

## 科学研究費助成事業（科学研究費補助金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 27 日現在

機関番号：24403

研究種目：基盤研究（C）

研究期間：2010 ～ 2012

課題番号：22560829

研究課題名（和文） 液体窒素の放射線誘起爆発現象の研究

研究課題名（英文）

Study of Ozone Explosion of Liquid Nitrogen Induced by Irradiation

研究代表者

谷口 良一（ TANIGUCHI RYOICHI ）

大阪府立大学・地域連携研究機構・教授

研究者番号：60155215

研究成果の概要（和文）：

液体窒素に電子線照射を行い、人為的に「放射線誘起オゾン爆発」を起こし観察を行った。照射実験は電子線形加速器を用い、特に開発したパルス放射線画像装置を用いて観察した。実験結果から見ると、この現象はオゾン爆発と放電による爆発の両方の性格を示している。照射によって液体窒素中に蓄積されたオゾンが放電によって爆発的に分解したという可能性が強い。

研究成果の概要（英文）：

The ozone explosions of liquid nitrogen induced by electron beam irradiation of electron linear accelerator have been observed by the use of pulsed electron radiography system developed. In these experiments, the explosion and the discharge are observed simultaneously. The most probable explanation seems that the discharge phenomenon causes an ignition of the explosion.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010 年度	1,600,000	480,000	2,080,000
2011 年度	1,100,000	330,000	1,430,000
2012 年度	700,000	210,000	910,000
年度			
年度			
総計	3,400,000	1,020,000	4,420,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・原子力学

キーワード：原子力計測、放射線物理、低温照射

## 1. 研究開始当初の背景

液体窒素が放射線照射下で爆発するという現象は、ガンマ線照射、電子線照射、原子炉低温照射などの事故として知られてきた。これらの事故の原因究明の過程で、爆発は液体窒素中に溶存するオゾン濃度と関係が深いとされ、「液体窒素のオゾン爆発」と言われている。確かに、放射線照射によって、液体窒素中の溶存酸素がオゾン化し、オゾン濃度が高まるといふ実験結果は多数報告されているが、放射線以外の方法でオゾン濃度を高めたとしても、それだけでは爆発しない。

強い放射線環境での爆発実験には、強い制約があることから実験例は数少なく、観察に成功した例は、さらに少ない。「オゾン爆発」に至るには、放射線照射特有の過程が存在することも指摘されてきたが、この現象が強い放射線照射下で起こり、再現性の乏しい不安定な現象である上に、高速の不可逆反応であることから、これらの過程の系統的な研究は困難であった。

## 2. 研究の目的

我々は、これまで当研究所の電子線形加速

器での電子線照射実験中に数回この現象に遭遇している。いずれも小規模であったが、実験の中断あるいは実験装置の破損などの損害を伴った。そこで、いわゆる「オゾン爆発現象」の本当の原因を、明らかにするとともに、爆発にいたる過程を明らかにし、いわゆる「オゾン爆発」が、オゾンの生成・分解のみによる現象であるのか、他の原因が寄与しているのか、ということを明らかにすることが本研究の第1の目的である。

放射線環境下であっても低温で実験する機会は多い。実験者は、そのため大量の液体窒素を連続供給して同時に排出する、あるいは、一旦窒素蒸気に変えるなど、過大とも言える対策を強いられ、実験自体が多大な制約を受けてきた。本研究で得られた知見をもとにして、爆発を防ぐための予防策、対策を立てるための指針を見出すことが第2の目的である。

### 3. 研究の方法

**【従来の仮説】** 定説となっている液体窒素のオゾン爆発の過程は以下のようなものである。

(a)液体窒素中に空気中の酸素が溶け込む：

初期状態の液体窒素中には ppm 以下の酸素しか含まれていない。液体窒素が空气に接触することによって、速やかに 100ppm を超える酸素濃度となることが報告されている。

(b)放射線照射によって、酸素がオゾン化：

液体窒素中の酸素は任意の割合で溶存するが、オゾンとなった場合の溶解度は低く、オゾンは、濃度の増大とともに、液体窒素中に固体として析出する。

(c)析出したオゾンが急速に分解、爆発：

液体窒素温度でのオゾンは安定であるが、温度が上がり、何らかのきっかけで固体オゾンの一部が分解した場合、発熱反応であることから、分解が加速され爆発的な反応となる。

(a)、(b)の過程は、研究例も多いが、(c)の部分の観察例はなく、不明な部分の多い過程である。

本研究では、(c)の爆発前後の過程を観測する。放射線源には電子線形加速器を用い、数 MeV のエネルギーの電子による液体窒素の照射を行い、人為的に「オゾン爆発」を起こし、各種のTVによって、その観察を行い、爆発過程の解析を行う。

