

## 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 20 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究（B）

研究期間：2010～2012

課題番号：22360397

研究課題名（和文）高密度量子場光計測のための照射誘起発光体開発に関する研究

研究課題名（英文）Research on radiation induced luminescence for dosimetric system applicable in high-dose-rate radiation environments

研究代表者

四竈 樹男（Shikama Tatsuo）

東北大学・金属材料研究所・教授

研究者番号：30196365

研究成果の概要（和文）：

本研究では、低線量率電子励起場（ガンマ線）、高線量率励起場（イオン）、低線量率高エネルギー中性子場（14MeV 核融合中性子を用いて候補材を中心とした発光挙動解明、それに基づく材料探索を進め、最終候補材料の選定を行った。別途開発を進める耐照射光ファイバと選定された発光体を組み合わせて作成する放射線診断システムを用い、最終的な放射線診断特性を機構面に含めて検証し、本放射線診断システムの実用化への見通しを得た

研究成果の概要（英文）：

For application of optical sensors for a wide range of radiation-dose-rate dosimetry (low dose rate gamma-ray field, high dose rate ions, low dose rate fast neutron, etc.), radioluminescent behaviors of candidate ceramics were examined and materials selection for applicable dosimetric systems were carried out. With radiation resistant silica-core optical fibers, the optical dosimetric system was proposed which had a wide dynamic range and could be applied to a complicated radiation environment such as an environmental radiation monitoring at the Fukushima site.

交付決定額

（金額単位：円）

	直接経費	間接経費	合計
2010年度	9,600,000	2,880,000	12,480,000
2011年度	1,400,000	420,000	1,820,000
2012年度	1,400,000	420,000	1,820,000
年度			
年度			
総計	12,400,000	3,720,000	1,6120,000

研究分野：工学

科研費の分科・細目：総合工学・核融合学

キーワード：発光体、中性子、ガンマ線、イオン、光ファイバ

## 1. 研究開始当初の背景

セラミックなどの局在電子系をもつ材料は放射線との相互作用により発光を示すこと（照射誘起発光；Radioluminescence）が知られている。発光を用いた放射線計装（放射線場そのものを測定するだけでなく、放射線環境下で、種々の環境パラメータを計測する手法）はシンチレーション・カウンターなど古く

から実用化されているが、そのほとんどが、人間がアクセスできるような低レベル放射線環境であり、且つ室温付近の環境である。ここでは、発光を用いた計装（光）が持つ潜在的な特徴、特に既存の放射線計装システムに勝る特徴を顕在化するために、照射誘起発光挙動を検討し、実用が可能なシステムを提示すること研究の背景とした。

## 2. 研究の目的

光を用いた放射線計装システムは既存のシステムと比較して、大きな長所を持っている。具体的には、自己出力であり外部入力が必要としない、コンパクトで耐熱、ロバストな計測システムの実現が可能であることなどが挙げられる。環境放射線レベルの100倍程度までの放射線場でシンチレータが広く実用化されているのに対し、より高い放射線場での実用化が妨げられている最大の理由は、原子力分野の保守性であるが、技術的には、

- ・ 高温で作動する放射線誘起発光体の開発
- ・ 高い放射線場で安定して長期に利用できる(照射損傷により大きな劣化を示さない)発光体の開発
- ・ 放射線損傷により劣化しない光伝送体(光ファイバ、光学窓)の開発

が問題となる。

また、保守的な利用者を説得するには、既存の放射線計装システムでは、なし得ない計装の可能性を示す必要がある。

本研究では、200-500C 程度までの温度領域で作動する発光体を見だし、それによってどのような放射線計装が出来るかについて基礎的な立場から検討することを目的とした。

## 3. 研究の方法

- (1) 試料作製・開発
- (2) 一部の有望な試料について、イオン注入法、蒸着法等の高度な手法を応用し作成
- (3) コバルト照射、FNS 照射、加速器照射での照射誘起発光挙動の評価
- (4) 量子場での発光挙動機構のモデルの確立
- (5) 照射誘起発光挙動を、ガンマ線場を用いて評価、実用につなげる見通しを得る

研究を通じて、照射誘起発光を用いた放射線場計測で一番問題となる、放射線種別、エネルギー弁別に関して、一部の発光体で、放射線種別、エネルギーに依存して発光スペクトルが変化することを見だし、中性子、ガンマ線、イオンの種別弁別が可能であることを示した。また、イオンに関しては同様にイオンエネルギー弁別が可能であることを示した。

また、核融合で用いられることが想定されているリシウム含有酸化物の誘起発光挙動評価から、酸化物の化学量論組成変化、構造変化をオンラインで計測出来ることを示し、さらに、核融合炉工学での大きな課題である、リシウム含有酸化物中の水素同位体(トリチウムが最終目標)の濃度計測が誘起発光強度変化から可能であることを示した。

