

## 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

# 3. 光ファイバの熱発光特性を利用した ガンマ線照射環境下におけるその場温度計測の基礎研究

## 3. Fundamental Study on In-Situ Temperature Measurement with Thermoluminescence Characteristics of Optical Fibers under Gamma-Ray Irradiation

土屋 文, 藤 健太郎<sup>1)</sup>

TSUCHIYA Bun and TOH Kentaro<sup>1)</sup>

名城大学理工学部, <sup>1)</sup>日本原子力研究開発機構

(原稿受付: 2013年11月5日)

大気雰囲気および1273 Kまでの高温環境下において、0.16 mGy/sの線量率のガンマ線を純粋溶融石英（シリカ）コア光ファイバに照射しながら熱発光および光透過スペクトルをその場で測定し、光ファイバの光学的特性に対する放射線照射誘起効果について調べた。873 K以上において、熱発光ピークが1240 nm および1390 nmの波長に現れ、発光強度がガンマ線照射下においても加熱温度に対して指数関数的に増加することがわかった。同時に行った光透過測定により、これらの熱発光は光ファイバのコア内に存在するSi-OH基の熱振動によることが判明した。これらの熱発光ピーク強度に対する温度依存性を利用することにより、温度上昇時の温度計測が可能であるが、1273 Kの温度一定に保持した場合、発光強度は約100 hrsまでは増加し、その後は減少した。発光スペクトル内の黒体放射によるブロードピークの出現および高分解能透過型電子顕微鏡（HR-TEM）を用いたシリカの結晶成長の観測により、これらの発光強度の変化は非架橋酸素正孔センター（NBOHC）、酸素欠乏センター（ODCs）等のガンマ線照射誘起欠陥と水との反応によるSi-OH基の生成および光の漏洩が要因であると考えられる。光ファイバの熱発光特性を利用した温度計測を確立するためには、計測時間を短縮することや光ファイバの先端を金属で被覆して大気および水に触れないように工夫する必要がある。

### Keywords:

gamma-ray irradiation, pure fused silica-core optical fibers, thermoluminescence, optical transmission, non-bridging oxygen hole center, oxygen deficiency centers

### 3.1 はじめに

光ファイバは電磁ノイズの影響を受けないことから、原子炉や核融合炉内の放射線環境下の情報を得るための新規な遠隔計測装置の一つとして注目されている[1-11]。特に、加熱された光ファイバ自身によって発生する熱発光の強度は温度に依存することから、炉内の温度計測センサーとしての適用が期待されている。純粋溶融石英（シリカ）コア光ファイバを熱すると1390 nmに大きなピークが観察される。これは光ファイバ中に含まれるSi-OH基による熱発光であり、この発光強度から温度を計測することが可能であると考えられている[1-3]。

本研究では大気、1273 Kの高温領域およびガンマ線（線量率：0.16 mGy/s）照射下において、シリカコア光ファイバ中のアモルファス-シリカ（SiO<sub>2</sub>）の光吸収および発光測定をその場で行い、SiO<sub>2</sub>の光学的特性に対する放射線照射誘起効果について調べた。さらに、1273 Kの高温領域で210~250時間加熱されたSiO<sub>2</sub>の構造を高分解能透過電子顕微鏡（HR-TEM: High-resolution Transmission Electron

Microscope, JEM4000EX）を用いて観測し、熱発光および光吸収特性に対する結晶成長の影響について調べた。

### 3.2 実験

本実験では、純粋溶融石英コア光ファイバが使用された。この光ファイバはステップインデックス型であり、コア径およびクラッド径はそれぞれ200および250 μm、長さは9.8 m、Si-OH濃度は約0.001 ppmであった。図1に示すように、この光ファイバを東北大学のガンマ線照射施設に設置されたコバルト（<sup>60</sup>Co）線源周りに置き、大気雰囲気において1.17および1.33 MeVのガンマ線を照射しながら室温から1273 Kまで電気炉を用いて加熱した。光ファイバのジャケットの上から直接加熱し、その加熱された長さは約30 cmであった。光ファイバの両端はそれぞれ白色光源（AQ4303B, 安藤電気）とスペクトラムアナライザ（AQ6315A, 安藤電気）に接続され、ガンマ線照射セル内から外側まで一本でつながられた。1273 Kまでの温度上昇時および1273 Kの一定温度に加熱保持された光ファイバの熱

