

JAERI-M

88-094

放射線遮蔽窓ガラスの耐放射線性の研究(I)  
—ガンマ線照射による電荷蓄積および着色—

1988年5月

中村 義輝・須永 博美・田中 隆一

JAERI-Mレポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。

入手の問合わせは、日本原子力研究所技術情報部情報資料課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-11 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布をおこなっております。

JAERI-M reports are issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Information Division Department of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokaimura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-11, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1988

編集兼発行 日本原子力研究所  
印 刷 日青工業株式会社

放射線遮蔽窓ガラスの耐放射線性の研究(I)  
— ガンマ線照射による電荷蓄積および着色 —

日本原子力研究所高崎研究所開発部  
中村 義輝<sup>+</sup>・須永 博美・田中 隆一

(1988年4月27日受理)

ガンマ線照射施設で用いられる放射線遮蔽窓ガラスの耐放射線性を評価するため、放射線に誘起された放電破壊現象や着色に関する実験的検討および理論的考察を行った。クラウン系ガラスC25Nおよびフリント系ガラスF36Nの2種類のガラスについて、試料照射後誘電破壊試験、着色・褪色試験を行った。またガラス試料内の放射線誘起導電率、照射下温度および線量率分布の測定を行い、それらの測定結果をもとにしてガラス内の電荷蓄積挙動の解析および検討を行った。

その結果、照射されたガラス内部の過剰電荷密度と電界の分布、照射後の電荷漏洩、電荷蓄積への線量、線量率、温度などの影響が明らかになり、放電破壊の発生にいたる電荷蓄積過程の定量的な取扱いがはじめて可能となった。

Study of Radiation Resistance on Radiation Shielding Window Glass (I)  
- Charge Accumulation and Coloration induced by Gamma Rays -

Yoshiteru NAKAMURA<sup>+</sup>, Hiromi SUNAGA and Ryuichi TANAKA

Department of Development  
Takasaki Radiation Chemistry Research Establishment  
Japan Atomic Energy Research Institute  
Watanuki-cho, Takasaki-shi, Gunma-ken

(Received April 27, 1988)

For estimation of the radiation resistance of radiation shielding window glass in gamma-ray irradiation facilities, radiation induced discharge breakdown and coloration were studied experimentally and theoretically. The post-irradiation tests on the breakdown and the coloration were carried out using crown and flint type glass samples.

Radiation induced conductivity, temperature during irradiation, and dose rate distribution in the samples were measured, and the charge accumulation process was analyzed from measured results.

The distribution of excess charge density and electric field strength in the irradiated glasses, charge leakage after irradiation, the influence of dose, dose rate and temperature on charge accumulation were clarified. These analyses enabled us to estimate the charge accumulation process to the discharge breakdown quantitatively.

Keywords: Radiation Shielding Window Glass, Discharge Breakdown, Coloration, Radiation Induced Conductivity, Dose Rate Distribution, Charge Leakage, Charge Accumulation, Excess Charge, Electric Field Strength, Dielectric Breakdown Test

---

+ Office of Advanced Radiation Technology Project

## 目 次

1. まえがき	1
2. ガラス試料とガンマ線照射	3
3. 誘電破壊試験	5
3.1 照射および試験方法	5
3.2 試験結果	5
3.3 放出電荷量の測定	6
3.3.1 測定方法	6
3.3.2 測定結果	6
4. 電荷蓄積過程の解析方法	16
4.1 ガンマ線照射による電荷蓄積	16
4.2 電荷堆積率分布の計算	17
4.3 非照射下導電率の測定	18
4.4 照射下導電率の測定	19
4.4.1 測定原理	19
4.4.2 測定方法	20
4.4.3 測定結果	20
4.5 ガラス試料内の線量率分布および照射下温度分布の測定	21
4.6 諸定数の算出	22
5. ガラス内部の電荷蓄積過程の解析	32
5.1 解析結果	32
5.2 解析結果の考察	33
6. ガラスの着色および褪色試験	41
6.1 照射および試験方法	41
6.2 試験結果	41
7. むすび	48
謝 辞	48
参考文献	49
付録1 電子線照射によるガラスの電荷蓄積	50
付録2 C 25 Nガラスの低温誘電破壊試験	53

## Contents

1. Introduction .....	1
2. Glass Samples and Gamma-ray Irradiation .....	3
3. Dielectric Breakdown Test .....	5
3.1 Irradiation and Test Method .....	5
3.2 Experimental Result .....	5
3.4 Measurement of emitted Charge .....	6
3.3.1 Measurement Method .....	6
3.3.2 Measured Result .....	6
4. Analytical Method for Charge Accumulation Process .....	16
4.1 Charge Accumulation by Gamma-ray Irradiation .....	16
4.2 Calculation of Charge Deposition Rate Distribution .....	17
4.3 Measurement of Conductivity before Irradiation .....	18
4.4 Measurement of Radiation Induced Conductivity .....	19
4.4.1 Principle of Measurement .....	19
4.4.2 Measurement Method .....	20
4.4.3 Measured Result .....	20
4.5 Measurement of Temperature during Irradiation and Dose Distribution in the Glass Samples .....	21
4.6 Evaluation of Several Constants .....	22
5. Analysis of Charge Accumulation Process .....	32
5.1 Result of Analysis .....	32
5.2 Discussion .....	33
6. Coloration and Fading in the Glasses .....	41
6.1 Irradiation and Test Method .....	41
6.2 Experimental Result .....	41
7. Summary .....	48
Acknowledgement .....	48
References .....	49
Appendix 1 Charge Accumulation by Electron Beam Irradiation in the Glass .....	50
Appendix 2 Dielectric Breakdown Test at low Temperature in the C25N Glass .....	53

## 1. ま え が き

高レベルの放射線、放射能を取扱う部屋の透視窓に使用されている放射線遮蔽窓ガラスが、電荷を持たないX線やガンマ線の照射を受けて破損することが報告されてから、<sup>1)~5)</sup>すでに20年以上が経過している。この破損が絶縁破壊に伴う放電によって起こることは実験的に確認されており、破損を防止する対策として、(1)ガラス組成を適当に選択し、その導電率を高めて空間電荷が溜りにくくする、(2)遮蔽窓を利用しない時は、線源とガラス窓の間に設置している鉛のシャッターを閉鎖して、ガラスが不必要な照射を受けないようにする、などの便宜的対策がとられてきた。<sup>6)</sup>しかし破損に到るまでのガラス内の電荷の挙動については、多くの推論や現象論的説明がなされているものの、定量的説明がなされないために、結論は得られないままになっている。<sup>7)~10)</sup>

Hardtkeら<sup>10)</sup>は、一定方向のガンマ線の場合に置かれた物質中に発生するコンプトン電子の流れを表すコンプトン電流は、ガンマ線の減衰に伴って同様に減衰するため、結果として物質中には負の過剰電荷が残り、絶縁体の場合空間電荷を形成すると推論している。

われわれは、これらの推論をもとにして次元の照射モデルにおける電荷堆積の分布を理論的に求めるとともに、堆積電荷の漏洩を支配する照射下および非照射下の導電率を実験的に求めた。これらの結果を用いて次元の系における過剰電荷の挙動を解析し、ガラス内の電界を計算するとともに、線量率、温度などの照射条件の影響を調べた。また実際にガラスブロックをCo-60ガンマ線で照射して耐放射線性試験を行い、その結果について解析結果と比較した。

大線源照射施設で用いられている放射線遮蔽窓ガラスは、通常数種類のガラスブロックの組み合わせで構成されている。高崎研のガンマ線照射施設に納入されている日本光学工業㈱の放射線遮蔽窓ガラスは全部で10基であり、その代表的な構成は、Fig. 1に示すように照射室内ホット(IN)側表面と室外コールド(OUT)側表面の薄いカバーガラスを除いて、約200mm厚さのF36Nガラス3~4枚、およびF62R4枚程度の組み合わせよりなる。このF36Nガラスは鉛入りガラスであり、過去においていくつかの放電破壊例が報告されている。

このため日本光学工業㈱では、最近の照射施設においては遮蔽材として普通コンクリートを用いている場合が多いことも考慮し、照射室内ホット側の遮蔽窓ガラス1~2層分のみについてはクラウン系ガラスを配置し、放電破壊を生じやすいF36Nガラスの被曝線量を低減する方法を検討している。

今回の耐放射線性試験では、クラウン系ガラス6種類について、最大 $1 \times 10^6$  Rまでの耐放射線性試験を行った。耐放射線性試験の主な内容は、(1)放射線照射後の誘電破壊試験、(2)ガラスの着色および褪色試験、(3)照射下導電率の測定、の3項目である。また照射下および非照射下の導電率測定をもとにして、ガラスの耐放射線性を評価し、組成を選択する上で重要な基礎データとなるガンマ線照射によるガラスブロック内の電荷蓄積挙動の解析および検討を行った。本報告書は以上の調査結果をまとめたものである。

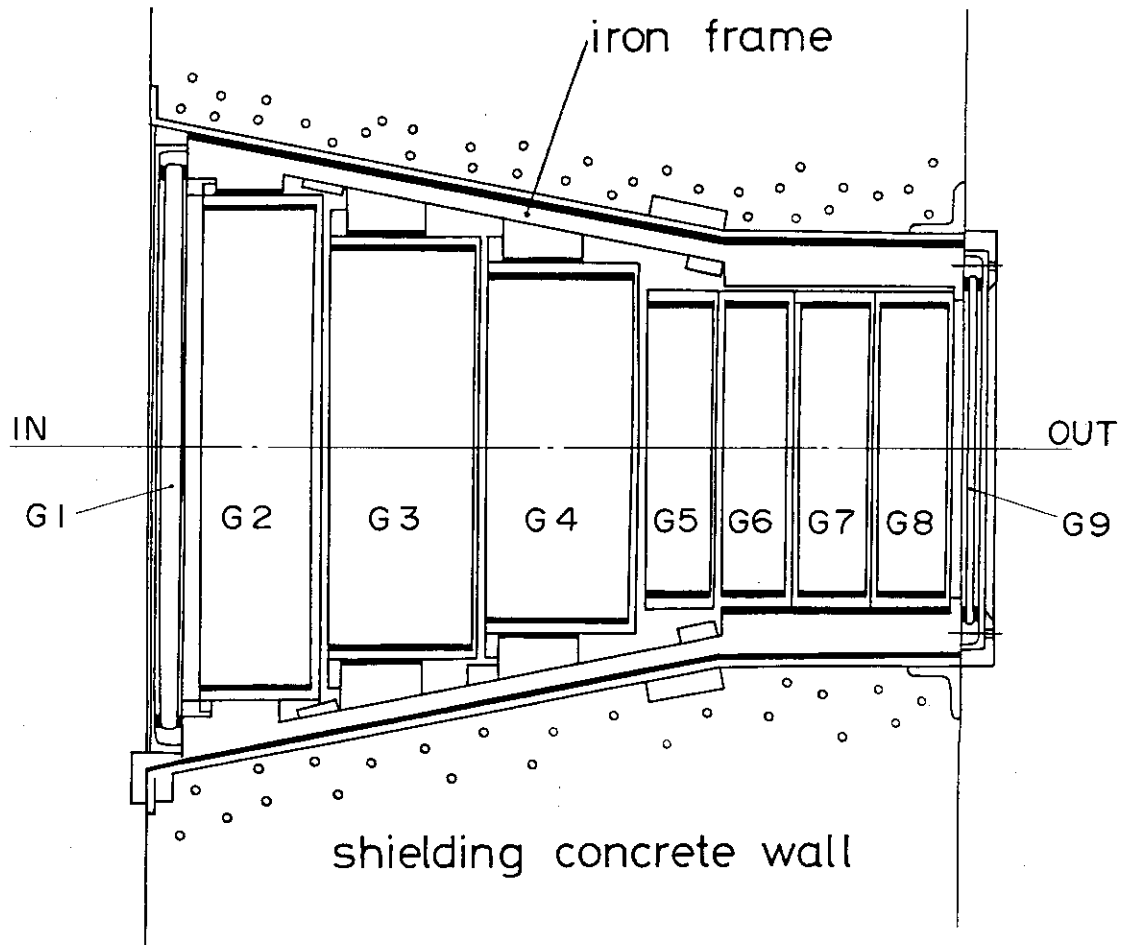


Fig. 1 高崎研のコバルト照射施設に設置されている放射線遮蔽窓ガラスの断面図。ガラスブロックの構成は、G1とG9：CN，G2～G4：F36N，G5～G8：F62Rとなっている。「IN」側が照射室内ホット側，「OUT」側が照射室外コールド側となっている。



## 2. ガラス試料とガンマ線照射

試験に用いた主なガラス試料は、6種類のクラウン系ガラス（C 25 N，密度約  $2.5 \text{ g/cm}^3$ ）である。誘電破壊試験および導電率測定においては、比較のため F 36 N（密度約  $3.6 \text{ g/cm}^3$ ）も用いた。C 25 N ガラスの各製造コード No は、B 1706 (F)，B 1707 (D)，B 1708 (E)，B 1710 (G)，B 1711 (H)，B 1713 (D) で、いずれも安定化ガラスであり、無色透明である。F 36 N ガラスも安定化ガラスであり、light yellow color である。

誘電破壊試験と着色および褪色試験のための、Co-60 ガンマ線照射は、コバルト第 2 棟第 6 照射室において、201 kCi の板状線源（ $180 \text{ cm} \times 30 \text{ cm}$ ）を用いて行った。実際の照射の様子を Photo. 1 に示す。またガンマ線照射を行ったガラス試料のリストを Table 1 に示す。照射は 5 月～9 月の約 4 ヶ月にわたって行った。各試料の照射開始から終了までの間の照射中断時間は、最初の照射時間 100 h の場合を除いて、ほとんどが全照射時間の 2～3% であり、十分小さい値と考えられる。

照射下における導電率の測定は、電子線照射による split Faraday cup 法を用いることにし、高崎研の 2 号加速器を用いて実施した。本加速器は Radiation Dynamics Inc. (USA) の

“Dynamitron” 電子加速器であり、最大電子エネルギー 3 MeV，電流 25 mA，出力 75 kw の性能をもつ。なお照射および測定の方法については、4.4 項で詳しく触れる。

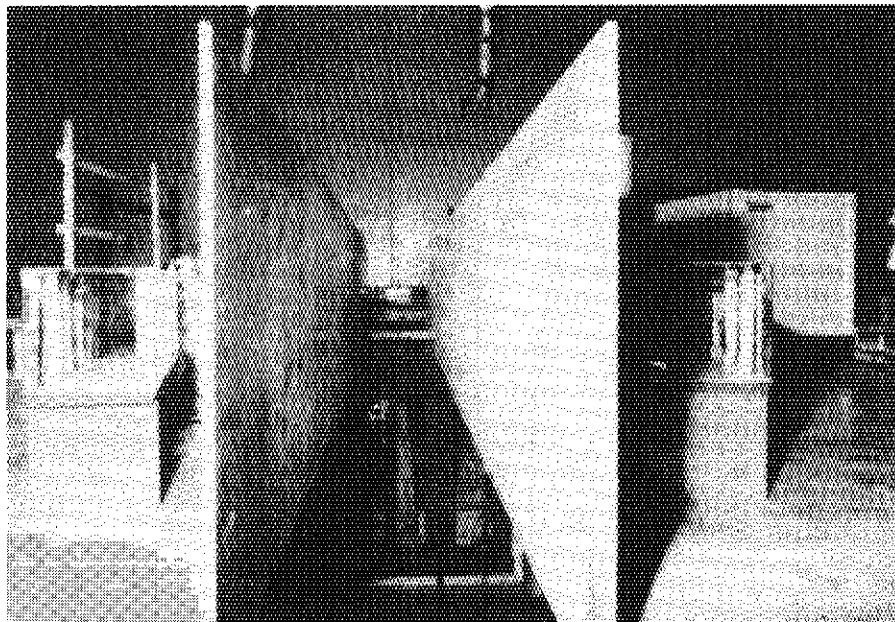


Photo. 1 誘電破壊試験に用いたガラスブロックのガンマ線照射の様子。中央の 2 枚の板が線源保護板であり、その中間に下方から板状線源を上昇・露出させることにより、両側に配置されたガラスブロックを照射する。

Table 1 ガラス試料照射条件一覧表

試験	試料 個数	照射開始 日 時	照射終了 日 時	照射線量率 (R/h.)	照射時間 (h)		照射中断時間(h)		備 考
					照射線量(MiR)	照射時間(%)	照射線量(MiR)	照射時間(%)	
誘電破壊試験	6	5/11 10 : 30	5/15 21 : 12	$1 \times 10^6$	100.0 100	6.7 6.7		C 25 N, 途中4.75 hと21.8 hでもLT*を行なう。全て放電破壊なし。5/15 21:30~22:30でLT。全て放電なし。	
着色試験	21	5/11 10 : 30	5/15 21 : 12	$1 \times 10^6$	100.0 100	6.7 6.7		C 25 N, 5/15, 21:30~23:00で測定。	
誘電破壊試験	6	5/16 9 : 10	5/20 15 : 32	$1 \times 10^6$	100.0 100	2.4 2.4		C 25 N, 5/20, 15:50~16:30でLT。全て放電なし。	
着色試験	21	5/16 9 : 10	5/29 9 : 10	$1 \times 10^6$	307.0 307	5.0 1.6		C 25 N, 5/29, 9:30~11:00で測定。	
誘電破壊試験	6	5/21 13 : 37	6/3 10 : 10	$1 \times 10^6$	304.8 305	3.6 1.2		C 25 N, 6/3, 10:30~11:10でLT。全て放電なし。	
"	6	6/4 15 : 59	6/17 13 : 57	$1 \times 10^6$	300.0 300	10.0 3.3		C 25 N, 6/17, 14:20~15:20でLT。全て放電なし。	
着色試験	21	6/25 13 : 34	8/7 10 : 58	$1 \times 10^6$	1,011.1 1,011	18.3 1.8		C 25 N, 8/7, 分光光度計不調のため、照射直後の測定できず。	
誘電破壊試験	6	6/25 13 : 34	8/7 10 : 58	$1 \times 10^6$	1,011.1 1,011	18.3 1.8		C 25 N, 8/7, 11:10~11:40でLT。全て放電なし。	
"	2	8/3 10 : 53	8/7 10 : 58	$5 \times 10^5$	93.5 46.8	2.6 2.8		F 36 N, 8/7, 11:40~50でLT。荷重124 kgと84 kgで放電破壊発生。	
"	1	8/11 18 : 00	9/1 11 : 10	$5 \times 10^4$	493.0 24.7	4.0 0.8		F 36 N, 9/1, 11:25でLT。荷重188 kgで放電破壊発生。	
"	2	8/27 9 : 40	9/1 11 : 30	$2 \times 10^5$	119.3 23.9	2.5 2.1		F 36 N, 9/1, 11:40~50でLT。荷重128 kgと147 kgで放電破壊発生。	
"	2	8/31 9 : 37	9/1 13 : 10	$1 \times 10^6$	26.2 26.2	1.3 5.0		F 36 N, 9/1, 13:20~40でLT。荷重82 kgで放電破壊発生。他の1ヶは荷重装置破損のため荷重不明だが、放電破壊発生。	

\* LT : Lichtenberg Test

### 3. 誘電破壊試験

#### 3.1 照射および試験方法

照射線量率は、最大照射線量  $1 \times 10^9$  Rの照射を効率的に行うため、 $1 \times 10^6$  R/h の値を標準とした。ただしF36 Nガラスについては、線量率の影響を検討するため、 $5 \times 10^4$  R/h および  $2 \times 10^5$  R/h の低線量率域でも照射を行った。線量率は、あらかじめ空気中で得られている照射場の空間分布を基準とし、試料の線量率は試料表面での空間線量率によって表した。

試験に用いたガラスブロックは、 $100 \times 100 \times 100$  mmの立方体であり、6面のうち相対する2面と他の1面の計3面を研磨したものである。試料はいずれも鉄製の架台（広さ  $300 \times 100$  mm、高さ 90 mm）上に、厚さ 5 mm のゴムシート 2 枚敷き、その上に試料間隔を 5 mm 以上にとり、最大 3 個まで横に並べて照射した。照射におけるガンマ線入射方向は、相対しない研磨面の側からとし、破壊試験時に放電破壊がよく観察できるようにした。またこの研磨面と反対側の相対する試料面に、照射前に導電塗料（日立粉末冶金製、HITASOL, AB-1）を塗布し、その上にアルミフォイルを貼付した。このアルミフォイルは、誘電破壊試験時の放電電荷量のための電極に用いた。

誘電破壊試験装置Fig.2 に示すような、エアースリンダを用いた荷重装置であり、最大 200 kg までの加圧が可能である。本装置は、コンプレッサー（日立SH-5S4F）から、約  $5 \text{ kg/cm}^2$  の一次圧で圧縮空気を供給し、2つの調節弁を介して電磁弁に導き、電磁弁の開放によりシリンダーを加圧させるものである。加圧の速度はエアースリンダーへの空気流入量に大きく依存するので、あらかじめ空気供給量調節弁をコントロールしておき、次に電磁弁の開閉を何回か繰返し、圧力ゲージの指示がほぼ  $0 \text{ kg/cm}^2$  に戻ってから、加圧速度は数分で 200 kg まで到達するようにしたが、試験サンプル毎に多少変動した。

ガラスブロックへの加圧は、シリンダーロッド先端の鋼球（6.3  $\phi$ ）を、アルミフォイル電極面（ガンマ線入射側の研磨面）上に接触させて行った。CMX ロードセル（200 kg）の出力はデジタル指示計（DAM-2000 A, 東洋ボールドウィン製）に接続され、そのアナログ出力を記録計に取り出した。代表的な加圧速度のパターンをFig.3 に示す。静圧荷重が 200 kg に達していない曲線は、その荷重値で放電破壊が発生したことを示している。

#### 3.2 試験結果

誘電破壊試験結果の一覧表をTable 2(a)およびTable 2(b)に示す。C 25 N 試料は、100, 300, 1,000 Mrad の照射を行い、各試料は照射終了後約 200 kg までの荷重をかけたが、いずれの試料も全く放電破壊を生じなかった。この結果は、鉛を含有していないC 25 Nガラスの導電率がかなり高く、電荷漏洩が多いため、内部の電荷蓄積が少ないことを示唆している。

このため、放電破壊の報告例が多い鉛入りガラスF36 Nを用いた比較実験を追加して行った。F36 Nガラスブロックについては、試料数が少ないため、全線量は約 25 MR の一定値とし、線量

率の影響を検討するため、 $5 \times 10^4$ 、 $2 \times 10^5$  および  $1 \times 10^6$  R/h の3つの異なった線量率で照射した。線量率  $5 \times 10^5$  R/h、線量 46.8 MR の照射は、試験条件検討のために、予備的に行ったものである。これらの照射条件でのガラス内部での電荷蓄積は、4項で述べる計算による解析から、十分飽和状態に達しているものと見なされた。試験の結果、F36N試料はいずれも放電破壊を生じ、Lichtenberg pattern (LP) が観測された (Photo. 2 および Photo. 3)。特に線量率  $1 \times 10^6$  R/h の2個の試料のうちの一つ (試料番号 36-5) については、非常に大きな LP が観察され試料全体にわたってクラックの発生がみられた (Photo. 4)。

しかし同一照射条件のもう一つの試料 (36-7) については、大きな LP は観測されなかった。この相違の原因としては、照射終了後から試験までの時間がわずかに異なる (約 10 分間) こと、ガラスの組成に差異があることなどが考えられる。肉眼による観察から、大きな LP を生じた試料の方が着色が少ない事実が後に見出されたが、このことは放電とそれに伴う発光によって、多少褪色する可能性も考えられるが、ガラス組成に差異があったのではないかと思われる。

F36Nガラスについての照射線量率と放電破壊時の静圧荷重との関係を Fig. 4 に示す。線量率 (対数目盛り) と静圧荷重との間に、直線的な関係が成立している。また発生した LP の肉眼で見える範囲の大きさの観測結果を、Table 3 に示す。LP の平均的な大きさは、深さ約 70 mm、広がり直径 45 ~ 50 mm であった。このことはガラスブロックの立方体内に蓄積電荷が均一に分布すると仮定すると、約 11 ~ 14 % の電荷量が放電に寄与していることを示す。放電時の発光測定<sup>10)</sup>の報告例によれば、発光の範囲は LP よりかなり広い領域に達しており、おそらく放電に寄与している範囲も肉眼で見える LP より大きいと考えられる。

