

JAERI-Research

97-042



核融合実験炉用窓材料の14MeV
中性子照射実験

1997年6月

佐藤文信*・大山幸夫・飯田敏行*

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、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、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-11 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越してください。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）で複写による実費頒布をおこなっております。

This report is issued irregularly.

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

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1997

編集兼発行 日本原子力研究所
印刷 (株)原子力資料サービス

核融合実験炉用窓材料の 14MeV 中性子照射実験

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部

佐藤 文信*・大山 幸夫・飯田 敏行*

(1997年5月14日受理)

熱核融合炉のプラズマ診断計測システムで問題となる窓の放射線照射による発光雑音を評価するために、窓材料の 14MeV 中性子照射誘起発光について調べた。14MeV 中性子発生装置を利用して、中性子照射中の窓材料からの発光を光ファイバと光子カウンティング装置によって測定する実験システムを製作した。この実験システムによって、サファイア、高純度石英ガラス、石英単結晶からの発光スペクトルと強度を測定した。全ての試料において、発光強度は $10^6 \sim 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{s}$ 領域の中性子強度にほぼ比例していた。14MeV 中性子照射実験でのサファイアの発光効率は、F センター発光が $2200 \pm 700 \text{ photons/MeV}$ であり、F⁺ センターによる発光は、F センターに比べ 2 桁近く小さい強度であった。高純度石英ガラスでは、450nm 付近に酸素空孔での励起子による発光が観測され、可視域の 14MeV 中性子誘起による発光効率は $5 \pm 3 \text{ photons/MeV}$ で、 γ 線による発光効率 $135 \pm 50 \text{ photons/MeV}$ に比べて 3~4% の値であった。また、石英単結晶では、さらに 650nm 付近の発光が観測され、その発光効率は、 $14 \pm 4 \text{ photons/MeV}$ であった。

東海研究所：〒319-11 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4

* 特別研究生 (大阪大学)

* 大阪大学

14MeV Neutron Irradiation Experiment on Window Materials
for Fusion Experimental Reactor

Fuminobu SATO*, Yukio OYAMA and Toshiyuki IIDA*

Department of Reactor Engineering
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 15, 1997)

Data on wavelength spectra of photons emitted from window material during neutron and gamma-ray irradiation has been required for design of next D-T burning fusion reactor such as ITER. Thus, a photon measurement system has been developed to analyze wavelength spectra of photons emitted from the optical window materials during 14MeV-neutron irradiation, and the system consisted of a sample holder, a radiation-resistant optical fiber, a photon counting analyzer and other electronic devices. The irradiation experiments for synthesized sapphire, high-purity silica glass and synthesized quartz were performed using a fusion neutron source FNS. As for all the sample, number of photon emission was proportional to the 14MeV-neutron flux in the range of $10^6 \sim 10^{11} \text{n/cm}^2/\text{sec}$. The photon emission efficiency of F-center luminescence of the sapphire was $2200 \pm 700 \text{photons/MeV}$, while the efficiency of F⁺-center luminescence was two order less than that of F-center. The wavelength spectra of the high-purity silica glass had a large peak around 450nm, which was concerned with decay of self-trapped excitons in oxygen vacancies. Its photon emission efficiency for 14MeV-neutrons has been found to be about $5 \pm 3 \text{photons/MeV}$ in visible range, while that for gamma-rays to be about $135 \pm 50 \text{photons/MeV}$. The spectrum of photons emitted from the quartz had two large peaks around not only 450nm but also 650nm, and the photon emission efficiency in the wavelength range of 350 ~ 750nm was $14 \pm 4 \text{photons/MeV}$.

Keywords: ITER, 14MeV Neutron Radiation Effect, Window Materials, Silica, Sapphire, Light Emission Spectrum

* Fellow of Advanced Science
* Osaka University

目 次

1. 緒 言	1
2. 照 射 場	3
2.1 14MeV 中性子源と照射場	3
2.1.1 14MeV 中性子発生装置	3
2.1.2 MCNP による 14MeV 中性子照射場解析	3
2.2 ^{60}Co γ 線の照射場	6
3. 窓材料の放射線誘起発光測定システム	7
3.1 14MeV 中性子誘起発光測定システム	7
3.1.1 試料容器	7
3.1.2 光ファイバ	7
3.1.3 光検出器システム	8
3.1.4 中性子発生量測定	10
3.2 ^{60}Co γ 線誘起発光測定システム	10
3.3 測定効率の決定	10
3.3.1 絶対発生光子数	10
3.3.2 光検出器の分光感度特性	12
3.3.3 標準光源	12
3.3.4 光ファイバ透過効率の較正	14
3.3.5 分光器の較正	14
3.3.6 光電子増倍管での入射光子数の補正	15
3.3.7 窓材料試料の有効体積 V_{eff} と集光効率 η_L の較正	17
3.4 誤差評価	20
4. 実験結果と考察	21
4.1 実験結果	21
4.1.1 14MeV 中性子照射実験	21
4.1.2 ^{60}Co γ 線照射実験	22
4.2 実験結果の考察	22
4.2.1 サファイア	22
4.2.2 石英ガラス	23
4.2.3 Ge 添加石英ガラス	23
4.2.4 石英単結晶	24
4.2.5 14MeV 中性子と γ 線照射効果の比較	25
5. 結 論	27
謝 辞	27
参考文献	28

Contents

1. Introduction	1
2. Irradiation Field	3
2.1 14MeV Neutron Source and Its Irradiation Field	3
2.1.1 14MeV Neutron Generator	3
2.1.2 MCNP Calculation of 14MeV Neutron Irradiation Field	3
2.2 ⁶⁰ Co Gamma-ray Irradiation Field	6
3. Measuring System of Radiation Induced Light Emission	
From Window Materials	7
3.1 Measuring System of Neutron Induced Light Emission	7
3.1.1 Sample Chamber	7
3.1.2 Optical Fiber	7
3.1.3 Photo-Detector System	8
3.1.4 Neutron Measurement	10
3.2 Measuring System of ⁶⁰ Co Gamma-ray Induced Light Emission	10
3.3 Determination of Detection Efficiency	10
3.3.1 Absolute Measurement of Photon Emission	10
3.3.2 Spectral Sensitivity of Photo-Detector	12
3.3.3 Standard Light Source	12
3.3.4 Calibration of Light Transmission Efficiency of Optical Fiber	14
3.3.5 Calibration of Spectrometer (Polychrometer)	14
3.3.6 Correction of Incident Photon Number for Photo-Multiplier	15
3.3.7 Effective Volume of Window Material Samples and Calibration of Light Collection Efficiency	17
3.4 Measurement Error	20
4. Experimental Results and Discussion	21
4.1 Experimental Results	21
4.1.1 14MeV Neutron Irradiation Experiment	21
4.1.2 ⁶⁰ Co Gamma-ray Irradiation Experiment	22
4.2 Discussion	22
4.2.1 Sapphire	22
4.2.2 High Pure Quartz Glass	23
4.2.3 Ge Doped Quartz Glass	23
4.2.4 Single Crystal Quartz	24
4.2.5 Comparison of Irradiation Effects by 14MeV Neutrons and Gamma-rays	25
5. Conclusion	27
Acknowledgments	27
References	28

1. 緒 言

国際熱核融合実験炉(ITER)の計画では、日本、EU、米国及びロシアの4極によってITER建設に向けて工学設計活動が着実に実施されている。^{(1),(2),(3)} プラズマ閉じ込め研究においては生成プラズマの特性を正確に把握することが最も大切であり、電子密度、温度、イオン温度等の重要な諸量評価のために種々の測定法が開発されてきた。現在のD-Tプラズマを用いる核融合炉システムでは、大量の14MeV核反応中性子が発生し、この中性子が計測機器要素の照射損傷を引き起こすと同時に、計測機器要素内部での中性子核反応による高エネルギー荷電粒子によって、計測上無視できないバックグラウンド雑音を生じ、それが問題となる可能性が指摘されている。しかし、実際にD-T中性子照射に基づいた放射線照射効果及び放射線応答(動的照射効果)のデータは非常に少なく、放射線照射場で計測機器要素に求められる信頼性や耐久性について定量的に検討するためには、照射下での(*In-situ*)実験によるデータが必須である。

核融合実験炉において紫外～赤外線波長領域のプラズマ分光測定は、装置構成材に起因する不純物や試験用に注入される不純物のすべての電離段階からの輻射を測定するので、全運転期間中極めて重要な役割を果たす。しかし、この計測システムとプラズマ真空領域を分離するために用いられる窓は、放射線照射による透過度の減少や放射線誘起による発光雑音等の放射線照射効果⁽¹⁾によってプラズマ診断システムの性能を低下させる原因となりうる。このため、窓材料の選択においては光学的、機械的、加工性など幾つかの条件を満し、そして耐放射線性に優れたものを選択しなければならない。これまでに耐放射線性の優れた可視域窓材料として、サファイア、高純度石英ガラス、石英単結晶などが知られている。石英ガラスについては、原子炉照射のフルエンスとして 10^{16} n/cm²以上で可視域の透過度の減少が観測されはじめ、14MeV中性子照射においても 10^{14} n/cm²のフルエンスまでは透過度の減少がないことが調べられている。⁽⁴⁾ 一方、ITER設計では中性子発生量が多いため、図1-1に示す可視光プラズマ診断システムの設計概念⁽¹⁾のように、遮蔽構造によって窓の照射線量を減らすことが考慮されている。中性子及びγ線遮蔽用の迷路構造と反射鏡を用いることにより窓が直接にプラズマ光を見込まない設計となっている。仮にその窓に要求される寿命が 1×10^8 秒(約3年)として、中性子フルエンス 10^{16} n/cm²の耐放射線限度の窓材料を使用する場合、少なくとも中性子フラックスを 10^8 n/cm²/sec以下までにするように遮蔽しなければならない。しかし、窓は遮蔽によって照射線量を小さく出来るが、遮蔽構造材との中性子核反応によっ

て発生した2次的高速中性子及び2次 γ 線の混在した照射環境に置かれることになり、核融合炉用窓材料については、それら高速中性子及び γ 線照射効果についても評価を行わなければならない。

中性子や γ 線による窓からの発光雑音はプラズマの核反応の開始と共に生じ、また、照射損傷の蓄積に伴って、その効果が変わる。従って、窓材料の放射線誘起発光については、フラックスに対する応答と同時に、フルエンスによるその変化をあわせた定量的なデータが必要である。既に、幾つか電子ビームなどを用いた実験によって窓材料からの発光が観測されているが、窓材料に含まれる欠陥密度や試料温度によって発光スペクトルや強度が異なり、非常に複雑な特性を持つことが報告されている。⁽⁵⁾ 従って、欠陥生成を伴い高密度のエネルギーを与える14MeV中性子照射では、より複雑な特性があると考えられる。

上記で述べたように、熱核融合実験炉における窓の光透過度の減少に対する対策としては、窓材料の選択や遮蔽システムなどが提案されている。しかし、放射線誘起による発光雑音についての実験データがほとんどないために、それらの提案の妥当性を確認することが出来ない。そこで、本研究では原子炉照射等で耐放射線性に優れていることが報告されているサファイア、高純度石英ガラス、石英単結晶などの窓材料について、 $10^6 \sim 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ のフラックス領域で14MeV中性子照射を行いその照射誘起発光を測定した。また、同程度の照射線量で ^{60}Co γ 線照射実験をあわせて行い、14MeV中性子照射効果と比較し線質効果を調べた。また、その結果について考察を行った。

本報告では、第2章に *In-situ* 照射実験の照射場解析について、第3章では測定システムとその較正法について述べ、第4章では実験結果と考察を述べる。そして、第5章では本実験から得られた結論をまとめた。

2. 照 射 場

2.1 14MeV 中性子源と照射場

2.1.1 14MeV 中性子発生装置

照射実験は日本原子力研究所 14MeV 中性子発生装置 FNS (Fusion Neutron Source)⁽⁶⁾ を利用した。FNS は重陽子加速器、トリチウムターゲット、トリチウム処理装置及びその他の周辺装置から構成されている。重陽子加速器は 350kV の Cockcroft-Walton 型静電加速器で、加速された重陽子は第 1 または第 2 ターゲット室へ 2 つのビームラインによって導かれていて、それぞれの最大中性子発生量 5×10^{11} 及び 3×10^{12} n/s のトリチウムターゲットが設置されている。本実験では主に強度の大きい第 2 ターゲット室で行った。図 2-1-1 に示すように、第 2 ターゲット室内の大きさは、約 5m×5m で、遮蔽のため厚さ 2.5m のコンクリート壁で囲まれている。ターゲット室内には、37 TBq 回転型トリチウムターゲットアセンブリが設置されていて、最大 25 mA の重陽子ビームをターゲットに照射し、次式に示す D-T 熱核融合炉と同じ D-T 核反応により 14MeV 中性子が発生する。



14MeV 中性子の発生量はビーム電流量を調整して制御する。また、最大 1cm 程度まで近接することによって 3×10^{11} n/cm²/sec 程度の中性子束を得ることができる。

2.1.2 MCNP による 14MeV 中性子照射場解析

ターゲットでの D-T 核反応により 14MeV 中性子が発生すると同時にターゲット構造材で 14MeV 中性子の弾性、非弾性散乱により誘導 γ 線と 14MeV 以下の 2 次中性子が生じる。従って、試料の照射線量を正確に評価するためには、ターゲット近傍の中性子及び γ 線の線量分布を求める必要がある。この照射場解析のために中性子、 γ 線輸送計算コード MCNP (Monte Carlo Code for Neutron and Photon Transport)⁽⁷⁾ と、構成元素の核反応断面積に JENDL-3⁽⁸⁾ を用いて、ターゲット近傍の中性子と γ 線の線束及びエネルギースペクトルを計算した。図 2-1-2 は中性子及び誘導 γ 線発生について MCNP コードで計算するとき用いたターゲットアセンブリ及び試料容器の形状モデルである。図 2-1-3 に示されるように、ターゲットアセンブ

りはSS304、アルミニウムなどの元素で構成されている。5%のH₂Oはターゲット冷却用水を模擬したものである。実際のターゲットアセンブリはもう少し複雑であるが、照射線量を計算するには中性子発生点近傍が重要と考えられるため全体構造は軸対称で近似した。

図2-1-4、2-1-5にターゲットの中性子発生点より前方15mm位置での中性子とγ線エネルギースペクトルの計算結果を示している。MCNPコードのポイントエスティメータを用いて中性子125群、γ線40群のエネルギービンでのスペクトル計算を行った。また、表2-1-1はターゲットから毎秒 3.0×10^{12} 個D-T中性子が発生した時の全エネルギー領域で積分した中性子とγ線の線束である。試料容器からの誘導γ線の影響も含めて、ターゲット近傍における中性子とγ線の粒子束の比は約8:1程度であることがわかる。中性子及びγ線の線束はターゲットからの距離 d に対してほぼ2乗の逆数で小さくなっている。

$$\Phi_n \propto \Phi_\gamma \propto \frac{1}{d^2}. \quad (2.1.2)$$

続いて、得られた中性子エネルギースペクトルから核発熱定数(KERMA)ライブラリー⁽⁹⁾を用いて、照射試料におけるエネルギー吸収線量を計算した。図2-1-6はKERMAライブラリーから求めたSiO₂の中性子フルエンスあたりの吸収線量である。式(2.1.2)より試料とターゲットからの距離が近い場合では試料内での線量を一樣と近似することは難しいので、試料でアパチャーと試料の厚みによって囲まれた発光が観測される空間体積を有効体積 V_{eff} として定義し、そこでの吸収線量 D (Gy=J/kg)について次式より計算した。

$$D_{\text{Total}} = \sum_m N_m \int K_{n,m}(E) \tilde{\Phi}_n(E) dE + D_\gamma, \quad (2.1.3)$$

m : 構成元素要素,

E : 中性子のエネルギー(MeV),

N_m : 構成元素の原子密度 (atom/kg),

$\tilde{\Phi}_n(E)$: 中性子エネルギースペクトル (n/cm²/MeV),

$K_{n,m}(E)$: 中性子カーマ定数(J*Barn/atom= $J \cdot 10^{-24}$ cm²/atom),

D_γ : γ線吸収線量(Gy).

$\tilde{\Phi}_n(E)$ は次式で得られた有効体積空間での平均中性子エネルギースペクトルである。

$$\tilde{\Phi}_n = \frac{\int \Phi_n(\vec{V}) dV}{V_{eff}}, \quad (2.1.4)$$

V_{eff} : 有効体積 (cm³).