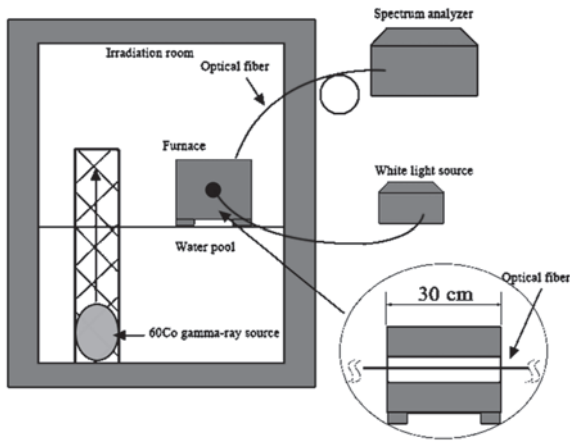


図1 ガンマ線照射環境下における光ファイバの熱発光および光透過その場測定。

発光および光透過スペクトルを350から1750 nmの波長までその場で測定し、熱発光および光吸収特性に対する放射線効果について調べた。このときのガンマ線吸収線量率は0.16 mGy/sであった。また、1273 Kに達した後、一定温度で約210~250時間まで保持し、その間に熱発光および光吸収測定を行った。

### 3.3 結果および考察

#### (1) 光ファイバの熱発光スペクトル

ガンマ照射下において、光ファイバを室温から1273 Kまで加熱することにより測定された熱発光スペクトルを図2に示す。縦軸は発光強度、横軸は発光した光の波長を表す。873 Kから1390 nmの波長に発光ピークが観測されることがわかった。この発光は873 K以下でも生じていると考えられるが、発光強度が低いため、今回使用したスペクトラムアナライザの感度では計測ができなかったと考えられる。この発光ピークの強度は、温度の増加と共に増加し、さらに、小さな発光ピークが1240 nmの波長にも観測された。したがって、これらの発光ピークは、光ファイバ中に形成されたSi-OH基の熱振動によると考えられる[1-3]。図2中の1390 nmの発光ピークの強度を加熱温度： $T$ の逆数( $1000/T \text{ K}^{-1}$ )に対してアレニウスプロットした結果を図3に示す。図3から、発光強度は加熱温度の増加と共に指数関数的に増加することが判明した。この結果は、873 Kからではあるが、発光強度を調べることで、温度を評価することが可能であることを示唆している。また、未照射において、大気雰囲気中でファイバを室温から徐々に加熱しながら熱発光をその場で測定した。図3に示すように、1390 nmの波長における発光ピークの強度は未照射試料の発光強度に比べて若干低いが、ほぼ同様に $1000/T$ に対して指数関数的に増加することがわかった。即ち、このデータの一致は、今回の線量率の場合、放射線場において熱計測が可能であることを示している。