なお今回の耐放射線性試験においては、当初蓄積電荷の漏洩試験も予定していたが、C25Nガラスが全く放電破壊を起こさなかったため、この試験は省略した。

### 3.3 放出電荷量の測定

#### 3.3.1 測定方法

誘電破壊試験において、ガラス放電破壊時の放電電荷量の測定も行った。C25Nについては放電破壊を生じなかったため、F36Nガラスについてのみ測定を行った。放電破壊は、かなり短時間の過度現象と推測され、計測における困難さが予想されたため、ソニーエレクトロニクスに協力を依頼し、測定を行った。測定のプロックダイアグラムを Fig. 5 に示す。

放電電荷量の測定手段としては、コンデンサーによる充電方法や、高抵抗両端に発生する電圧波形の積分法などが用いられている。ここでは放電電流を直接測定する方法を採用した。これによって放電電流の波形が明確に観測された。放電はマイクロ秒以内の過度現象であるので、インピーダンスマッチングのため、測定機器、同軸ケーブルおよびコネクタなどの結合素子は全て 50 オームの系に統一した。Programmable digitizer としては、7912 AD を主な設定機器とし、7612 D を長時間現象側の記録用にセットして、補助的に使用した。

#### 3.3.2 測定結果

放電電流波形の代表的な観測例を Fig. 6 および Fig. 7 に示す。図中の電流波形は入力インピー

ダンス 25 オーム、アッテネーターによる減衰率が 1/1000 における観測結果である。初期の短時間で大きなマイナス電流が流れ、続いてプラスの減衰電流が持続的に流れる傾向が見られる。マイナス側電流波形は、パルス幅が約 120 ns のほぼ三角形を示し、ピーク値は約 10 ~ 20 A であった。正味の放電時間は約 0.1  $\mu$ s であり、前掲文献 10) での発光(light flash) 時間 2 ~ 3  $\mu$ s に比べて、はるかに短い。

以上の測定で得られた放電破壊時の瞬時電流値、放電電荷量、パルス巾の観測結果を Table 4 に示す。放電電荷量は、マイナス側の波形部分だけで約 0.6 ~ 1.3  $\mu$ C であった。プラス側の波形部分の全電荷量はマイナス側より大きい。この電流寄与は明らかではないが、おそらくガラスブロック表面などに付着した正電荷によるものと推定される。

また  $1 \times 10^6$  R/h で照射した試料のうち、大きな LP が発生した試料 (36 - 5) については、放電電荷量が桁違いに大きく、測定不能であった。昭和 42 年に行われた日本光学工業㈱の試験研究においても、F 36 N ガラスでは放電電荷量が 10  $\mu$ C 程度に達する観測例も得られている。また文献 10) でも照射線量に比例した電荷量が観測され、25 MR の照射で約 20  $\mu$ C の電荷量が報告されている。

Table 2 (a) 誘電破壊試験結果一覧表 (1/2)

ガラスの 種類	No	照射線量率 (R/h)		照射時間 (h)	照射線量 (MR)	中断時間 (h)		荷重速度 (kg/min)	放電の有無	照射終了後 の経過時間 (min)	備 考					
C 25 N	1706 - 3							200 / 3.4	無	20						
	1707 - 3							200 / 2.4	"							
	1708 - 3	1 × 10 <sup>6</sup>	100.0	6.7	100.0			200 / 5.6	"							
	1710 - 3										198 / 4.3	"				
	1711 - 3												195 / 4.5	"		
	1715 - 3														196 / 5.2	"
1715 - 2	195 / 2.9									無						
1710 - 7																
1711 - 6		195 / 3.6	"													
1707 - 6				195 / 3.2	"											
1706 - 6						195 / 3.2	"									
1708 - 7								195 / 3.4	"							
1706 - 2	198 / 2.2									無						
1707 - 2											198 / 2.2	"				
1708 - 2		197 / 2.2	"													
1710 - 2				198 / 2.2	"											
1711 - 2						198 / 2.2	"									
1715 - 1								198 / 2.2	"							
1707 - 5	195 / 5.2									無						
1706 - 5											195 / 5.6	"				
1708 - 5		195 / 6.3	"													
1710 - 5				196 / 6.8	"											
1711 - 5						196 / 7.3	"									
1713 - 9								197 / 1.2	無							
1713 - 2	198 / 3.1									"						

Table 2 (b) 誘電破壊試験結果一覧表 (2/2)

ガラスの 種類	No.	照射線量率 (R/h)	照射時間 (h)	照射線量 (MR)	中断時間 (h)	荷重速度 (kg/min)	放電の有無	照射終了後 の経過時間 (min)	備 考
C 25 N	1706 - 1					197 / 1.5	無	15	
	1707 - 1					197 / 2.6	"	}	
	1708 - 1					198 / 2.8	"		
	1710 - 1	$1 \times 10^6$	1,011.1	1,011.1	18.3	198 / 2.8	"		
	1711 - 1					198 / 2.8	"		
	1715 - 2					198 / 2.8	"		45
F 36 N	36 - 2	$5 \times 10^5$	93.5	46.8	2.6	123 / 1.2	有		50
	36 - 3					83 / 1.1	"	55	" ( " )
F 36 N	36 - 6	$5 \times 10^4$	493	24.7	4.0	188 / 3.3	有	15	Qd = 0.72 (LP は小さい)
F 36 N	36 - 8	$2 \times 10^5$	119.3	23.9	2.5	128 / 2.0	有	13	Qd = 1.25 (LP は小さい)
	36 - 4					147 / 2.3	"	24	Qd = 1.0 ( " )
F 36 N	36 - 5					82 / 1.3	有	10	Qd の測定失敗 (LP が大きい)
	36 - 7	$1 \times 10^6$	26.2	26.2	1.3	—	"	20	" (LP は小さい)
L 35 C	35					—	"	25	Qd = 0.61 ( " )

+ No. 36 - 5 サンプルの誘電破壊試験において、大きな放電破壊が発生し、その放電電流の一部がロードセル側に流入したため、デジタル指示計が損傷し荷重速度の計測が不能となった。

\* Qd : 放出電荷量 (μC)

※ LP : Lichtenberg Pattern

Table 3 F36 Nガラスのリヒテンベルグパターンサイズの測定結果

試料番号	照射線量	照射時間 (h)	照射線量 (MR)	LPの深さ (mm)	LPの広がり 直径(mm)	備 考 (LP発生時の荷重)
	(R/h)					
36-6	$5 \times 10^4$	493	24.7	70	50	
36-2	$5 \times 10^5$	93.5	46.8	80	55	83 kg
36-3	$5 \times 10^5$	93.5	46.8	75	50	123 kg
36-4	$2 \times 10^5$	119.3	23.9	70	50	147 kg
36-8	$2 \times 10^5$	119.3	23.9	70	45	128 kg
36-5	$1 \times 10^6$	26.2	26.2	70	45	LPの曲がりあり
36-7	$1 \times 10^6$	26.2	26.2	100	-	LPは全て側面に達した

Table 4 放電破壊時の瞬時電流値, パルス幅および放出電荷量

試料番号	電流ピーク値	パルス幅 (ns)	放出電荷量 ( $\mu\text{C}$ )	備 考 (照射後測定までの時間)
	(A)			
36-6	9.8	142	0.72	——
36-8	19.7	118	1.25	13 min
36-4	15.7	115	1.00	24 min
35	10.1	115	0.61	L35 Cガラス

註) 試料番号35のガラスを除いて他はいずれもF36 Nガラス。

試料の照射条件は、Table.3に示したものと同様であり、照射線量は約25 MR程度の一定量とした。



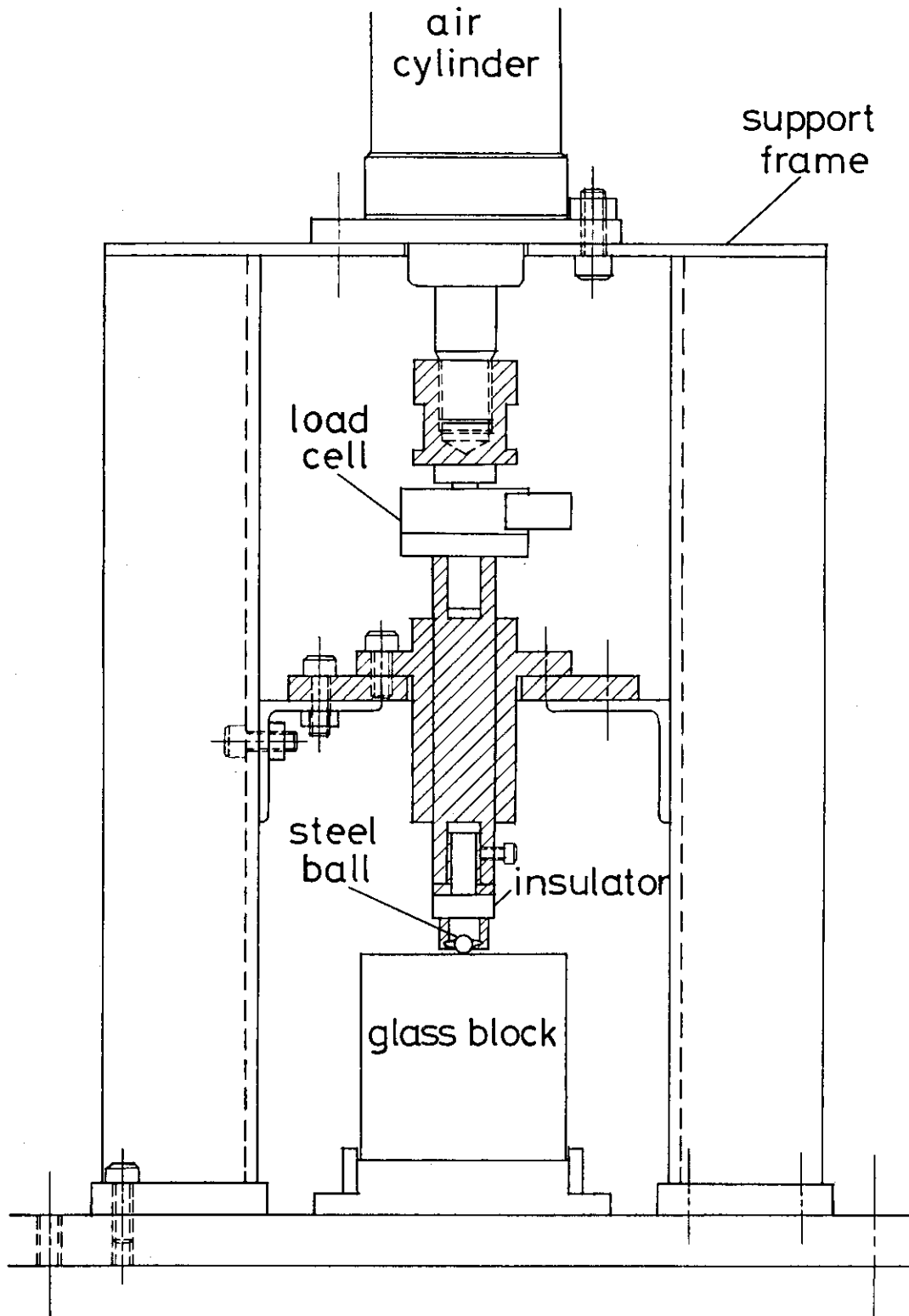


Fig. 2 誘電破壊試験に使用した加圧実験装置の断面図

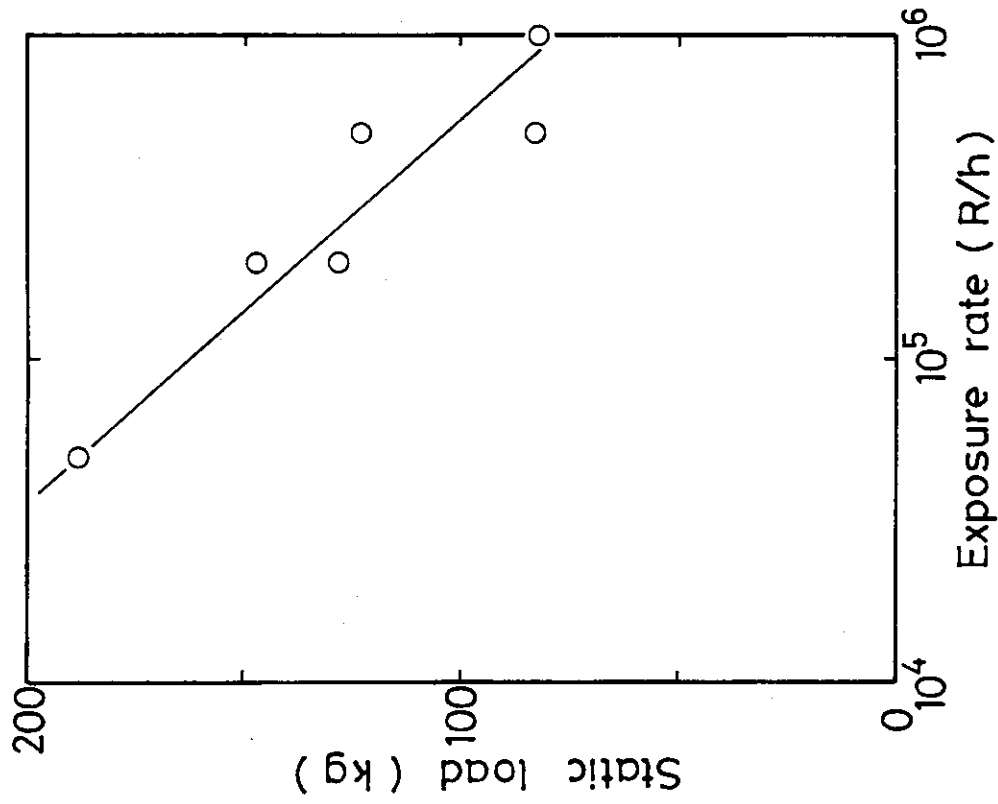


Fig. 4 誘電破壊試験における放電破壊発生時の荷重と照射線量率との関係

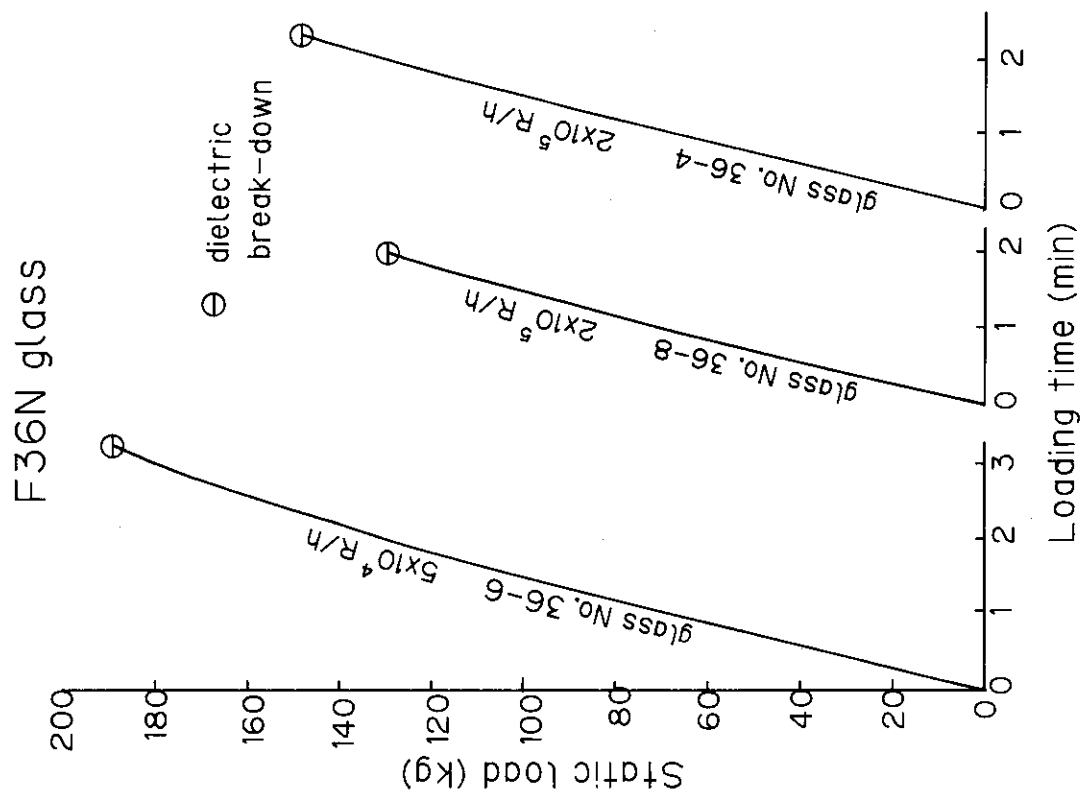


Fig. 3 誘電破壊試験での試料加圧曲線の代表例

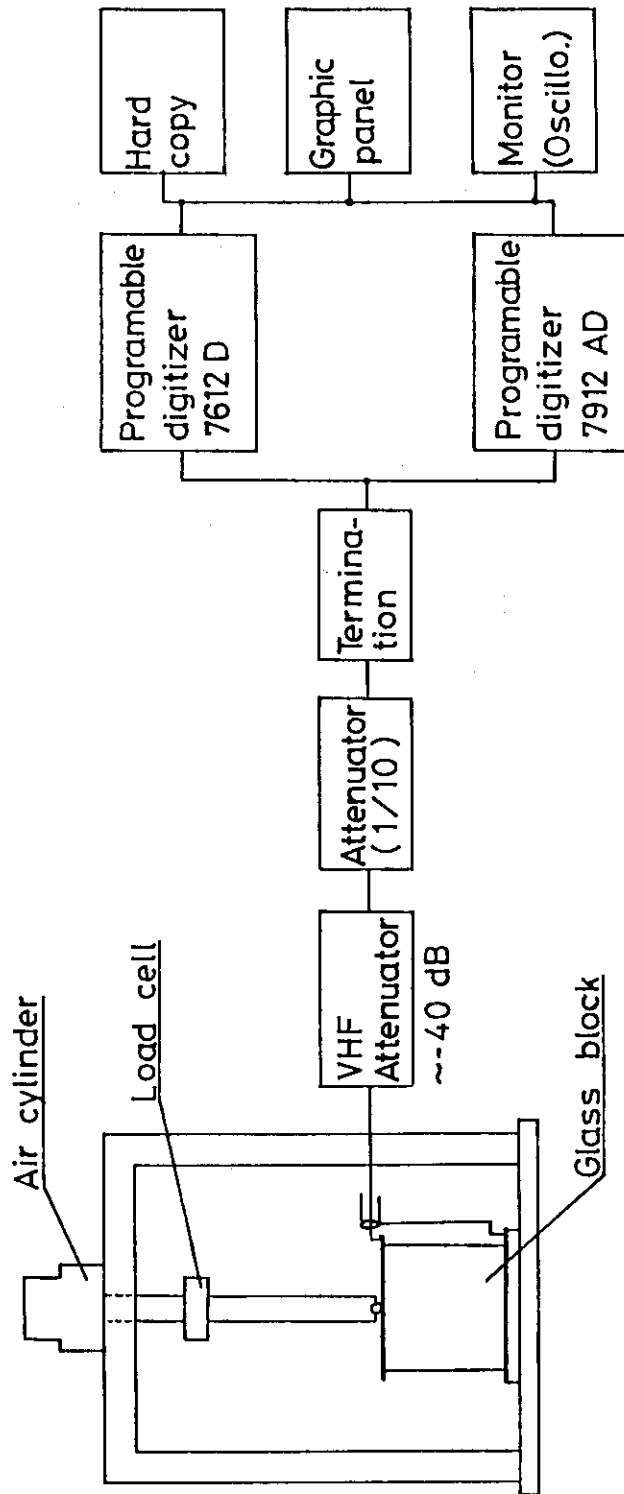


Fig. 5 放電電流の電荷量測定のためのブロックダイアグラム

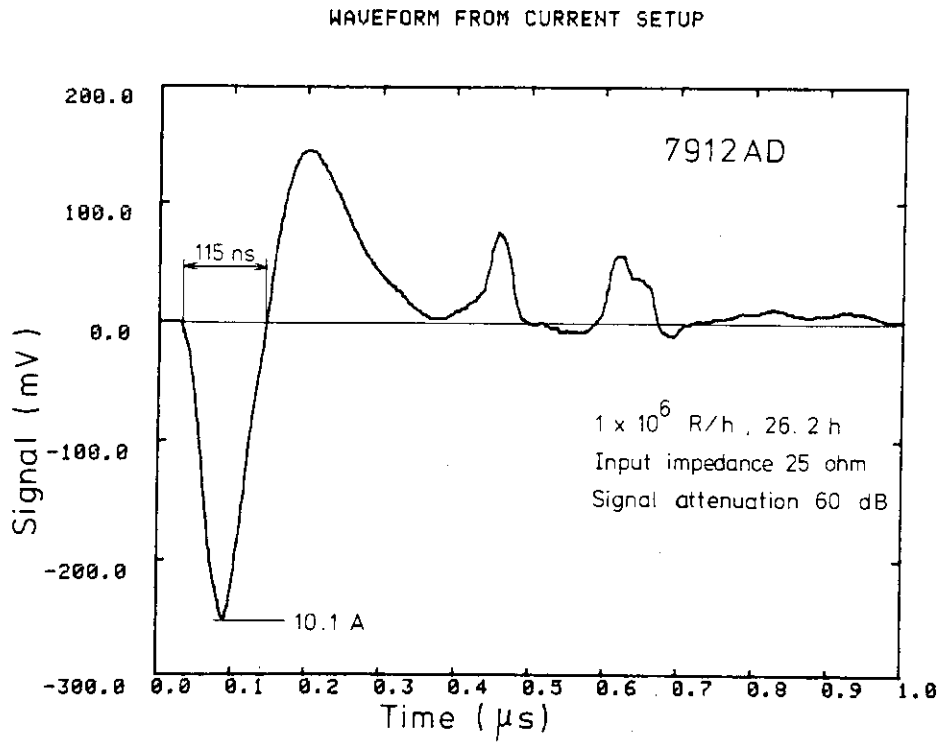


Fig. 6 放電破壊発生時の電流破形の測定例 (F36 Nガラスは, 1 MR/hで26.2 h照射された)

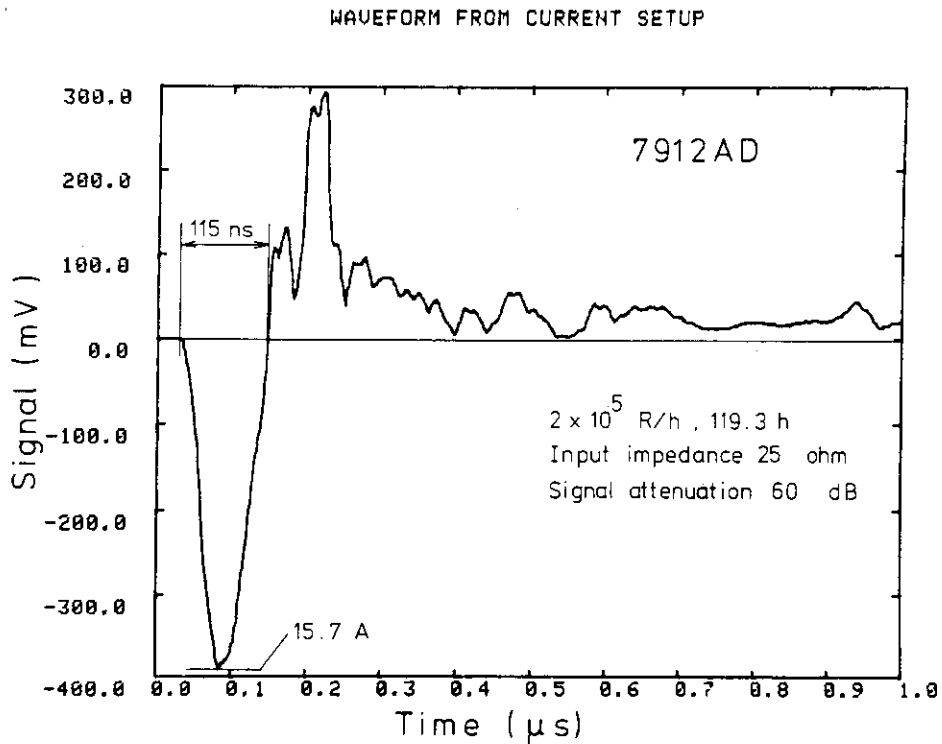


Fig. 7 放電破壊発生時の電流波形の測定例 (F36 Nガラスは, 0.2 MR/hで119 h照射された)