**【電子線照射装置】** 電子線形加速器は、ビームを絞ることで大線量照射が可能な装置であるが、そのビームも時間幅が数  $\mu\text{sec}$  のパルスであり、時間的に限定された大線量照射を繰り返すことになる。線量は1パルスあたり、およそ1 Gy であり、実験では、加速器の繰り返しを15Hzに固定して照射した。すなわちこの装置で、数分間照射するだけで、数 kGy を超える大線量照射が可能となる。

**【パルス撮像】** また、パルス照射であること

を利用して、過渡的な高速現象が観察できるパルス撮像が可能なカメラ体系を開発、設置した。これは、加速器のパルスに同期した信号をトリガとして、特定の時間領域の映像を得るものであり、 $\mu$ 秒オーダーの時間応答を有した高速のストロボ撮像が可能である。

**【連続撮像】** オゾン爆発が放射線照射と関係した現象であるならば、パルス撮像によって観測が可能であると予想されるが、本来不安定な現象である上に、1回の実験で1度しか観測機会がない。言い換えると、連続のパルス照射を行った場合、パルスに同期した爆発

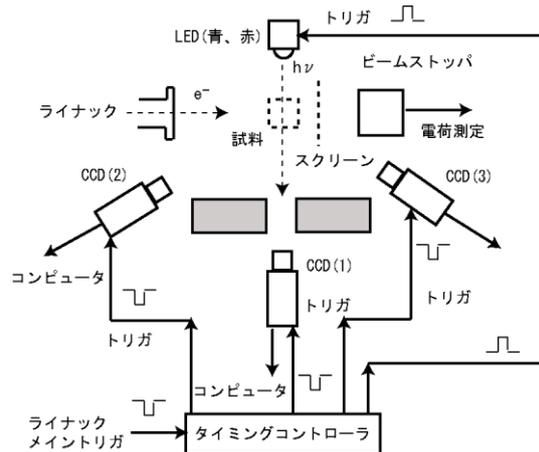


図1 開発した電子線照射観測装置

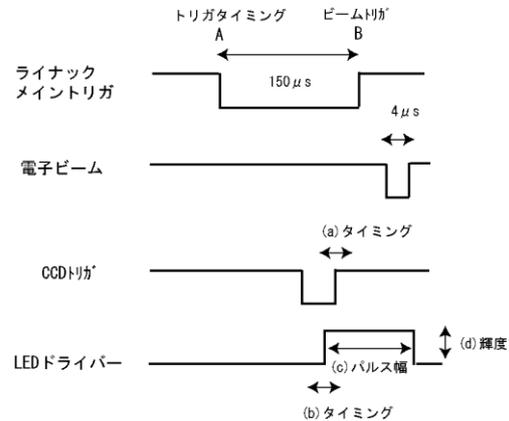


図2 電子線、カメラ、LEDのタイミング

が起こるとしても、どのパルスで爆発するかという事は予想できない。そのため前記のパルス撮像装置は、加速器の繰り返しに対応した15Hzで連続動作が可能なカメラとした。

1画像の大きさは540×480画素のカラー画像であるが、これを1/15秒で転送して記録し続けるため、カメラには、それぞれ専用のコンピュータを接続し、高速のデータ転送を行った。

開発した照射体系の概略を図1に示す。液体窒素は、内部が観察できるようにするた

め、2重のガラス管の内管に満たして照射した。内外のガラス管の間は乾燥空気で満たし、外管の外部は結露を避けるためにブローで連続的に乾燥空気を吹き付けた。液体窒素は遠隔的に補充可能であり、液面の変化を見ながら断続的に補充した。

限られた観測機会に、できるだけ多くのデータを得るために、図のようにカメラを3台用意し、それぞれ照射試料を観察した。

CCD(1)はビームの直交方向から観測するもので、石英レンズを装着し紫外線対応とした。また試料の反対側に青、赤の発光ダイオードを設置し、ビームと同期して一定の光パルスを発光させ光信号の標準とするとともに、試料を透過した各波長の透過率の変化を画像輝度から逐次算出できるようにした。

これらの動作のタイミングを示したものが図2である。基本的な時間原点は加速器のメイントリガであり、電子ビームはこのパルスの立ち上がりから数 $\mu\text{sec}$ 後に入射する。カメラの応答は遅く、トリガから数十 $\mu\text{sec}$ 遅れて動作することから、カメラのトリガは電子ビームよりも数十マイクロ秒早いタイミングで加える。また、ビーム照射後の時間応答変化を観測する場合は、タイミングに一定の遅延を加える。