式(2.1.3)において、中性子のエネルギー吸収は重イオン荷電粒子の飛程が短いため全吸収と考えられる。しかし、 γ 線吸収線量 D_γ は試料の大きさがコンプトン効果などにより発生した高速電子の飛程に比べて十分大きい場合は、KERMA ライブラリーが与える定数により算出可能であるが、試料の大きさが高速電子の飛程に比べて小さい場合、吸収線量については厳密な結果が得られない。本実験の試料については γ 線照射効果によって発生した高速電子が全てのエネルギーを与えずに試料の外へ放出する場合と、逆に空气中及びターゲットアセンブリから試料に入射する電子のエネルギー付与が生じる。従って、 γ 線に対する吸収線量については、有効体積中の高速電子エネルギースペクトルをMCNPコードで計算して、次式より求めた。

$$D_\gamma = \frac{\int \left(\frac{dE}{dx} \right) \Phi_e(E) dE}{\rho}, \quad (2.1.5)$$

$\left(\frac{dE}{dx} \right)$: 電子の阻止能 (MeV/cm),
 $\Phi_e(E)$: 有効体積中の電子フラックス(e/cm²/MeV),
 ρ : 試料密度 (kg/cm³).

表2-1-2に試料の吸収線量についての計算結果をまとめている。表2-1-2に示されるように、試料での中性子吸収線量に対して γ 線は一桁程度小さく、照射される試料の吸収線量は14MeV中性子の核反応、即ち、弾性散乱による反跳原子、非弾性散乱による反跳原子や陽子、 α 粒子など放出荷電粒子による寄与が主である。

従って、図2-1-7で示すように中性子および γ 線による中性子束の距離依存性に従い吸収線量 D と中性子発生位置からの距離 d の関係は、式(2.1.2)よりほぼターゲットより距離 d の2乗の逆数で小さくなる。

$$D \propto \frac{1}{d^2}. \quad (2.1.6)$$

式(2.1.3),(2.1.5),(2.1.6)から計算された照射線量は図 2-1-8 に示されるように、試料容器のレンズや光ファイバの照射線量は試料に比べて、レンズで1桁程度、光ファイバの先端では約2桁近く小さくなっている。また、最も照射線量の高いレンズに対しては中性子照射損傷による近紫外～可視域の透過度の減少がないように⁽⁴⁾、積算中性子フルエンスは $1 \times 10^{14} \text{ n/cm}^2$ 以下で実験を行っている。

2.2 ^{60}Co γ 線照射場

^{60}Co γ 線による照射実験は、日本原子力東海研究所の ^{60}Co γ 線照射共同施設を利用した。 ^{60}Co は半減期 5.271 年で、1.17 と 1.33 MeV の 2 本の γ 線を放出する線源である。図 2-2-1 に示すように線源の容器は円柱状であり、マニピュレータでその容器を動かすことにより、試料容器までの距離を変えて照射線量率を調整する。線源との距離が大きく、中性子の場合のような距離による効果が期待できないので、光ファイバなどからのバックグラウンド発光を低減するために、鉛ブロックを積み重ねて遮蔽している。図 2-2-2 に示される照射位置での線量率(R/hr)が較正されており、線源からの距離に対する線量率の関係はほぼ 2 乗の逆数の関係にある。従って、試料の吸収線量 D (Gy) を式(2.1.5)で計算するために線源を点線源と仮定した場合の点線強度 α を次式の線量率 X (R/hr) と距離 d から求めた。

$$\alpha = \frac{Xd^2}{\Gamma_\gamma}, \quad (2.2.1)$$

d : ^{60}Co 線源からの距離(m).

Γ_γ : ^{60}Co の照射線量率定数 $1.32 \text{ (R m}^2\text{/Ci/hr)}$.

強度 α の点線源について MCNP コードで γ 線輸送計算を行い、吸収線量を求めた。図 2-2-3 に ^{60}Co γ 線照射実験の吸収線量の計算結果を示す。

3. 窓材料の放射線誘起発光測定システム

3.1 14MeV 中性子誘起発光測定システム

図2-1-2に示されたようにターゲット近傍に試料容器を設置して、14MeV中性子照射によって発生した試料からの光を耐放射線性光ファイバーによって、十分に遮蔽された測定室まで伝送し光検出器システムで測定した。光検出器システムは3種類を測定によって使い分けられた。(a)可視域用マルチチャンネル型分光器システム、(b)紫外～可視域用フォトンカウンティング分光器システムと(c)高感度積分型フォトンカウンティングシステムである。図3-1-1は光検出にフォトンカウンティング分光器システムを用いた場合の構成を示している。モノクロメータの波長駆動装置(AT-100PC)とスケーラーは、パーソナルコンピュータ(PC、Macintosh、LabVIEW)でGP-IBを通じて制御されていて、光電子増倍管(PMT)の検出信号の波高弁別を行い、その計数を中性子発生数や測定波長などの条件と共にコンピュータのメモリに保存した。

3.1.1 試料容器

図3-1-2に示すように試料容器は直径約3cm、長さ約10cmのアルミニウム製の円筒形状で、内部に試料および集光用レンズが取り付けられている。レンズは耐放射線性を考慮して高純度石英ガラスを用いた。試料容器には光ファイバを接続するため光ファイバレセプタクル(三菱電線D80R)が取り付けられている。照射試料は直径25.4mm以下、厚さ2~8mmの大きさのものが測定可能となっている。試料観測面には、発光観測領域を限定するため3mmφのアパチャーを置き、2枚の平凸レンズ(島津製作所205-80003-06、205-80020-03)によって集光し、試料からの光を光ファイバに伝送する。試料側のレンズの焦点距離は28.6mmで立体角が大きく、一方は焦点距離が68.1mmで光ファイバー受光角よりも小さくし、集光効率を大きくした。

また、集光効率を上げるため試料容器を用いない、光ファイバに直接接続できる光ファイバ型の試料も製作した。光ファイバ型の試料は直径は1.2mmφ、長さ30mmの大きさで両端に光ファイバ接続コネクタ(三菱電線D-80P)が取り付けられている。

3.1.2 光ファイバ

光伝送用の光ファイバは耐放射線性のもの(三菱電線ST1200I-SY)でコア直径1.2mm、外

径1.5mmで長さ30mである。両端に光ファイバ接続コネクタ(D-80P)が取り付けられている。また、伝送中の光の遮光性能を向上するために、アルミテープを巻いた。直径が大きいので、曲率がとれないが光を受光する面積が大きく光の集光効率が良いためこれを採用した。

3.1.3 光検出器システム

本実験で対象にした、サファイア、高純度石英ガラス、石英単結晶の透過波長領域は紫外線～可視域～赤外線領域であり、スペクトル測定ではこの透過領域を測定できることが望ましい。しかし、実際には試料からの光は光ファイバ中で損失するため、測定可能な波長は光ファイバの透過度によって決定されている。従って、測定可能波長領域は、近紫外～近赤外線波長となり、この領域に対して次の3タイプの高感度の光検出器システムを用意した。(a)イメージンシファイア付きのマルチチャンネル型分光器システム(Polychromator system 浜松ホトニクス M5098)、(b)光電子増倍管(浜松ホトニクス R928P)で構成されるフォトンカウンティング分光器システム(Photon counting spectrometer)と(c)可視域用光電子増倍管(R1635P)による積分型フォトンカウンティングシステム(Integrating photon counting system)である。図3-1-3では、試料からの発生光子数を縦軸にして、それらの光検出器システムについて測定波長に対する検出可能領域を比較したものである。光が入射しない時の検出器雑音を光検出限界の計数率とした。以下にそれぞれの特徴および装置の構成を説明する。

(a) マルチチャンネル型分光器システム(Polychromator system)

マルチチャンネル型分光器システム(Polychromator system)は浜松ホトニクス社製のイメージンシファイア付き分光器と制御装置(PMA-10)で構成されている。本実験では可視域～近赤外線(350～750nm)で測定を行った。近接型イメージンシファイアは、図3-1-4に示すように光電面、マイクロチャンネルプレート、受光素子から構成されている。イメージンシファイアは、光電面に入射した光の強度に比例した光電出力をマイクロチャンネルプレートで数百倍に増倍し、光電面により再び光に変換するデバイスである。そして、各スペクトルの光強度を受光素子によって電気信号に変換し高速読み出しを行う。チャンネル数1024chで、波長軸および感度ムラ較正をプログラムによって処理し出力する。それらを最小20ミリ秒でスペクトル測定を完了することが出来るが、本実験で使用するにあたっては統計精度をあげるために100～1000秒の測定時間を要した。また、シャッター時間やゲインレベルなどの設定条件が一定の場合の出力は入射光強度に比例するが、設定が変われば相対

出力も変わるので絶対的な発光量測定にはあまり適していない。従って、絶対発光強度については、(b)フォトンカウンティング分光器システムや(c)積分型フォトンカウンティングシステムとの相対感度比により評価している。使用にあたっては図3-1-1中のPhoton counting spectrometerで囲まれる領域が、マルチチャンネル型分光器システム(M5098、PMA-10、PC-9821、PC-9801n-08)に置き替わる。

(b) フォトンカウンティング分光器システム(Photon counting spectrometer)

フォトンカウンティング分光器システムは図3-1-5に示された装置で構成されている。フォトンカウンティング型分光器システムは、主にモノクロメータ(島津製作所SPG-100)と光電子増倍管(R928P)で構成されている。入射光はスリットを通過し、結晶格子(グレーティング)で分光または0次光として取り出し、光電子増倍管でフォトンカウンティング法により検出する。光電子増倍管の印可電圧(HV)は1000Vで、信号出力線を100k Ω の抵抗器で終端させて前置増幅器(PA, ORTEC113)に入力した。光電子増倍管は、熱雑音を低減させるため0度の冷却水とペルチェ素子を用いて-20 $^{\circ}$ C程度に冷却した。図3-1-1で示したように測定波長の設定は、パーソナルコンピュータからGP-IBで制御された波長駆動装置によって操作する。測定可能な波長領域は遠紫外~近赤外線領域であり使用した光検出器の中で最も広い。ただし、格子反射の高次光の重なりを除去するためには光学フィルタが必要である。可視域での光検出感度は上述のマルチチャンネル分光器システムの方が良いので、紫外線波長領域に主に適用した。ただし、図3-1-3に示すように、検出限界は紫外線領域では光ファイバの透過度の低下のために、赤外線領域では光電子増倍管の放射感度の低下のために悪くなっている。本システムでは単波長領域ごとに測定しなければならないので、一波長に対して測定時間を10秒とすれば100点測定するのに合計1000秒必要となる、本実験では200~900nmのスペクトル測定を完了するまでに500~1000秒程度必要であった。

(c) 積分型フォトンカウンティングシステム(Integrating photon counting system)

積分型フォトンカウンティングシステムの場合は、図3-1-1においてモノクロメータを設置しない場合に相当し、光ファイバからの光子を可視域用光電子増倍管(R1635P)で直接検出している。従って、光の波長スペクトルの情報は得られないので他のシステムと比較して積分型と名づけている。しかし、検出感度が他と比べて良いのでより発光強度が小さい場合でも測定可能であるため、他の検出システムでは測定出来ない微少発光の場合に適用すること

ができる。本実験では $10^6 \sim 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ 中性子束での発光強度の測定が可能であった。図 3-1-3 に示されるように測定波長領域は使用した光電子増倍管の量子効率曲線で決定される。図 3-1-6 に示すように、暗箱内に置いた光電子増倍管の印可電圧(HV)は 1200V で、信号出力線を $100 \text{ k}\Omega$ の抵抗器で終端させて前置増幅器(ORTEC113)に入力した。光電子増倍管は、熱雑音を低減させるため(b) フォトンカウンティング分光器システムと同様、約 0°C の冷却水とペルチェ素子を用いて -20°C 程度に冷却している。

表 3.1.1 に上述の 3 種類のシステムについて簡単にまとめておく。

3.1.4 中性子発生量測定(Neutron monitor)

14MeV 中性子の絶対発生数は、表面障壁型 Si 半導体検出器(SSD)を利用した共役 α 粒子法による測定⁽¹⁰⁾と ^{232}Th 核分裂計数管(FC)の併用により求めている。共役 α 粒子法は、トリチウムターゲットを小さな立体角で見込む加速管内に設置された SSD により、式(2.1.1)の D-T 核反応で発生する α 粒子を検出し、微小立体角、非等方補正因子、発生中性子角度分布の補正により 14MeV 中性子の絶対発生量を算出する。中性子発生効率が高くなるとこの方法は使えないため、この方法で較正した ^{232}Th 核分裂計数管を用いる。また、試料容器の外側に Nb 箔を取りつけて箔放射化法によっても絶対中性子フルエンス量を求めている。

3.2 ^{60}Co γ 線誘起発光測定システム

^{60}Co γ 線照射実験では試料容器および試料、光ファイバは 14MeV 中性子照射のものと共通である。光検出器はマルチチャンネル型分光器システムのみで行った。また、照射線量は、線源と試料間の距離を 15~70cm で変えて調整した。

3.3 測定効率の決定

絶対発光効率の決定には、測定システムの検出効率を決定する必要がある。その測定効率に含まれる誤差が最終結果に伝搬する。ここでは、まず絶対発光効率の決定手順を述べて、個々の較正方法について述べる。

3.3.1 絶対発生光子数

照射による試料の絶対発生光子数 $N_{\text{abs}}(\lambda)$ (photons/nm) は、次式に従って決定した。

$$N_{abs}(\lambda) = \frac{N_C(\lambda) - N_B(\lambda)}{\eta_F(\lambda)\eta_L\Delta\lambda_M\eta_M(\lambda)\eta_Q(\lambda)} \text{ (photons/nm)}, \quad (3.3.1)$$

- λ : 波長,
 $\eta_F(\lambda)$: 光ファイバの光透過率,
 η_L : 有効体積に対する集光効率,
 $\Delta\lambda_M$: 分光器の波長分解能,
 $\eta_M(\lambda)$: 分光器の分光回折効率,
 $\eta_Q(\lambda)$: 光電子増倍管の量子効率.

14MeV 中性子照射及び ^{60}Co γ 線照射において、図3-3-1に示すように試料のない場合においてもレンズや光ファイバからの発光があるために、式(3.3.1)では同じ線量率照射において、試料をセットした場合の計数 $N_C(\lambda)$ から試料のない場合の計数 $N_B(\lambda)$ を差し引いている。表3.3.1は式(3.3.1)に必要な効率についてまとめたもので、400nmで測定したときのシステムの効率の値を示したものである。

吸収エネルギーあたりの発光効率 $Y(\lambda)$ は式(2.1.3)から得られた吸収線量 $D(\text{Gy})$ と次式より算出している。

$$Y(\lambda) = \frac{N_{abs}(\lambda)}{\rho V_{eff} D} \text{ (photons/nm/MeV)}. \quad (3.3.2)$$

ρ は試料の密度である。

また、積分型フォトンカウンティングシステムで測定した場合の絶対発生光子数 $N_{abs}(\lambda)$ と計数 N_C , N_B の関係は次式となる。

$$N_C - N_B = \eta_L \int \eta_F(\lambda)\eta_Q(\lambda)N_{abs}(\lambda)d\lambda. \quad (3.3.3)$$

式(3.3.3)では発生光子数が光ファイバの透過率と量子効率が掛けられて積分されるので、スペクトルの情報は得られない。ただし、発光スペクトルが既知である場合には、発生光子数を求めることが可能である。

3.3.2 光検出器の分光感度特性

本実験では、幾つかの光検出器システムを用いている。それらの検出器の分光感度特性は、波長ごとの放射感度または量子効率で表される。放射感度は、ある波長における入射光量を放射エネルギー(W)で示し、その時の光電面からの電流をこの放射エネルギーで割った値 $S(A/W)$ で示す。量子効率は、光電面から出る光電子数を入射光子数で割った値である。ある波長 λ において量子効率 $\eta_Q(\lambda)$ と放射感度 $S(\lambda)$ の関係は、次式である。

$$\eta_Q(\lambda) = \frac{S(\lambda) \times 1240}{\lambda} \times 100\%, \quad (3.3.4)$$

$S(\lambda)$: 放射感度(A/W).

λ : 波長(nm).