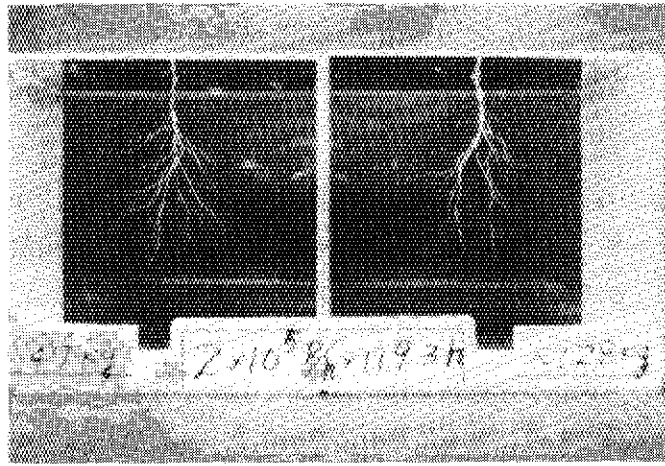


Photo. 2 F36 Nガラスブロックに発生した小規模なLichtenberg crack (側面からの様子)

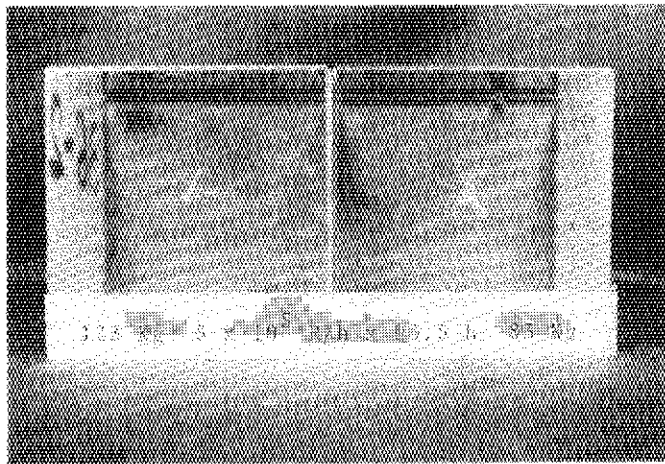


Photo. 3 F36 Nガラスブロックに発生した小規模なLichtenberg crack (正面からの様子)

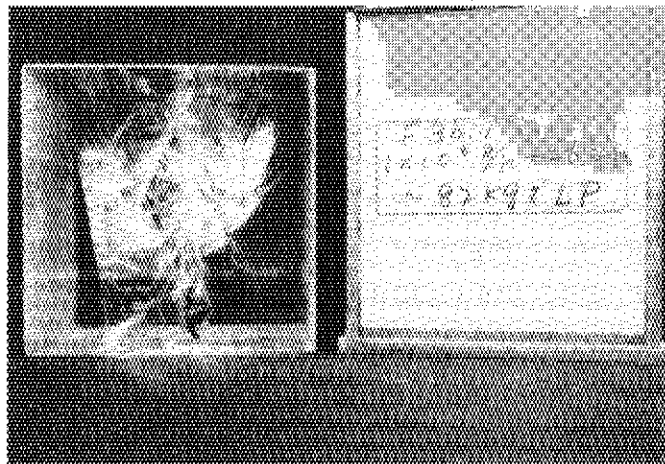


Photo. 4 F36 Nガラスブロックに発生した大規模なLichtenberg crack (側面からの様子：大きな層状の割れがガラスブロックの表面にまで達している)

## 4. 電荷蓄積過程の解析方法

Co-60 ガンマ線のような高エネルギー光子が絶縁物内に入射した場合、コンプトンおよび光電相互作用による高エネルギー電子の発生、および熱化の過程によって過剰電荷が生成する。コンプトン電子と光電子は一次光子の入射に対して前方向に放出されるが、この電子放出によって生じた正孔が形成するプラスの過剰電荷が、それより後方で放出された電子の熱化によって電氣的に中性化されるかぎり、過剰電荷は生成しない。しかしながら通常こうした電氣的な中性化が成立しないため過剰電荷の生成が起り、さらに照射の継続によってこれらの電荷が蓄積され内部電界が形成される。

### 4.1 ガンマ線照射による電荷蓄積

ガンマ線を照射した絶縁体内の過剰電荷の挙動は、一次元モデルに対して連続方程式(1)およびポアソン方程式(2)によって与えられる。<sup>1)</sup>

$$\frac{\partial Q(x, t)}{\partial t} = e \cdot G_r(x) + \frac{\partial}{\partial x} \{ \sigma(x) E(x, t) \} \quad (1)$$

$$\frac{\partial E(x, t)}{\partial x} = -\frac{1}{\epsilon} Q(x, t) \quad (2)$$

ここで  $x$  は絶縁体内の深さ (cm),  $t$  は照射開始後の時間 (s),  $e$  は電子電荷 (C),  $Q(x, t)$  は過剰電荷密度 ( $C \cdot cm^{-3}$ ),  $e \cdot G_r(x)$  は定常照射のもとで高速二次電子の熱化によって形成される過剰電荷堆積率分布 ( $C \cdot cm^{-3} \cdot s^{-1}$ ),  $\sigma(x)$  は平衡状態における照射下での導電率 ( $S \cdot cm^{-1}$ ),  $E(x, t)$  は電界強度 ( $V \cdot cm^{-1}$ ),  $\epsilon$  は誘電定数 ( $F \cdot cm^{-1}$ ) である。 $\sigma$  については一般に次の経験式が与えられる。

$$\sigma(x, T) = \sigma_r(x, T) + \sigma_0(T) = k(T) \dot{D}(x)^{\Delta} + \sigma_0(T) \quad (3)$$

ここで第1項は放射線誘起導電率 ( $\sigma_r$ ), 第2項は非照射下での導電率である。 $\dot{D}(x)$  は吸収線量率 ( $rad \cdot s^{-1}$ ),  $K(T)$  と  $\Delta$  は実験で与えられる定数,  $T$  は絶対温度 (K) である。 $\sigma_0$  については4.3項で、また  $\sigma_r$  については4.4項で述べる。

$\dot{D}(x)$  の分布は内部電界の増大によって時間的に変動することが予測されるが<sup>1,2)</sup>、簡単のためにここではその変動を無視した。(1)および(2)式は数値解析によって解けるが、そのためには  $G_r(x)$ ,  $\dot{D}(x)$  の近似式を与える必要がある。これらの近似式については、それぞれ4.2項と4.5項で述べる。

## 4.2 電荷堆積率分布の計算

ガンマ線照射による放射線遮蔽窓ガラスの放電破壊の現象は、電子平衡厚さよりはるかに深いバルク領域での電荷蓄積に起因する放電破壊と考えられるので、準電子平衡<sup>13)</sup>が成立する媒質内部における過剰電荷蓄積の検討を行った。準電子平衡領域における過剰電荷生成の一次元モデルをFig. 8に示す。線束密度 $N_0$  ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )の平行光子束の入射方向に関する発生電子の平均透過距離、すなわち平均射影飛程<sup>14)</sup>を $R_p$  (cm)とすると、電子平衡厚さより内部の深さ $x$  (cm)にある微小厚さ $dx$ の領域から一次光束によって放出される電子束 $dn_1$  ( $\text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ )は、

$$dn_1 = N_0 \mu_1 \exp \{ -\mu_1 (x - R_p) \} dx \quad (4)$$

によって与えられる。ここで $\mu_1$ は一次光子の線減弱係数 ( $\text{cm}^{-1}$ )である。 $N_0$ と照射線量率 $X$  (R/h)との関係は次式で表される。

$$N_0 = 1.509 \times 10^4 \cdot X / \{ E_0 \cdot (\mu_e / \rho)_{air} \} \quad (5)$$

ここで $E_0$ はガンマ線入射エネルギー (MeV),  $(\mu_e / \rho)_{air}$ は空気の質量エネルギー吸収係数 ( $\text{cm}^{-2} / \text{g}$ )である。次に微小厚さ $dx$ から離脱する一次光束からの電子束 $dn_2$ は、

$$dn_2 = N_0 \mu_1 \exp (-\mu_1 x) dx \quad (6)$$

で与えられる。 $R_p$ は一次光束の平均自由行程に比べて十分短いと仮定すると、平行な一次光束による過剰電荷の発生密度 $G_{pp}(x)$ は、 $dn_1/dx$ と $dn_2/dx$ との差

$$G_{pp}(x) = -N_0 \cdot \mu_1^2 \cdot R_p \cdot \exp (-\mu_1 x) \quad (7)$$

によって近似できる。

実際の一次光束は平行ではなく、空間でのビームの広がりによって過剰電荷の発生密度はさらに大きくなり、全発生密度は空間でのビームの広がり補正係数 $f_s$ を用いて、

$$G_p(x) = f_s \cdot G_{pp}(x) = f_s \cdot N_0 \cdot \mu_1^2 \cdot R_p \cdot \exp (-\mu_1 x) \quad (8)$$

により表される。 $f_s$ は試料中での一次線の減衰率と、試料を除いた照射場の空間線量率の減衰率をもとにして実験的に与えられる。

コンプトン散乱光子については、被照射体の表面から一次光束の減衰とは逆にビルドアップするため、一次光束の場合とは逆のプラスの過剰電荷が発生する。したがって散乱光子に対する過剰電荷の発生密度を $G_s(x)$ とすると、全体の過剰電荷の発生密度 $G_t(x)$ は、両方の値の和として表される。しかし散乱光子のエネルギー分布や角度分布は複雑であり、 $G_s(x)$ を解析的に正確に求めるのは困難である。ここで2回以上の散乱の影響を無視し、一回散乱光子のみについて考えると、そのビルドアップ係数は近似的に $\{ 1 - \exp(-\mu_c \cdot x) \}$ で表わせる ( $\mu_c$ は一次光子のコンプトン相互作用に起因する線減弱係数)。したがって被照射物の表面付近での $G_s(x)$ は、一次光束の場合と同様な計算から

$$G_s(x) = f_s \cdot N_0 \cdot \mu_c \cdot \mu_2 \cdot R_{ps} \quad (9)$$

が得られる。ここで $\mu_2$ は一回散乱光子の線減弱係数、 $R_{ps}$ は一回散乱光子による放出電子に対する平均射影飛程であり、散乱光子のエネルギーが小さいこと、および入射方向に対して斜め方向に放出されることのために、一次光子による放出電子に対する平均射影飛程 $R_p$ に比べて小さい。コバルト-60ガンマ線の場合 $R_p$ に対する $R_{ps}$ の比は、文献(14)をもとにして計算した結果0.3以下となった。

したがって(1)式における $G_t(x)$ は、一次光束による過剰電荷の発生密度 $G_p(x)$ と、一回散乱光子に対するそれとの和、すなわち

$$G_t(x) = G_p(x) + G_s(x) \quad (10)$$

となる。

#### 4.3 非照射下導電率の測定

非照射下導電率の測定はFig. 9に示すような試料温度が変えられる測定容器を用いて行った。電流検出用の電極部分の直径は40 mm $\phi$ 、ガードリングは内径48 mm $\phi$ 、外径64 mm $\phi$ でいずれも8 mm厚さのステンレス製である。試料温度測定用CA熱電対は、真ちゅう製の小さなパット中にハンダでモールドし、これをガードリング周辺部2ヶ所の、ほぼ対称位置に固定した。

ガラス試料は大きさ100×100 mm、厚さ2 mmで、両面が研磨されているものである。電極部分およびガードリングに接する試料表面には金を蒸着した。測定は室温下、大気中で行った。測定の手順は、まず室温で250、500、750、1,000、2,000 Vの電圧を順に印加し、それぞれ30～45分間放置し、次に2,000 Vのままヒーター容量約50 Wで昇温しながら連続的に測定した。試料温度は検出電流が最大約30  $\mu$ Aに達するまで上昇させた。このときの温度はガラスの種類にも依存するが、約160～220  $^{\circ}$ Cであった。検出電流が約30  $\mu$ Aに達した後に、加熱を停止して室温下で放置し、試料温度が約50～60  $^{\circ}$ Cに低下するまで測定を継続した。

室温での電圧印加後の電流～時間特性の測定例をFig. 10およびFig. 11に示す。2種類のガラスの導電率は、いずれも電圧印加後急激な減少を示し、特にF36 Nでは1/10以上の大きな低下が観測された。C25 Nでは数時間で導電率の飽和値が得られたが、一方F36 Nでは20h以上経過後においても依然として検出電流の減少が見られ、飽和値は得られなかった。導電率の測定値は電圧によって多少異なった特性を示すが、特に電圧依存性などは明らかではなかった。

またC25 Nにおける導電率の温度依存性の測定例をFig. 12に示す。導電率 $\sigma_0$ と絶対温度Tの逆数の両対数プロットでは、直線関係が成立する。温度の上昇時と下降時では導電率の値が異なる、いわゆるヒステリシス現象が見られる。これは温度上昇時と下降時での試料中の温度分布が多少異なるため、あるいは測定時間の短縮を考慮し温度を連続的に変化させながら測定したので、指示値と真の値との間にズレが生じたためと考えられるが、ここでは上昇時と下降時の測定値の平均値を採用することにした。

以上の測定結果から導電率 $\sigma_0$ は次式の形で近似的に表わせる。



$$\sigma_0 = a \cdot \exp(-b/T) \quad (11)$$

定数 $a$ ,  $b$ の値, および $25^\circ\text{C}$ ,  $35^\circ\text{C}$ での導電率の値を Table 5 に示す。温度係数 $b$ の値は C 25 N の 5 種類および F 36 N では, ほぼ一定となっており, その平均値 $b$ は  $1.15 \times 10^4$  (K) であり, この値は照射下導電率の温度係数の約 5 倍である。

今回の実験では, 上記の原研側での $\sigma_0$ の測定と並行して, 日本光学側でも $\sigma_0$ の測定を行った。ここでは測定方法の詳細は省略し, Fig. 13 に $\sigma_0$ の温度依存性の結果のみを示す。全体的な傾向としては, 原研側の結果とほぼ一致するが, 個々の試料に対する値には多少差異がみられた。今回の電荷蓄積挙動の解析には,  $\sigma_0$ の値について日本光学側の測定値を使用した。

ガラスの非照射下の導電率 $\sigma_0$ は, 大別して比較的大きな値を示す B 1710, B 1711, 中位の値である B 1706, B 1708, B 1713, および最も小さな F 36 N の 3 つの試料群に分けることができる。

#### 4.4 照射下導電率の測定

##### 4.4.1 測定原理

放射線照射による絶縁体内の電荷蓄積は, 放射線の線種, エネルギー, 線量率などに依存する過剰電荷の堆積率と, 電荷漏洩の原因となる導電率(あるいは体積抵抗率)によって決定される。絶縁体の導電率 $\sigma$ は放射線照射下では大きくなる傾向があり, 近似的に次式で表される。

$$\sigma = \sigma_0 + \sigma_r \quad (12)$$

ここで $\sigma_0$ は非照射下の導電率であり,  $\sigma_r$ は放射線誘起導電率である。従来放射線遮蔽窓ガラスの誘電破壊現象に対しては,  $\sigma_0$ のみが問題とされてきたが,  $\sigma_r$ は無機ガラスの場合, 線量率に比例する傾向があり, 高線量率では $\sigma_r$ の影響は無視できない。したがって照射下での $\sigma_r$ を実験的に求める必要がある。

照射下での絶縁体の導電率の測定法としては, 通常薄い試料に外部電圧を印加して, ガンマ線照射下でドリフト電流を測定する方法があるが, ガラス試料の場合, 固体高分子のように十分薄い試料を得ることが困難であると同時に, 厚い試料では, ドリフト電流以外の放射線誘起電流成分を含むこと, 大きい出力電流が得られないこと, などの欠点がある。以上の問題を考慮し, ここでは照射下の導電率測定法として Gross<sup>15)</sup>による, 電子線照射での split Faraday cup 法を採用した。

Split Faraday cup を用いた測定方法を Fig. 14 に示す。入射電子の最大飛程 $R$ よりも厚い $W$  (cm) の厚さの平行平板状絶縁物に均一強度をもつ定常的な平行電子ビームを照射したときの, 背面電極電流密度 $J_r$ は,  $R$ より深い非照射領域(制動 X 線の影響は無視する)の導電率が,  $R$ より浅い照射領域のそれに比べて無視できること, および $\sigma_r$ , 電荷堆積率, 電子透過に関するいくつかの仮定のもとで, その時間的変動は以下の指数関数で近似できる。

$$J_r(t) = J_0(R/W) \exp(-t/\tau) \quad (13)$$

ここで $J_0$ は入射電流密度、 $t$ は時間、 $\tau$ は時定数であり、実験的に与えられる。これをもとにして照射領域の平均導電率 $\sigma$ は、

$$\sigma = \frac{\epsilon}{\tau} \cdot \frac{W}{W-R} = \frac{\epsilon}{\tau} \cdot \frac{J_0}{J_0 - J_r(0)} \quad (14)$$

により与えられる。ここで $\epsilon$ は誘電定数、 $R$ は平均射影飛程である。

#### 4.4.2 測定方法

照射用のガラス試料は大きさ $100 \times 100$  mm、厚さ5 mmとした。試料の両面は研磨し、誘電破壊試験の場合と同様に導電塗料を塗布し、電極とした。入射電子ビームには、エネルギー1.5 MeVの定常ビームを用い、50 mm $\phi$ のスリットを通してビーム窓下40 cmの、温度制御可能な容器内にセットされた試料を照射した。出力電流は3～150  $\mu$ A（定常ビーム）の範囲としたが、これは試料面での電流密度に換算すると約10～500 nA/cm<sup>2</sup>、平均線量率で約8～400 Mrad/hに相当する。

室温条件下でも試料温度は季節により異なるが、18～28  $^{\circ}$ Cの範囲であった。照射による温度上昇は、測定時間が短いので無視できるとみなした。照射下導電率の温度依存性は、出力電流を17  $\mu$ A一定とし、試料容器内の温度を約80  $^{\circ}$ Cまで変えて測定した。背面電極電流の測定には、電流指示積分計（Elcor, Welex Electronics Co.）を用い、その出力をペンレコーダーに記録した。

#### 4.4.3 測定結果

Fig. 15に背面電極電流の実測例を示す。時定数 $\tau$ は、初期の電流密度の勾配を直線的に電流零に外挿して決定した。この場合は非照射下の導電率 $\sigma_0$ は、放射線誘起導電率 $\sigma_r$ に比べて無視できるので、 $J_r(t \rightarrow \infty) = 0$ となる。一方 $\sigma_0$ が $\sigma_r$ に比べて無視できない場合は、背面側の界面における伝導電流は、変位電流に比べて無視できず、 $J_r(t \rightarrow \infty) = \sigma_0 \cdot E(W, t)$ （ $E(W, t)$ は背面側の界面における電界強度）となる。この場合は、初期の電流減衰の勾配を直線的に $J_r = \sigma_0 \cdot E(W, t)$ の推定値へ外挿することによって $\tau$ を求めた。こうして得られた照射下導電率 $\sigma$ と線量率 $\dot{D}$ との関係をFig. 16に示す。

試料温度はC 25 NおよびF 36 Nに対して、それぞれ28  $^{\circ}$ C、26  $^{\circ}$ Cであった。C 25 Nについては3種類の試料について測定したが、両対数プロットではほぼ同一の直線で表され、 $\sigma$ に関する試料間の差異はほとんど現れなかった。F 36 Nについても、 $\sigma$ と $\dot{D}$ の間には直線関係が得られたが、 $\sigma$ の値はC 25 Nに比べて小さく、約1/3の値を示した。これから $\sigma$ と $\dot{D}$ との関係は、 $\sigma = k \cdot \dot{D}^d$ なる近似式で表されるが、線量率依存次数 $d$ は、ほぼ1の値を示す。C 25 Nの場合は非照射下の導電率 $\sigma_0$ が大きいので、低線量率では $\sigma_0$ の影響が現れ、見かけの $d$ は1よりも若干小さい値となる。後述の電荷挙動の計算では、簡単のため $d = 1$ とし、1 Mrad/h以下の低線量率まで直線を外挿できると仮定した。

4.3項で前述した $\sigma_0$ と比較すると、C 25 Nは1 Mrad/h以下では $\sigma_r$ の方が小さいが、F 36 Nでは10 krad/hにおいても $\sigma_r$ の方が $\sigma_0$ より大きい。したがってコバルト-60ガンマ線を

対象としたとき、C 25 Nの場合は、電荷漏洩に対して $\sigma_r$ の寄与はあまり問題にならないが、F 36 Nでは10 krad/h以上の線量率で $\sigma_r$ が電荷漏洩を支配し、 $\sigma_0$ の影響はこのオーダー以下の低線量率で現れてくる。

線量率約50 Mrad/hにおけるC 25 N、F 36 Nに対する $\sigma$ の温度依存性の測定結果をFig. 17に示す。横軸は絶対温度の逆数で目盛った。低温では試料によらず、ほぼ一定の直線勾配をもつが、C 25 Nの場合、高温では直線からはずれた高い値を示す。F 36 Nの場合は、80°Cの高温でも低温側から外挿した直線上に実測値がある。参考のためC 25 Nに対する4.3項の非照射下での導電率の温度依存性の測定結果を図中に加えたが、これから高温領域での直線からのズレは、 $\sigma_0$ の寄与が高温側で $\sigma_r$ より大きいためであることが明らかである。F 36 Nの場合は $\sigma_0$ がC 25 Nのその約1/100の値を持つため、全温度領域で $\sigma_r \gg \sigma_0$ であり $\sigma$ はほとんど $\sigma_r$ に支配されている。したがって測定結果にも示されているように、 $\sigma_0$ の寄与が高温側でも十分小さいので、直線からのズレはほとんど現れない。この結果、導電率の温度係数は $\sigma_r$ の方が $\sigma_0$ よりもはるかに小さいことが分かった。

温度依存性の結果から、通常のコバルト-60ガンマ線での照射線量率 $1 \times 10^6$  R/h程度までを対象とした場合、導電率のうち $\sigma_0$ の寄与が大きいC 25 Nの場合は、電荷漏洩は温度に大きく依存するが、 $\sigma_r$ の寄与が大きいF 36 Nの場合には温度にあまり依存しないことがわかる。ただしC 25 Nでも20°C以下の低温では $\sigma_r$ の影響が強くなり、F 36 Nでも $10^4$  R/h以下の照射線量率では $\sigma_0$ の寄与によって大きい温度依存性を示す。

以上の結果および前述4.3項の温度測定結果をもとにして、ガラスの導電率の近似式が以下のように得られた。

C 25 N ガラス (B 1706, B 1708, B 1713) ;

$$\sigma = 5.83 \exp(-1.103 \times 10^4 / T) + \dot{D}(x) \cdot 2.370 \times 10^{-17} \exp(-900.1/T) \quad (15)$$

C 25 N ガラス (B 1710, B 1711) ;

$$\sigma = 34.5 \exp(-1.120 \times 10^4 / T) + \dot{D}(x) \cdot 2.370 \times 10^{-17} \exp(-900.1/T) \quad (16)$$

F 36 N ガラス ;

$$\sigma = 1.58 \times 10^{-3} \exp(-9.925 \times 10^3 / T) + \dot{D}(x) \cdot 8.266 \times 10^{-18} \exp(-889.8/T) \quad (17)$$

ここで $\dot{D}(x)$ は次の4.5項で示されるように、ガラスブロック試料深さx (cm)における、吸収線量率 (rad/s) である。

#### 4.5 ガラス試料内の線量率分布および照射下温度分布の測定

電荷蓄積の解析に必要な試料内の深さ方向線量率分布 $\dot{D}(x)$ の推定を行った。立方体のガラス

ブロック内部の線量率分布は直接測定できないため、ガラスブロック2ヶを積み重ね、その間に線量測定用CTAテープ2本を挿入する方法で近似することとし、数時間の照射を行った。相対線量率で目盛ったF36Nガラスに対する測定結果をFig. 18に示す。線量率分布曲線は2次式  $\dot{D}(x) = D_0(\alpha x^2 + \beta x + \gamma)$  により近似した。(8)および(9)式中のビームの広がり補正係数 $f_s$ は、照射場の空間線量率分布と試料ガラス内の一次線の減衰率をもとにして算出した。Table 6に試料表面の照射線量率 $X$ と $f_s$ との関係を示す。