LEDの発光のタイミングは、任意に設定可能であるが、今回は電子ビームと同じタイミングとし、CCDのシャッター速度は $10\mu\text{sec}$ 、LEDの発光時間も同じ時間幅とした。

CCD(2)は、前方から試料を観測した。タイミング、シャッター速度等はCCD(1)と同じであるが、通常の光学レンズを用い、可視光対応の画像を中心に撮像した。

CCD(3)は通常のTVカメラであり、試料の後方面像を可視光で連続撮像した。

CCD(1)およびCCD(2)で得られた画像は、コンピュータ上でJPEG形式の連続画像として記録され、CCD(3)の画像はDV形式でテープ上に記録された。

#### 4. 研究成果

これらの装置を開発する過程、および装置を用いた照射実験によって以下のような成果が得られた。

##### 4.1 電子線による空気発光の観測

電子線を照射した場合、液体窒素だけでなく、容器、空気等も同時に発光する。これらは、液体窒素照射を観測する際のバックグラウンドとなることから、あらかじめ評価しておく必要があった。同時に、この現象、特に空気の発光を正確にとらえることができれば、電子線照射時の非破壊ビームモニターとして有用である。図3に観測された空気発光像の1例を示す。発光は窒素分子の分子発光で大部分が説明可能であったが長寿命成分が



図3 CCDカメラによって観測された空気の発光分布。ビームは左から右に向かって空气中を通過している。予想よりも多いことが指摘された。これらの成果は、「電子線による空気の発光とビームモニターとしての応用」という題で、第9回日本加速器学会で発表した。

##### 4.2 電子線照射によるガラスの着色の評価

発光現象と同様に、容器の着色も測定時のバックグラウンドとなる。開発した測定体系では、2色のLEDで逐次透過率を測定していることから、容器の着色による透過率の変化を画像計測による輝度変化から観測した。大線量照射によるこれらの着色現象は、着色と脱色を逐次繰り返すとされており、温度に強く依存する。これらの現象をダイナミックに捉えることができた。この結果は「電子線を用いた連続パルスラジオグラフィ法の開発」という題で、非破壊検査協会、平成25年春季講演大会で発表する予定である。

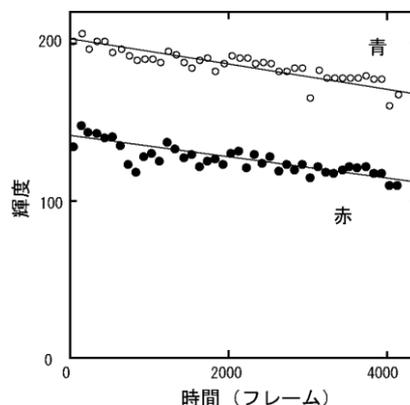


図4 電子線照射によるガラスの着色と、それによる透過率の変化

##### 4.3 連続放射線画像の観測

電子線照射に伴う発光の画像を観測した場合、電子線パルス幅 $4\mu\text{sec}$ に相当する高い時間分解能を持ったストロボ撮影が可能となる。これは、爆発のように激しい動きを伴った対象の観測に極めて有効であるが、何時起こるか予想できない現象では、単発の撮像では力不足である。本研究では高速のIEEE-1394b伝送ラインで画像データを直接

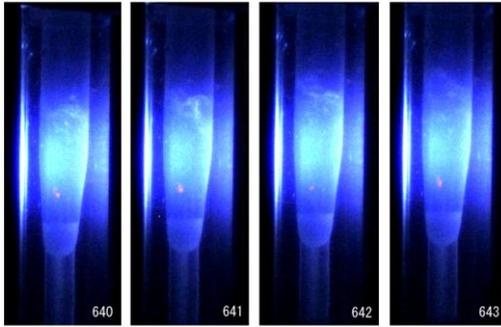


図5 電子線照射時の液体窒素の連続ストロボ画像 (66msec 間隔)

コンピュータに送る方法で、加速器の繰り返し周波数である 15pps に対応した連続撮像が可能となった。図5にその1例を示す。内側のガラス管に充たされた液体窒素の中央部分に電子ビームが照射されている。上部の液面は、激しく変化しているが、各画像の液面の変化は十分弁別可能となっている。これらの結果は、「電子線および紫外線パルスラジオグラフィ法の応用」という題で、非破壊検査協会平成 22 年秋季講演大会で発表した。