光電子増倍管(R928P,R1635P)の量子効率を図 3-3-2⁽¹¹⁾に、較正に用いたフォトダイオード(浜松ホトニクス S2281)の放射感度を図 3-3-3⁽¹²⁾に示す。

3.3.3 標準光源

光ファイバや分光器の透過率較正において必要な標準光源システムについて説明する。標準光源システムは Labsphere 社製で図 3-3-4 に示すような積分球光源(USS-600)と制御用装置(LPS-045-H,SC-5000)などで構成されている。積分球光源の下球部内にあるハロゲンランプは、電流量が一定になるように制御されており、その光が上球部の球内面に照らされる。図 3-3-5 は放出光面からの光スペクトル(輝度 L)で、3%以下の精度で測定されたものである。光の強度は、上下球の間に設けられている絞りにより調整可能となっており、上球部のフォトダイオードによって絶対強度が測定される。

実験装置の光伝送効率較正を行うために図 3-3-6(a)に示すように標準光源、可変絞り、レンズを置いた。標準光源の放出光面より 230mm のところには、1~30mm ϕ に可変絞りを置き、250mm の所にレンズを設置した。レンズからさらに 95mm のところが放出面からの光の焦点となっている。

積分球光源の放出光面に取り付けた 2.4mm ϕ のアパーチャーからの放出光は、一様な輝度 L を持っている。輝度 L は、スポットの微小面積 δS と、その法線方向から角度 θ を成す方向の光度 δI_θ で以下のように表される。

$$L = \frac{\delta I_{\theta}}{\delta S \cos \theta} \quad (3.3.5)$$

そして、角度 θ 方向の微小立体角 $\delta\Omega$ を通過する光束 $\delta\phi$ は次式で表される。

$$\delta\phi = L \cos \theta \delta S \delta\Omega. \quad (3.3.6)$$

また、角度 $0 \sim \theta$ で囲まれるの立体角 Ω は、

$$\Omega = 2\pi(1 - \cos \theta). \quad (3.3.7)$$

であるので、アパチャーで絞られた角度 $0 \sim \theta_A$ を通過する光束 ϕ_A は、式(3.3.6),(3.3.7)より導かれ、

$$\phi_A = \frac{\pi L}{2} (1 - \cos 2\theta_A) \delta S. \quad (3.3.8)$$

となる。絞りを通過した光束はレンズで集光されて、レンズ位置からの距離より約95mmで焦点となる。絞りの直径を変えることで、式(3.3.8)に従って焦点での光束 ϕ_A が決まる。

さらに、図3-3-6(a)の標準光源装置の特性を調べるために、図3-3-6(b)で示される様にフォトダイオード(S2281)とフォトセンサーアンプ(浜松ホトニクスC2719)を使って調べた。フォトダイオードの電流量は式(3.3.8)と図3-3-5の光スペクトルとダイオードの分光感度特性曲線で算出される。図3-3-7は、図3-3-6(b)で絞り径を変えた時のフォトダイオードの電流量の変化と、式(3.3.8)から計算された電流量との比較である。計算でレンズの透過度を 0.90 ± 0.05 としている。絞り径が、15mmφ以上では、レンズによる直径で決まり一定となる、絞り径を小さくすると、式(3.3.8)に従って焦点の光量が小さくなる。計算と実験値の間では、アンプ及び標準光源による誤差6%以内で一致するはずであるが、絞り径が小さくなるにつれて、実験値と計算値に違いが生じている。従って較正実験で使用するときは、絞り径を10mmφ以上で用いている。

3.3.4 光ファイバ透過効率の較正

この実験では光ファイバの外部透過率が必要である。図3-3-8(a)に示すように、図3-3-6の標準光源システムの光源を数種類のLED(STANLEY 電気)に変えて光ファイバの較正を行った。使用したLEDの中心波長 λ は、470~950nmである。焦点に置かれたフォトダイオードの電流量 $I_{in}(\lambda)$ がほぼ一定であることを確認し、そして、図3-3-8(b)のように光ファイバを通った光量 $I_{out}(\lambda)$ を測定することにより、それらの比として光ファイバの透過率 $\eta_F(\lambda)$ を求めた。ここで、レンズで集光された光は光ファイバの受光角よりも十分に小さく、集光スポット径は光ファイバの径1.2mm ϕ よりも小さいものとする。光ファイバの透過率 $\eta_F(\lambda)$ は次式となる。

$$\eta_F(\lambda) = \frac{I_{out}(\lambda)}{I_{in}(\lambda)} \quad (3.3.9)$$

図3-3-9に光ファイバの透過率を示す。470nm以下の波長領域では、標準光源と分光器を用いて波長 λ に対する透過効率曲線を求め、式(3.3.9)で得られた絶対値に規格化している。図3-3-9に示されるように光ファイバの透過率は紫外線波長領域で減少しているが、500~800nm付近ではほぼ一定となっている。可視域では内部透過による損失は小さく、接続面などでの損失によるものであると考えられる。

3.3.5 分光器の較正

分光器の較正には、(a)波長軸較正と(b)分光回折効率の較正が必要である。ただし、回折効率の較正(感度ムラ補正)は波長軸較正の後に行わなければならない。

(a)波長軸較正

フォトンカウンティング分光器システムに利用したモノクロメータ(SPG-100)の波長精度は $\pm 3.0\text{nm}$ で調整されており特に較正実験を行っていない、ここではマルチチャンネル型分光器(M5098)の場合の波長軸較正の手順について述べる。図3-3-10はマルチチャンネル型分光器システムの構成と波長軸較正に用いたスペクトルである。図3-3-10に示すように低圧水銀ランプ(島津製作所)の輝線光を分光器に入射させて、出力されるスペクトルが文献値の波長に対してどの程度のずれを生じているかを入力する。その後の測定では内部プログラムによって波長軸較正が自動的に行われる。⁽¹³⁾

(b) 分光回折効率の較正

グレーティングで分光された光は、波長によりグレーティングの分光回折効率が異なるために、分光回折効率の較正が必要である。本実験の較正では、グレーティングのそのものの較正を行うのではなく、スリットなどの損失を含めた分光器全体の回折効率の較正を行った。フォトンカウンティング分光器システムの場合では、図3-3-11に示すように、標準光源からの光を光ファイバに入射させる。光ファイバからの光は、スリット形状に変換するバンドファイバを通りモノクロメータに入射、分光された後出力され、その光がフォトダイオードで電流量 $I_{out}(\lambda)$ として測定される。

波長分解能を $\Delta\lambda_M$ とするとき、分光回折効率 $\eta_M(\lambda)$ は次式のように表される。

$$\eta_M(\lambda) = \frac{I_{out}(\lambda)}{\eta_F(\lambda)\Delta\lambda_M S(\lambda)\phi_A(\lambda)} \quad (3.3.10)$$

$S(\lambda)$ はフォトダイオードの放射感度(A/W)で、 $\phi_A(\lambda)$ は式(3.3.8)で記述される光ファイバに入射する光スペクトル(W/nm)、 $\eta_F(\lambda)$ は光ファイバの透過率である。波長の分解能 $\Delta\lambda_M$ は 10nm である。分光回折効率の測定結果を図3-3-12に示す。

マルチチャンネル型分光器システムでは波長に対するイメージインテンシファイアを含む光検出素子の相対感度の較正が必要であり、光検出素子との分光感度を含めて感度ムラ補正を行った。⁽¹³⁾

3.3.6 光電子増倍管での入射光子数の補正

本実験の積分型フォトンカウンティング測定の波高分布の結果の一例を図3-3-13に示す。多重波高分析器(MCA)で測定された光電子増倍管の出力波高分布は 10CH 以下の雑音成分と 23CH 付近に光子入射により光電面から電子 1 個が放出された場合に相当する波高が見られる。1 個の光子を検出した場合でも、2 次電子増倍比のゆらぎ(統計的確率)などで出力波高値はそろわず、またダイノードの場所による増倍率の不均一性や本来の増倍過程を経ない電子のために広く分布した波高分布が生じる。また、熱雑音を減少させるために冷却をしているが、完全に無くすことはできないため、この雑音で計数率の限界が決定される。光が入射しない時の検出器の雑音を検出限界の計数率として、統計誤差が 10%以下となるように測定時

間を設定している。

図3-3-13においては、約46, 69...CHで入射光子数が2, 3...個の波高分布が見られる。通常の1イベントあたり1光子を観測するフォトンカウンティングにおいては、入射光子数2個以上の分布が測定されるのは、 10^7 cps以上で計数率の増大によるランダムな出力パルスが重なる場合である。⁽¹⁴⁾しかし、中性子誘起発光では同時に1個以上の光子が発生するので、計数率に関わらず2個以上の入射光子が同時に検出される。従って、それらを補正または回避するために次のことを行った。

試料中のあるイベント（例えば(n,p)反応）で発生した光子数を n_p 個とすると、その光子が検出される数 n_D 個との関係は効率 η で決まるものとする。

$$n_D = \eta n_p. \quad (3.3.9)$$

ここで、 n_D が常に1個よりも十分に大きいときはイベントで発生する n_p に対応した相似分布が検出される。しかし、本実験においては n_p そのものが、1個である場合も考えられるので、 n_D が常に1個よりも十分に大きい場合はない。それに対して、式(3.3.9)で n_D が1個よりも小さい場合では、 $1/n_D$ 回のイベントに対して1個の光子が検出されるものとして考える。⁽¹⁴⁾従って、単位時間あたりの平均入射光子数 N_D は測定時間 T で発生した個々のイベントの発生光子数 n_p の和を効率 η を掛けて、測定時間 T で割ったものとなる。

$$N_D = \frac{\eta \sum n_p}{T}. \quad (3.3.10)$$

少なくとも N_D が光電子増倍管の雑音よりも大きいことが測定の条件で、かつ ηn_p が常に1よりも小さいければ通常のフォトンカウンティング⁽¹⁴⁾が可能である。しかし、積分型フォトンカウンティング測定では、中性子照射強度が小さい場合の測定を目的としているので、式(3.3.10)において η を小さくして、2個以上の光子が検出される確率を減らすことは好ましくない。従って、以下の統計処理を行って2個以上検出された光子についての補正を行っている。

光電面放出電子数を厳密に決定するために、光電子増倍管の電子増倍作用のばらつきを電子放出ごとに正規分布で近似してその分布和となるよう測定波高分布をフィッティングする。

MCA で測定された波高分布 $H(x)$ が以下に示すような正規分布の和で展開できるものとして、

$$H(x) = \sum_n C_n f(p_n, \sigma_n) \quad (n=1, 2, \dots), \quad (3.3.11)$$

f : 正規分布関数 ($\int f(x, \sigma_n) dx = 1$ に規格化) 、

x : MCA のチャンネル (CH)、

C_n : フィッティング係数、

P_n : 入射粒子のピークチャンネル (CH)

(ここでは、 $P_1=23\text{CH}$, $P_2=46\text{CH}\dots$),

σ_n : 入射あたりの測定波高に対する分散値 (CH)。

フィッティング係数 C_n を決定した。光電放出電子数 N_D は次式で決定した。

$$N_D = \sum_n C_n n_D \quad (n_D=1, 2, \dots). \quad (3.3.12)$$

式(3.3.12)で得られた N_D を光電子増倍管の量子効率で割った値が入射光子数となる。図 3-3-14 に図 3-3-13 の波高分布のフィッティング例を示す。

フォトンカウンティング分光器システム(R928P)では、上記の統計処理を行わないために測定装置での分光回折効率 η_M を適当に小さくして、ほとんど一個の光子しか検出されないように調整している。

3.3.7 窓材料試料の有効体積 V_{eff} と集光効率 η_L の較正

実験で用いた試料の形状が異なるために、ここでは発光が観測される試料の厚みとアパーチャーの径で囲まれた円柱の体積を有効体積 V_{eff} として定義している。その有効体積に対する集光効率を解析計算で求めるために、図 3-3-15 に示すように厚さ t 、径 r の有効体積空間を δt 、 δr で分割する。角度 $\delta\theta$ については回転対称性を利用して計算を簡略化している。位置 $\bar{V}(r, \theta, t)$ での微小体積 δV と有効体積 V_{eff} の関係は次式で表される。

$$V_{\text{eff}} = \int dV = \iiint r dr d\theta dt = \pi r^2 t. \quad (3.3.13)$$

次に、微小体積 δV より発生した光子がレンズを通過して光ファイバに伝送される確率を計算する。ここで、等方向に1個の光子が発生すると仮定するとき、微小立体角 $\delta\Omega$ で $\bar{\Omega}$ 方向へ進む確率 P は次式である。

$$P = \frac{\delta\Omega}{4\pi} \quad (3.3.14)$$

$\bar{\Omega}$ の方向へ進んだ光子はレンズで屈折されて、その光子の方向ベクトルは光学幾何定理により決まる。光学幾何条件は、レンズの焦点距離や径などが必要である。最も簡単な例として、光軸上で発生した光子は、次式のレンズの公式のガウスの定理より光軸で交じわる位置が与えられる。

$$\frac{1}{f} = \frac{1}{s_1} + \frac{1}{s_2}, \quad (3.3.15)$$

f : 有効焦点距離(EFL),

s_1 : 光軸上で発生した光子の第一主点からの間の距離 (物距離),

s_2 : レンズから出た光が光軸と交わる間の第二主点からの距離 (像距離) .

従って、発生した光子が光ファイバに受光角内で入射するかは、光の発生した位置 \vec{V} とその発生方向 $\bar{\Omega}$ で決まるので、その光子が光ファイバに入射するかどうかの関数 Q を次式のように定義する。

$$Q(\vec{V}, \bar{\Omega}) d\Omega dV = \begin{cases} 0 & (\text{光子が光ファイバに受光角内で入射しない}) \\ PdV & (\text{光子が光ファイバに受光角内で入射する}). \end{cases} \quad (3.3.16)$$

従って、集光効率 η_L は次式で定義する。

$$\eta_L = \frac{\iint Q(\vec{V}, \vec{\Omega}) T(\vec{V}) d\Omega dV}{\int T(\vec{V}) dV}, \quad (3.3.17)$$

$T(\vec{V})$: 試料内での光子発生分布.

試料中に一様に光子が発生する場合には、 $T(\vec{V})$ は一定なので、式(3.3.17)は簡単になって、集光効率 η_L は次式となる。

$$\eta_L = \frac{\iint Q(\vec{V}, \vec{\Omega}) d\Omega dV}{V_{eff}}. \quad (3.3.18)$$

図3-3-16に式(3.3.18)で表される計算結果の例として、試料の厚さ t を変えた実験値と計算値の集光効率の比較をあげる。条件はアパーチャー直径が3.0mmで、試料の有効体積を直径3.0mmで厚さ t mmの円柱とした場合である。試料厚さが増すにつれ有効体積に対する効率は徐々に減少している。実験値は 4π 測定で発光効率が求められているプラスチックシンチレータによる ^{60}Co γ 線照射実験のものである。実験による集光効率は発光効率⁽¹⁵⁾と式(3.2.3)から求めたものである。そして、計算結果は較正実験による結果に対して誤差内で一致を示しており、実験値と計算値のずれは最大で9%であった。従って、計算による集光効率 η_L を用いた場合の誤差評価は、較正実験による誤差と実験と計算によるずれ9%を含めて、 $\pm 19\%$ とする。

中性子照射実験では、試料内の場所によって照射強度が異なり発生光子数に重み付けを行って算出している。MCNPの照射解析計算で得られたように中性子発生ターゲットまでの距離 d と光子発生分布 $T(\vec{V})$ の関係は式(2.1.6)より

$$T(\vec{V}) \propto \frac{1}{d^2}. \quad (3.3.19)$$

とおけるので、式(3.3.17)に代入して計算した。試料とターゲットの間の距離 d が遠く、試料の厚さ t が d に比べて十分に小さくなれば式(3.3.18)に近づくことがわかる。しかしターゲットから離れると照射強度は小さく、厚さ t が小さくなれば発生光子数も減少する。

光ファイバ型試料の場合でも同様に式(3.3.17)より計算によって求めた。有効体積は、直径1.2mmφ長さ30mmとした。図3-3-17で示すように入射確率は光ファイバの受光角 a や試料の形状によって決まる。光ファイバの開口数は $NA=0.21\pm 0.01$ で受光角 a と開口数 NA の関係は、

$$NA = \sin a. \quad (3.3.20)$$

である。発生した光子が光ファイバに伝達可能な立体角 Ω は、光子発生位置と受光角 a で決まるので、開口数の誤差が計算結果に含まなければならない。計算された光ファイバ型試料の集光効率 η_L は $(2.0\pm 0.6)\times 10^{-3}$ で、円板状の試料よりも若干良くなっている。

3.4 誤差評価

14MeV中性子照射と ^{60}Co γ 線照射実験の誤差について述べる。表3.4.1は誤差についてまとめたもので、誤差は計数による統計的誤差と測定器の較正による系統的な誤差に分類している。