1273 Kの温度に達した後、時間変化に対する熱発光特性について調べた。ガンマ線照射下において、1273 Kの一定温度で加熱された光ファイバの熱発光スペクトルを図4に示す。約700から1750 nmまでの波長における発光強度が

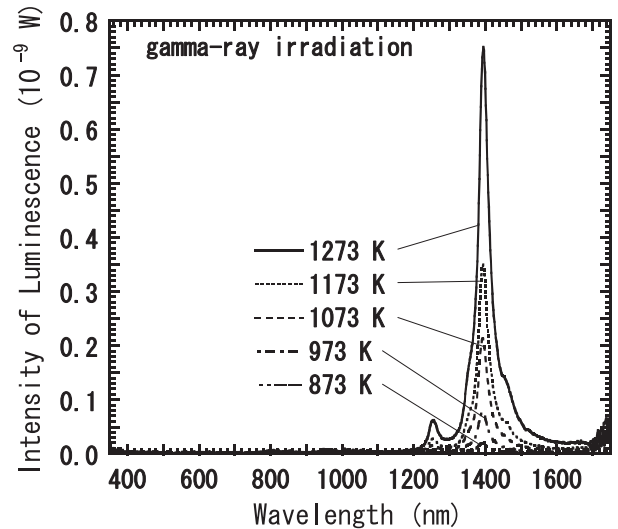


図2 ガンマ線照射下において室温から1273 Kまで加熱された光ファイバの熱発光スペクトル。

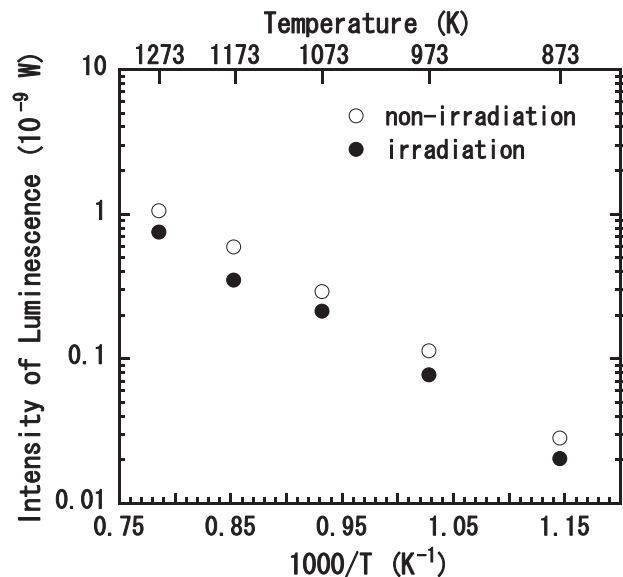


図3 未照射およびガンマ線照射下において加熱された光ファイバの発光ピーク強度(1390 nm)の温度依存性。

約20 hrsから時間と共に徐々に増加することがわかった。このバックグラウンドの増加は、光ファイバが時間と共に徐々に壊れ、電気炉の光(黒体放射)[8]が光ファイバ内に入り込んでいるためと考えられる。実際に、光ファイバを白色光源からはずし、1273 Kの温度まで上昇させた電気炉の中にファイバを挿入すると、約700 nm以上の波長の黒体放射が873 K以上から観測され、そのスペクトルの強度が徐々に増加することを確認した。このバックグラウンドを差し引いたときの1390 nmにおける発光ピーク強度の時間変化を図5に示す。1390 nmにおける発光ピークの強度も約100 hrsまでは時間と共に徐々に増加することがわかった。約100 hrs以上の照射では、1390 nmにおける発光ピーク強度は増加しなくなり、逆に減少した。この時間依存性は、Si-OH基の濃度が約100 hrsの照射時間を境に増減していることが考えられる。または、光ファイバが壊れ、黒体放射を観測していることから、熱発光もファイバから

放出している（光漏洩）可能性がある。さらに、図5中の未照射の場合と似ていることから、Si-OH基の形成メカニズムは、放射線よりも熱的な効果が支配的であると考えられる。

(2) 光ファイバの光透過スペクトル

図4および5中の熱発光強度の増減がSi-OH基の濃度に依存しているかどうかを明らかにするため、白色光源を用いた光透過測定が熱発光測定直後に実施された。ガンマ線照射下において、1273 Kの一定温度で加熱された光ファイバの時間変化に対する光透過スペクトルを図6に示す。縦軸は約400 nmから約800 nmまでの可視光およびそれ以上の赤外光における吸収強度、横軸は白色光源から光ファイバに透過させた光の波長を表す。図6中の約600 nm付近における段差は、検出器交換によるずれを表す。図6から、約1390 nm付近において、光吸収ピークが観測され、また、熱発光ピークと同様に、小さな光吸収ピークが1240 nmの波長にも観測された。これらの光吸収ピークは、光ファイ

