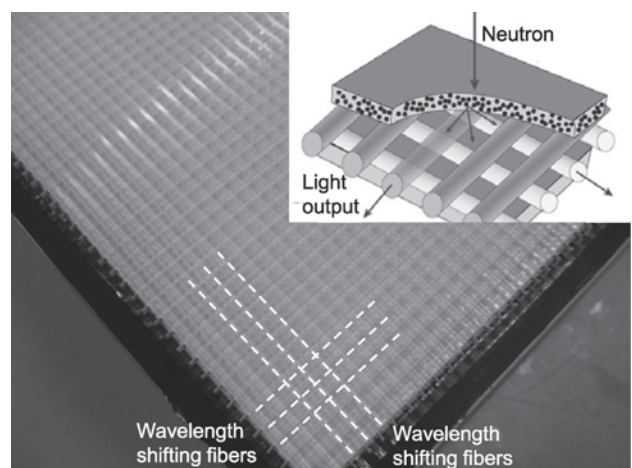


図 5 検出ヘッド内のシンチレータおよび波長シフトファイバ。

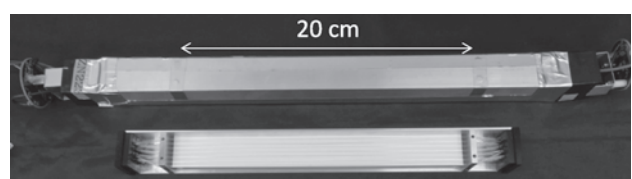


図 6 高検出効率型 He-3 代替検出器・試作機。

に、放射線検出器に万能のものではなく、用途に見合った検出器を十分に検討する必要がある。光技術の発展は日進月歩であり、その発展とともに光技術を用いた放射線計測技術の開発に貢献できればと考えている。

参考文献

- [1] T. Shikama *et al.*, Meas. Sci. Technol. **17**, 1103 (2006).
- [2] T. Shikama *et al.*, Nucl. Fusion **46**, 46 (2006).
- [3] K. Toh *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. A **700**, 130 (2013).
- [4] T. Shikama *et al.*, Fusion Eng. Des. **51-52**, 179 (2000).
- [5] B. Brichard *et al.*, J. Nucl. Mater. **329-333**, 1456 (2004).
- [6] A.V. Bondarenko *et al.*, Instrum. Exp. Tech. **49**, 190 (2006).
- [7] K. Toh *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 814 (2011).
- [8] T. Nakamura *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. A **686**, 64 (2012).
- [9] 中村龍也 他：日本原子力学会 2010 春 C12.