統計的誤差は光子測定、中性子照射線量率、 ^{60}Co γ 線照射線量率で生じている。光子数誤差はフォトンカウンティングによるものである。中性子照射線量の誤差は、DT中性子発生数、試料位置の誤差などによるものである。4 π D-T中性子発生数の誤差は共役 α 粒子法によるもので3%以下である。 ^{60}Co γ 線照射線量率では5%で測定された線量率と解析計算の誤差が含まれる。

系統的誤差は量子効率、光ファイバの透過率、分光回折効率、集光効率である。光電子増倍管とフォトダイオードについての量子効率の誤差は10%と仮定しており、光ファイバ透過率、光検出器の分光回折効率、集光効率については較正実験での誤差である。以上より、式(3.3.2)による吸収エネルギーあたりの発光絶対効率を評価した時の誤差は約30%以下となった。

また、マルチチャンネル型分光器装置の誤差は、フォトンカウンティング分光器システムおよび積分型フォトンカウンティングシステムに対する感度比より評価を行ったので、統計誤差を除いて、同じであるとする。

4. 実験結果と考察

4.1 実験結果

4.1.1 14MeV 中性子照射実験

実験に用いた試料とその形状を表4.1.1に示す。照射試料は、形状が円盤型とファイバ型を含めて計8種類で、サファイア(京セラ、RARE METAL)、高純度石英ガラス(三菱電線)、Ge添加石英ガラス(三菱電線)、石英単結晶(KU-QUARTZ ロシア製)、CaF₂(ORIEL)とプラスチックシンチレータ(NE102A)である。図3-1-2に示されたように試料容器をターゲット近傍に置いて、加速電圧350kVで、DCビーム電流~25mAで中性子を発生させた。また、使用した光検出器システムを表4.1.1中に白丸で示している。ビーム電流量1~20mAで3~4点をマルチチャンネル型分光器システム、1~5mAで1点をフォトンカウンティング分光器システムで測定した。積分型フォトンカウンティングシステムでは1~1000μAで5~6点を測定した。

図4-1-1はサファイア(京セラ、SA-100)について、中性子発生量 6.0×10^{11} n/secでフォトンカウンティング分光器システムで測定した結果である。14MeV中性子照射中において、サファイアから330、410、690nmの発光が観測された。実際の測定は200~900nmについて測定されたが300nm以下では検出されなかった。従って、図3-1-3の検出限界に従って評価すると、例えば270nmでは5photons/nm/MeV以下であることがわかる。

図4-1-3は、高純度石英ガラスについてマルチチャンネル型分光器システムで測定した結果で、450nm付近に発光が観測された。その発光について積分型フォトンカウンティングシステムと併用して照射線量を変えて発光強度を測定した結果が図4-1-4である。発光強度は式(3.3.2)と式(3.3.3)より算出されたもので $10^6 \sim 10^{11}$ n/cm²で照射強度に対してほぼ比例している。他の試料についても、積分型フォトンカウンティングシステムで測定されたものについては発光強度は照射強度にほぼ比例していた。マルチチャンネル型分光器システムで測定された発光スペクトル結果を図4-1-2. 3. 5~8に示す。

図4-1-9は石英単結晶を前もって 1.2×10^{15} n/cm²まで14MeV中性子照射を行ない約6カ月放置した試料と同じロッドから製造された未照射試料の発光スペクトルの比較であり、両者が大きく変わらないことを示している。

4.1.2 ^{60}Co γ 線照射実験

^{60}Co γ 線照射では、14MeV中性子照射実験で用いた同じ試料、試料容器、光ファイバを用いて実験を行った。測定された試料は表4.1.1中において黒丸をつけたもので、光検出器はマルチチャンネル型分光器システムのみである。実験において、 ^{60}Co γ 線源と試料の間の距離は15~70cmで3~5点について測定した。測定された ^{60}Co γ 線誘起発光強度は照射強度にほぼ比例していた。それらの測定結果を図4-1-10~14に示す。表4.1.2は14MeV中性子と ^{60}Co γ 線照射結果の発光効率についてまとめたもので、発光スペクトルについて可視域(350~650nm)の吸収エネルギーあたりの発生光子数で表したものである。14MeV中性子と ^{60}Co γ 線照射では、ほぼ同じ発光スペクトルが観測されているが、 ^{60}Co γ 線照射による効率は中性子発光効率より約1桁程度大きい結果となっている。

4.2 実験結果の考察

まず、各試料の発光について14MeV中性子照射実験の結果を中心に考察し、最後に14MeV中性子と ^{60}Co γ 線照射効果について議論する。

4.2.1 サファイア

サファイア(単結晶 $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$)は紫外線から赤外線領域での光測定用窓に使用することが出来る。Sapphire-1 試料は京セラ製の単結晶サファイアで、(1 $\bar{1}$ 02)面からの発光を観測した。試料の不純物密度を表4.2.1に示す。サファイアからの発光を中性子照射フラックス $10^6\sim 10^{10}\text{n/cm}^2/\text{sec}$ で観測した。図4-1-1で示された14MeV中性子照射によるサファイアの発光スペクトルでは、410nm付近にFセンター⁽¹⁶⁾による発光、330nm付近にF⁺センター発光⁽¹⁷⁾、690nmにCr³⁺の発光が観測された。また、330nm付近に観測されたF⁺センター発光はFセンターのものに比べて2桁程度小さい発光強度であった。これは、イオンビーム⁽¹⁸⁾や電子照射⁽⁵⁾で報告されている発光比と異なるものであった。F⁺センター及びFセンターの発光強度については、製造方法などによる試料依存性⁽¹⁹⁾の他に、観測面、照射線量率^{(5),(18)}による効果が考えられる。また、Crの不純物密度は1ppm以下であるにも関わらず、690nmの鋭い発光と650~750nmにそれに関係する発光が観測された。波長分解能が10nm程度であるため、690nmの発光が輝線スペクトルであるかどうかを確認するまでに至っていない。

Fセンターについては図4-2-1のような酸素空孔モデル⁽²⁰⁾が提唱されており、また、図4-2-2のようなバンドダイアグラムモデル⁽²¹⁾で説明されている。Fセンターは、200nmにおける吸収光帯と、410nmでの光放出緩和を持った欠陥である。発光機構は、放射線電離効果により

電子のエネルギーが伝導帯まで上げられ、その電子緩和のひとつの現象としてFセンター及びF⁺センターによる発光が観測される。実験結果から14MeV中性子照射においてFセンターの発光強度は、中性子束 $10^6 \sim 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ の領域でほぼ比例していた。しかし、発光が酸素欠陥に関係するにも関わらず、 10^{13} n/cm^2 までの照射では顕著な14MeV中性子照射フルエンス依存性が観測されていない。その理由として未照射試料で既にFセンターが存在するため、標準的なサファイア試料でおおよそFセンターの欠陥密度は約 $10^{16} \text{ F-center/cm}^3$ 程度であると報告されている。⁽¹⁹⁾ それに対して、14MeV中性子照射フルエンス 10^{16} n/cm^2 では、紫外線領域でF、F⁺の密度の増大による透過度の低下が報告されており、それに伴うフォトルミネセンス測定で、F、F⁺センターの発光強度の増加も観測されている。^{(17),(22)} それらの報告から、中性子フルエンス照射 10^{13} n/cm^2 では初期量に比べて数%程度の約 $10^{14} \text{ F-center/cm}^3$ のFセンターが生成されただけなので、顕著なフルエンス依存性が観測されなかったと考えられる。照射に伴うF及びF⁺センターの発光強度の変化を観測するためには、14MeV中性子照射量 $10^{14} \sim 10^{16} \text{ n/cm}^2$ が必要であると予想される。また、その照射量では別の欠陥種の増加によって、新たな発光が観測されることも考えられる。

4.2.2 石英ガラス

高純度石英ガラス(SiO_2)は遠紫外線領域から赤外線領域まで高い透過度をもっている。不純物の含有量は1ppm以下の非単結晶である。従って、窓材料以外にも石英光ファイバなど広く光学材料として用いられている。14MeV中性子及び γ 線などの透過度の損失については光ファイバ材料として幾つか研究されている。⁽²³⁾ 図4-1-3で示された14MeV中性子照射による石英ガラスの発光スペクトルでは、450nm付近にみられ、その発光は酸素空孔での励起子による固有発光である。⁽²⁴⁾ しかし、不純物や欠陥の構造によって、発光のピークエネルギーや発光強度が異なることが報告されている。また、連続スペクトル光として誘導 γ 線によるチェレンコフ光が観測されている。図4-1-4に示されたように、この発光強度は中性子束 $10^6 \sim 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ の領域においてほぼ比例しており、 10^{13} n/cm^2 以下では中性子フルエンス依存性は観測されず、欠陥生成などによる影響は小さいものと思われる。

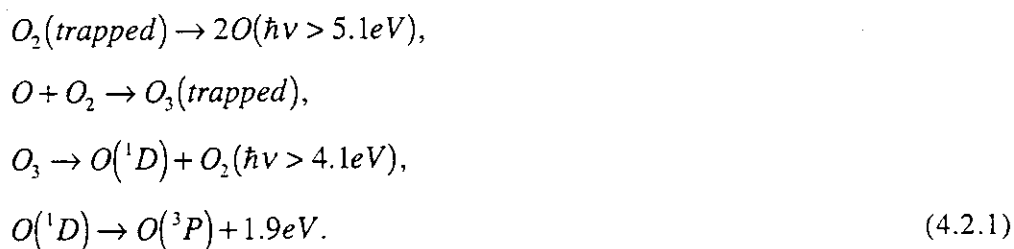
4.2.3 Ge添加石英ガラス

3~8%Ge添加石英ガラスについても調べた。Ge添加は光ファイバの屈折率変化などに用いられている。図4-1-5はGe添加石英ガラスの発光スペクトルと高純度スペクトルを比較した

もので、14MeV中性子照射および γ 線照射では、Ge添加石英ガラスではGeが添加された影響で390nm付近に発光が観測される。この発光は、高純度石英ガラスに比べて、1桁程度高い発光強度であった。また、高純度石英ガラスで観測された450nmの発光は390nmの発光の裾に隠れて確認することが出来なかった。

4.2.4 石英単結晶

石英単結晶は紫外線領域から赤外線領域まで高い透過度をもった単結晶である。照射試料の不純物濃度を表4.2.2に示す。特に本実験試料では、OH基密度が821ppmと高いことが特徴的である。光ファイバーでは、OH基や H_2 分子の拡散によって、波長領域によっては耐放射線性を向上させる方法が知られており、14MeV中性子照射による透過度の照射試験では、OH基の高い石英ガラスの透過度の低下が小さかったことが報告されている。⁽⁴⁾ 図4-1-6に示されたように、石英ガラスと同様に450nm付近に加えてさらに650nm付近にも発光が観測されている。650nm付近に観測された発光は、結晶に含まれている酸素分子(O_2)の化学反応による発光であると考えられる。⁽²⁵⁾ これは、OH基を多く含んだ石英結晶でフォトルミネセンス測定などにより観測されている発光である。⁽²⁶⁾ 石英結晶に含まれる酸素分子密度は製造方法などに大きく依存する。この発光の機構は石英結晶中の酸素分子が紫外線レーザー光や γ 線で照射されてオゾンを形成し、その300nmの光吸収によるフォトルミネセンスであることが知られている。オゾンによる発光プロセスは次の光化学反応で説明されている。



5.1eVに相当する243nmの光吸収により酸素分子が分解されて酸素と反応してオゾンを形成し、再び4.1eV(302nm)の光吸収によって分解し1.9eVに相当する650nmの光を放出する。14MeV中性子照射 *In-situ* 実験では、放射線によって酸素分子が励起されて式(4.2.1)に示す反応及び部分反応が起こっていると考えられる。

4.2.5 14MeV中性子と γ 線照射効果の比較

全ての試料において、14MeV中性子照射量に対して 10^{13} n/cm²までのフルエンス依存性は観られず、ほぼ中性子フラックスに比例した発光量であった。⁶⁰Co γ 線照射においても発光強度は照射線量率にほぼ比例していた。14MeV中性子と⁶⁰Co γ 線照射で同様な発光スペクトルが観測されて、それらの発光は欠陥や不純物に関係するものであった。従って、照射損傷が問題とならない照射線量までについては、これまでに調べられてきた γ 線や電子励起発光についての基本的な機構はエネルギー付与する粒子の性質によらず同じとして良いようである。しかし、表4.1.2に示すようにほとんどの試料で14MeV中性子による効率が⁶⁰Co γ 線照射に比べて小さい結果となっている。

図4-2-3は、同じ高純度石英ガラス試料で、14MeV中性子照射と⁶⁰Co γ 線照射による発光スペクトルを比較したものである。14MeV中性子照射の発光スペクトルは、⁶⁰Co γ 線照射のものに似ていることがわかる。また、イオンビーム⁽²⁷⁾や電子ビーム⁽²⁴⁾実験でも似た発光スペクトルが観測されているので、誘導 γ 線のチェレンコフ光成分を除いた発光スペクトルと14MeV中性子誘起発光スペクトルは相似であると考えられる。そして、14MeV中性子誘起による発光効率を厳密に評価するため誘導 γ 線の寄与分を差し引くことを試みた。表4.2.3は、14MeV中性子照射と⁶⁰Co γ 線照射による発光の割合を推定したものである。まず、MCNPを用いて誘導 γ 線及び⁶⁰Co γ 線によって式(2.1.5)で用いた有効体積中で発生する高速電子エネルギースペクトルから、14MeV中性子照射と⁶⁰Co γ 線照射によるチェレンコフ光発生数を次式より求めた。⁽²⁸⁾

$$N_{Cherenkov} = V_{eff} \int_{E_c}^{\infty} 2\pi\alpha \left(\frac{1}{\lambda_1} - \frac{1}{\lambda_2} \right) \sin^2 \theta_c(E) \Phi_e(E) dE, \quad (4.2.3)$$

E_c : しきい値エネルギー ($\beta=1/n$ のとき),

α : 微細構造定数 (約 1/137.04),

n : 石英ガラスの屈折率 ($n=1.4\sim 1.6$),

$\theta_c(E)$: チェレンコフ角 ($\cos \theta_c = \frac{1}{\beta n}$),

$\Phi_e(E)$: 高速電子エネルギースペクトル (e/cm²/MeV).