バ中に形成されたSi-OH基の熱振動によると報告されており[12-16]、図4中の熱発光ピークにそれぞれ対応していることがわかる。また、1390 nm付近の光吸収ピーク強度は、Si-OH基の濃度に依存するので、図6中の約1350 nmから約1500 nmまでを直線でつなぎ、バックグラウンドとして差し引き、1390 nmの光吸収量を求めた。その吸収量の時間変化を未照射の場合の結果を含めて図7に示す。

ガンマ線照射下の場合、光吸収量は照射時間と共に増加し続けることが判明した。即ち、この結果は、Si-OH基が形成されつづけていることを示しており、未照射試料の結果と比較すると放射線効果が現れていることを示す。また、図6の光透過スペクトルから、光吸収強度は約470から約900 nmまでの範囲において照射時間の増加に伴い減少し、それに反して、約1200から約1750 nmまでの範囲では増加する傾向があることがわかった。900 nm以下の波長領域の可視光は、非架橋酸素正孔センター（NBOHC: Non-bridging Oxygen Hole Center, 650 nm (1.9 eV)）、酸素欠

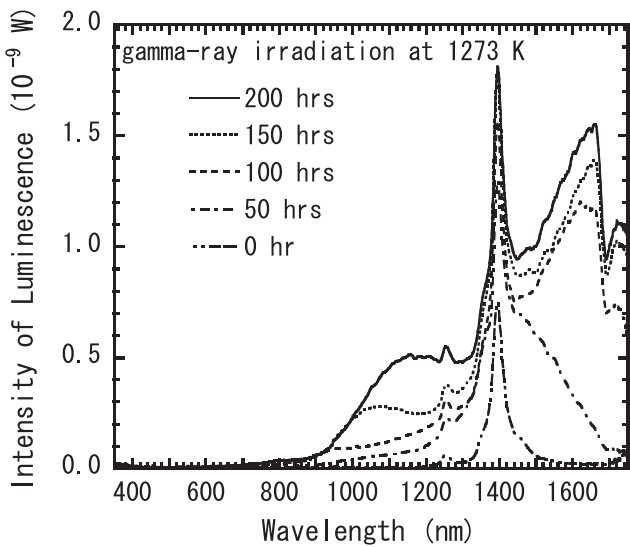


図4 ガンマ線照射下において、1273 Kの一定温度で加熱された光ファイバの時間に対する熱発光スペクトル。

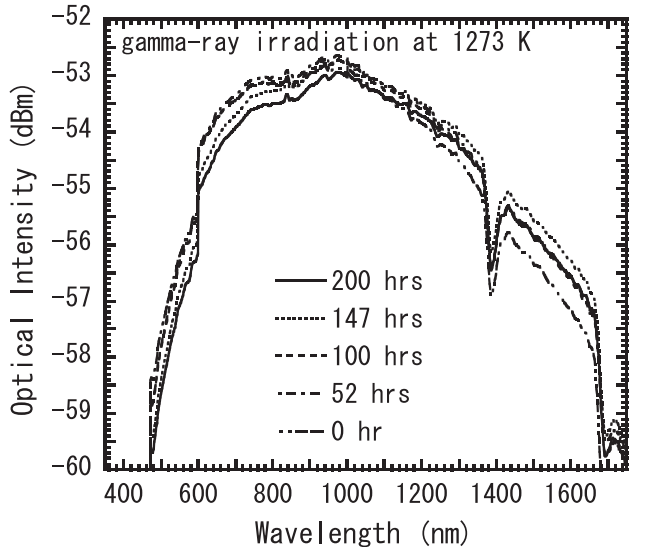


図6 ガンマ線照射下において、1273 Kの一定温度で加熱された光ファイバの時間に対する光透過スペクトル。

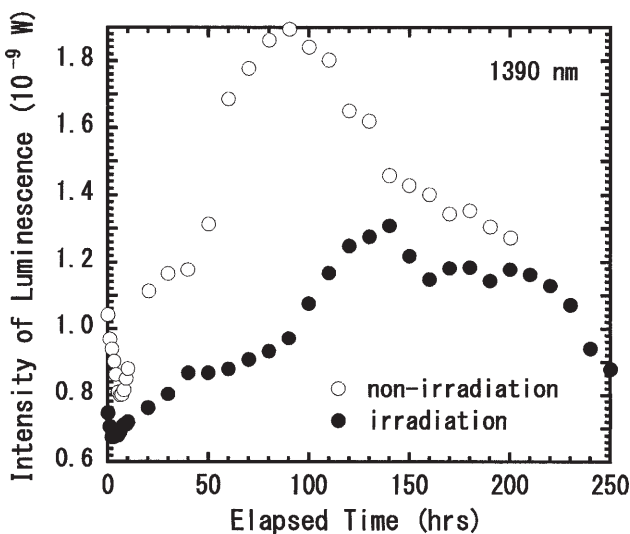