更に放射線損傷により経時的に発光効率が変化することを利用して、材料と放射線との相互作用を記述する時に重要に相互作用パラメータとなる、原子はじき出し率(放射線エネルギーが原子との弾性相互作用を通じて失われる割合)と電子励起率(放射線が材料中の電場との相互作用を通じてエネルギーを失う割合)を評価出来ることを示した。これは従来の放射線計測では実現できなかったことである。

関連して、福島第一事故後への応用として、放射線環境下で最も安定でかつ、高い効率を持って発光するルビーを用いた、非常に広いダイナミックレンジを持つ放射線計測システムを提案することができた。

## 4. 研究成果

光計装が高出力密度原子炉心でも応用可能なことは、JMTR 燃料領域、800C 高温での熱発光評価による温度計測により示している。発光体の発光挙動評価を通じて、高速中性子に反応する発光体、放射線の種類(中性子、イオン、ガンマ線)に応じて発光スペクトルを変える発光体を見だし、放射線誘起発光を用いて様々な放射線を弁別しながら強度測定が可能であることを示した。

一方、高温において発光強度が低下してしまう現象(サーマルクエンチ)に関しては、ほとんどの発光体がこの挙動を示すことが実験より認識された。しかしながら、一部の発光は500Cを超す高い温度までその強度を示すこと、基本的に温度に依存しないチェレンコフ発光計測が可能なこと、などから、放射線誘起発光を用いた高温での放射線計測は可能であることを示した。

新たに提案できた発光を用いた放射線計測としては、

- (1) 原子はじき出し効果と電子励起効果を分離した放射線計測の可能性
- (2) これまでの計測器では実現できなかった幅広いダイナミックレンジを持った放射線計測システムの提案

が挙げられる。

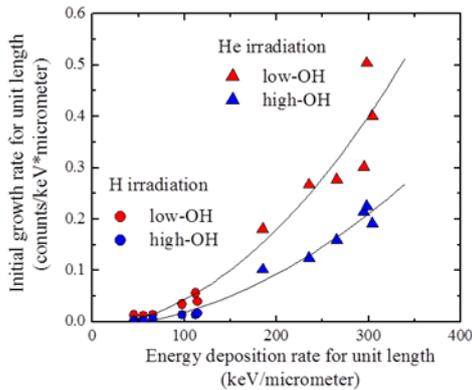
(1)に関しては、図1に示すように、二酸化ケイ素からの450nmの発光強度変化が基本的に電子励起密度に依存すること、また、アルミナからの690nmの発光強度変化が基本的に原子はじき出し密度に依存することから可能となった。この成果については二つの国際会議で招待講演を行った。

(2)に関しては、アルミナ(厳密にはクロムを不純物として含むルビー)の690nmの発光が非常に幅広いダイナミックレンジを持つこと、発光信号の伝送体として耐放射線特性に優れるフッ素添加光ファイバを使用し、外部からの光の遮蔽を工夫することにより、可能性を提示することができた。アルミナか

らの 690nm の発光強度の幅広いダイナミックレンジの例を図 2 に示す。本成果に関しては、福島事故での幅広い放射線計測への応用を提案した。

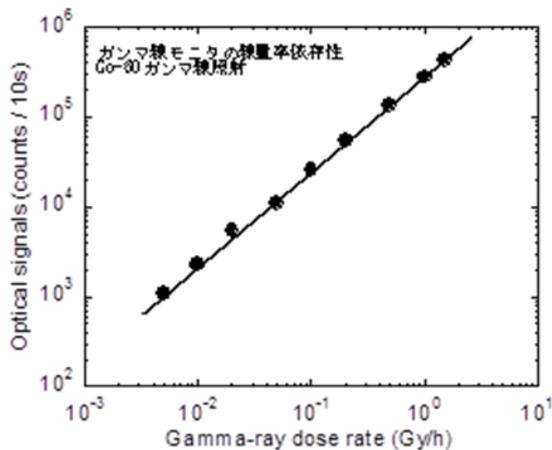
【図 1】

シリカからの発光強度変化は電子励起密度に一義的に依存して変化する。



【図 2】

アルミナからの 690nm の発光強度の放射線強度依存性。幅広い放射線強度範囲で線形性を維持する。下限は基本的に外部からのノイズ(漏れ光)に依存し、漏れ光を低減することにより 10-3Gy/s 程度までの計測が可能と評価される。上限は他のデータからの外挿から 104-5Gy/s 程度と見積もられる。