式(4.2.3)で与えられるように、チェレンコフ放射が起こる条件は $\beta > 1/n$ ($\beta = \text{電子速度}/\text{光速}$)を満たすときで、その強度もチェレンコフ角 $\theta_c(E)$ に依存する。次に、中性子誘導 γ 線と⁶⁰Co γ

線ではエネルギースペクトルが異なるが付与エネルギーあたりの発光数は同じであると仮定して、14MeV中性子照射における誘導 γ 線の寄与分は、 ^{60}Co γ 線発光効率と誘導 γ 線照射線量から推定した。最後に、チェレンコフ光及び誘導 γ 線による寄与分を中性子照射による実験値から差し引いた。そして、可視域で電子的励起緩和による発光数については、 ^{60}Co γ 線による発光効率は 135 ± 50 photons/MeVに対して、誘導 γ 線の成分を含まない14MeV中性子誘起のみによる発光効率は 5 ± 3 photons/MeVと推定された。このように発光効率が中性子と γ 線の効率が2桁異なる理由として、14MeV中性子核反応で発生する陽子、 α 粒子、反跳原子などの荷電粒子のエネルギー付与あたりの発光数が高速電子に比べて小さいためであると考えられる。また、このようにシンチレータの発光効率と似た特性を持つために、線エネルギー付与(LET)の大きい荷電粒子では発光効率の低下が予想されて、14MeV中性子誘起発光については反跳原子よりも陽子及び α 粒子による発光が大きく占めているものと考えられる。

5. 結 論

14MeV 中性子発生装置を利用して、サファイア、高純度石英ガラス、石英単結晶の窓材料の D-T 中性子照射下での発光特性について調べた。中性子束 $10^6 \sim 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ の領域で照射されている試料からの発光をレンズおよび光ファイバを利用した光伝送と高感度の光検出器システムにより絶対発生光子数として測定した。測定された試料の発光強度は照射線量率にほぼ比例していた。高純度石英ガラスの場合、450nm 付近の 14MeV 中性子誘起による発光効率率は、 $5 \pm 3 \text{ photons/MeV}$ であり、 γ 線による発光効率 $135 \pm 50 \text{ photons/MeV}$ に比べ 3~4% であった。中性子と γ 線による発光効率の違いは、発光機構が荷電粒子の線エネルギー付与 (LET) に依存するためであると考えられ、14MeV 中性子誘起発光では主に陽子や α 粒子の寄与によるものであると考えられる。そして、14MeV 以下の高速中性子では陽子や α 粒子の発生が減少するため 14MeV 中性子に比べて吸収エネルギーあたりの発光効率がさらに小さいことが予想される。従って、核融合プラズマ診断用の窓からの照射による発光雑音は、中性子照射欠陥によるフルエンス依存性が観られない照射量領域では、中性子に比べて γ 線の方がより問題であることが指摘できる。

本実験で得られた窓材料の発光効率に関するデータを用いることで、核融合実験炉のプラズマ診断測定システムで問題となる放射線照射場での窓材料からの発光の定量的な評価が可能となった。

謝 辞

本研究の内容は、多くの方々の協力により達成されたものである。特に日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部高エネルギー中性子工学研究室の池田裕二郎室長及び前川藤夫研究員には有益な助言を頂いた。また、炉工学施設管理室 FNS 系のスタッフには FNS の照射実験に際して多大な御協力を頂いた。ここに深く感謝します。また、東海研究所 ^{60}Co γ 線照射施設および、大阪大学工学部原子力工学科の高橋亮人教授をはじめ OKTAVIAN 施設のスタッフの各氏に、御意見と御協力を頂いた。ここにお礼を申し上げる次第である。

また、本研究は ITER/EDA タスク T-246 の一つとして行われ、日本原子力研究所那珂研究所炉心プラズマ第 1 実験室の西谷健夫副主任研究員、関西研究所光量子研究計画室の的場徹室長及び炉心工学研究室河西敏主任研究員に研究の支援と有益な議論を頂いた。ここに心よりお礼を申し上げる次第である。

5. 結 論

14MeV 中性子発生装置を利用して、サファイア、高純度石英ガラス、石英単結晶の窓材料の D-T 中性子照射下での発光特性について調べた。中性子束 $10^6 \sim 10^{11} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ の領域で照射されている試料からの発光をレンズおよび光ファイバを利用した光伝送と高感度の光検出器システムにより絶対発生光子数として測定した。測定された試料の発光強度は照射線量率にほぼ比例していた。高純度石英ガラスの場合、450nm 付近の 14MeV 中性子誘起による発光効率率は、 $5 \pm 3 \text{ photons/MeV}$ であり、 γ 線による発光効率 $135 \pm 50 \text{ photons/MeV}$ に比べ 3~4% であった。中性子と γ 線による発光効率の違いは、発光機構が荷電粒子の線エネルギー付与 (LET) に依存するためであると考えられ、14MeV 中性子誘起発光では主に陽子や α 粒子の寄与によるものであると考えられる。そして、14MeV 以下の高速中性子では陽子や α 粒子の発生が減少するため 14MeV 中性子に比べて吸収エネルギーあたりの発光効率がさらに小さいことが予想される。従って、核融合プラズマ診断用の窓からの照射による発光雑音は、中性子照射欠陥によるフルエンス依存性が観られない照射量領域では、中性子に比べて γ 線の方がより問題であることが指摘できる。

本実験で得られた窓材料の発光効率に関するデータを用いることで、核融合実験炉のプラズマ診断測定システムで問題となる放射線照射場での窓材料からの発光の定量的な評価が可能となった。

謝 辞

本研究の内容は、多くの方々の協力により達成されたものである。特に日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部高エネルギー中性子工学研究室の池田裕二郎室長及び前川藤夫研究員には有益な助言を頂いた。また、炉工学施設管理室 FNS 系のスタッフには FNS の照射実験に際して多大な御協力を頂いた。ここに深く感謝します。また、東海研究所 ^{60}Co γ 線照射施設および、大阪大学工学部原子力工学科の高橋亮人教授をはじめ OKTAVIAN 施設のスタッフの各氏に、御意見と御協力を頂いた。ここにお礼を申し上げる次第である。

また、本研究は ITER/EDA タスク T-246 の一つとして行われ、日本原子力研究所那珂研究所炉心プラズマ第 1 実験室の西谷健夫副主任研究員、関西研究所光量子研究計画室の的場徹室長及び炉心工学研究室河西敏主任研究員に研究の支援と有益な議論を頂いた。ここに心よりお礼を申し上げる次第である。

参 考 文 献

- (1) Reports presented at ITER workshop on "Radiation Effects on Diagnostic Components", St. Petersburg, USSR (1991).
- (2) Reports presented at ITER technical meeting on "Radiation Effects on In-vessel components", Garching (1993).
- (3) Reports presented at ITER technical meeting on "Irradiation Testing of In-vessel structural Materials and Components", Garching (1994).
- (4) D.V. Orłinski et al.: "Preliminary results of window radiation resistance investigations", J. Nucl. Mater. 212-215 (1994) 1059.
- (5) A. Morono and E.R. Hodgson: "Radioluminescence problems for diagnostic windows", J. Nucl. Mater. 224 (1995) 216.
- (6) T. Nakamura et al.: "Fusion neutronics source (FNS)", Proc. 3rd Symp. on Accelerator Sci. & Technol., Osaka Univ., Aug. 27-29 (1980) 55.
- (7) Judith F. Briesmeister, (editor) RSIC/CCC-200 (1993).
- (8) K. Shibata et al.: "Japanese evaluated nuclear data library, version-3 JENDL-3", JAERI 1319 (1990).
- (9) K. Maki et al.: "Nuclear heating constant KERMA library", JAERI-M 91-073 (1991).
- (10) S. Yamaguchi et al.: "Calculation of anisotropy correction factors for determination of D-T neutron yield by associated α -particle method", JAERI-M 84-109 (1984).
- (11) 浜松ホトニクス 光電子増倍管カタログ
- (12) 浜松ホトニクス S2281 カタログ
- (13) 浜松ホトニクス PMA-10, M5098 仕様書
- (14) 浜松ホトニクス 技術資料 "フォトンカウンティング" 1992年7月
- (15) D. Clark: "The intrinsic scintillation efficiency of plastic scintillators for ^{60}Co gamma excitation", Nucl. Instr. and Meth. 117 (1974) 295.
- (16) K.H. Lee and J.H. Crawford, Jr.: "Luminescence of the F center in sapphire", Phys. Rev. B19 (1979) 3217.
- (17) B.D. Evans and M. Stapelbroek: "Optical properties of the F $^+$ center in crystalline Al_2O_3 ", Phys. Rev. B18 (1978) 7089.
- (18) A. Al. Ghamdi and P.D. Townsend: "Ion beam excited luminescence of sapphire", Nucl. Instr. and Meth. B46 (1974) 133.
- (19) B.G. Drager: "Optical transmission in undoped crystalline α - Al_2O_3 grown by several

- techniques", *J. Appl. Phys.* 70 (1991) 3995.
- (20) S.Y. La et al., *J. Phys. Chem. Solids* 34 (1973) 1070.
- (21) B.D. Evans: "A review of the optical properties of anion lattice vacancies, and electrical conduction in α -Al₂O₃; their relation to radiation-induced electrical degradation", *J. Nucl. Mater.* 219 (1995) 202.
- (22) B.D. Evans and M. Stapelbrock: "Fusion/fission neutron damage ratio for alumina", *J. Nucl. Mater.* 85&86 (1979) 497.
- (23) T. Iida, S. Ire and K. Sumita: "Fusion neutron damage on optical fiber and optoelectronic devices", *IEEE Trans. on Nucl. Sci.* 35 (1988) 898.
- (24) K. Tanimura et al.: "Creation of quasistable lattice defects by electronic excitation in SiO₂", *Phys. Rev. Lett.* (1983) 423.
- (25) K. Awazu and H. Kawazoe: "O₂ molecules dissolved in synthetic silica glass and their photochemical reaction induced by ArF excimer laser radiation", *J. Appl. Phys.* 68 (1990) 3584.
- (26) R. Tohmon et al.: "Relation between the 1.9eV luminescence and 4.8eV absorption bands in high-purity silica glass", *Appl. Phys. Lett.* 54 (1989) 1650.
- (27) P.W. Wang et al.: "Luminescence in silicas stimulated by low energy ions", *Nucl. Instr. and Meth.* B59/60 (1991) 1317.
- (28) B.D. Sowerby: "Cherenkov detectors for low-energy gamma rays", *Nucl. Instr. and Meth.* 97 (1971) 145.

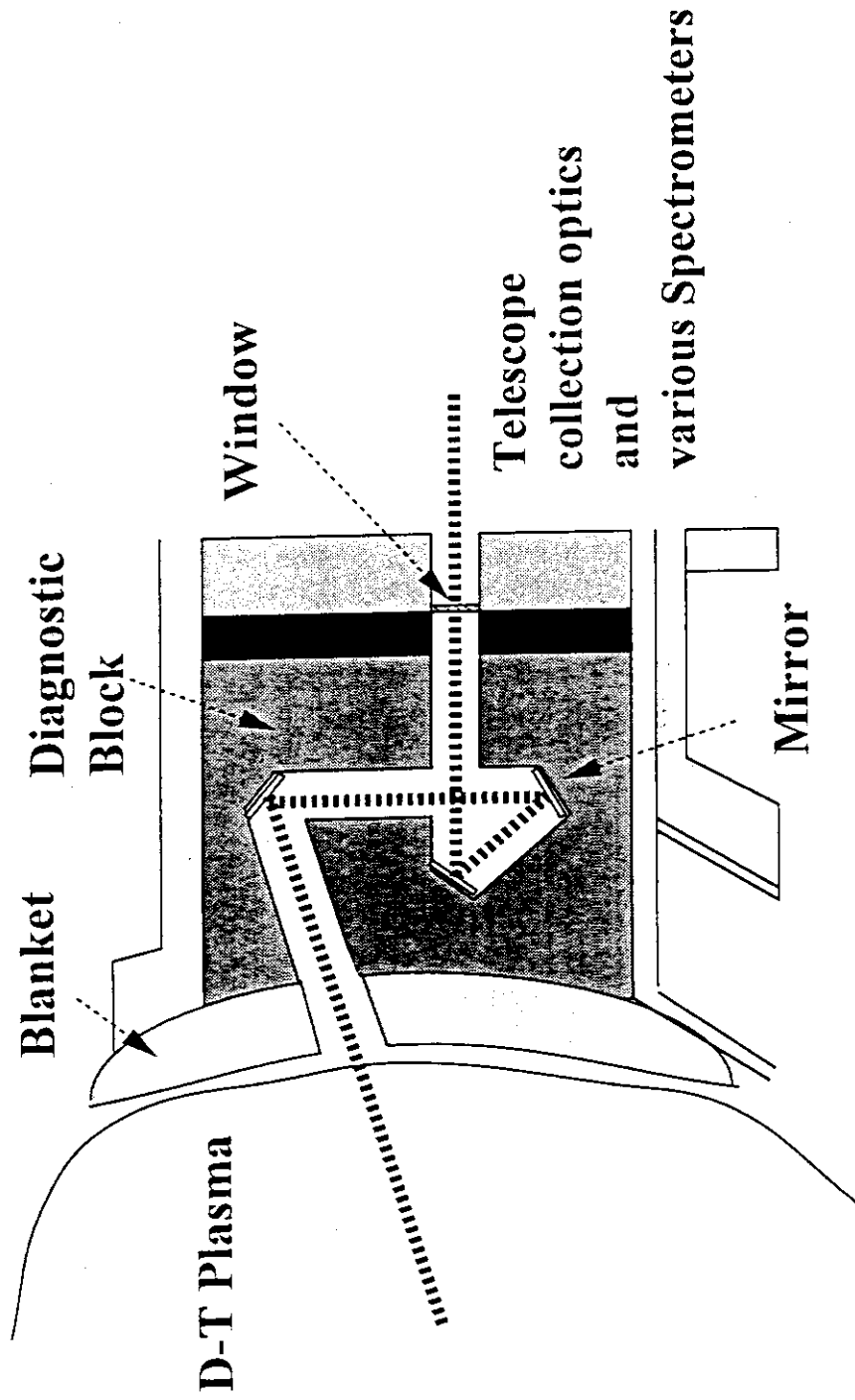


Fig. 1-1 Conceptual design of a typical visible spectroscopy channel for ITER.

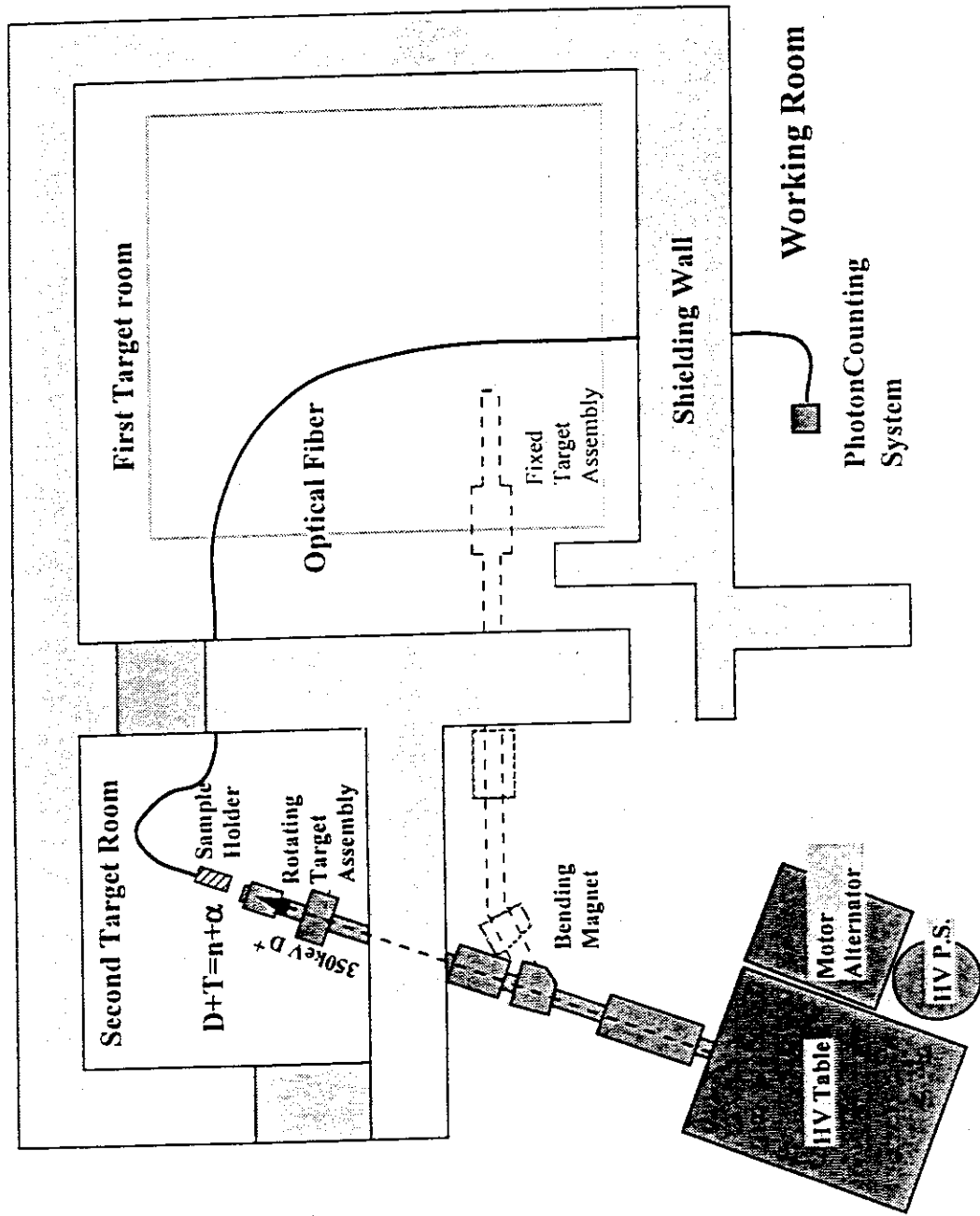


Fig. 2-1-1 Schematic layout of the experiment system to measure photons emitted from window material at FNS.