図5 未照射およびガンマ線照射下において、1273 Kで加熱された光ファイバの1390 nmにおける発光強度の時間変化。

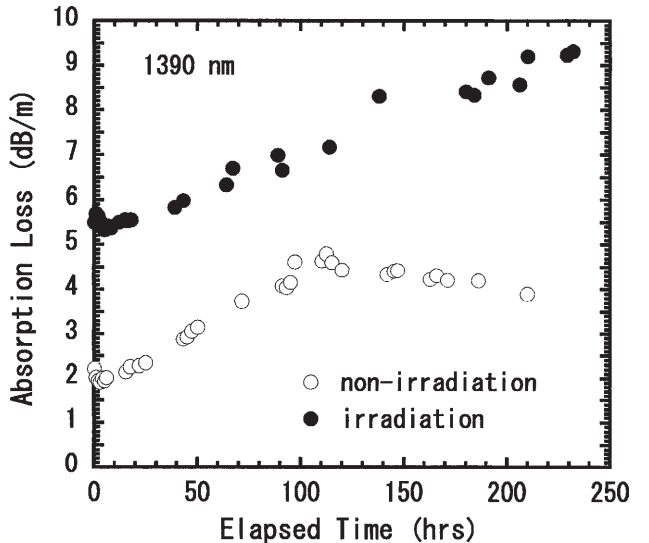


図7 未照射およびガンマ線照射下において、1273 Kで加熱された光ファイバの1390 nmにおける光吸収量の時間変化。

乏センター（酸素空孔欠陥）(ODCs: Oxygen Deficiency Centers, 460 nm (2.7 eV)) [1, 11, 12]等の欠陥に吸収されることが報告されているので、図8に示すように、ガンマ線照射によって生成されたNBOHCやODCs等の欠陥（照射誘起欠陥）が光ファイバ内部に含まれる僅かな水（H<sub>2</sub>O）あるいは大気中の水蒸気から解離して拡散した水素原子（H）と結合し、Si-OH基が形成され続けていると考えられる [17].

未照射試料の場合、光吸収量は時間と共に増加するが、約 100 hrs からほぼ一定になることがわかった。未照射試料の光透過スペクトルからも、900 nm 以下の波長領域の可視光の吸収が観測されたことから、作製時から存在するNBOHCやODCs等の欠陥以外にも 1273 K の高温加熱における熱的効果において生成された僅かなNBOHCおよびODCsがH<sub>2</sub>OおよびHと反応することによりSi-OH基濃度が増加し、熱発光強度が増加したと考えられる。100 hrs 以上になると、Si-OH基生成量の減少に加えて、光ファイバの損耗による光の漏洩によって、熱発光強度が減少したと推測される。光ファイバ内部のコアとクラッド間の界面がSiおよびO原子の熱拡散により乱れ、光の全反射が生じにくくなり、光が外へ逃げていることが考えられる。