ガラスの非照射下導電率 $\sigma_0$ は、大きな温度依存性を示し、これが電荷蓄積効果に大きな影響を及ぼす。このためコバルト-60ガンマ線照射下における試料内の温度測定を行った。実際の試料内部の直接的な温度測定が不可能なため、線量率分布推定の場合と同様相対する2個のF36Nガラスブロックの間に、CA熱電対3対を挿入し、接着剤(アラルダイト、層厚1.5mm)で固定して、照射下で測定する方法とした。測定結果をTable 7に示す。熱電対は表中に示すように断面中心部および表面から10mm内側の計3点にセットした。

照射温度は夜間の連続照射によりガラスブロック内の温度が飽和している朝9時頃の値を採用した。測定は11月に行ったため、照射室内の温度は17~19℃であった。 $5 \times 10^4$ 、 $2 \times 10^5$ 、 $5 \times 10^5$ および $1 \times 10^6$  R/hの照射線量率における室温と、ガラス試料内温度との差は、測定点3ヶ所であり差はなくそれぞれ約2、3、6および14℃とみなされた。誘電放壊試験を行った5月~9月にかけての照射室内温度の正確な値は不明であるが、他の照射実験の測定結果から6月~8月にかけては28~34℃の範囲にあると推定した。これから照射室内温度は30℃一定と仮定し、それに室温と試料内の温度差の実測値を加えた値を、実際の照射下の試料内温度とみなした。

したがって照射線量率 $5 \times 10^4$ 、 $2 \times 10^5$ 、 $5 \times 10^5$ および $1 \times 10^6$  R/hで照射されたガラスブロック内の平均飽和温度は、それぞれ32、33、36および44℃と推測された。

#### 4.6 諸定数の算出

ガラスブロック内の電荷蓄積の解析に必要な、ガラス試料の各種定数をTable 8に示す。C25Nガラス6種類の試料については、類似した組成をもつのでほぼ同一値が得られている。実効原子番号および実効原子量は、ガラス組成の成分表に示されている各元素の重量比をもとにして算出した。 $\mu_1/\rho$ は各元素の質量減弱係数から同様に重量比を用いて求めた。各元素の質量減弱係数は文献16)で与えられているテーブルから、入射エネルギー1.25 MeVにラグランジェ補間して求めた値を使用した。 $\mu_2/\rho$ および $\mu_c/\rho$ は、 $\mu_1$ の値がほぼ等しく、実効原子番号および実効原子量の近い元素に対する値から推定した。

電荷挙動の計算法は差分法を用い、FACOM M-200コンピュータによるリモートバッチ処理で、計算を実行した。数値解析におけるガラス層の分割数は100(厚さ1mm)とした。また微小計算時間 $dt$ は、全体の計算時間が約 $5 \times 10^5$ sまでについては10sとしたが、それ以上の時間については電界強度などの数値の変化傾向に応じて適当に選択した。

Table 5 ガラス試料の非照射下導電率

ガラスの 種類	a	b	25℃での導電率	35℃での導電率
	(S/cm)	(K)	(S/cm)	(S/cm)
C 25 N				
B 1706	13.9	$1.149 \times 10^4$	$2.50 \times 10^{-16}$	$8.74 \times 10^{-16}$
B 1708	22.6	$1.130 \times 10^4$	$7.69 \times 10^{-16}$	$2.63 \times 10^{-15}$
B 1710	264	$1.178 \times 10^4$	$1.79 \times 10^{-15}$	$6.48 \times 10^{-15}$
B 1711	177	$1.167 \times 10^4$	$1.74 \times 10^{-15}$	$6.20 \times 10^{-15}$
B 1713	15.0	$1.164 \times 10^4$	$1.63 \times 10^{-16}$	$5.80 \times 10^{-16}$
F 36 N	0.735	$1.130 \times 10^4$	$2.50 \times 10^{-17}$	$8.57 \times 10^{-17}$
平均値		$1.153 \times 10^4$		

Table 6 ビームの広がりに対する補正係数： $f_s$ 

照射線量率 (R/h)	$f_s$	照射室
$1 \times 10^6$	1.40	No. 6
$5 \times 10^5$	1.27	No. 6
$2 \times 10^5$	1.16	No. 6
$5 \times 10^4$	2.35	RI-Co

Table 7 照射下におけるガラスブロック内部の温度測定結果

線量率 (R/h)	測定時刻 時:分	測定位置	指示温度 (°C)	室温との差 (°C)	室温を30°Cとした時のガラス内部の推定温度(°C)	計測時までの連続照射時間 (備考)
1 × 10 <sup>6</sup>	9 : 48	室温	19.0	-	44	14.5 h
		1	32.6	+ 13.6		
		2	33.2	14.2		
		3	27.7	8.7		
5 × 10 <sup>5</sup>	8 : 38	室温	18.3	-	36	16.5 h
		1	24.3	+ 6.0		
		2	25.0	6.7		
		3	22.6	4.3		
2 × 10 <sup>5</sup>	8 : 40	室温	18.9	-	33	16.0 h
		1	21.8	+ 2.9		
		2	22.0	3.1		
		3	21.0	2.1		
5 × 10 <sup>4</sup>	8 : 37	室温	17.1	-	32	15.0 h 夜間の冷え込みあり
		1	19.1	+ 2.0		
		2	19.7	2.6		
		3	19.3	2.2		

ガラスブロック内温度測定位置概略図

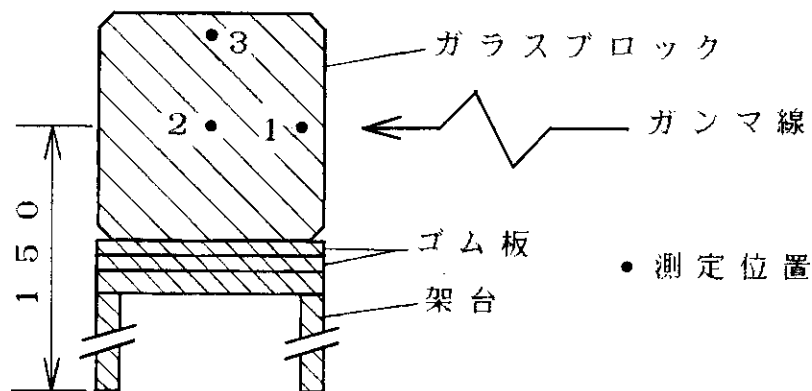


Table 8 電荷蓄積の計算に必要なガラス試料の諸定数

Glass	B 1707 (C)	B 1713 (D)	B 1708 (E)	B 1706 (F)	B 1710 (G)	B 1711 (H)	F 36 N	Remarks
$\bar{Z}$ (実効原子番号)	12.24	12.00	12.22	11.99	12.20	11.96	39.85	
$\bar{A}$ (実効原子量)	25.39	24.78	25.35	24.75	25.32	24.72	97.29	
$\mu_1 / \rho$ (cm <sup>2</sup> / g)	0.0562	0.0563	0.0562	0.0562	0.0562	0.0562	0.0570	
$\rho$ (密度) (g / cm <sup>3</sup> )	2.53	2.52	2.54	2.53	2.55	2.54	3.62	
$R_p$ (g / cm <sup>3</sup> )	0.1342	0.1343	0.1343	0.1343	0.1344	0.1345	0.1096	
$R_{rs}$ (g / cm <sup>3</sup> )	0.03800	0.03802	0.03802	0.03802	0.03805	0.03809	0.03096	
$\mu_2 / \rho$ (cm <sup>2</sup> / g)	0.0759	0.0759	0.0759	0.0759	0.0759	0.0759	0.0797	
$\mu_c / \rho$ (cm <sup>2</sup> / g)	0.0560	0.0561	0.0560	0.0560	0.0560	0.0560	0.0556	
$\epsilon_r$ (比誘電率)	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	8.0	8.5	推定値

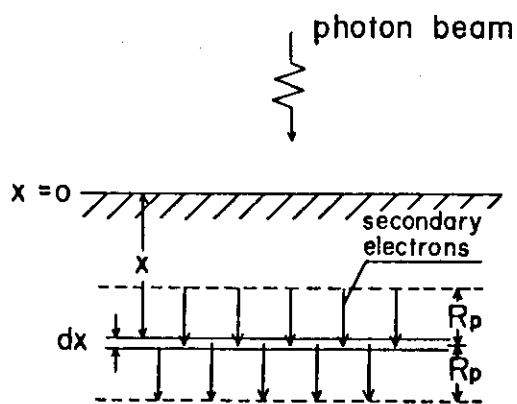


Fig. 8 ガンマ線照射における過剰電荷生成のための一次元計算モデル

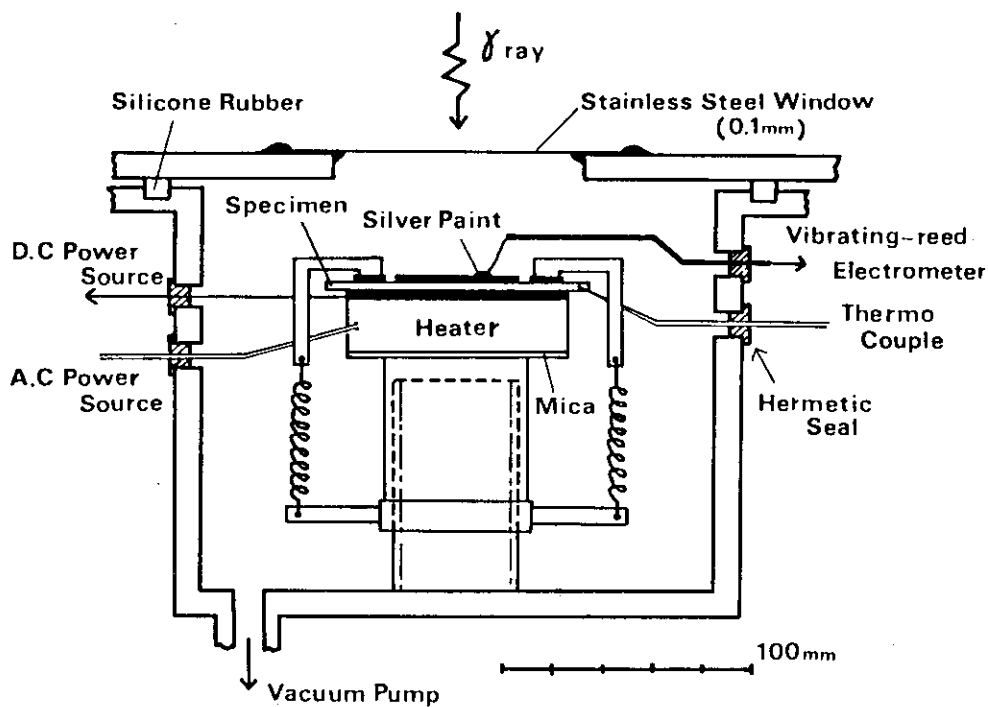


Fig. 9 ガラス試料の非照射下導電率測定に使用した実験容器



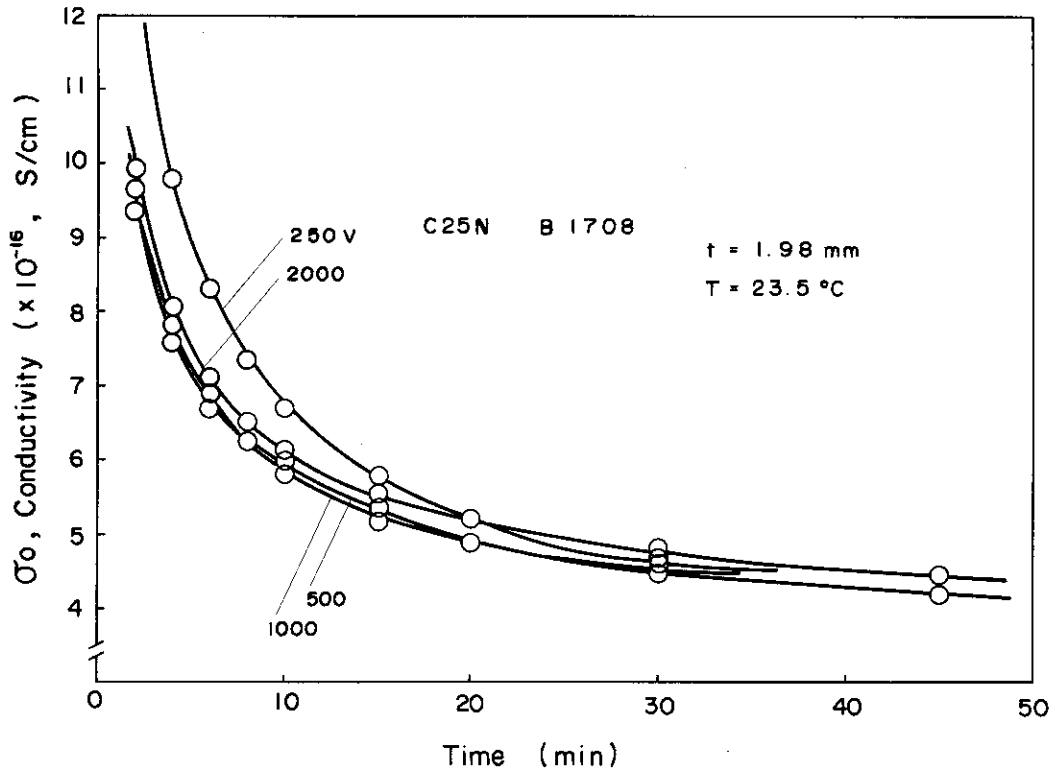


Fig. 10 C 25 Nガラスの非照射下導電率の印加電圧依存性

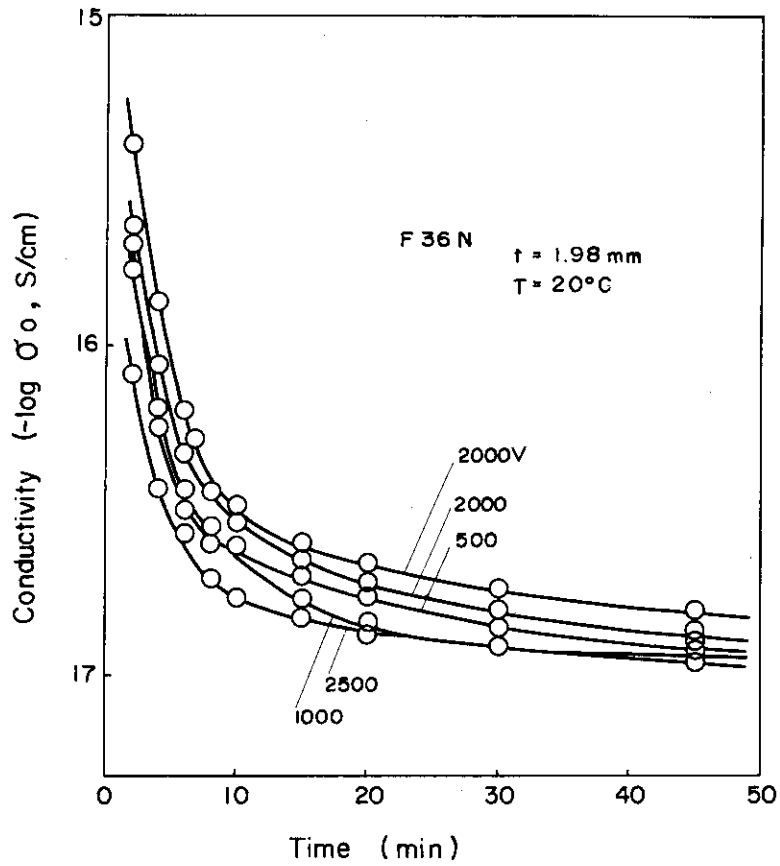


Fig. 11 F 36 Nガラスの非照射下導電率の印加電圧依存性

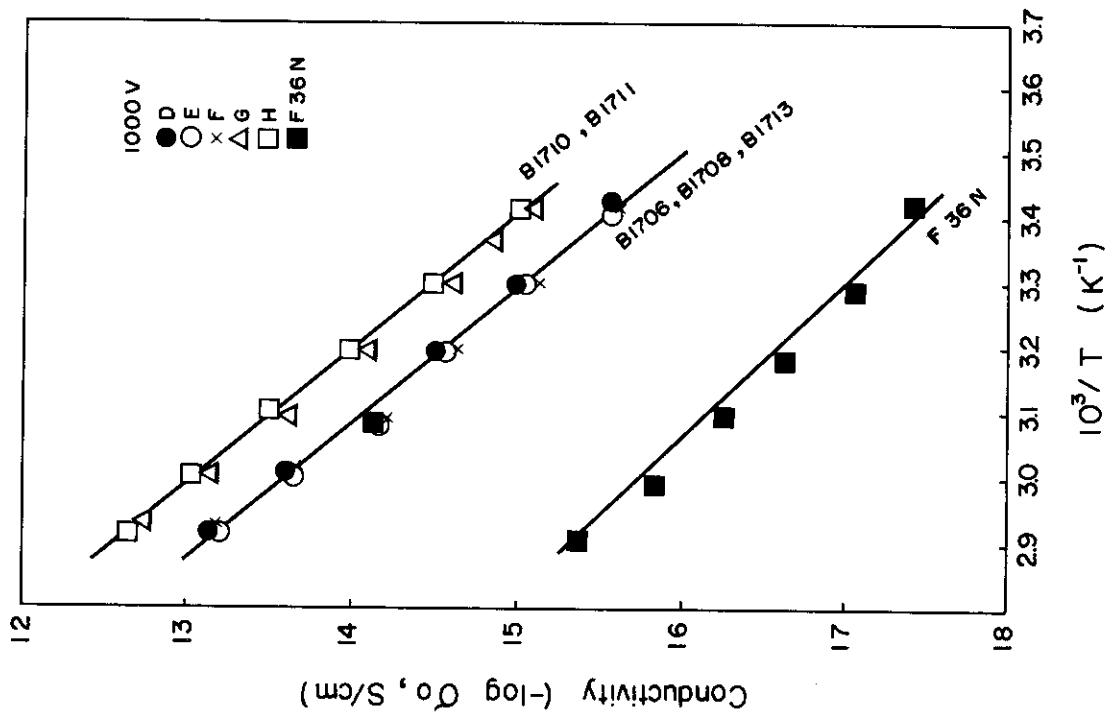


Fig. 13 C 25 NおよびF 36 Nガラスの非照射下導電率の測定結果

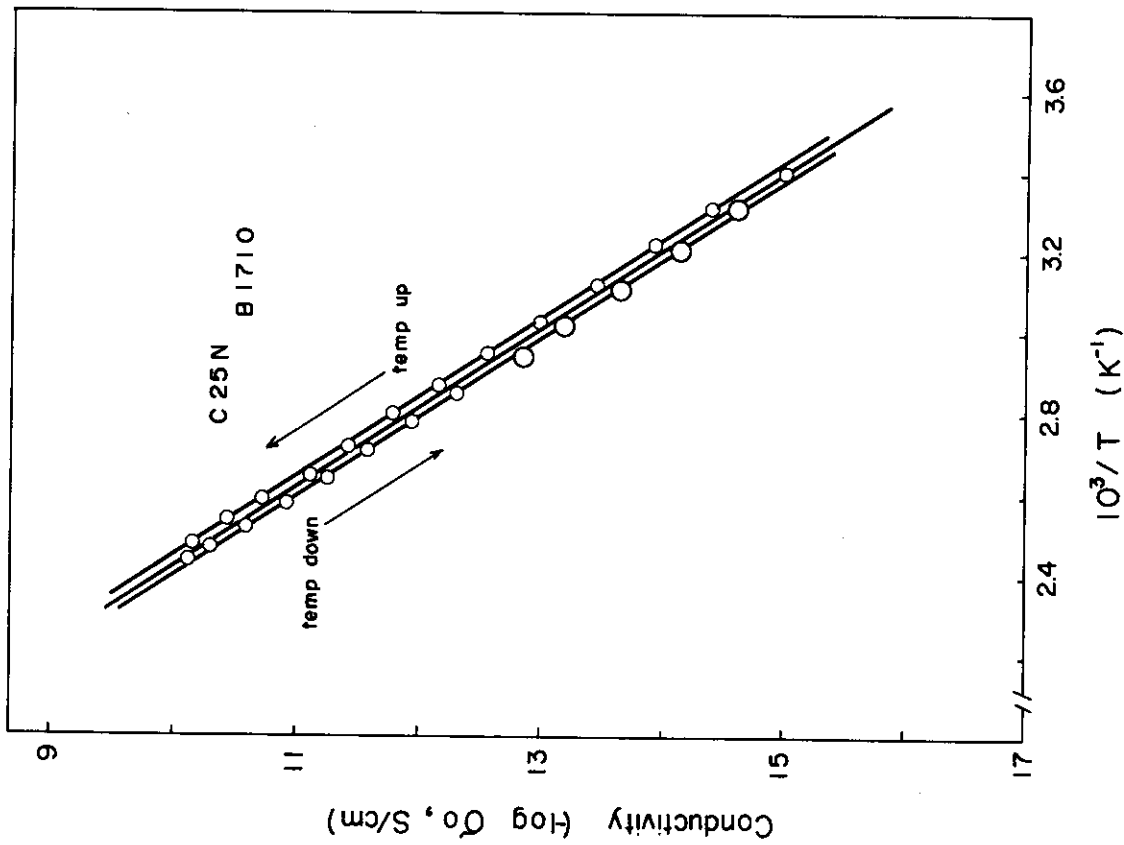


Fig. 12 C 25 Nガラスの試料温度昇降操作による対数導電率の測定結果

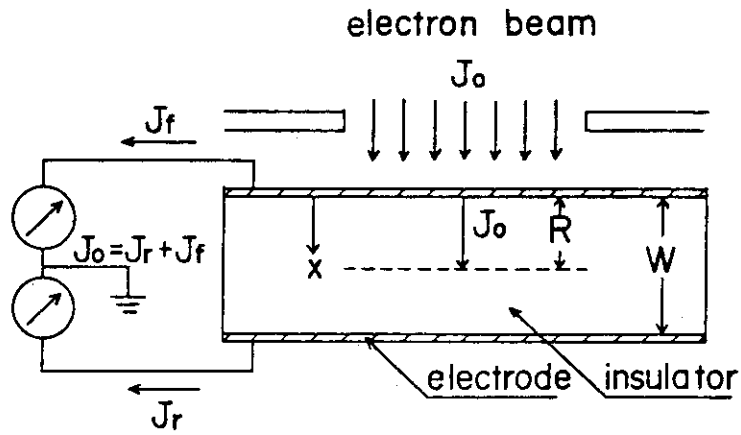


Fig. 14 電子線照射における放射線誘起導電率の測定方法

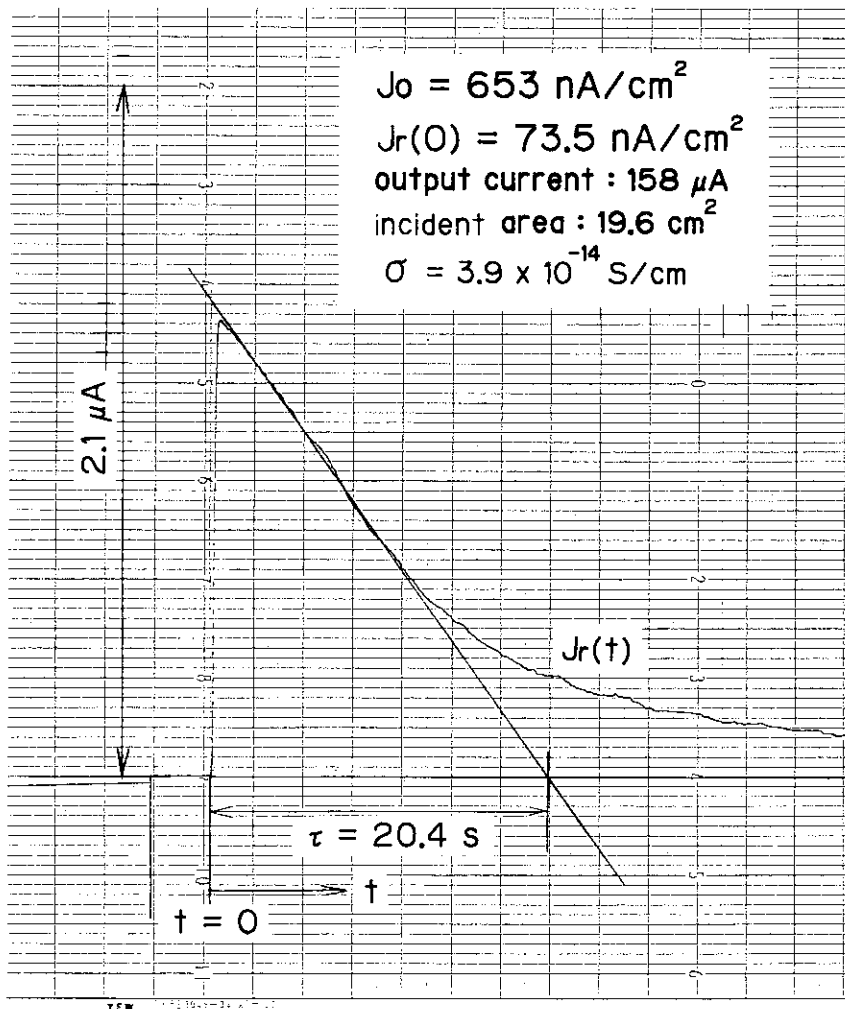


Fig. 15 C 25 Nガラス板からの背面電極電流の測定例

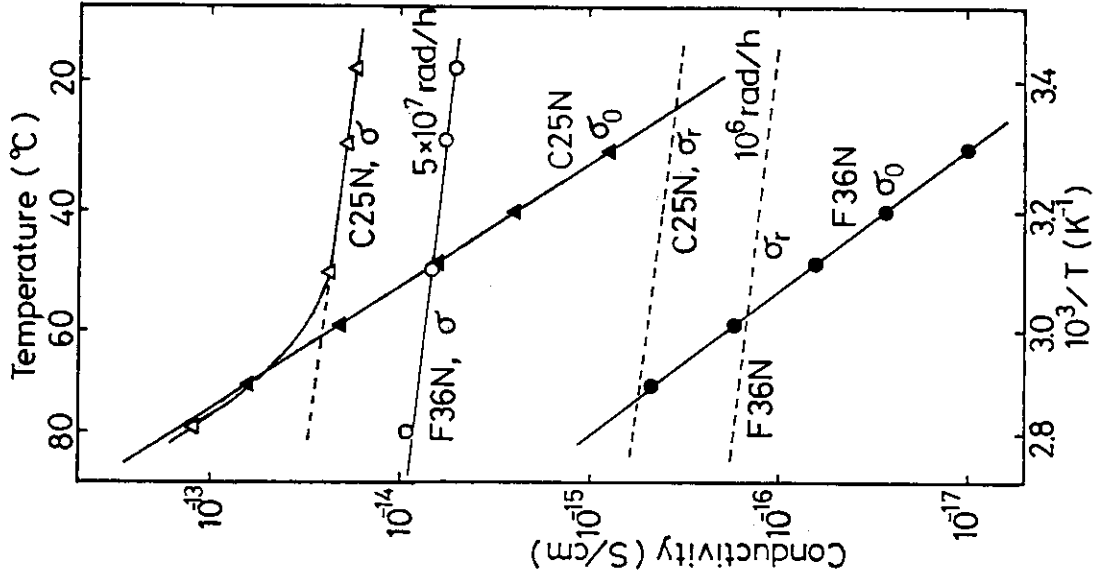


Fig. 17 C 25 N と F 36 N ガラスの 20 ~ 100  $^{\circ}\text{C}$  における照射下導電率 ( $\sigma_r$ ), 非照射下導電率 ( $\sigma_0$ ) および全導電率 ( $\sigma$ ) の温度依存性