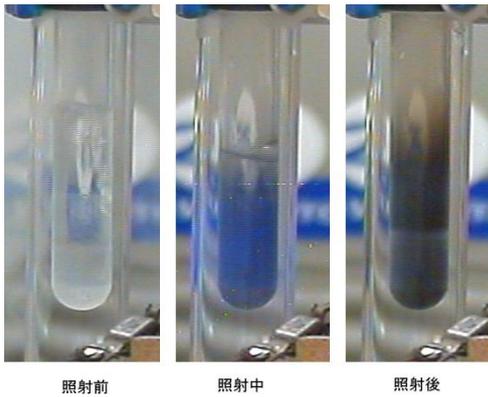


図6 照射前後の液体窒素および容器の変化可視光の連続画像。

#### 4.4 液体窒素照射

開発した照射体系、計測体系を利用して液体窒素の電子線照射を行った。実験は現在までに5回行った。図6は第4回目の実験時の液体窒素および容器の変化を示している。これらの画像はビームの下流側に設置したカメラ (CCD (3)) で撮像したものであり、可視光の連続画像である。図のように、照射前は無色透明であったものが、照射中は青色に変わり、照射後も着色が確認できる。照射後は、これに加えてガラス管の着色が顕著である。

さらに照射中のストロボ画像 (シャッター速度  $10 \mu \text{sec}$ ) の例を図7に示す。図の左画像は、ビーム上流に設置したカメラ (CCD (2))

で撮像したものであり、右画像は直角方向に設置したカメラ (CCD (1)) によるものである。右画像中には、前に述べた2色のLED像が見える。

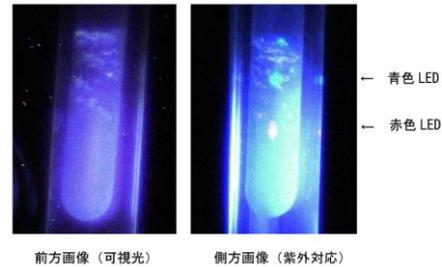


図7 照射中のストロボ画像

この実験体系でビームエネルギーを 6MeV から 8MeV、ビーム電流も  $1 \mu \text{A}$  から  $3 \mu \text{A}$  まで変化させ、合計4回の照射を行ったが、残念ながら爆発現象は観測されなかった。ただし、すべての実験で図6のような青色化は観測されており、液体窒素中にオゾンが蓄積されたことは確実である。これらの結果は「電子線を用いた連続パルスラジオグラフィ法の開発」という題で、非破壊検査協会、平成 25 年春季講演大会で発表する予定である。

#### 4.5 爆発の解析

今回の電子線照射実験で液体窒素の爆発が観測されたものは、照射体系および測定系を構築中の実験で一度観測されただけである。図7にその時の可視光画像を示す。これは内径が約 3cm のデュワに液体窒素を入れ、7MeV の電子を約5分照射した時点で爆発した。デュワの内面が金属コートされていることから内部の様子は不明であるが、上部開口およびデュワの外面に発光が見られた。



図7 液体窒素を入れたデュワが電子線照射によって爆発した瞬間の画像

この様子は放電が起こったことを強く示すものであるが、デュワの破壊に伴って液体窒素、窒素蒸気等が吹き出し、それが電子線照射によって光ったという疑いがある。何よりも、デュワが爆発というよりも放電で破壊した可能性もある。そのため、爆発後のデュワの破片を集め、デュワを再構成してその破壊の様子を解析した。

図8に再構成したデュワの外観を示す。左側が外容器、右側が内容器を示し、つなぎ合わせた部分を赤線で強調して示している。図のように、内容器の方が激しく破壊しており、破壊が内側から起こったことを示している。また外容器の破壊面は図7で示す放電様の模様とはまったく異なったものとなっており、場所も異なっている。

以上のことから、この爆発は内側の上部、詳しくみれば液体窒素の液面付近から始まったものであり、液面付近に析出したオゾンが爆発的に分解したとして矛盾しない。ただし、爆発時に強い発光があり、放電様の模様が出現したことも事実であり、オゾン爆発と放電爆発の両者の様子を同時に示していることになる。



図8 爆発したデュワをつなぎ合わせて再構成した画像

これらの結果は、“Observation of Ozone Explosion of Liquid Nitrogen Induced by Electron Irradiation.”という題で、第16回放射線プロセッシング国際会議 IMRP2011で発表した。

#### 4.6 まとめと考察

[オゾン爆発の過程に関して]