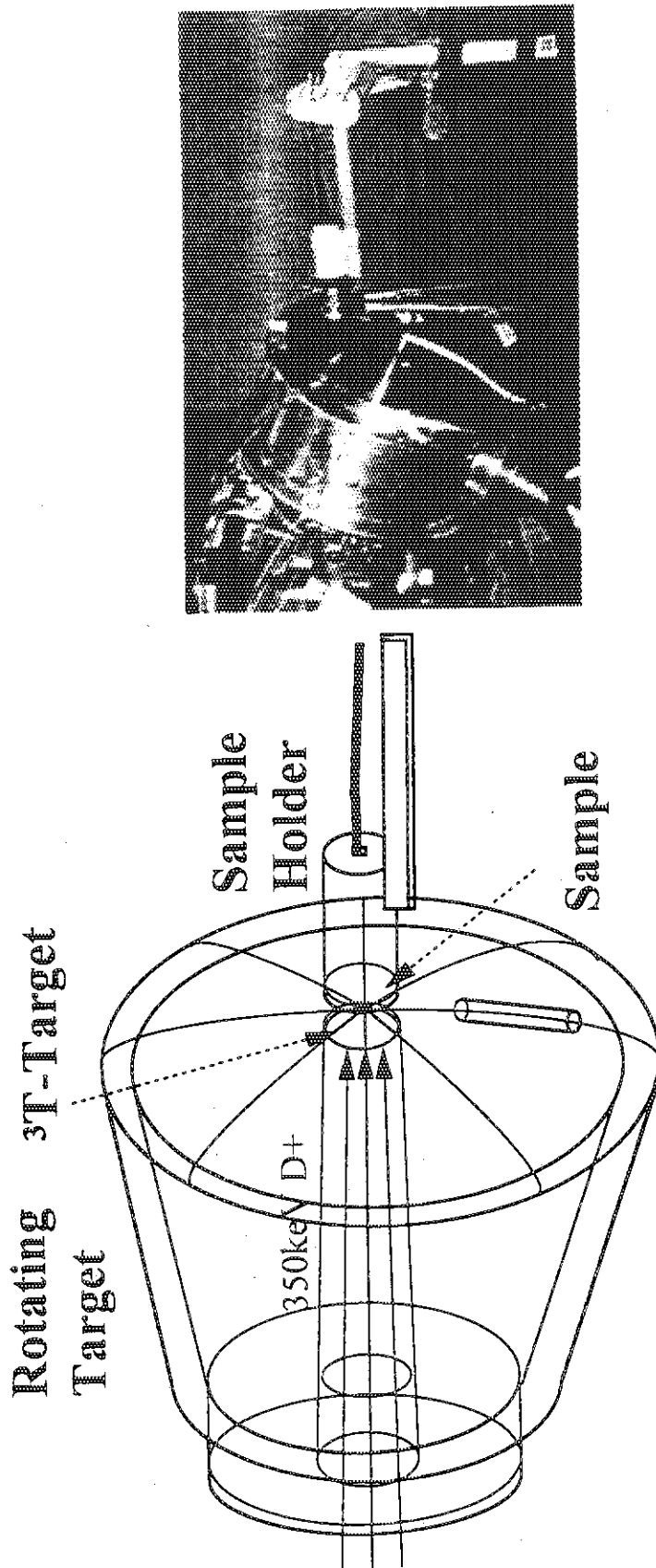


Fig. 2-1-2 Schematic illustration of the sample holder placed near the rotating tritium target, and the photograph.

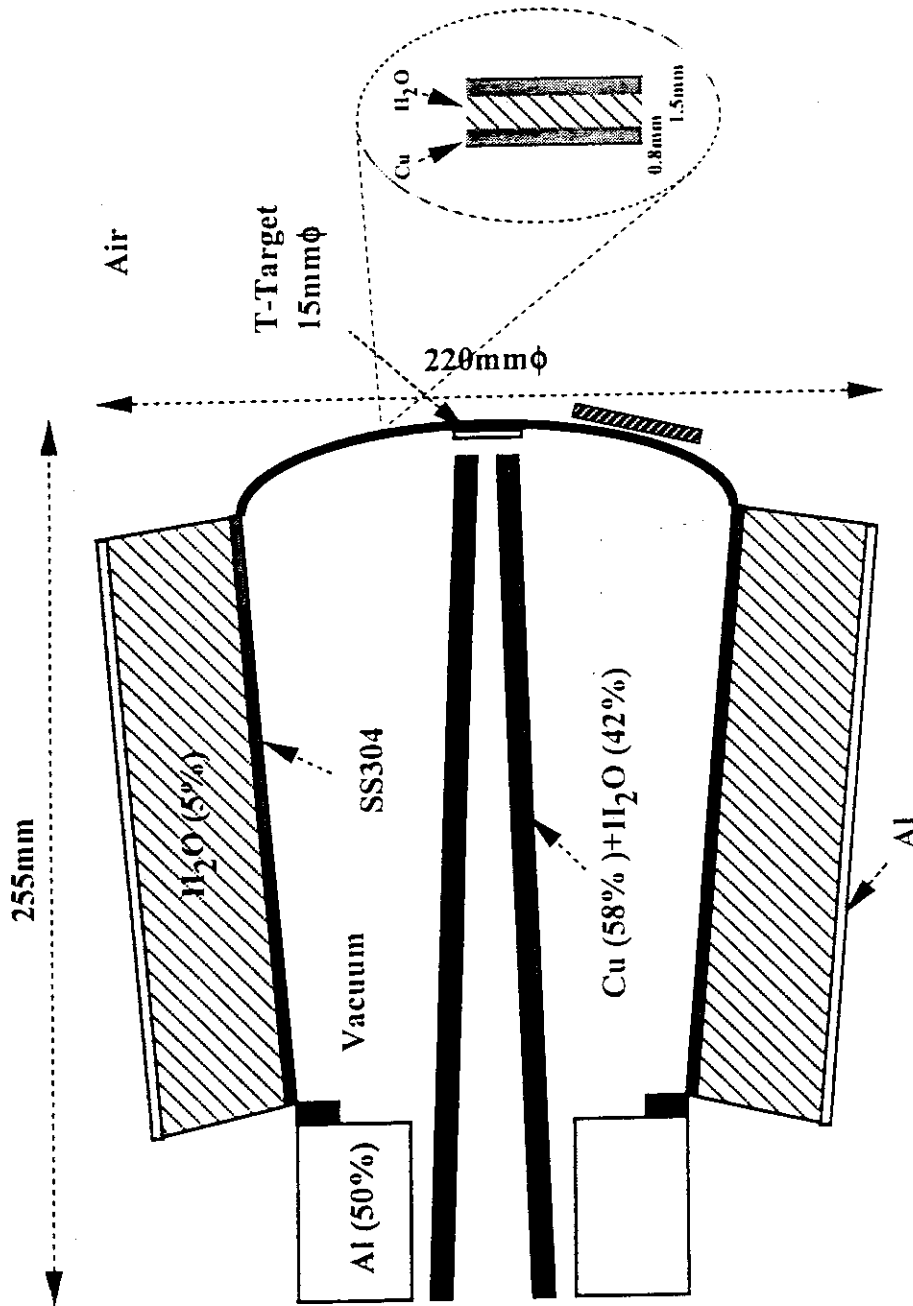


Fig. 2-1-3 Schematic cross sectional view of the target assembly model.

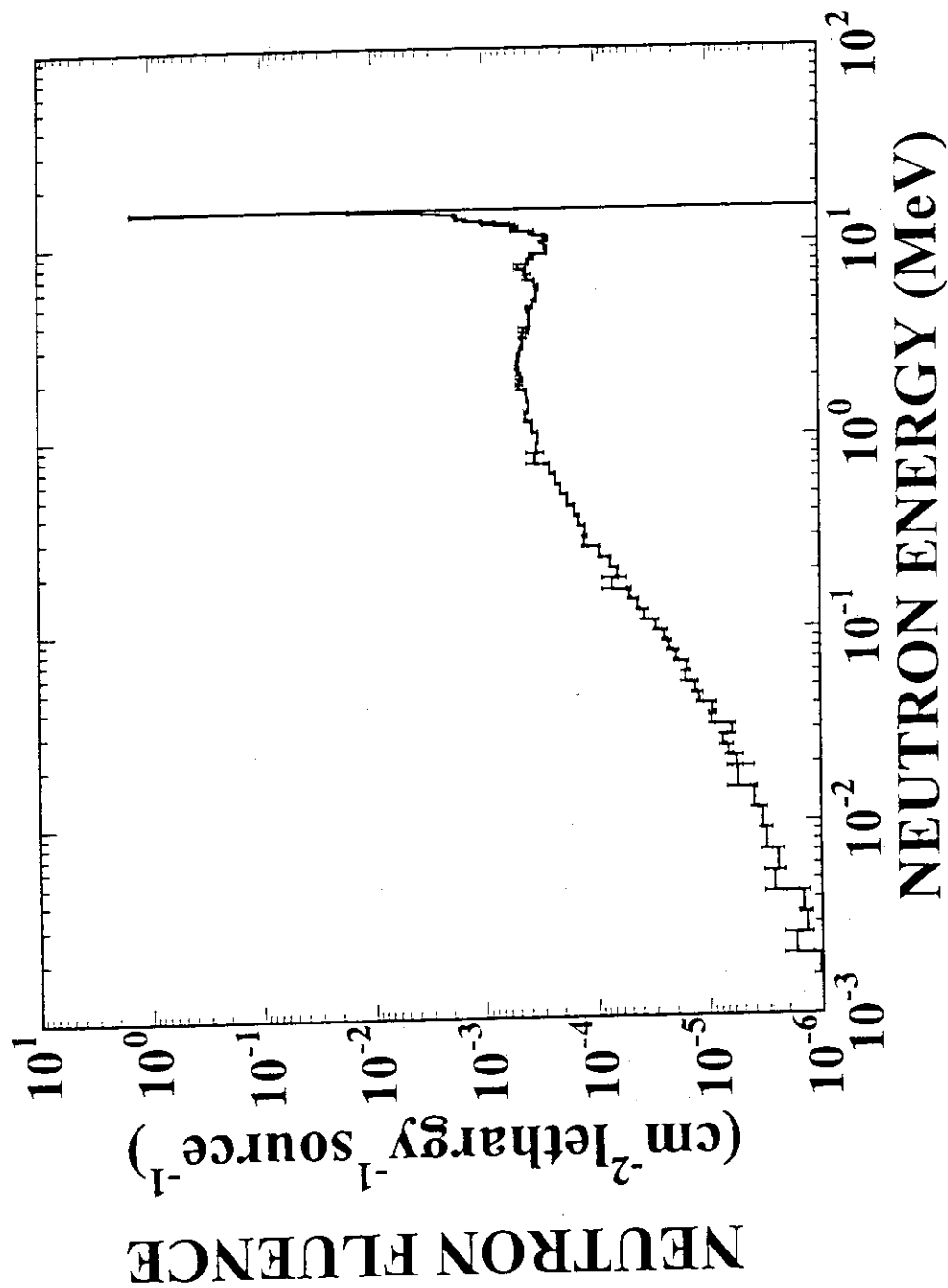


Fig. 2-1-4 Calculated neutron spectrum at 15mm from the target spot.

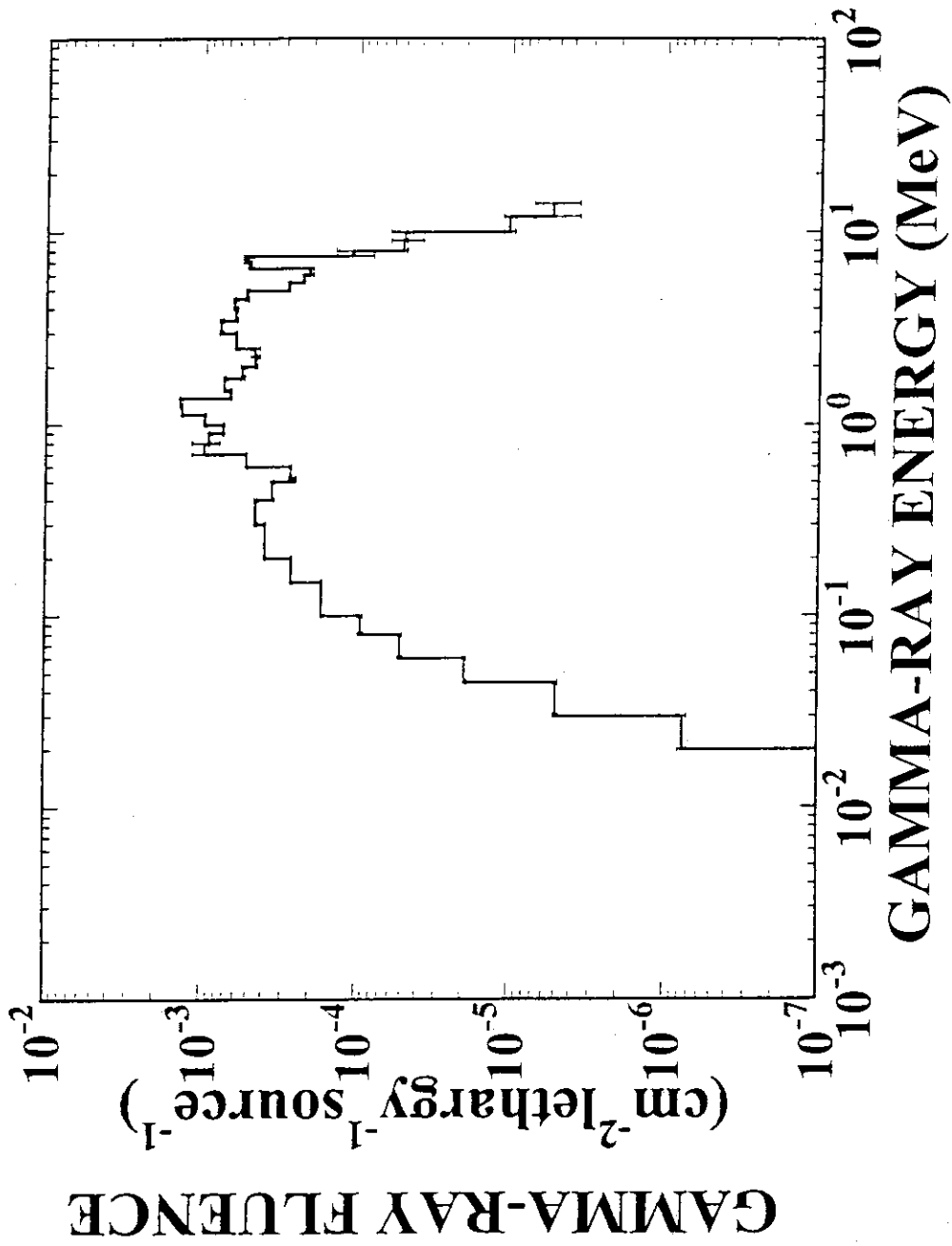


Fig. 2-1-5 Calculated gamma-ray spectrum at 15mm from the target spot.

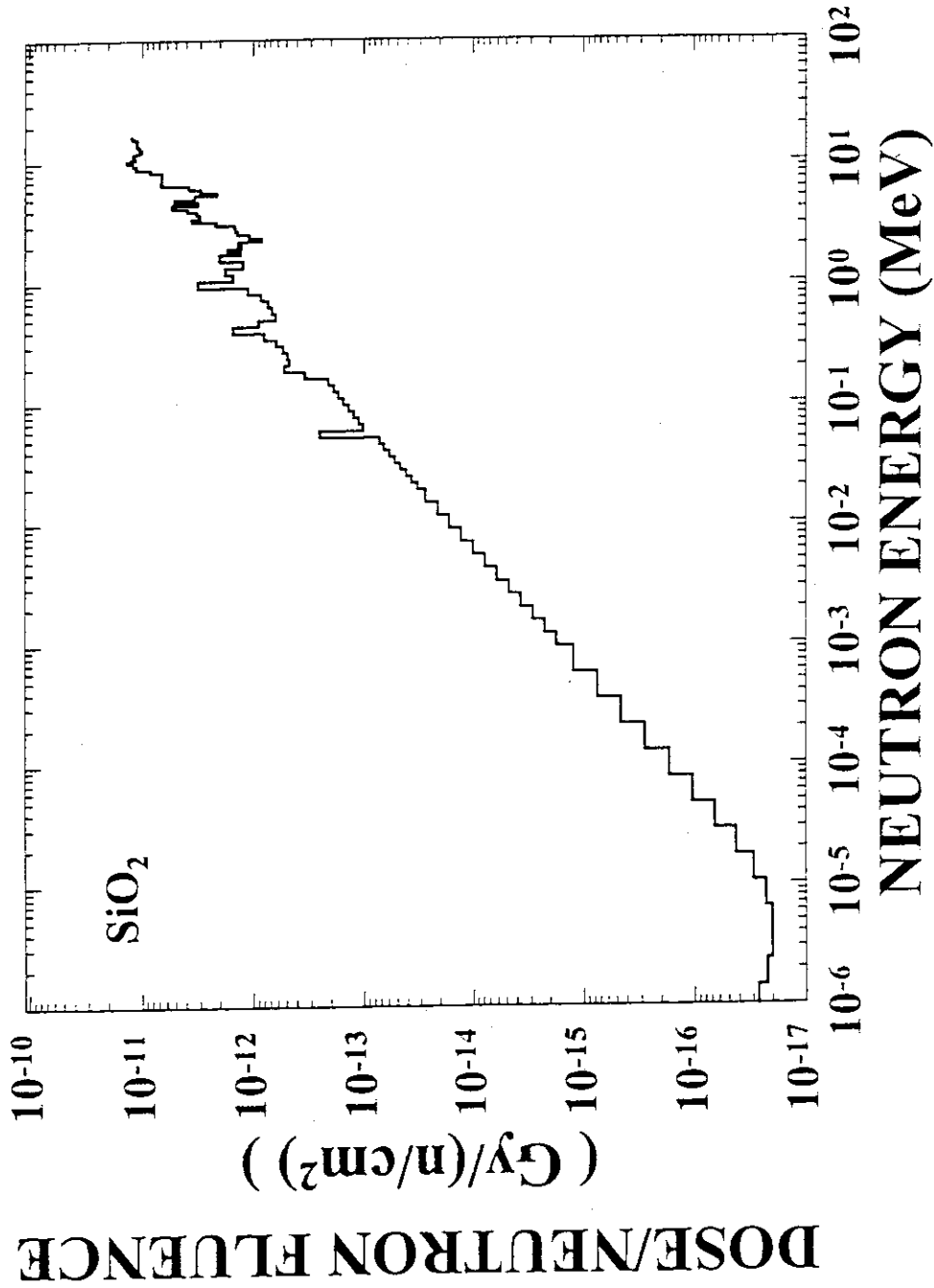


Fig. 2-1-6 Neutron KERMA factor for SiO₂.