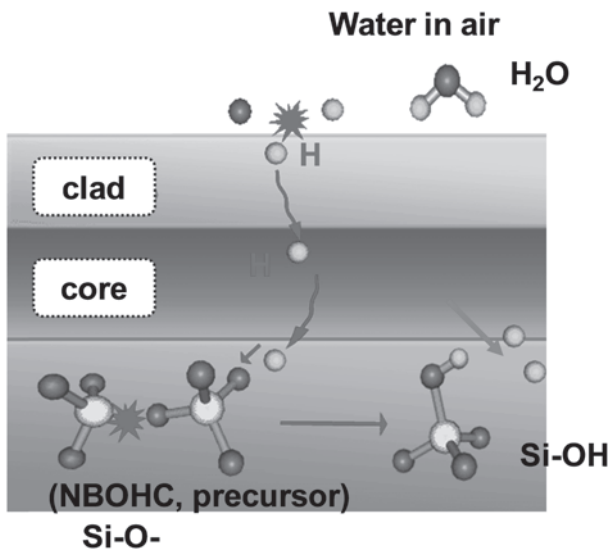


図8 ガンマ線照射下における光ファイバ内部の照射誘起欠陥形成モデルおよびSi-OH基形成モデル。

### (3) 高分解能透過電子顕微鏡観察

ガンマ線照射下において、1273 K の一定温度で250時間まで加熱された光ファイバのHR-TEM像および回折パターンを図9 (b)に示す。直径約 10 nm 程度の干渉縞が観測された。また、回折パターンにスポットとデバイリングが現れ、シリカ（SiO<sub>2</sub>）のアモルファス構造が結晶化していることが判明された。図9 (a)および(c)に示すように、未照射下において、1273 K の一定温度で210時間まで加熱された光ファイバのHR-TEM像は未照射および未加熱の試料におけるHR-TEM像とほぼ同じく、アモルファス構造が保持されていることから、NBOHCおよびODCs等の照射誘起欠陥とH<sub>2</sub>OおよびHとの反応により形成されたSi-OH基同士の結合あるいはSi-OH基のさらなるガンマ線照射による分解等によって、SiO<sub>2</sub>の結晶化が進行したと考えられる。このアモルファスシリカの結晶化が、約 100 hrs 以降の発光の漏洩に大きく影響したと考えられる [3].

### 3.4 まとめ

大気雰囲気において、1273 K までの高温加熱された光ファイバの熱発光および光透過特性に対するガンマ線照射効果について調べた。光ファイバを 873 K 以上に加熱すると、熱発光ピークが 1240 nm および 1390 nm の波長に現れた。光透過測定においても、光吸収ピークが 1240 nm および 1390 nm の波長に現れたことから、この熱発光は光ファイバのコア内に存在するSi-OH基の熱振動によると考えられる。この熱発光ピークの強度は、ガンマ線照射下においても加熱温度に対して指数関数的に増加し、放射線環境下でのその場温度計測が光ファイバの熱発光特性を利用することで可能であることが実証された。しかしながら、1273 K の温度で保持すると、光ファイバの熱発光強度は照射時間の増加と共に徐々に増加した後、約 100 hrs 以上では逆に減少することがわかった。発光強度の増加は、ガンマ線照射によって生成されたNBOHCやODCs等の照射誘起欠陥と光ファイバ内部に含まれる僅かなH<sub>2</sub>Oあるいは大気中の水蒸気から解離して拡散したHと結合して、Si-OH基を新しく形成するためと考えられる。黒体放射によるブロードピークが熱発光スペクトルに観察されことや、シリカの結晶化がHR-TEM観察により判明したことから、約 100 hrs 以降における発光強度の減少は、光がコアおよびクラッド