- ・放射線照射によって液体窒素中に溶存している酸素がオゾン化して析出することは、多くの報告がある上に、本実験でも液体窒素が青色化することが見られた。
- ・放電に関しては、今回の実験でも爆発時に

放電と思われる模様が観測された。液体窒素は絶縁体であり照射によって電荷が蓄積することはあり得る。ただし、内径1cm程度の容器では、6~8MeV程度の入射電子の大半は通過することから、電荷の蓄積速度が遅くなることも考えられる。今回、唯一観測された爆発の際の容器の内径が3cmであることを考えると、液体窒素の物理的な大きさが電荷蓄積に寄与すると推測できる。

・放射線過程抜きで、液体窒素にオゾンを、いくら注入しても爆発は起こらないことは数多く報告されている。今回の実験から推測される、爆発過程は、放射線照射によるオゾンの集積に加えて、電荷の蓄積が起り、最終的に放電することがトリガとなり爆発にいたるといことである。

[オゾン爆発の防止に関して]

オゾン爆発の基本的な防止法は、液体窒素に空気を接触させないことであるが、技術的には困難な場合が多い。今回の結果をもとに考えると、これに代わる防止法として、電荷の蓄積を防ぐということも可能性がある。具体的には、ビーム照射の場合、液体窒素の厚さを飛程よりも十分薄くすることは効果的と思われる。また容器を金属製として、電荷の蓄積を防ぐような措置、例えば液体窒素中に接地した網を挿入する。あるいは絶えず攪拌する、等の措置が有効である可能性が高いと思われる。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

1) R.Taniguchi, N.Ito, T.Kojima, S.Okuda, “Study of Ozone Explosion of Liquid Nitrogen Induced by Intensive Irradiation”, Proc. of 25<sup>th</sup> Workshop on Radiation Detector and Their Uses.(2011)pp76-83 (査読有)

2) R.Taniguchi, N.Ito, T.Kojima, S.Okuda, “Observation of Ozone Explosion of Liquid Nitrogen Induced by Irradiation with Electron Linear Accelerator.”, Proc. of 25<sup>th</sup> Linear Accelerator Conference (Sep.12-17, Tsukuba, Japan 2010) CD ROM版、MOP034 (査読有)

[学会発表] (計 8 件)

1) 谷口良一、「電子線を用いた連続パルスラジオグラフィ法の開発」、非破壊検査協会、春季講演大会、2013年6月4日、アルカディア市ヶ谷、東京 (発表予定)

2) 谷口良一、「冷却型CCDの放射線応答」、非破壊検査協会秋季講演大会、2012年10月23日、アルカディア市ヶ谷、東京

- 3) 谷口良一、「電子線による空気の発光とビームモニターとしての応用」、第9回日本加速器学会、2012年8月9日、大阪大学会館、大阪
- 4) 下邨広元、奥田修一、谷口良一、小嶋崇夫、「IPと微弱電子線を用いた電子線ラジオグラフィ」第8回放射線による非破壊評価シンポジウム、2012年2月9日、東京、TFTビル
- 5) 下邨広元、奥田修一、谷口良一、小嶋崇夫、「超微弱ライナック電子線線量分布のIPによる測定とラジオグラフィへの応用(2)」日本原子力学会2011年秋の大会、2011年9月20日、小倉市、北九州国際会議場
- 6) R.Taniguchi、N.Ito、T.Kojima、S.Okuda，“Observation of Ozone Explosion of Liquid Nitrogen Induced by Electron Irradiation.”, 16<sup>th</sup> international meeting on radiation processing, (IMRP2011) 2011年6月14日カナダ, モントリオール市
- 7) 谷口良一、伊藤憲男、小嶋崇夫、奥田修一、「放射線照射による液体窒素の爆発現象の研究」第25回研究会「放射線検出器とその応用」2011年2月3日つくば市、高エネルギー加速器研究機構
- 8) 谷口良一、伊藤憲男、小嶋崇夫、奥田修一「電子線および紫外線パルスラジオグラフィ法の応用」非破壊検査協会秋季講演大会、2010年10月27日、沖縄県、県民会館

〔図書〕(計 0件)

〔産業財産権〕

○出願状況(計 0件)

○取得状況(計0件)

〔その他〕

なし

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

谷口 良一 (TANIGUCHI RYOICHI)  
大阪府立大学・地域連携研究機構・教授  
研究者番号：60155215

### (2) 研究分担者

伊藤 憲男 (ITO NORIO)  
大阪府立大学・地域連携研究機構・助教

研究者番号：90150218

### (3) 連携研究者

なし