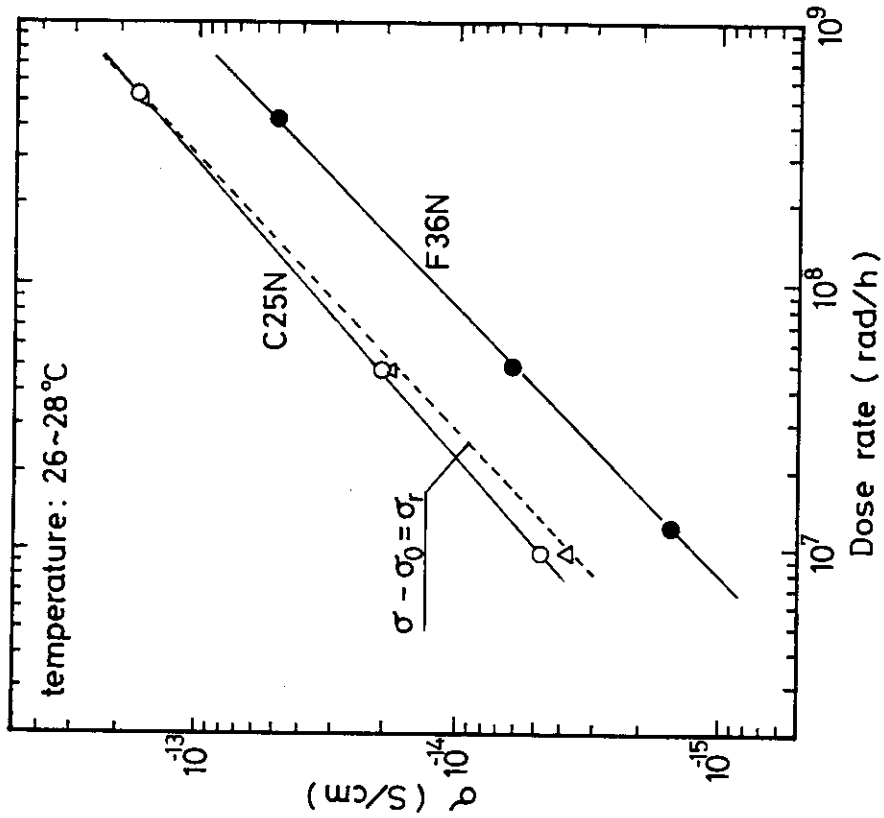


Fig. 16 室温における C 25 N と F 36 N ガラス導電率の線量率依存性

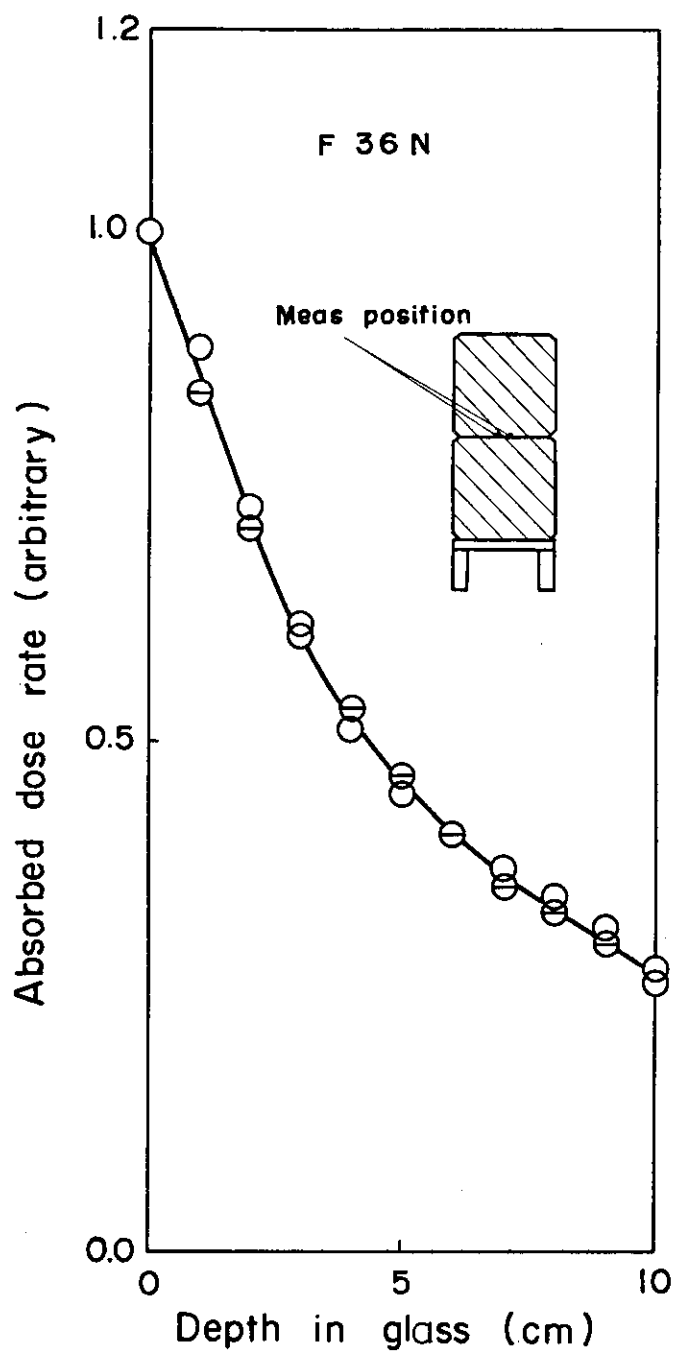


Fig. 18 CTA線量計を用いたF 36 Nガラスブロック中の相対線量率分布測定結果

## 5. ガラス内部の電荷蓄積過程の解析

ガラス内部における過剰電荷蓄積の解析での照射条件モデルとしては、厚さ10 cmの無限平板にコバルト-60ガンマ線が入射するジオメトリーを仮定し、試料界面近傍における電子非平衡の影響は無視した。境界条件としては、照射下ではガラス表面に接する空気がイオン化されていることを考慮し、両面が零電位のshort circuitを仮定した。照射後の電荷挙動については、簡単のためにdelayed conductivity<sup>13)</sup>の影響を無視し、導電率は $\sigma_0$ に等しいと仮定した。また高電界での電気伝導に関しては、低電界と同様にオーム則が成り立つと仮定した。以下に解析結果と考察を述べる。

### 5.1 解析結果

Fig. 19 に照射線量率  $10^6$  R/h, 試料温度  $44^\circ\text{C}$  の照射下での 10 cm 厚さの C 25 N および F 36 N 内部における、過剰電荷密度分布の計算結果を照射時間のパラメーターとして示す。照射時間とともに電荷密度は増してゆくが、やがて飽和する。飽和時間および飽和電荷密度は、 $\sigma$  の小さい F 36 N の方がいずれも大きい。また飽和電荷密度は、両者とも前面側の方が背面側より高い値を示すが、これは電荷堆積率が前面側で大きく、かつ線量率の低い背面側では  $\sigma_0$  の相対的な寄与が大きいためである。飽和後の F 36 N では、前面側でとくに高くなる傾向は見られないが、これは F 36 N では  $\sigma_r$  の寄与が大きいので、高線量率の前面側の電荷漏洩の相対的寄与が増加するためと推定される。

Fig. 20 に  $1 \times 10^6$  R/h ( $44^\circ\text{C}$ ) における F 36 N 内部の電界分布の計算結果を示す。Short circuit 条件であるため、電界は表面と背面で極大を示すが、表面の方が多少高い値となる。表面の電界値は  $5 \times 10^4$  s で  $1 \text{ MV/cm}$  を越え、飽和後の  $8 \times 10^4$  s では約  $1.5 \text{ MV/cm}$  の高電界に達する。

Fig. 21 に  $10^6$  R/h における C 25 N の両界面の時間変化を照射下の試料温度をパラメーターとして示す。電界は最初照射時間に比例して増加するが、徐々に飽和していく。飽和時間および飽和電界は、 $\sigma_0$  の大きい低温ほど大きい値を示す。耐放射線試験の照射条件における推定温度  $44^\circ\text{C}$  では、飽和時間は約 30 min であり、飽和電界値は  $35 \text{ kV/cm}$  である。低温では温度依存性の小さい  $\sigma_r$  の寄与が大きいので、線量率の高い前面の飽和値は頭打の傾向が現れる。背面では線量率が低いので、この傾向はほとんど現れず、背面側の方が逆に高くなる。ちなみに  $10^\circ\text{C}$  では  $1 \text{ MV/cm}$  近くの値に到達する。

Fig. 22 に  $10^\circ\text{C}$  の低温照射下での C 25 N 両界面の電界値の変化を示す。飽和時間は電荷堆積率の小さい低線量率で長く、 $10^4$  R/h では 10 h 以上を要する。飽和電界は線量率が高いほど、大きい値を示すが、高線量率では  $\sigma_r$  の寄与が大きくなるため、前面側で頭打の傾向が見られる。

Fig. 23 に F 36 N の照射試験時の各照射条件における表面および背面の電界の時間的変動を示す。同図中に示した照射時の推定温度については、すでに 4.5 項で述べた。電界飽和値が線量率

にあまり依存しない理由は、① F36 Nのように高線量率で $\sigma_r$ の寄与が支配的な場合は、線量率に比例して電荷堆積率のみでなく、電荷漏洩率も増大すること、② 低線量率では試料温度が低いこと、特に $\sigma_0$ が小さくなり、電荷漏洩が相対的に低下すること、および ③  $5 \times 10^4$  R/hの場合は照射のジオメトリーが他の場合と異なり、4.2項の(8)式におけるビームの広がりによる補正係数 $f_s$ が大きいこと、などが考えられる。またいずれの場合も電界飽和値については表面側の方が高いが、これは $\sigma_r$ の寄与が大きい低温でのC25 Nの場合とは異なる。この理由はおそらくF36 Nでは比重(3.62)が、C25 N(2.52~2.54)より大きいこと、電荷漏洩が表面側で大きいとしても、結果として電荷密度分布は前方に片寄った形で飽和するためと考えられる。

Fig. 24に10℃の低温照射下でのF36 N両界面の電界の時間的な変化を照射線量率を、パラメータとして示す。線量率は実際の遮蔽窓ガラス設置場所で想定される $10^5$  R/h以下とし、厚さも実用のガラスブロックに近い20 cmとした。低線量率では $\sigma_0$ の寄与が大きいので、飽和電界はC25 Nの場合と同様な線量率依存性を示すが、F36 Nの場合は $10^3$  R/hの低線量率でも100 kV/cm程度の高電界に達する。

また試料の厚さをパラメータとして試料温度10℃における飽和電界と照射線量率(試料前面)との関係をFig. 25に示す。電界は $\sigma_r$ の寄与が支配的な高線量率で飽和し、一定になる傾向が見られる。 $10^5$  R/h近傍を境界として低線量率側では前面の値が高く、高線量率側では背面の値が高い。ガラス厚さ20 cmおよび30 cmの場合は、高線量率で背面の値が特に高い。前面側では線量率に無関係に厚くなるほど高電界となるが、20 cmと30 cmの場合とではその差は小さく、厚さの増加に関して飽和傾向が見られる。背面側では低線量率の場合薄い方が高電界になるが、線量率が高くなるにしたがってこの関係は逆転し、厚い試料ほど高電界になる傾向がある。

以上は定常照射下での挙動であるが、照射停止後については堆積電荷の漏洩によって電界は減少していく。照射後の導電率は、delayed conductivity ( $\sigma_d$ )と非照射下導電率 $\sigma_0$ の和とみなすことができる。しかし $\sigma_d / \sigma_0$ の比が比較的小さいので、 $\sigma_d$ の寄与は無視できると考えられ $\sigma = \sigma_0$ として解析した。

Fig. 26およびFig. 27に $\sigma_0$ の大きいC25 N試料群およびF36 Nに対する照射後の電荷漏洩による表面側と背面側の電界の時間的減衰を示す。電荷漏洩は $\sigma_0$ のみに支配されるため、 $\sigma_0$ が大きいほど、かつ照射後の保存中の試料温度が高いほど、減衰時間は短い。 $\sigma_0$ の大きいC25 N試料群の場合20℃以上では約1 h以内で、顕著な減衰を示す。このことはC25 Nの場合、照射後短時間のうちに、誘電破壊試験を行う必要があることを示唆している。一方F36 Nではほとんどの場合で10 h以上は電荷漏洩が進行せず、特に10℃では100 hにわたって初期の電界値がほぼ一定に維持されている。

また以上の解析結果から、C25 Nガラスについても室温以下の低温領域においては放電破壊の可能性が予測されたため、0℃~-78℃における誘電破壊試験を追加して実施した。それらの結果を付録2に示す。

## 5.2 解析結果の考察

一般に無機ガラスの絶縁破壊の強さには、組成のみでなく破壊時の媒質の温度、印加電圧周波

数、試料厚さなどが影響し、数百kV/cm～数MV/cmの広い範囲の値が報告されている。さらに放射線遮蔽窓ガラスの場合のように、電圧を印加しなくても破壊が起こる場合は、当然空間電荷密度の大きさによっても、絶縁破壊の強さが変わる可能性も考えられる。したがって今回のガラス試料についてコバルト-60ガンマ線照射に起因する絶縁破壊の強さを正確に知るのは難しい。ここでは電荷蓄積挙動の解析結果をもとにして、誘電破壊試験の結果についての考察を行った。

### (1) 試料による差異

今回の試験における照射下の試料温度の推定値 (Table. 7) を用いると、C 25 Nに対する表面側の電界飽和値は、 $\sigma_0$ の小さい試料群の場合 50 kV/cm,  $\sigma_0$ の大きい試料群の場合 15 kV/cmであった。一方F 36 Nでは電界飽和値は、 $5 \times 10^4 \sim 1 \times 10^6$  R/hの広い範囲にわたって1～5 MV/cmの値を示しており、両試料の値には大きな差が見られる。無機ガラスの絶縁破壊に関する従来のデータをもとにして判断すると、15～50 kV/cmの電界値では放電破壊は生じないと思われるが、1～1.5 MV/cmの電界値では破壊する可能性は十分考えられる。このことはC 25 Nでは全く破壊しなかったこと、およびF 36 Nでは全て破壊したという実験事実とよく対応しており、絶縁破壊の強さが数 100 kV/cmのオーダーであることを示唆している。さらに自然破壊の場合は、荷重を加えた強制破壊よりも高い電界で生じることを考慮する必要がある。

### (2) 環境温度の影響

電界飽和値については、季節による環境温度の変動が重要なパラメータである。今回の照射実験は夏期に行われたため、照射室内の温度は約 30 °Cに達した。もし照射を室温 10 °Cの環境下で行ったとすると、 $1 \times 10^6$  R/hの照射における試料の飽和温度は約 24 °Cと推定されるので、C 25 Nの $\sigma_0$ の小さい試料群に対する電界飽和値は、前掲 Fig. 21の結果から約 300 kV/cmに達すると予想され、今回の照射条件に対する推定値 (50 kV/cm) よりも、はるかに高い値となる。したがってC 25 Nの場合、高温環境下 (～ 30 °C) では放電破壊は生じないが、低温環境下では破壊する可能性が残る。

以上の考察では $10^6$  R/hを仮定しているが、 $10^5$  R/hを仮定した場合は低温でも導電率に対しては $\sigma_0$ の寄与が大きくなるので、電界飽和値は $10^6$  R/hの場合に比べてかなり小さくなると考えられる。室温 10 °Cの条件でも、電界飽和値は 100 kV/cm程度であり、放電破壊の可能性はほとんどないと考えられる。

### (3) 試料温度の変動と分布の影響

電界の飽和時間はC 25 Nでは約 10 分以内であるが、この場合試料温度は一定であると仮定している。実際には試料温度は一定ではなく、照射開始とともにゆっくりと上昇してゆき、飽和に要する時間は数hのオーダーである。したがって温度の飽和に達するまでの実際の電界の時間変動は、Fig. 21～24の飽和曲線よりも複雑な挙動を示すと考えられる。C 25 Nの場合、飽和温度 44 °Cに達する前に一時的に 100 kV/cmの電界を越える可能性もある。F 36 Nの場合は、電界の飽和時間が 10 h以上であるので、温度変化が電界の上昇に与える影響は少ない。

電界飽和値は試料内の温度分布によって影響を受ける。照射下の試料内の温度については、試料表面からの放熱によって表面は内部より低い温度になり、ガンマ線が入射する試料前面は背面より高い温度になる。したがって実際には背面の電界値の方が、前面より高くなる可能性も考えられるが、解析結果に大きな影響は与えないものと思われる。



## (4) 解析法の問題点

電荷蓄積の解析法については、以下の問題点が考えられる。

- ① 一次元的な無限平行平板モデルを仮定しているが、照射試験には三次元的な立方体を用いている。三次元の境界条件のもとでの空間電荷挙動の解析は、一般に極めて面倒であると言われている。定性的には電荷漏洩率は、無限平行平板よりも立方体の方が大きいと考えられるので、実際の電界飽和値は解析結果よりも低くなると考えられる。しかし実用的な放射線遮蔽窓ガラスの場合には、無限平行平板モデルは本試験の場合より良い近似を与える。
- ② 導電率は電界に依存しないこと、すなわちオーム則を仮定したが、高電界ではオーム則が必ずしも成立しない。ただしsplit Faraday cup法による導電率測定では試料内の電界は、ガンマ線照射下の電界とほぼ同じ高電界レベルにあると考えられるので、放射線誘起電流の評価に関しては、大きな誤差はないと考えられる。
- ③ 非照射下における無機ガラスの電気伝導は通常イオン伝導であるが、高電界領域では電子性伝導が増す可能性が考えられる。また放射線誘起電気伝導は電子伝導の可能性も考えられる。ここではキャリアの種類が何であるかという問題については無視した。
- ④ 試料界面の電位については、照射中はshort circuit条件が仮定できるが、照射後は空気中のイオンが消失するため、ガラス表面の電位が高くなる可能性があること、および電荷漏洩がFig. 26 およびFig. 27 での予測結果より抑制されることが考えられる。ただしガラス表面に接する空気中の絶縁破壊の強さ（ $\sim 30 \text{ kV/cm}$ ）によって制限される。

さらに本試験条件と実用的な条件とを比較すると、このほか以下の問題点が考えられる。

- (イ) 本試験においては100 mm厚さのガラスを用いたが、実際の放射線遮蔽窓ガラスの厚さは200 mm程度である。したがって実際のガラスの方が電荷が蓄積し易く、電界も高くなる。
- (ロ) 電荷堆積率は、ガンマ、エックス線のエネルギーが大きいほど高くなる。したがって本実験に用いたコバルトガンマ線以上のエネルギーのガンマ、エックス線に対しては、同一線量率でも電界は高くなる。
- (ハ) 電荷堆積率は、ガラスの置かれた場でのビームの広がり大きいほど高くなる。したがってガラス窓の近くに置かれた点状線源などの場合、ビームの広がり補正係数 $f_s$ （4.5項, Table. 6参照）が大きくなり、電荷は蓄積し易くなる。