## 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 10 件)

1. Tsuchiya, B; Nagata, S; Saito, K; Shikama, T, Effects of ion beam surface modification on water absorption characteristics of perfluorosulfonic acid membranes, VACUUM, 査読有, 89 巻, 2013 年, 225-228, 10.1016/j.vacuum.2012.05.019
2. Toh, K; Nakamura, T; Yamagishi, H; Sakasai, K; Soyama, K; Shikama, T, Radiation-resistant optical fiber/scintillator system for gamma-ray monitor, NUCLEAR INSTRUMENTS & METHODS IN PHYSICS RESEARCH SECTION A-ACCELERATORS SPECTROMETERS DETECTORS AND ASSOCIATED EQUIPMENT, 査読有, 700 巻, 2013 年, 130-134, 10.1016/j.nima.2012.10.039
3. Plaksin, OA; Stepanov, VA; Shikama, T; Takeda, Y; Kishimoto, N, Optical diagnostics of collective and non-linear effects in insulators during intense irradiation (vol 417, pg 806, 2011), JOURNAL OF NUCLEAR MATERIALS, 査読有, 426 巻, 2012 年, 298-298, 10.1016/j.jnucmat.2012.02.026
4. Nishimura, A; Takeuchi, T; Nishijima, G; Oguro, H; Watanabe, K; Ochiai, K; Shikama, T, New Superconducting Test Facility in Radiation Control Area for Neutron Irradiation Study, IEEE TRANSACTIONS ON APPLIED SUPERCONDUCTIVITY, 査読有, 22 巻, 2012 年, 10.1109/TASC.2012.2182974
5. Kim, JH; Nagata, S; Shikama, T; Kang, CY, Characterization and performance of fuel cells using BaCe0.9Y0.103-delta electrolyte modified by an ion beam, METALS AND MATERIALS INTERNATIONAL, 査読有, 18 巻, 2012 年, 451-455, 10.1007/s12540-012-3011-5
6. Malo, M; Nagata, S; Tsuchiya, B; Morono, A; Shikama, T, et al., Radioluminescence for in situ materials characterization: First results on SiC for fusion applications, FUSION ENGINEERING AND DESIGN, 査読有, 86 巻, 2011 年, 2470-2473, 10.1016/j.fusengdes.2011.01.071
7. Nishitani, T; Yamanishi, T; Tanigawa, H; Nozawa, T; et al. (10/10 番目),

- Japanese contribution to the DEMO-R&D program under the Broader Approach activities, FUSION ENGINEERING AND DESIGN, 査読有, 86 巻, 2011 年, 2924-2927,  
10.1016/j.fusengdes.2011.07.004
8. Nishitani, T; Tanigawa, H; Nozawa, T; Jitsukawa, S; etal (16/18 番目), Recent progress in blanket materials development in the Broader Approach activities, JOURNAL OF NUCLEAR MATERIALS, 査読有, 417 巻, 2011 年, 1331-1335,  
10.1016/j.jnucmat.2010.12.304
9. Plaksin, OA; Stepanov, VA; Shikama, T; Takeda, Y; etal. Optical diagnostics of collective and non-linear effects in insulators during intense irradiation, JOURNAL OF NUCLEAR MATERIALS, 査読有, 417 巻, 2011 年, 806-809,  
10.1016/j.jnucmat.2010.12.147.
10. Katsui, H; Nagata, S; Tsuchiya, B; Zhao, M; Shikama, T. Damage and deuterium retention in LiAlO<sub>2</sub> single crystals irradiated with deuterium ions using ion-beam techniques and optical absorption measurements, JOURNAL OF NUCLEAR MATERIALS, 査読有, 417 巻, 2011 年, 735-755,  
10.1016/j.jnucmat.2010.12.134

[学会発表] (計 3 件)

1. 四竈 樹男, 原子力環境での光計測、可視化を目指した耐放射線光ファイバ開発, 2012 年電子情報通信学会、ソサイエティ大会、2012 年 9 月 11 日～14 日、富山.
2. T. Shikama, Study on heavy irradiation damage in materials for possible nuclear fusion application in high neutron flux fast reactor of JOYO, 2nd Joint IAEA-EC Topical Meeting on DEVELOPMENT OF NEW STRUCTURAL MATERIALS FOR ADVANCED FISSION AND FUSION REACTOR SYSTEMS, 2012 年 4 月 16 日～20 日、Ispra, Italy.
3. T. Shikama, Application of optical instrumentations to reactor dosimetry for material irradiation study, ANIMMA2011, 2011 年 6 月 8 日, Ghent, Belgium.

[図書] (計 0 件)

[産業財産権] (計 0 件)

○出願状況 (計 0 件)

名称 :  
発明者 :  
権利者 :  
種類 :  
番号 :  
出願年月日 :  
国内外の別 :

○取得状況 (計 0 件)

名称 :  
発明者 :  
権利者 :  
種類 :  
番号 :  
取得年月日 :  
国内外の別 :

[その他]

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

四竈 樹男 (Shikama Tatsuo)  
東北大学・金属材料研究所・教授  
研究者番号 : 30196365

(2) 研究分担者

永田 晋二 (Nagata Shinji)  
東北大学・金属材料研究所・准教授  
研究者番号 : 40208012

趙 明 (Zhao Ming)

東北大学・金属材料研究所・助教  
研究者番号 : 40208012

(4) 連携研究者

藤 健太郎 (Toh Kentarou)  
日本原子力開発機構・J-PARC センター・  
研究員  
研究者番号 : 40344717

土屋 文 (Tsuchiya Bun)

名城大学・理工学部・准教授  
研究者番号 : 90302215