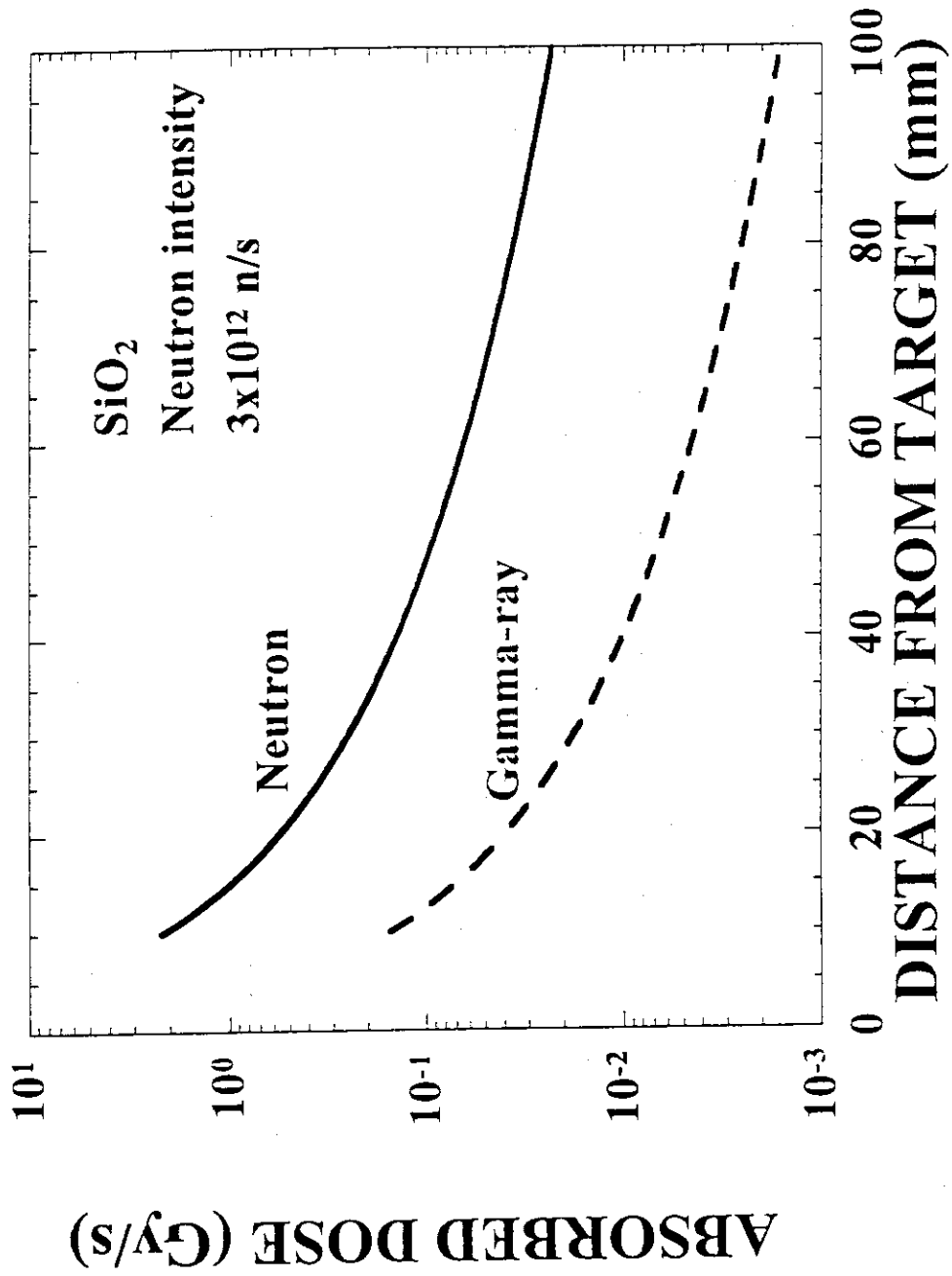


Fig. 2-1-7 Irradiation by D-T neutron target with 3×10^{12} n/s.

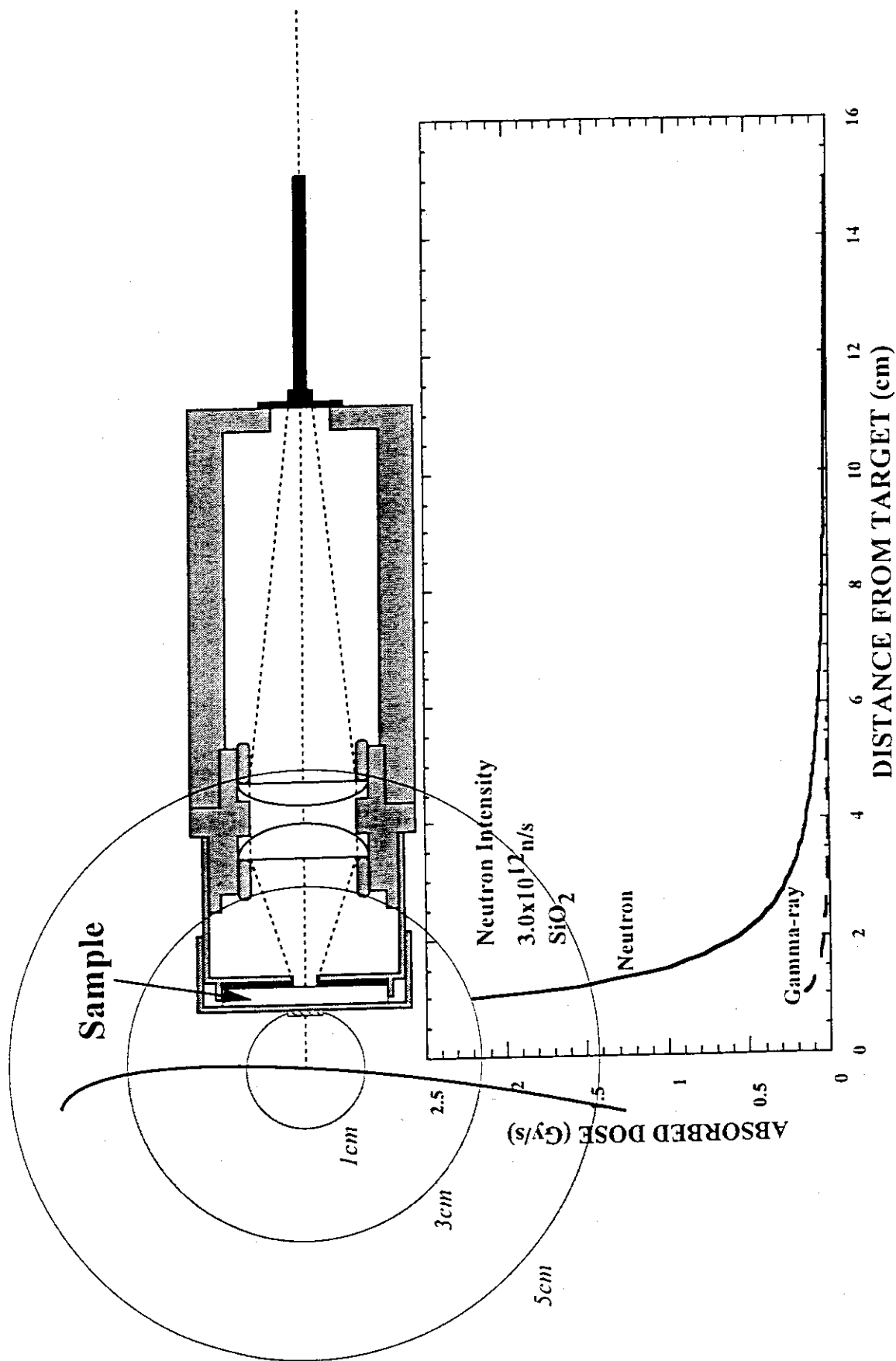


Fig. 2-1-8 Distribution of neutron absorbed dose in 14MeV neutron irradiation experiment.

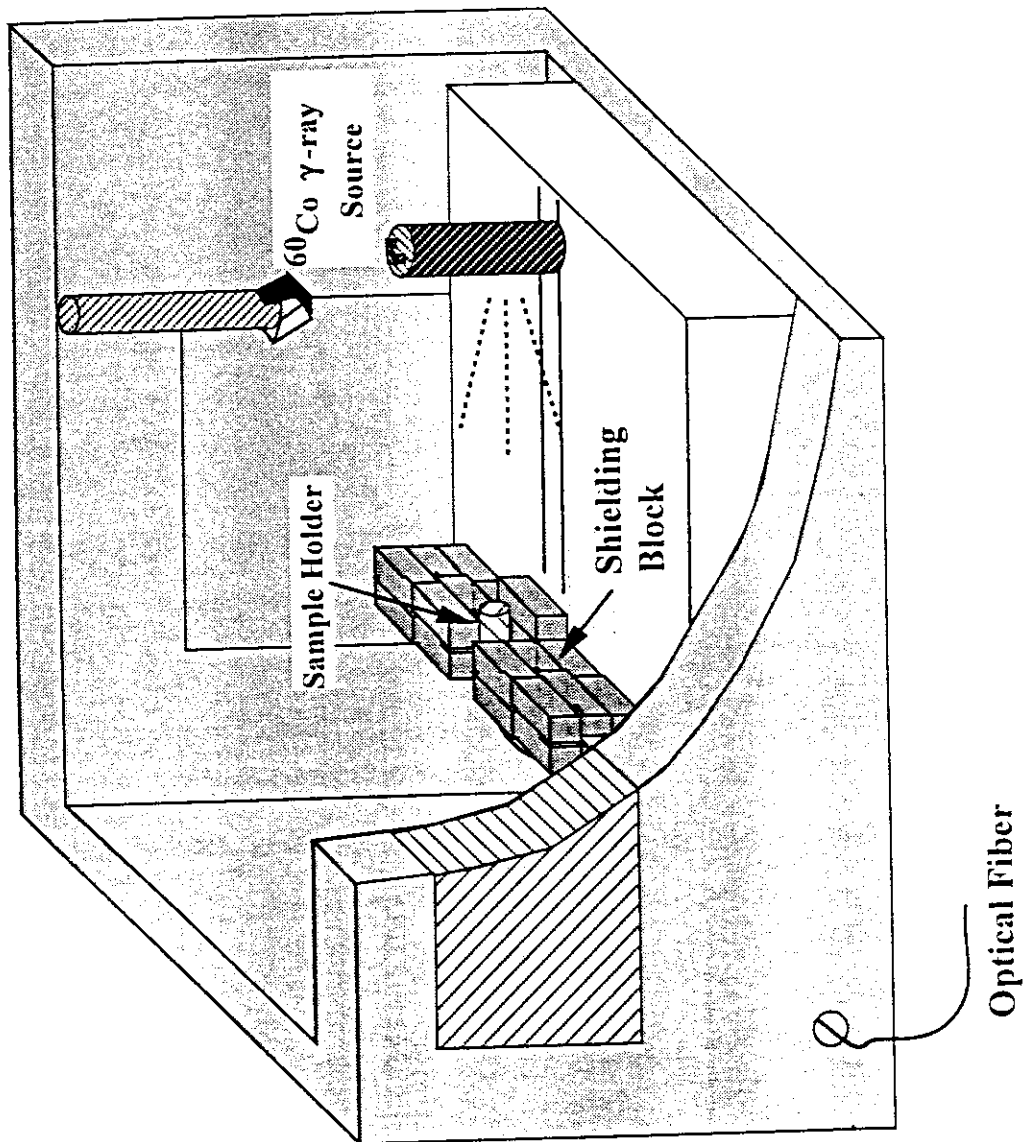


Fig. 2-2-1 Layout of the experiment system to measure photons emitted from window materials at ^{60}Co facility.

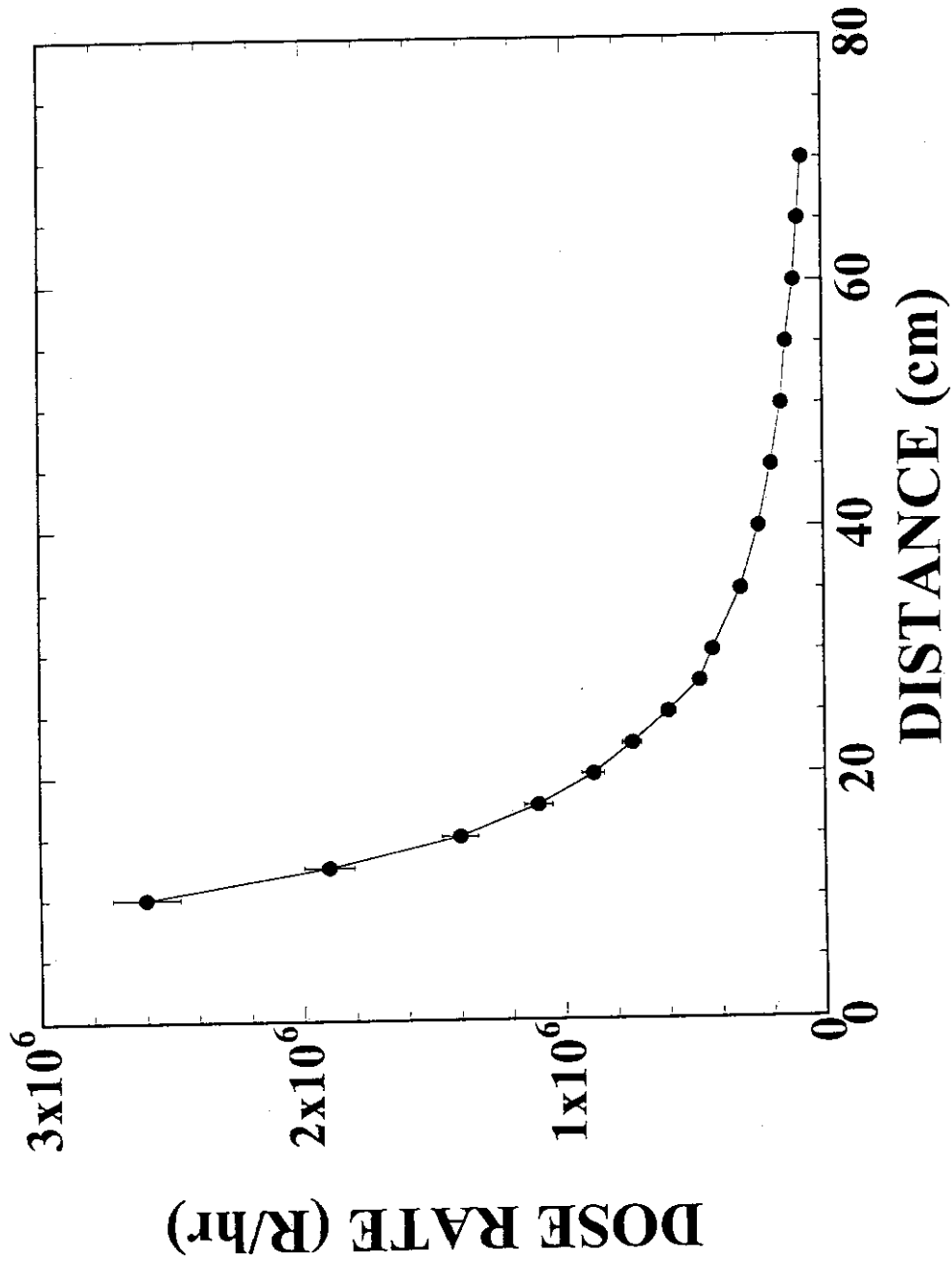


Fig. 2-2-2 Dose distribution in ^{60}Co gamma-ray irradiation experiment.