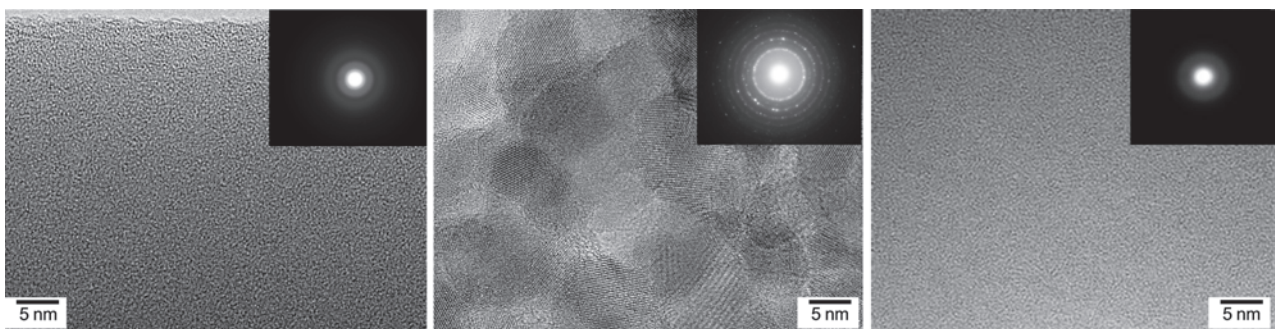


図9 (a)未照射および未加熱、(b)ガンマ線照射および加熱(1273 K, 250 hrs)、(c)未照射および加熱(1273 K, 210 hrs)後の光ファイバのHR-TEM像および回折パターン。

間の界面のみだれやシリカの結晶により散乱され、光ファイバから漏洩したためと考えられる。したがって、光ファイバを用いて放射線照射環境下においてその場で温度を計測する場合は短時間で行うことや、大気中の水蒸気に触れないように光ファイバの先端を金 (Au) 等の金属でコーティングしたり、真空雰囲気保持するなどの工夫が必要である。

#### 参考文献

- [ 1 ] K. Toh *et al.*, J. Nucl. Mater. **329**, 1495 (2004).
- [ 2 ] A. Honda *et al.*, J. Nucl. Mater. **367-370**, 1117 (2007).
- [ 3 ] B. Tsuchiya *et al.*, J. Nucl. Mater. **417**, 810 (2011).
- [ 4 ] R.R. Dils, Appl. Phys. **54**, 1198 (1983).
- [ 5 ] F. Jensen *et al.*, Fus. Eng. Des. **42**, 449 (1998).
- [ 6 ] R. Aymar and International Team, J. Nucl. Mater. **307-311**, 1 (2002).
- [ 7 ] T. Kakuta *et al.*, Fus. Eng. Des. **41**, 201 (1998).
- [ 8 ] A.H. Rose, J. Lightwave Technol. **15**, 808 (1997).
- [ 9 ] K. Okamoto *et al.*, J. Nucl. Mater. **329-333**, 1503 (2004).
- [ 10 ] B. Tsuchiya *et al.*, The International Symposium on Optical Science and Technology, SPIE's 47th Annual Meeting, Proceeding no. **4786-31**, 210 (2002).
- [ 11 ] R. Reichle *et al.*, J. Nucl. Mater. **290-293**, 701 (2001).
- [ 12 ] B. Brichard *et al.*, J. Non-Cryst. Solids **353**, 466 (2007).
- [ 13 ] A.H. Rose and T.J. Bruno, J. Non-Cryst. Solids **231**, 280 (1998).
- [ 14 ] D.B. Keck *et al.*, Appl. Phys. Lett. **22**, 307 (1973).
- [ 15 ] D.B. Keck and R. Tynes, Appl. Opt. **11**, 1502 (1972).
- [ 16 ] O. Humbach *et al.*, J. Non-Cryst. Solids **203**, 19 (1996).
- [ 17 ] R. Salh and H.-J. Fitting, Phys. Stat. Sol (c) **4**, No. **3**, 901-904 (2007).