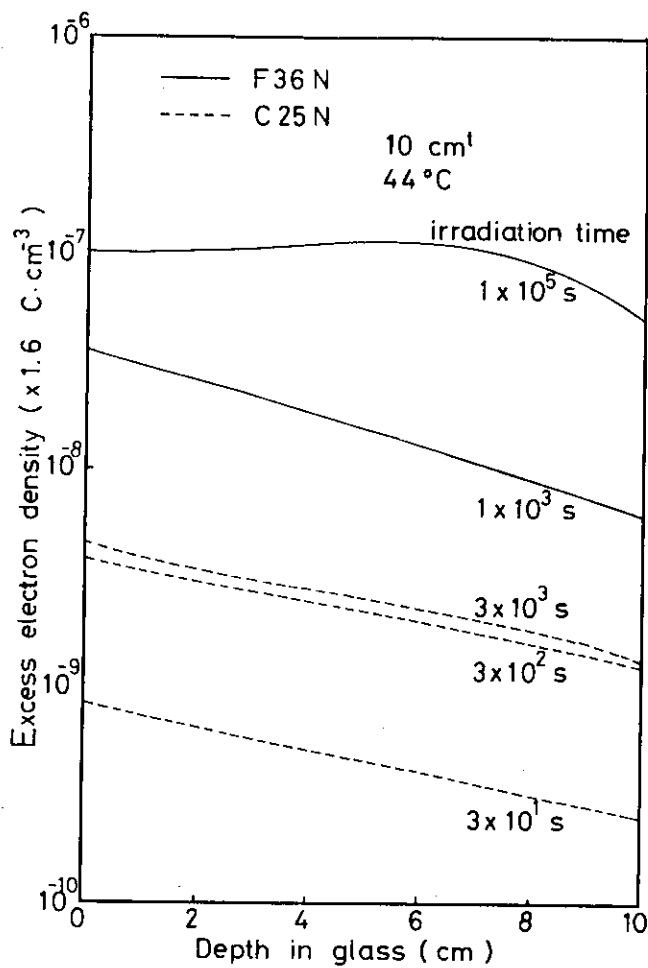


Fig. 19 10 cm厚さのC 25 NおよびF 36 Nガラスブロック中の過剰電荷密度分布の照射時間依存性

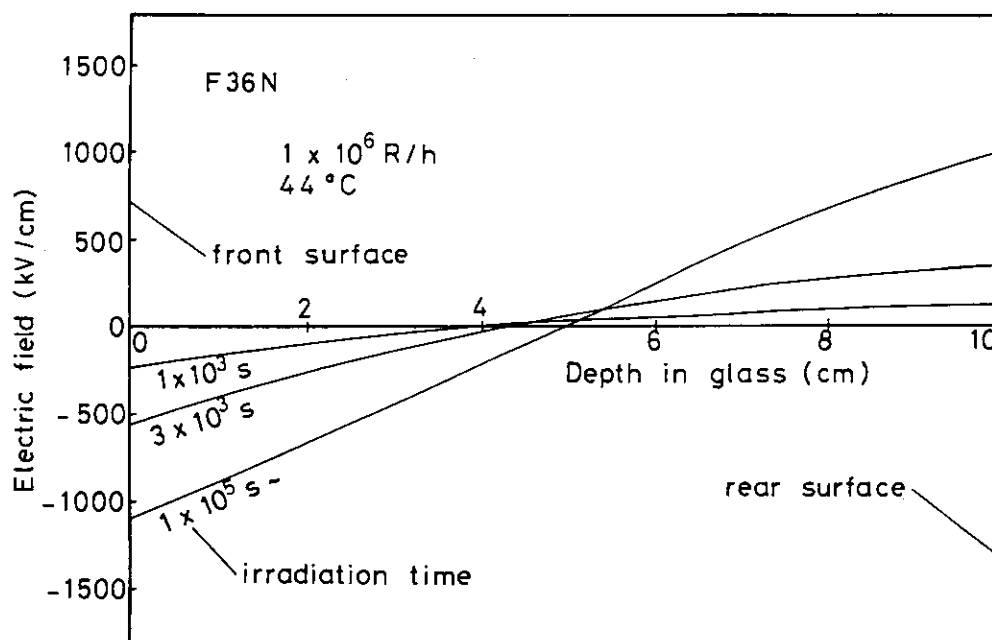


Fig. 20 照射によるF 36 Nガラスブロック中の内部電界分布の変化

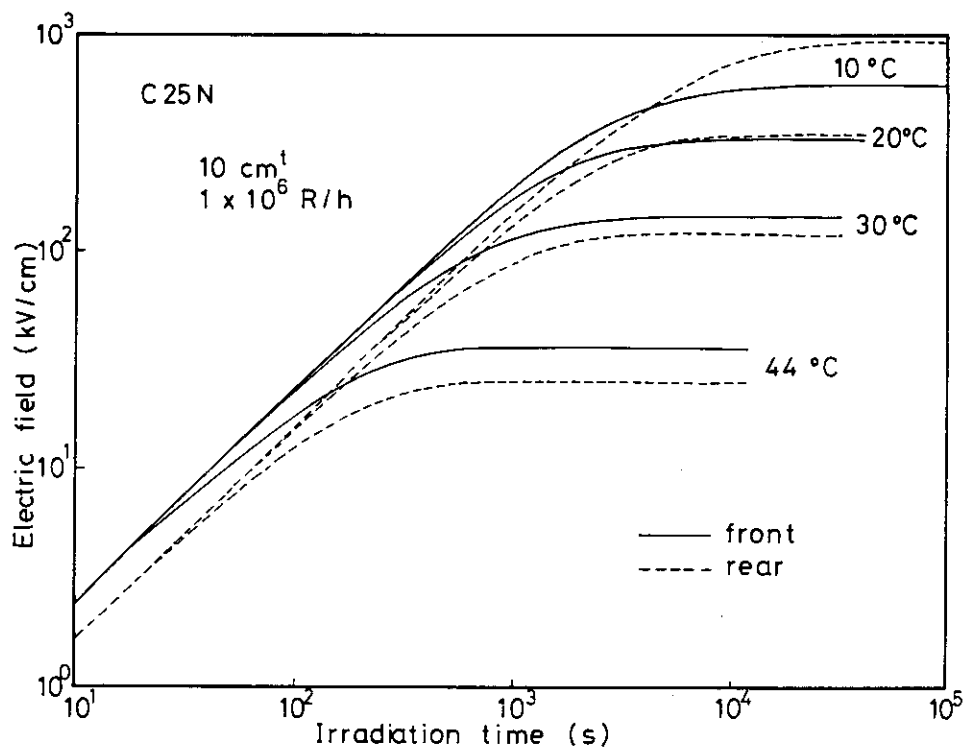


Fig. 21 C 25 Nガラスの 10 ~ 44 °Cにおける内部電界の照射時間依存性

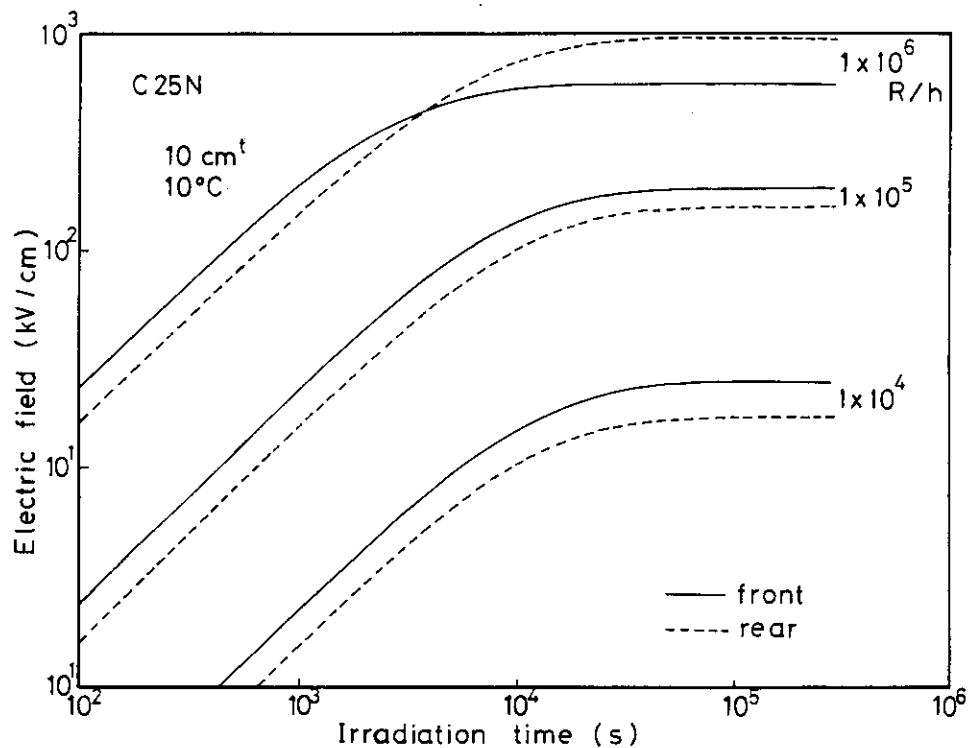


Fig. 22 C 25 Nガラスの照射線量率をパラメーターとした内部電界の変化

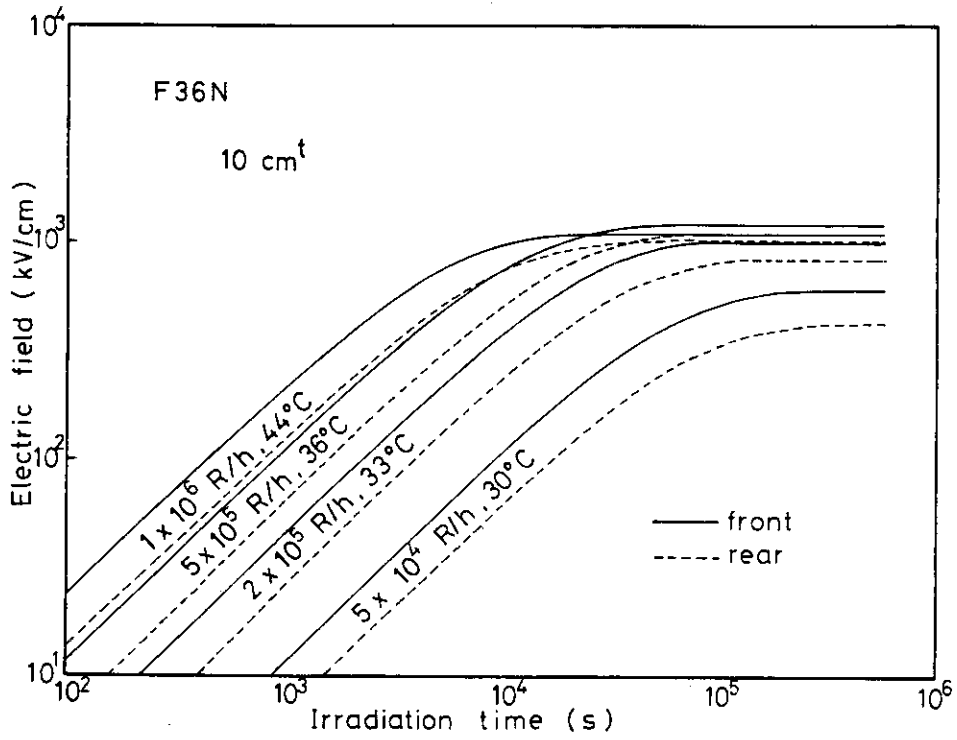


Fig. 23 誘電破壊試験条件におけるF36Nガラス内部電界の推定

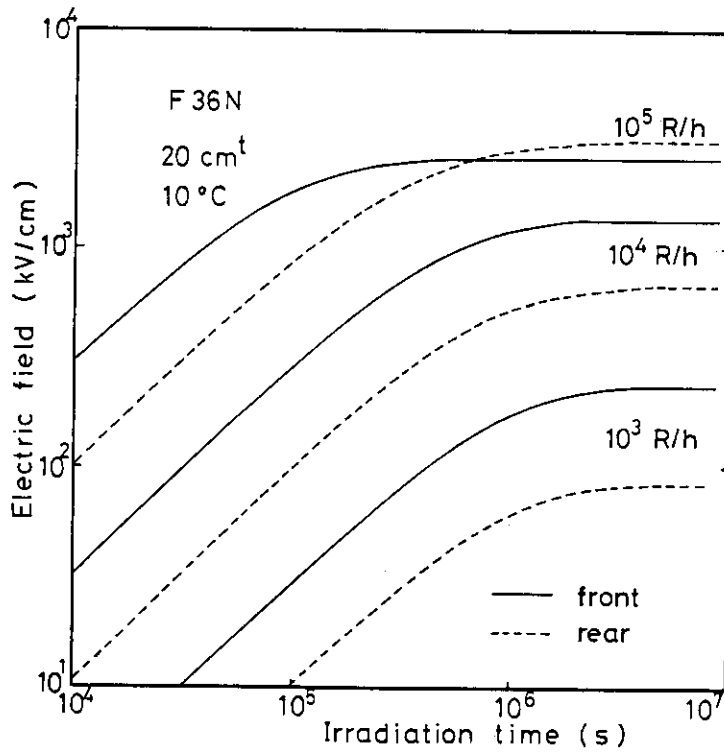


Fig. 24 20 cm厚さのF36Nガラス内部電界の線量率効果

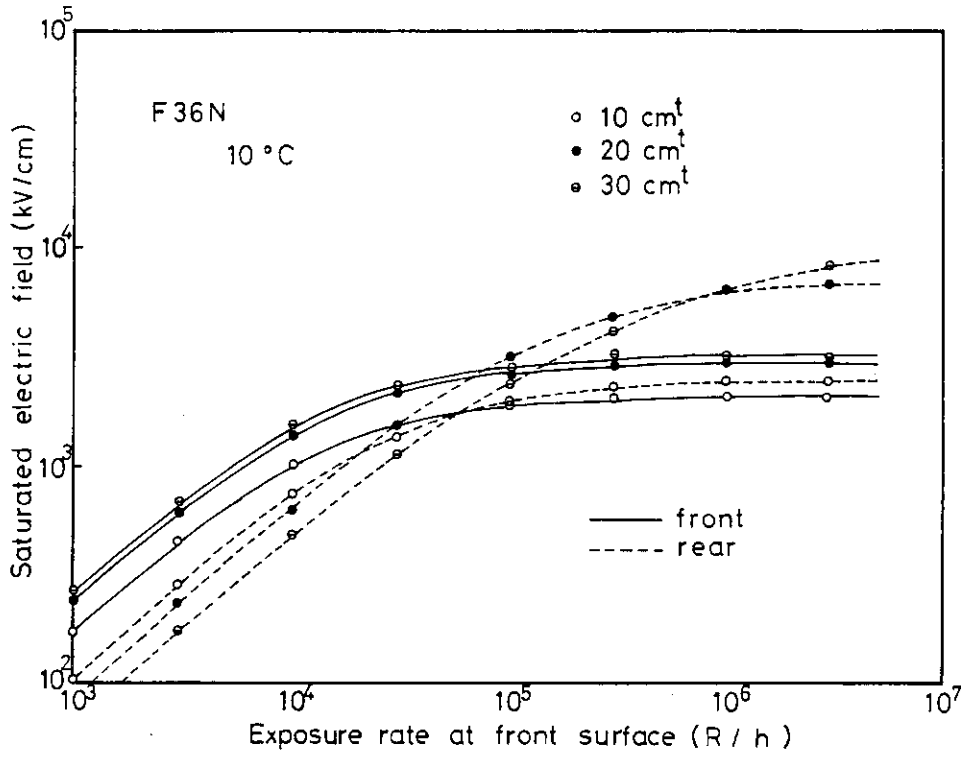


Fig. 25 F36Nガラス厚さ10cm～30cmにおける飽和内部電界とガラスブロック表面線量率との関係

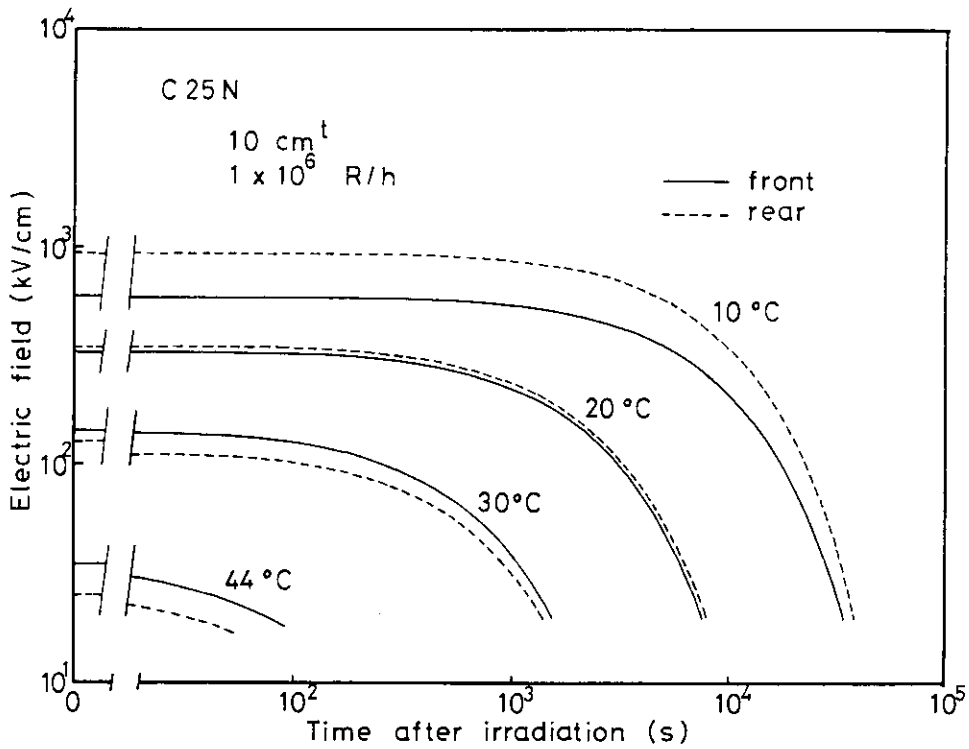


Fig. 26 C25Nガラスの照射停止後における内部電界減衰の温度効果

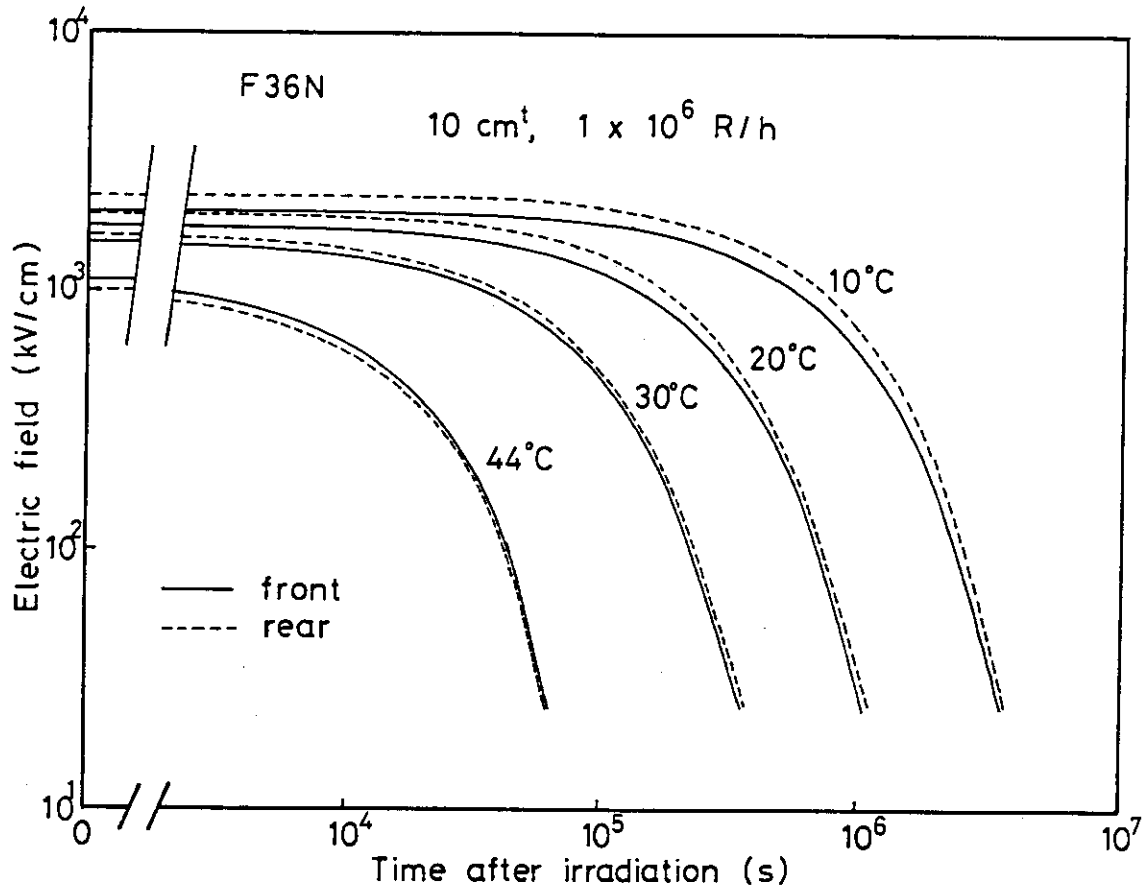


Fig. 27 F36Nガラスの照射停止後における内部電界減衰の温度効果

## 6. ガラスの着色および褪色試験

### 6.1 照射および試験方法

着色および褪色試験用のC 25 Nガラス試料は、大きさ  $30 \times 10$  mm、厚さ 10 mmの直方体の小片で、厚み方向の相対する2面を研磨したものである。照射は誘電破壊試験の場合と同様に第6照射室の板状線源を用い、試料は広さ  $300 \times 100$  mm、高さ 130 mmの鉄製架台上中央に固定して実施した。ガンマ線の入射方向は研磨面側からとし、前掲 Table 1 に示したように7種類の試料に対して 100, 300, 1,000 MRの照射線量まで、それぞれ3個ずつ照射した。

照射による着色 (Browning) の測定は、照射後 20 ~ 90 分の範囲で行った。紫外可視分光光度計は、島津製作所製 UV-210 A ダブルビーム型を用い、波長 340 ~ 700 nm の可視領域での照射による透過率変化を測定した。試料面はメタノールを湿らしたガーゼで洗浄し、測定結果の再現性を良くするため、試料はアクリル樹脂スペーサーを介してサンプルホルダーに確実に固定した。照射後 1 日 ~ 1 ヶ月間の褪色 (Fading) については、日本光学側で測定した。分光光度計は日立製 200 - 10 ダブルビーム型が用いられた。

### 6.2 試験結果

Fig. 28(a) ~ 30(b) に試料の透過率スペクトルの例を示す。照射直後の値は、使用した2種類の分光光度計の透過率指示値に若干の差があったため、日本光学側にて多少の補正・修正を行った。試料7種類について 100, 300, 1,000 MRのいずれの照射線量でも、ほぼ同様な browning と fading の傾向を示しており、線量の増加に伴う browning の進行は、それほど顕著には現れていない。これらの透過率スペクトルの時間的变化から得られた、波長 590 nm (~Na-D線) と 440 nm (水銀灯、短波長側、輝線) における吸光度変化 ( $-\log(T_t/T_0)$ ,  $T_t$ : 照射後 t (h) での透過率,  $T_0$ : 未照射試料の透過率) を Fig. 31 ~ Fig. 32 に示す。ガラスの放射線による browning の fading は、一般的に  $t^{-\lambda}$  ( $\lambda$ : fading constant) の形で近似的に表される<sup>17)</sup>が、照射時間が長い場合は複雑な形となる<sup>18)</sup>。

ここでは照射時間の影響を無視して、図中の fading を表す直線の近似式を求めた。

また browning および fading は試料中の  $CeO_2$  含有量に強く依存する<sup>19), 20)</sup>ので、7種類の試料を  $CeO_2$  含有量が 1.8% と 2.45% の2つの試料群に分離し、各群ごとに最小2乗法により fading を表す直線を与えた。直線の決定にあたっては、特にバラツキの大きい約1ヶ月後のデータは除外した。以上の結果、2つの試料群に対する直線は、590 および 440 nm の両波長とも、 $t = 10 \sim 100$  h の範囲内で交差する傾向が見られた。このことは照射による browning および fading とも、 $CeO_2$  含有量 1.8% の試料の方が大きいことを示す。照射後数時間までの browning は  $CeO_2$  含有量 2.45% の試料4種類の方が小さい値を示す。

さらに2つの試料群において、照射終了後 100 h における browning による吸光度変化量と照

射線量との関係を、Fig. 33 に示す。いずれの場合も、両者の相関関係ははっきりと認められなかった。



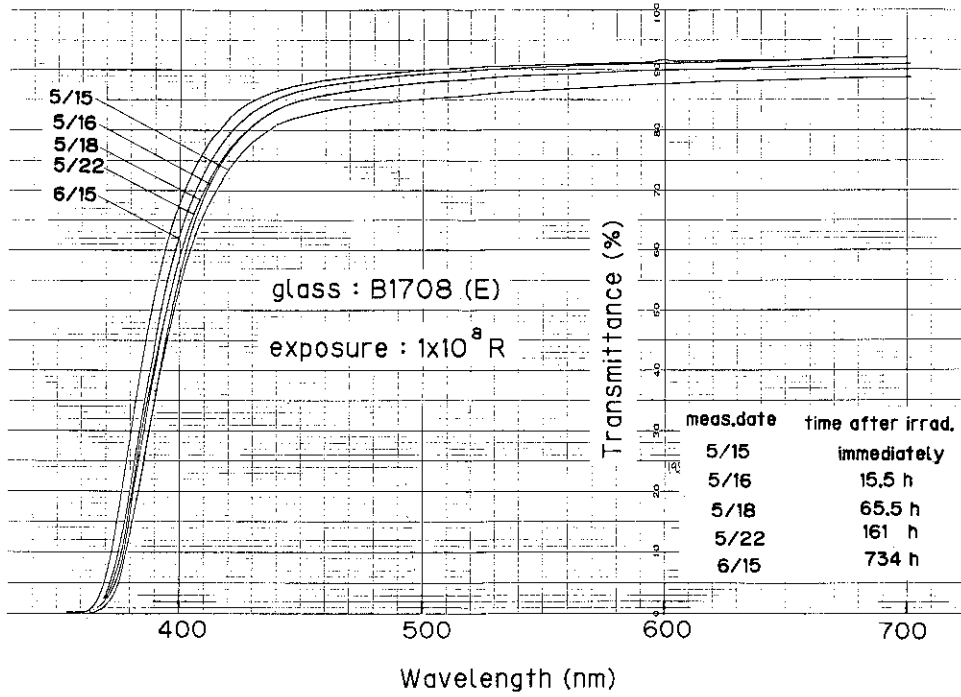


Fig. 28(a) 100 MR照射後のC 25 N (B 1708 (E)) ガラスの着色と室温放置における1ヶ月間のfading

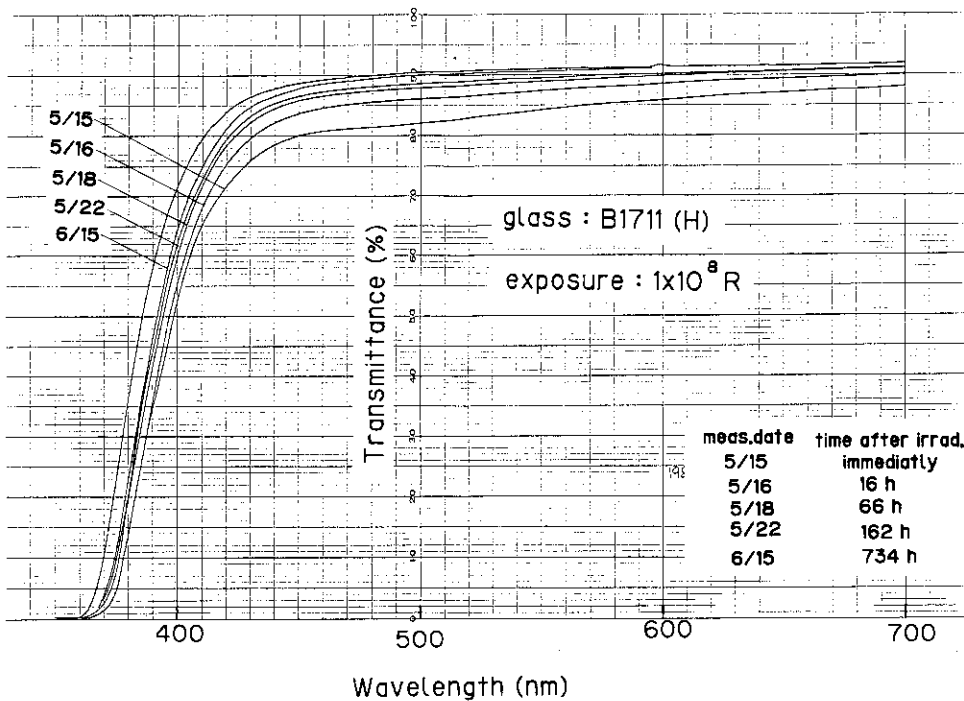


Fig. 28(b) 100 MR照射後のC 25 N (B 1711 (H)) ガラスの着色と室温放置における1ヶ月間のfading

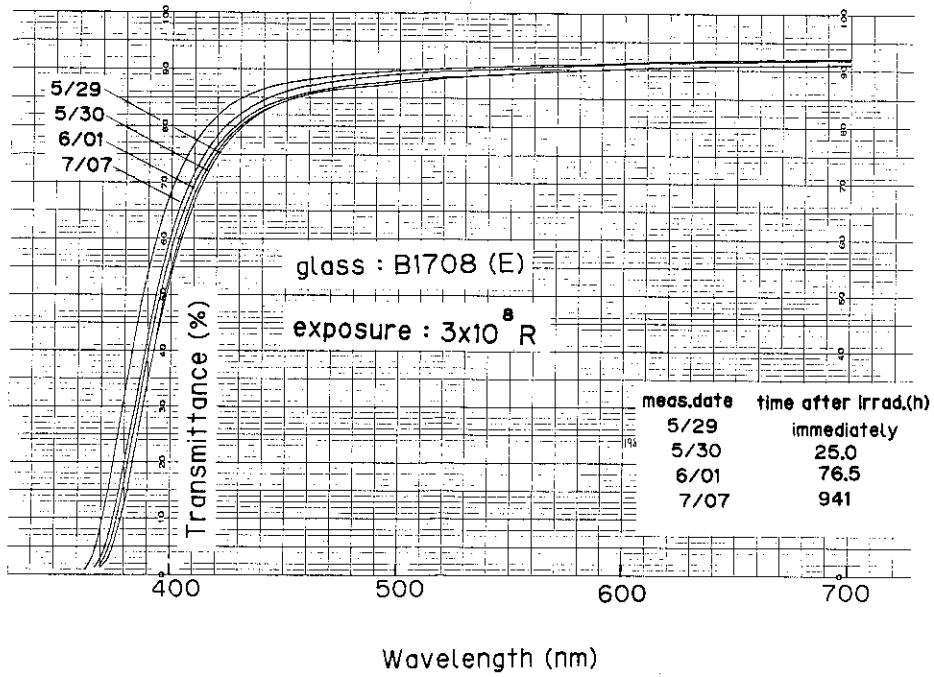


Fig. 29(a) 300 MR照射後のC 25 N (B 1708 (E)) ガラスの着色と室温放置における約 40 日間の fading

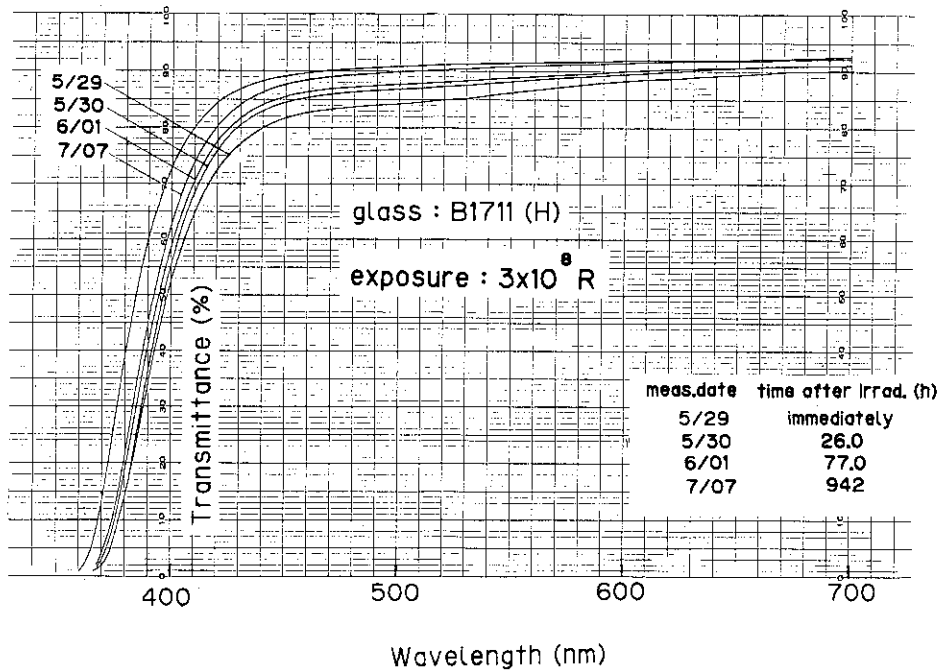


Fig. 29(b) 300 MR照射後のC 25 N (B 1711 (H)) ガラスの着色と室温放置における約 40 日間の fading

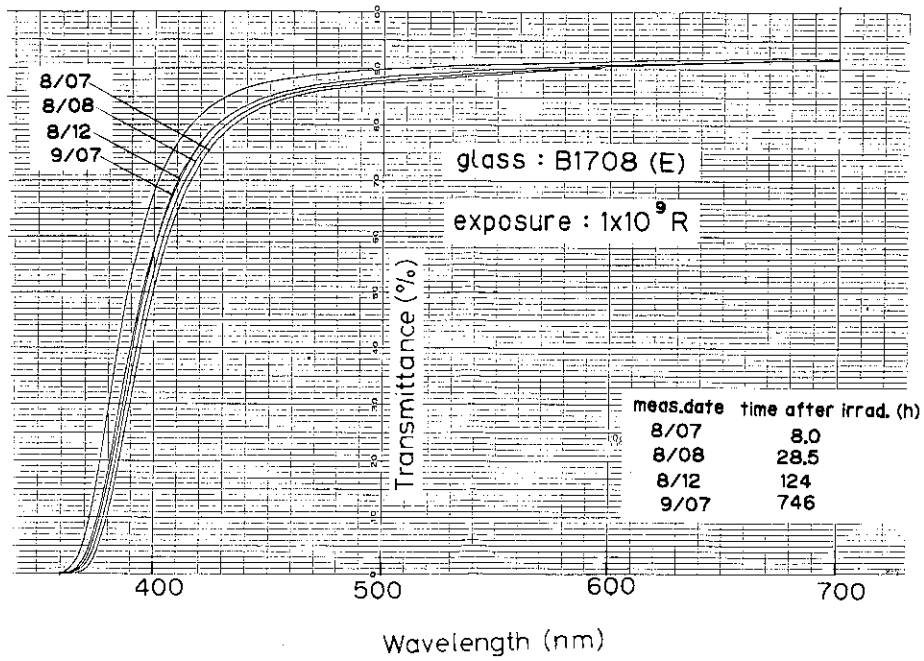


Fig. 30(a) 1000 MR照射後のC 25 N (B 1708 (E)) ガラスの着色と室温放置における1ヶ月間のfading

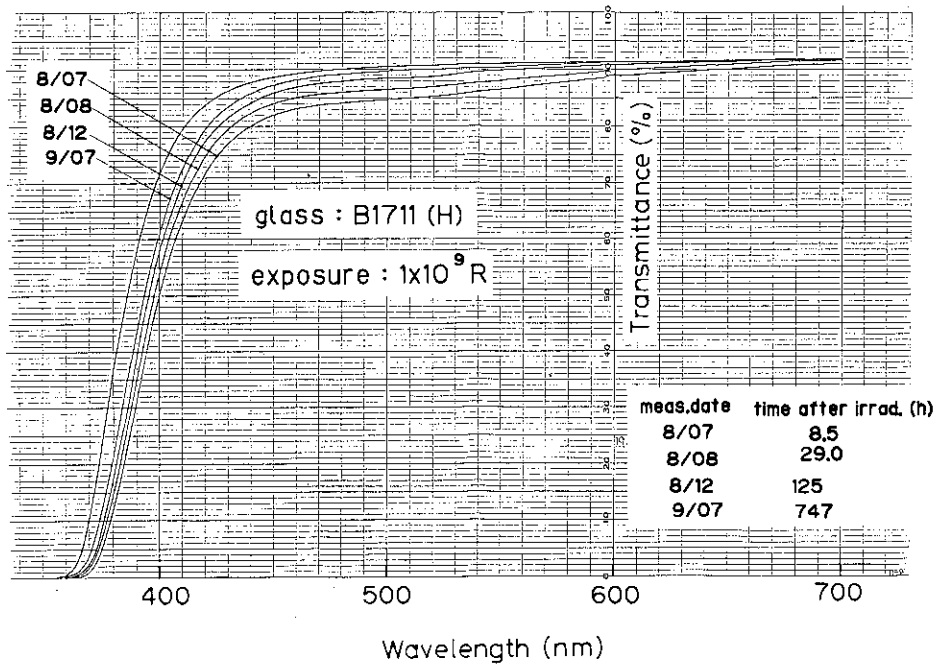


Fig. 30(b) 1000 MR照射後のC 25 N (B 1711 (H)) ガラスの着色と室温放置における1ヶ月間のfading

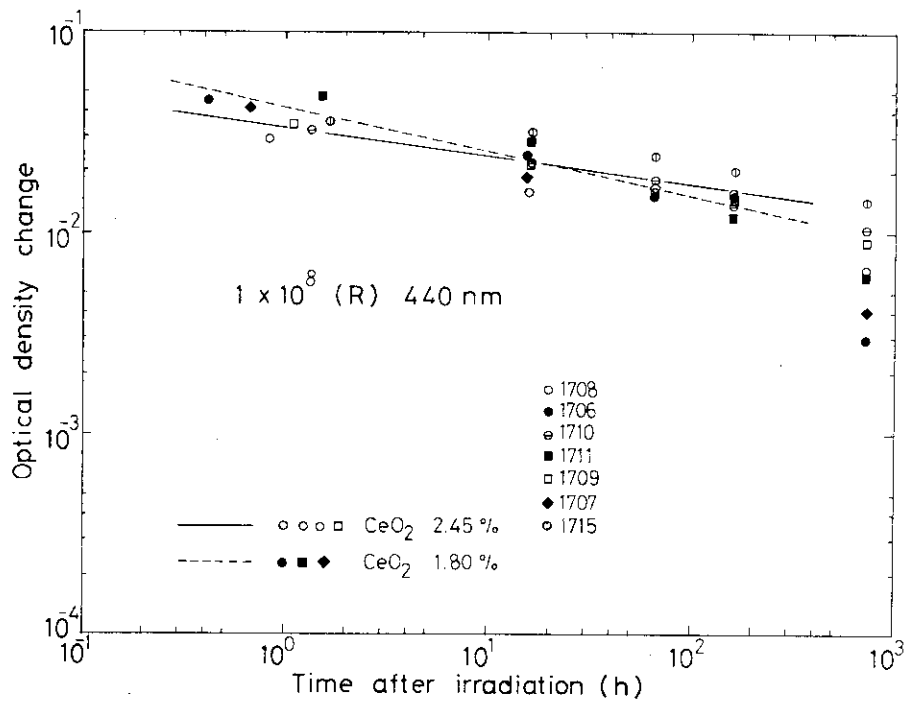


Fig. 31 C 25 Nガラスの 100 MR照射後における波長 440 nm での吸光度変化

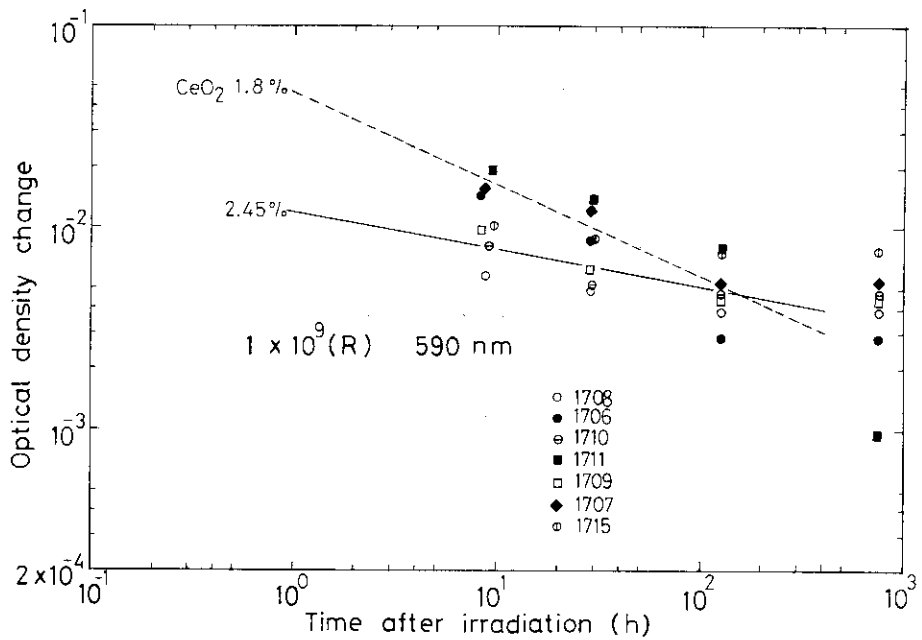


Fig. 32 C 25 Nガラスの 1000 MR照射後における波長 590 nm での吸光度変化

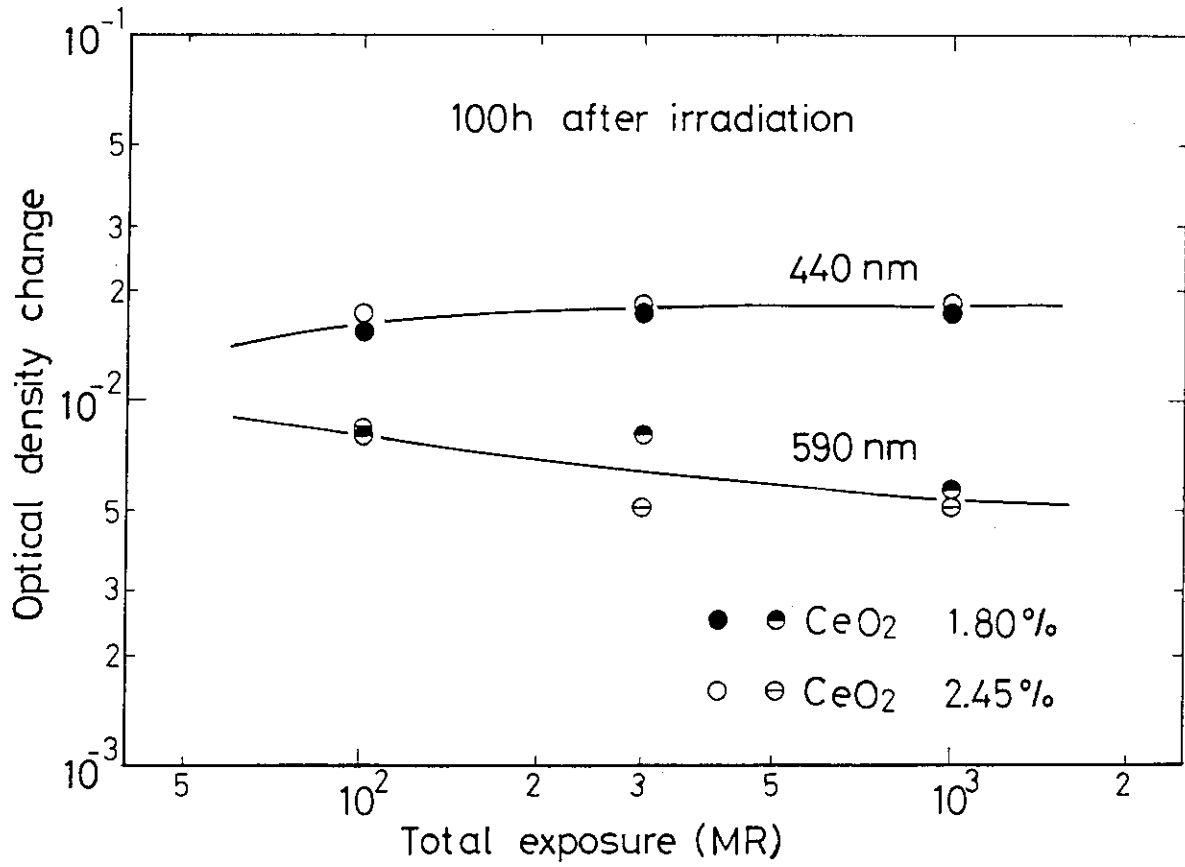


Fig. 33 C 25 Nガラスの照射後 100 hでの波長 440 nm と 590 nm をパラメータとした照射線量と吸光度変化との関係

## 7. む す び

今回の耐放射線性試験によって明らかになった主要な成果をまとめると、以下の通りである。

- (1) C 25 N ガラス各試料を  $10^6$  R/h の照射線量率で  $10^8 \sim 10^9$  R コバルト-60 ガンマ線を照射し、誘電破壊試験を行った結果、組成の異なる C 25 N 各試料とも高温環境下 ( $\sim 30^\circ\text{C}$ ) では放電破壊を生じなかった。 $10^\circ\text{C}$  程度の低温環境下では、導電率が低下して、電荷蓄積が増加するため、 $10^6$  R/h においては放電破壊の可能性が残るが、 $10^5$  R/h ではその可能性はほとんどないと考えられる。
- (2) C 25 N 各試料のコバルトガンマ線照射による着色および褪色試験の結果、酸化セリウムの含有量が増すと着色度は小さくなるが、褪色速度が減少する傾向があること、および  $10^8$  R 以上では着色度は線量にほとんど依存しないことが明らかになった。
- (3) C 25 N 各試料の放射線誘起導電率  $\sigma_r$  を測定した結果、 $\sigma_r$  は線量率にほぼ比例し、その比例定数はガラスの種類にほとんど依存しないこと、および約  $20^\circ\text{C}$  以上では、 $\sigma_r$  は非照射下の導電率  $\sigma_0$  より小さいことが明らかになった。
- (4) ガラス内部の電荷蓄積挙動の解析を試みた。これによって試料内の電界分布、照射下および照射後の電界値の時間的変動、さらに線量率、温度の影響が明らかになり、放射線遮蔽窓ガラス内の電荷蓄積についての定量的考察が、はじめて可能となった<sup>21), 22)</sup>
- (5) F 36 N ガラスについては、放射線遮蔽窓ガラスとして使用される室温環境下の通常条件では、放電破壊が発生することが判明した。したがってこのような環境条件においても誘電破壊の発生を抑制することを目的として、さらにガラス組成を変えて導電率および内部歪等の影響を追加して検討することとした。

これらについては第 2 報「放射線遮蔽窓ガラスの耐放射線性の研究(II) (F 36 N ガラスの誘電破壊と電荷蓄積)」で詳しく述べる。

## 謝 辞

誘電破壊試験および着色試験に用いたガラス試料の製作、加圧試験装置の貸与、さらにはガラス試料の非照射下導電率の測定に尽力していただいた日本光学工業㈱の刈谷道郎、松本明の両氏に深く感謝いたします。

またプログラマブルディジタイザーを用いた放電電荷量の測定に際して協力していただいた、ソニーエレクトロニクス㈱の長谷川和美、柴田敬久の両氏に謝意を表します。

また本研究の遂行にあたってご指導していただいた、高崎研究所の鷲野正光氏に感謝いたします。

## 7. む す び

今回の耐放射線性試験によって明らかになった主要な成果をまとめると、以下の通りである。

- (1) C 25 N ガラス各試料を  $10^6$  R/h の照射線量率で  $10^8 \sim 10^9$  R コバルト-60 ガンマ線を照射し、誘電破壊試験を行った結果、組成の異なる C 25 N 各試料とも高温環境下 ( $\sim 30^\circ\text{C}$ ) では放電破壊を生じなかった。 $10^\circ\text{C}$  程度の低温環境下では、導電率が低下して、電荷蓄積が増加するため、 $10^6$  R/h においては放電破壊の可能性が残るが、 $10^5$  R/h ではその可能性はほとんどないと考えられる。
- (2) C 25 N 各試料のコバルトガンマ線照射による着色および褪色試験の結果、酸化セリウムの含有量が増すと着色度は小さくなるが、褪色速度が減少する傾向があること、および  $10^8$  R 以上では着色度は線量にほとんど依存しないことが明らかになった。
- (3) C 25 N 各試料の放射線誘起導電率  $\sigma_r$  を測定した結果、 $\sigma_r$  は線量率にほぼ比例し、その比例定数はガラスの種類にほとんど依存しないこと、および約  $20^\circ\text{C}$  以上では、 $\sigma_r$  は非照射下の導電率  $\sigma_0$  より小さいことが明らかになった。
- (4) ガラス内部の電荷蓄積挙動の解析を試みた。これによって試料内の電界分布、照射下および照射後の電界値の時間的変動、さらに線量率、温度の影響が明らかになり、放射線遮蔽窓ガラス内の電荷蓄積についての定量的考察が、はじめて可能となった<sup>21), 22)</sup>
- (5) F 36 N ガラスについては、放射線遮蔽窓ガラスとして使用される室温環境下の通常条件では、放電破壊が発生することが判明した。したがってこのような環境条件においても誘電破壊の発生を抑制することを目的として、さらにガラス組成を変えて導電率および内部歪等の影響を追加して検討することとした。

これらについては第 2 報「放射線遮蔽窓ガラスの耐放射線性の研究 II (F 36 N ガラスの誘電破壊と電荷蓄積)」で詳しく述べる。

## 謝 辞

誘電破壊試験および着色試験に用いたガラス試料の製作、加圧試験装置の貸与、さらにはガラス試料の非照射下導電率の測定に尽力していただいた日本光学工業㈱の刈谷道郎、松本明の両氏に深く感謝いたします。