小特集執筆者紹介



とう けん たろう  
藤 健 太 郎

日本原子力研究開発機構，J-PARCセンター，研究副主幹。福岡県福岡市出身。東北大学金属材料研究所助手を経て現職に従事。専門は放射線計測，放射線物理。現在はガス型中性子二次元検出器を開発中。座右の銘は「役不足」。



なか むら たつ や  
中 村 龍 也

日本原子力研究開発機構，J-PARCセンター，研究副主幹。広島県東広島市出身。イギリス・ラザフォードアップルトン研究所客員研究員を経て現職に従事。専門は放射線計測。現在はシンチレータ型中性子検出器を開発中。座右の銘は「千三つ」。



つち や ふん  
土 屋 文

名城大学理工学部，准教授。神奈川県横浜市出身。名古屋大学大学院工学研究科結晶材料工学専攻博士後期課程修了。最近は，ペロブスカイトおよびパイロクロア型酸化物セラミックス中の水素およびヘリウム挙動について研究を進めています。



なが た しん じ  
永 田 晋 二

昭和40年代に小鳩幼稚園（東京都大田区）を卒園。現在，東北大学金属材料研究所准教授。イオンビームを用いて固体内の水素挙動や光学特性変化を調べています。16年ぶりに新しい車を手に入れましたが，運転席に座るたびにキーホルダーを持った右手をハンドル下に突っ込み，駐車するたびに左手を握ってしまい，苦笑しております。



おお の のり やす  
大 野 哲 靖

名古屋大学大学院工学研究科エネルギー理工学専攻 教授。主な研究は核融合周辺プラズマ物理およびプラズマ壁相互作用。心臓手術を仕事を断る切り札にしてきたが，最近は前より元気そうだとわれ，切り札の効力が消失気味。喜ぶべきか悲しむべきか。



まつ なみ のり あき  
松 波 紀 明

名城大学理工学部非常勤講師。研究分野は低エネルギーから高エネルギーのイオンビームによる材料物性改質とイオンビーム材料分析です。イオンビーム特有な物性改質の非熱的效果，酸化物中の水素検出と水素の役割を追求しています。趣味は読書（サスペンス，歴史）。



あん どう まさ み  
安 堂 正 己

日本原子力研究開発機構 核融合研究開発部門 核融合炉構造材料開発グループ。愛知県出身。主な研究分野は，金属材料の照射効果（硬化）に関する研究。今回の小特集で，貴重な機会をいただき感謝しております。2010年秋に青森に赴任して，4回目の冬ですが，また慣れない雪・氷と戯れております。今日も一面真っ白！です。何事もないことを切に祈るこの頃です。



ひろ せ たか のり  
廣 瀬 貴 規

2002年京都大学大学院エネルギー科学研究科博士後期課程修了。日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門核融合エネルギー工学研究開発ユニット ブランケット工学研究グループ所属。趣味は自転車。モットーは Burn fat not oil.



たに がわ ひろ やす  
谷 川 博 康

日本原子力研究開発機構 核融合研究開発部門 核融合炉構造材料開発グループ 研究主幹，専門分野：核融合炉構造材料，照射効果照射効果が引き起こす事象は厄介ですが，その複雑な世界に学問的魅力を感じつつ，TBM製造，原型炉建設を目指して構造材料研究開発をおこなっています。



の ざわ たか し  
野 澤 貴 史

日本原子力研究開発機構核融合研究開発部門核融合炉構造材料開発グループ研究員，京都大学エネルギー科学研究科博士後期課程修了，博士（エネルギー科学）。核融合炉構造材料（SiC/SiC 複合材料，F82H HIP 接合体）の強度評価，照射試験技術開発に従事。最近は，脆性的材料の規格・基準策定に興味あり。家族（妻と娘）との時間を最優先に，研究活動との両立を模索中。