またプログラマブルディジタイザーを用いた放電電荷量の測定に際して協力していただいた、ソニーエレクトロニクス㈱の長谷川和美、柴田敬久の両氏に謝意を表します。

また本研究の遂行にあたってご指導していただいた、高崎研究所の鷲野正光氏に感謝いたします。

## 参 考 文 献

- 1) Culler V. : Proc Lab. and Conf., Cleveland, 120 (1959)
- 2) Lamb E. : QRNL Central Files No. 60-12-13 (1960)
- 3) 第4回日本アイソトープ会議報文集 p.123 (1961)
- 4) 山本格治 : 応用物理 31, 377 (1962)
- 5) 山本格治 : Isotope News, p.7, June (1972)
- 6) ガラス工学ハンドブック, 朝倉書店, p.825 (1963)
- 7) Proctor T. M. : Phys Rev. 116, 1436 (1959)
- 8) Yamamoto K. and Tsuchiya M. : J. Appl. Phys. 33, 3016 (1962)
- 9) 山本格治, 土屋正雄 : 応用物理 30, 589 (1961)
- 10) Hardtke F. C. and Ferguson K. R., 11 th Hot lab. Proceedings, ANS (1963)
- 11) Matsuoka S., Sunaga H., Tanaka R. et. al., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-23, 1447 (1976)
- 12) Tanaka T., Sunaga H. and Tamura H., IEEE Trans. Nucl. Sci., NS-26, 4670 (1979)
- 13) 田中隆一, 須永博美, 田村直幸, 家田正之他 : JAERI-M-9517 (1981)
- 14) 田中隆一, 田村直幸 : 電気学会誌, 100-A, 141 (1980)
- 15) Gross B. et. al., J. Appl. Phys., 44, 2459 (1973)
- 16) Storm E. and Israel H. I., LA-3753 (1967)
- 17) Rabin H. and Price W. E., Nucleonics 13 (1955)
- 18) 中村義輝, 田中隆一 : JAERI-M-5976 (1975)
- 19) Kreidl N. J. and Hensler J. R., J. Am. Ceram. Soc., 38, 12 (1955)
- 20) 田代, 會我, 作花 : J. Ceram. Assoc. Japan, 68, 7 (1960)
- 21) 田中隆一, 中村義輝, 須永博美他 : EIM-82-24 (1982)
- 22) 田中隆一 : EIM-87-39 (1987)



## 付録1 電子線照射によるガラスの電荷蓄積

照射下導電率測定における電子線照射時についてもガラス試料の放電破壊が発生したことは、すでに本文4.4.3項で述べた。このような現象は磁場コイル用絶縁物のマイカエポキシ試料<sup>13)</sup>あるいは電線ケーブルのポリエチレン絶縁体<sup>11)</sup>についても、すでに報告されている。

ここでの電荷蓄積に関する検討方法は、4項で示したものと同様とした。ただし電荷堆積率分布  $G_T(x)$  については、1.5 MeVの電子エネルギーにおけるガラス絶縁物中の電子透過曲線（深部線量率分布）の透過距離に関する微分をもとにして求めた。

C 25 Nガラスについて得られた過剰電子密度と電界の値を、Fig. A 1～A 2に示す。ガンマ線における過剰電荷密度分布（前掲Fig. 25 および 26 参照）とは異なり、電子線の最大透過深さ3 mmまでの範囲でその値は大きく変動している。試料温度10℃と30℃の場合では $\sigma_0$ は約13倍異なるが、電界強度値はほぼ同等となっている。この理由は電子線照射ではガンマ線照射に比べて線量率が桁違いに高いので、C 25 Nにおいても $\sigma$ はほとんど線量率に支配されるためである。また電界の絶対値は前面で最大値を示し、50秒後には2.5 MV/cmに達している。また電界は約2分程度で飽和し、その値は約3.7 MV/cmと推定された。

これらの検討から線量率 $1 \times 10^6$  R/h程度のガンマ線照射では放電破壊を生じなかったC 25 Nガラスブロック試料についても、線量率80 Mrad/h ( $0.1 \mu\text{A}/\text{cm}^2$ )の電子線照射では、十分に放電破壊の発生が予測される計算結果が得られ、前述の測定実験における放電破壊例とよく対照することが確かめられた。

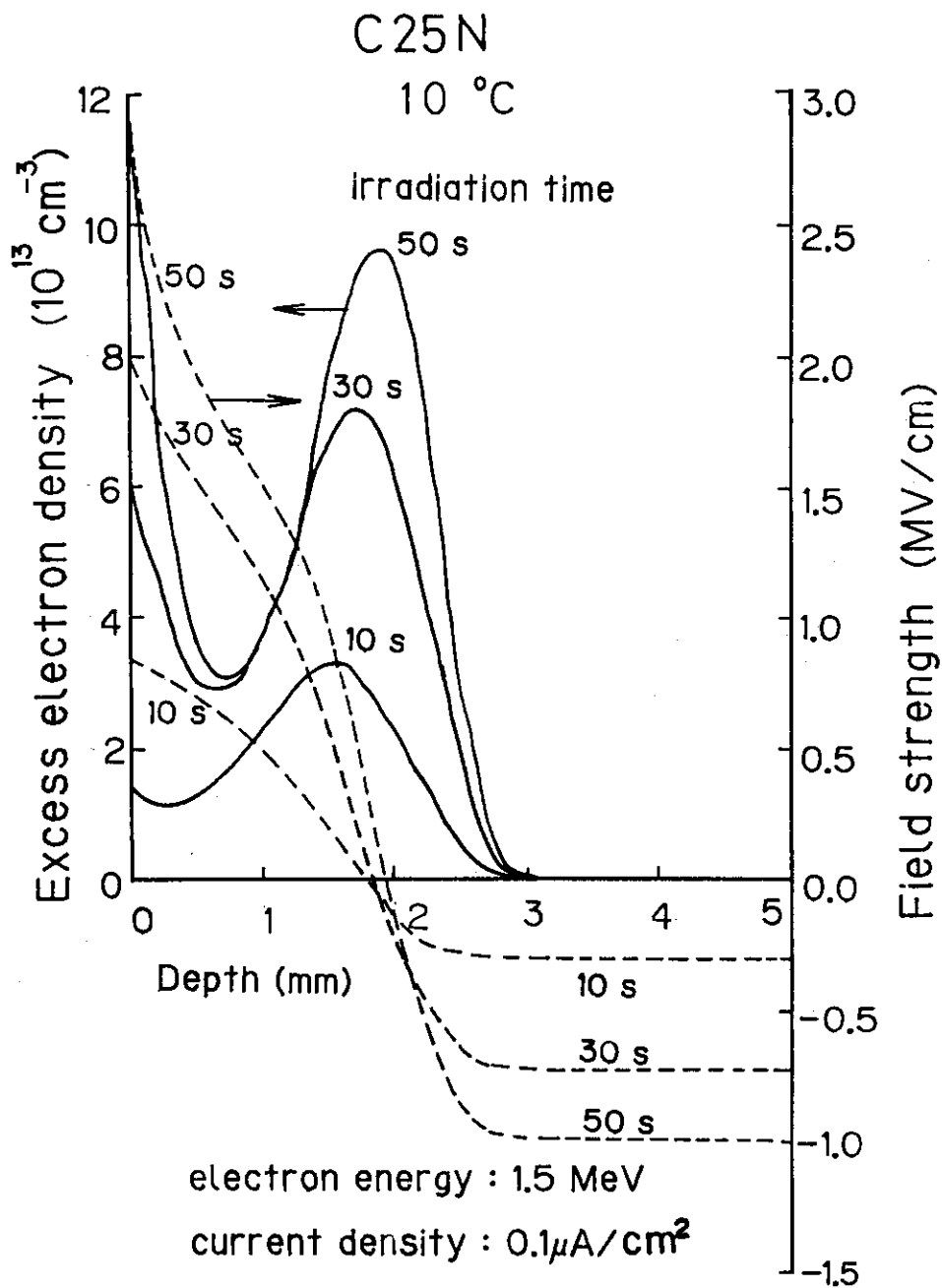


Fig.A 1 電子線照射によるC 25 Nガラス板中の内部電界と過剰電子密度の照射時間依存性 (試料温度 10 °C)

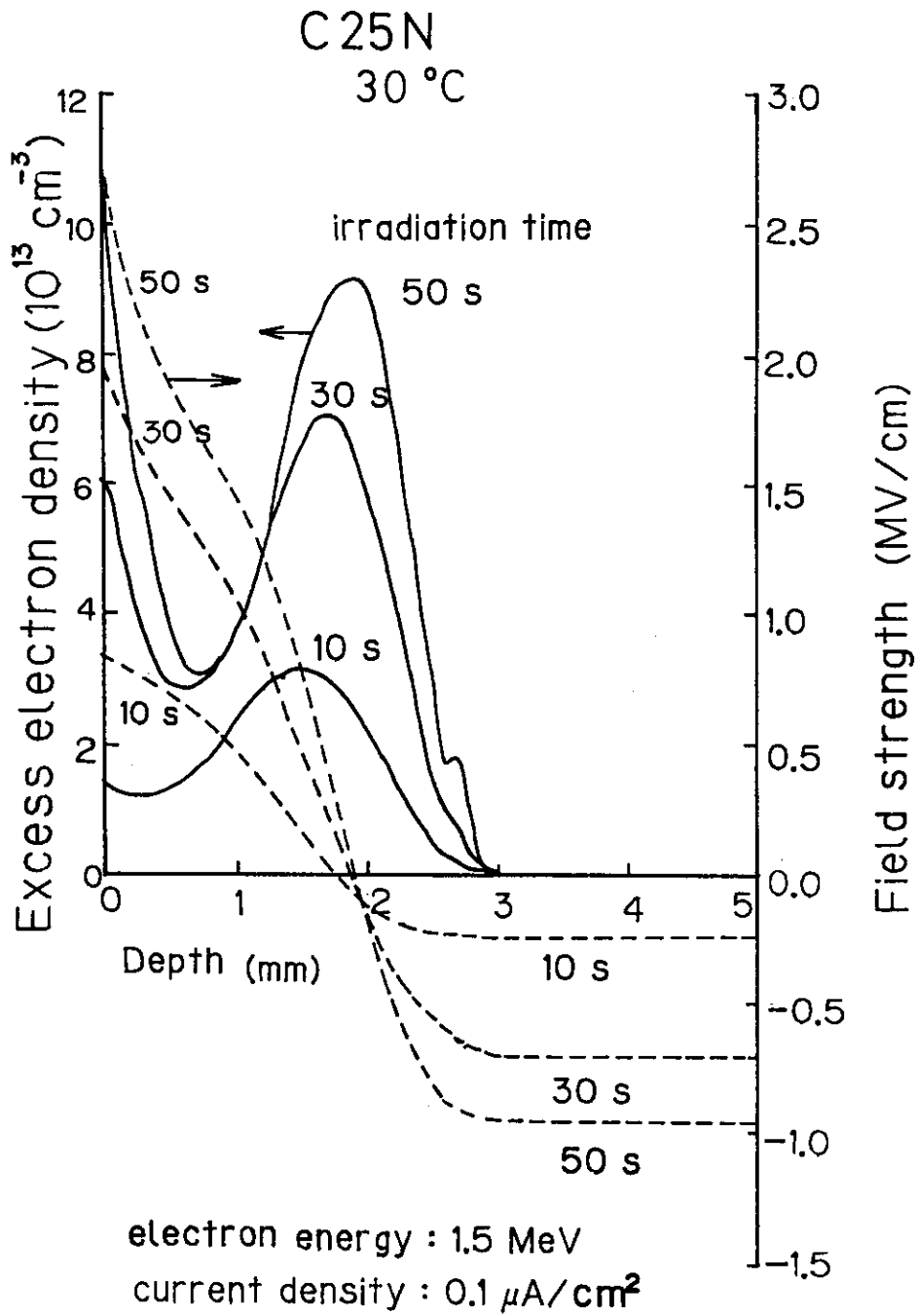


Fig.A 2 電子線照射によるC 25 Nガラス板中の内部電界と過剰電子密度の照射時間依存性 (試料温度 30 °C)

## 付録2 C 25 N ガラスの低温誘電破壊試験

照射試料は各実験ごとに10 cm角の立方体ガラスブロック2ヶとした。このため周囲に断熱材の合板を巻いたステンレス製の試料収納槽(300×200×200)を作成して、それを利用した。誘電破壊試験の結果をTable A 1に示す。最初に氷あるいはクールニクスを用いて、照射時温度0℃および数℃、照射線量率約 $1 \times 10^6$  R/h、照射時間6~18 hの照射試験を計6回行ったが、これらの試験においては全く放電破壊は発生しなかった。

次にドライアイスとメタノールを冷媒として照射時温度を-78℃まで下げ、照射時間3~8 hでさらに6回の照射実験を行った。その結果C 25 Nガラスブロック試料の大部分で放電破壊の発生が観察された(Photo. A 1およびA 2参照)。放電破壊を生じたこれらのガラスブロックについては、本文3.2項と同様リヒテンベルグパターン(LP)の大きさを目視で測定した。結果をTable A 2に示す。LPの範囲を単純な円筒状と仮定し前掲Table 3と比較すると、その領域は容積比で約1/3~1/15程度の規模に縮小している。

またC 25 Nガラスにおける電界飽和値の温度依存性の計算結果を、Fig. A 1に示す。約20℃で10 cm厚さガラスブロックの前面と後面での電界飽和絶対値が逆転しており、さらに温度が低下するにつれて両者の差が大きくなり、-20℃で3.5倍程度にまで拡大している。

電界飽和値は0℃において0.8~2 MV/cmであるが、一方-78℃では3~10 MV/cmにも達していることがわかる。この結果はF 36 Nガラスの室温照射における前述の誘電破壊試験結果ともよく対応しており、電荷蓄積に関する計算の信頼性が再確認された。

Table A1 C25Nガラスブロック等の低温誘電破壊試験結果

ガラスの種類	No.	照射温度 (°C)	線量率 (R/h)	照射時刻	照射時間 (h)	中断時間 (h)	放電破壊テストの状況	備考
C25N	8-12 8-13	0	~1 × 10 <sup>6</sup>	1/27 9:50 ~ 16:50	6.7	0.30	16:57 200 kgまで 17:00 放電なし	水補給2回
C25N	6-18 6-14	0	~1 × 10 <sup>6</sup>	2/4 9:58 ~ 17:02	6.4	0.66	17:12 200 kgまで 17:16 放電なし	水補給2回
C25N	6-18 6-14	4.6 ~ 7.0	~1 × 10 <sup>6</sup>	2/18 2/19 18:48 ~ 11:26	16.6	0	200 kgまで 放電なし	クーリングス使用での水の冷却, 2/4 試験済試料再使用 (アニール*後)
C25N	8-13 8-12	4.5 ~ 7.0	~1 × 10 <sup>6</sup>	3/2 3/3 17:16 ~ 11:28	18.2	0	11:45 200 kgまで 11:50 放電なし	クーリングス使用, 1/27 試験済試料再使用
NB		0	~1 × 10 <sup>6</sup>	3/31 9:55 ~ 18:40	8.0	0.75	200 kgまで 放電なし	水補給3回
C25N	11-17 11-18	-78	~1 × 10 <sup>6</sup>	4/2 10:15 ~ 18:58	8.0	0.72	19:30 ~ 170 kgで放電 200 kgまで放電なし	(後面) ドライアイス+メタノールで照射
C25N	11-19 11-20	-78	~1 × 10 <sup>6</sup>	4/13 11:56 ~ 17:07	4.9	0.28	17:18 ~ 130 kgで放電 17:20 ~ 120 "	(前面or後面) } 荷重試験面を3面とした。 (上面)
NB		-78	~1 × 10 <sup>6</sup>	4/15 10:07 ~ 17:01	6.4	0.50	200 kgまで 放電なし	ドライアイス2回補給
L35C C25N	B 11-18	-78	~1 × 10 <sup>6</sup>	4/16 10:50 ~ 14:02	3.0	0.20	冷却時に割れる。 200 kgまで放電なし	ドライアイス1回補給 4/2 試験済試料再使用
C25N	6-20 6-19	-78	~3 × 10 <sup>5</sup>	4/20 11:16 ~ 19:07	7.3	0.55	19:20 ~ 200 kgで放電 19:25 200 kgまで放電なし	(前面) ドライアイス2回補給
C25N	11-18 6-19	-78	~7 × 10 <sup>5</sup>	4/23 11:02 ~ 14:13	3.0	0.20	~160 kgで放電 ~200 kgで放電 ~120 kgで放電	(上面) 4/16 試験済試料再々使用 (上面) → しばらく荷重をかけたまままで放電 (前面) → 小規模
C25N	8-19 8-18	0	~1 × 10 <sup>6</sup>	4/27 9:45 ~ 19:07	8.5	0.87	19:30 200 kgまで 19:35 放電なし	

照射はガラスブロックを2ヶつつ、照射槽 (ステンレス箱+木製箱) に入れて行った。

\* アニールは130℃で2~3hとした。

Table A2 C25Nガラスのリヒテンベルグパターンサイズの測定結果

ガラス試料番号	照射線量	LP の深さ	LP の広がり	備 考	
	(MR)	(mm)	直径 (mm)	(ガラス試験面)	
6-19	2.1	55	10	上 面	放電2回あり
		10	5	前 面	
6-20	2.2	40	15	前 面	
11-17	8.0	60	40	後 面	
11-18	2.1	50	15	上 面	
11-19	4.9	65	30	前 面	
11-20	4.9	65	35	上 面	

註) 寸法測定は、ガラスブロックを黒布の上に置き、リヒテンベルグパターンが肉眼でよく見える範囲を目測した。したがってLPの深さおよび広がり(直径)は、概略の数値である。  
またガラスブロックの温度は、全て $-78^{\circ}\text{C}$ である。

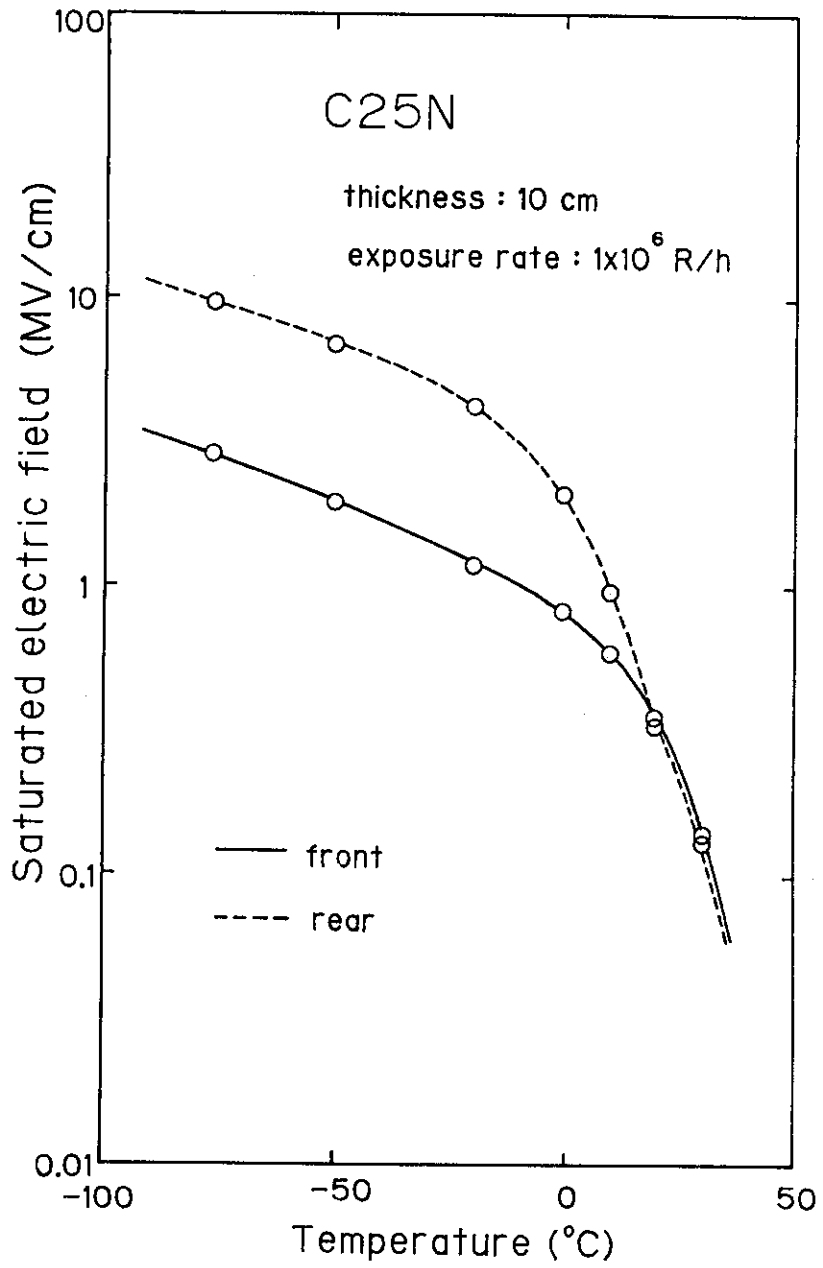


Fig.A1 低温領域（室温～-100 °C）でのC25Nガラス内部の飽和電界強度の推定

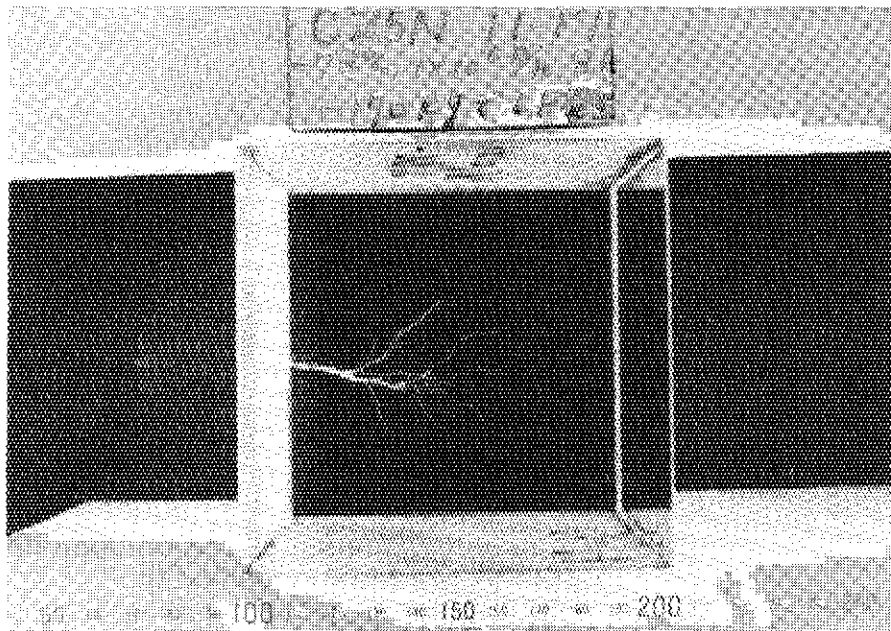


Photo.A 1 低温で照射したC 25 Nガラスブロックに発生した小規模な Lichtenberg crackの様子（側面）

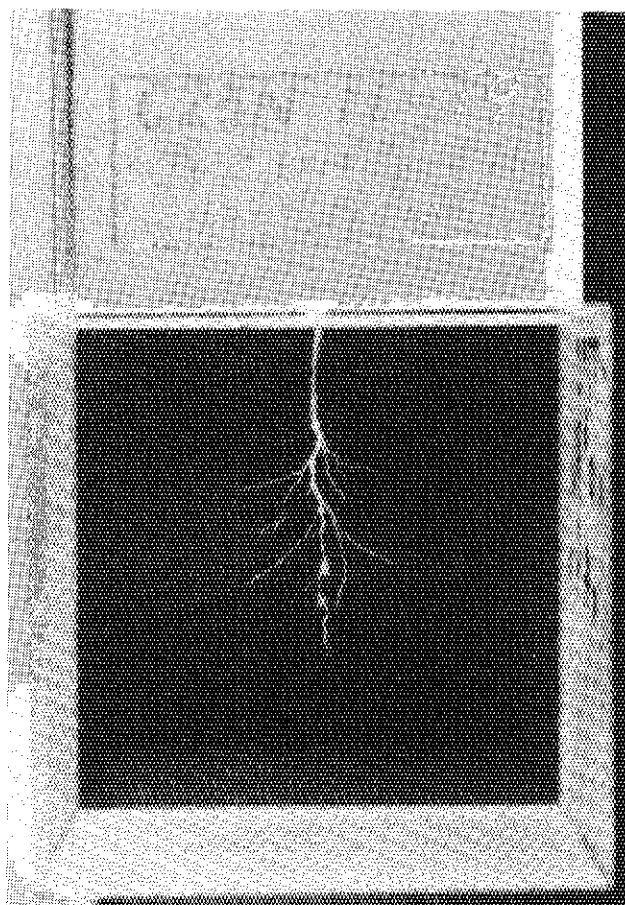


Photo.A 2 低温で照射したC 25 Nガラスブロックに発生した小規模な Lichtenberg crackの様子（側面）