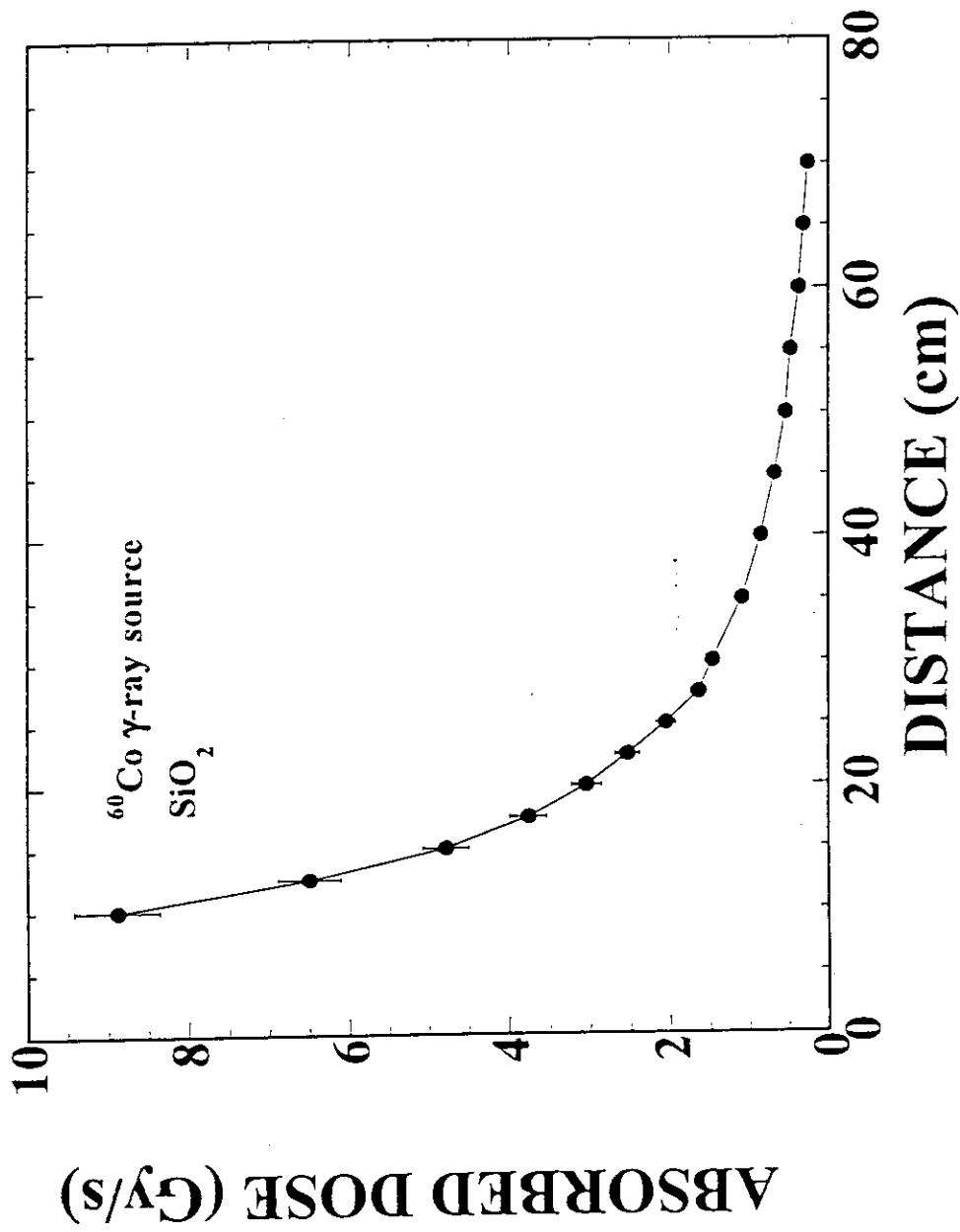


Fig. 2-2-3 Gamma-ray absorbed dose calculated with MCNP code.

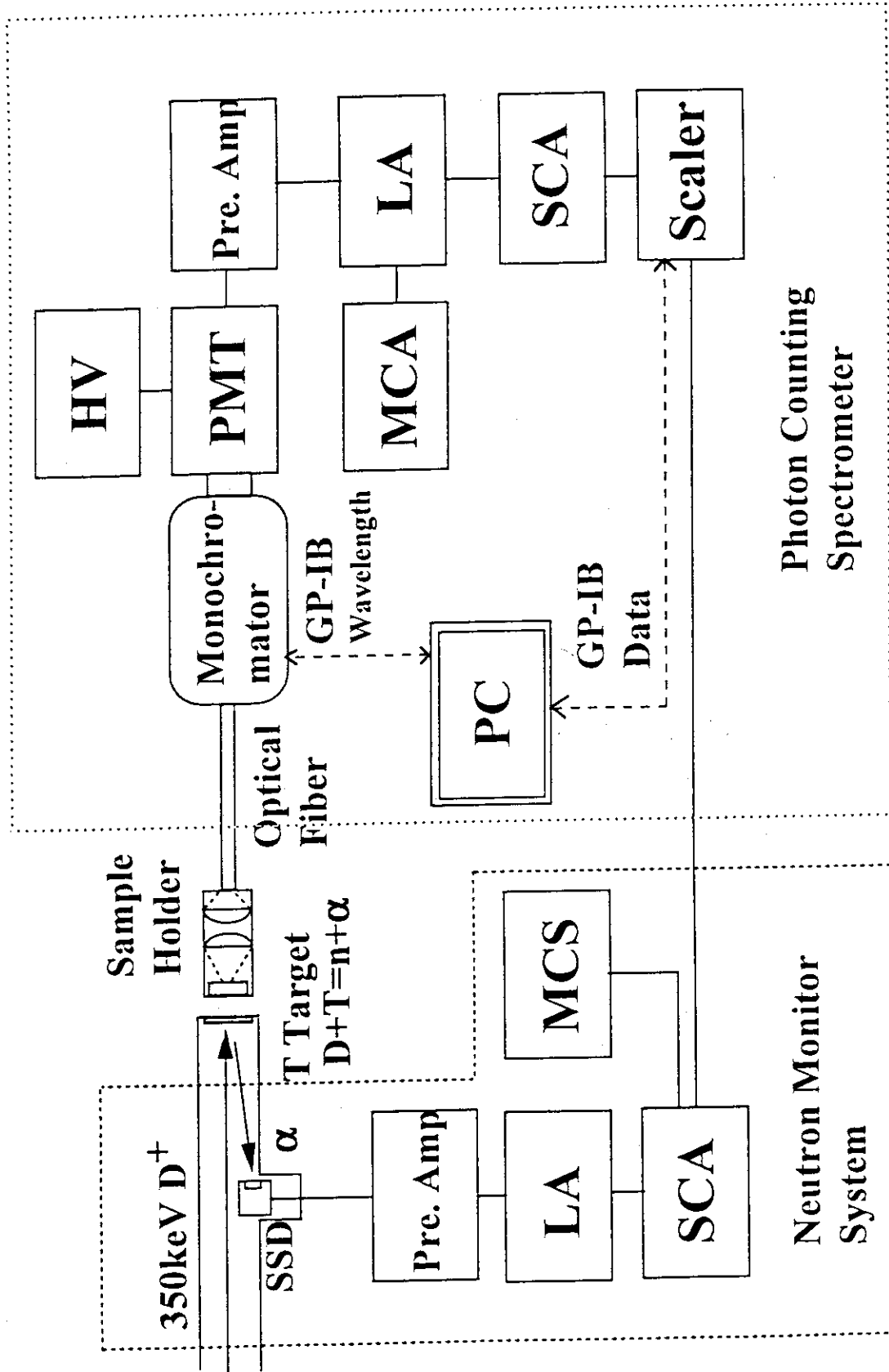


Fig. 3-1-1 Block diagram of the photon measurement system (photon counting spectrometer).

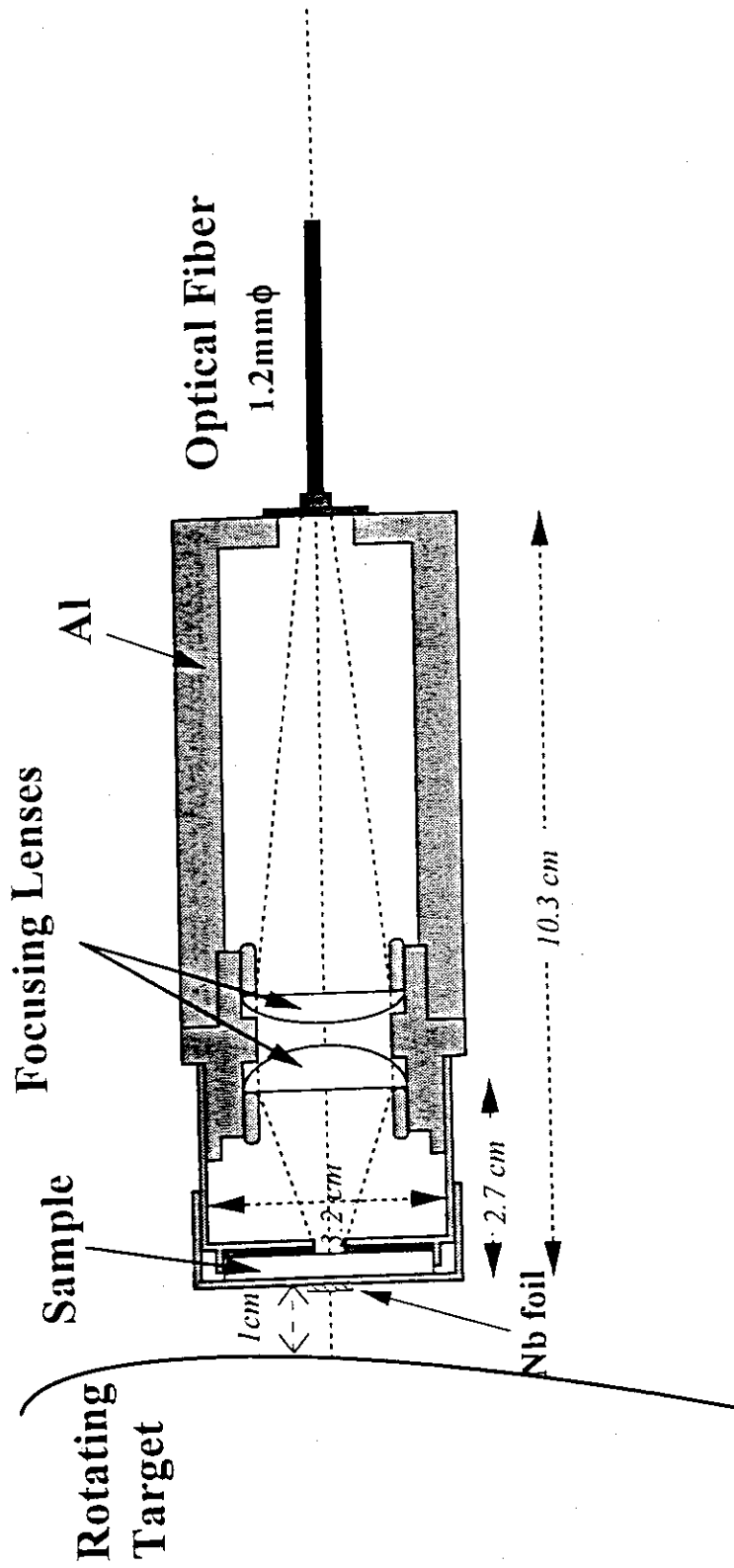


Fig. 3-1-2 Sample holder including a sample and focusing lenses.

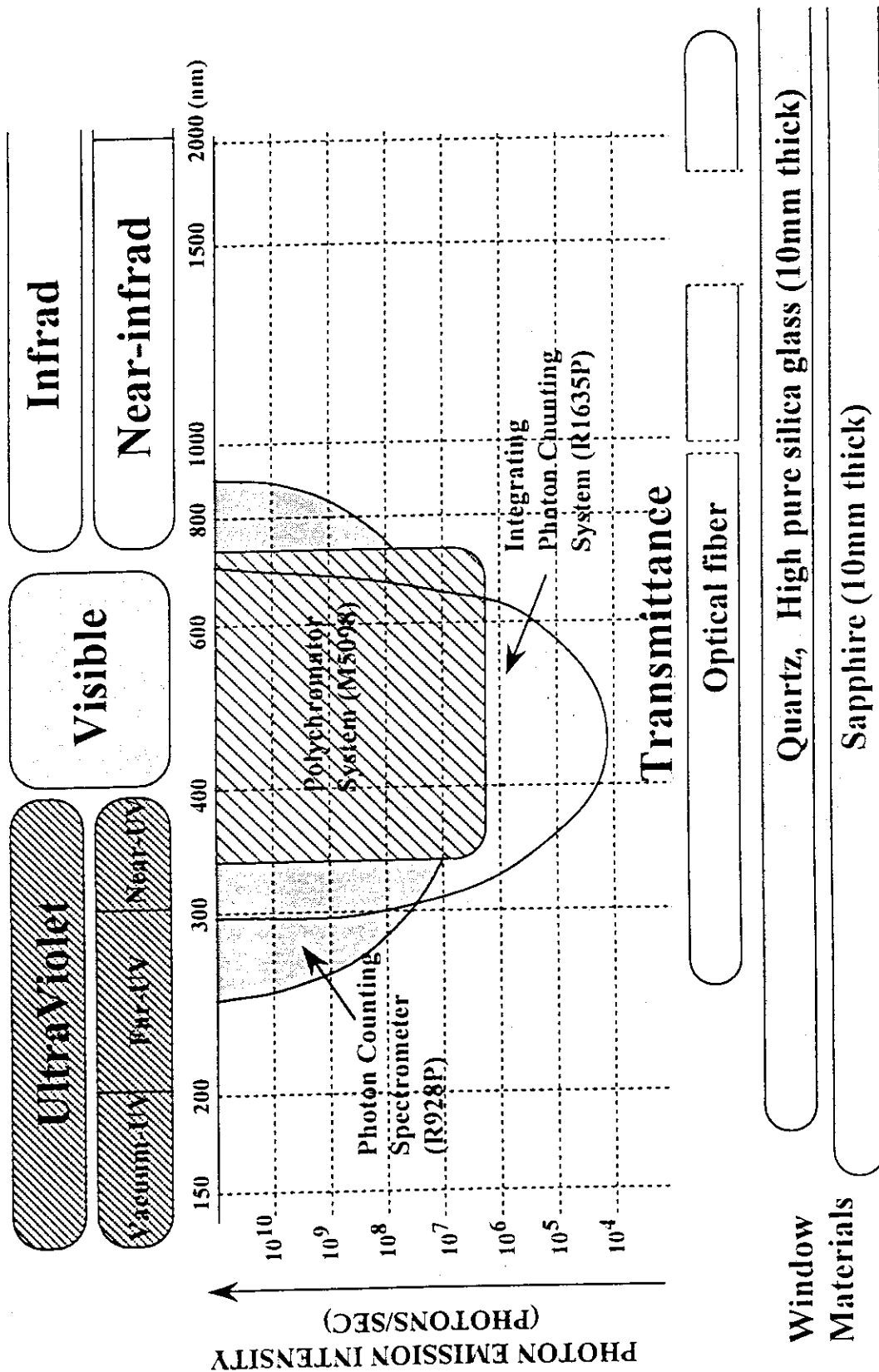


Fig. 3-1-3 Comparison of performances on photon measurement systems developed for 14MeV neutron irradiation experiment. (polychromator system M5098, photon counting spectrometer with a R928P PMT and integrating photon counting system with a R1635P PMT)

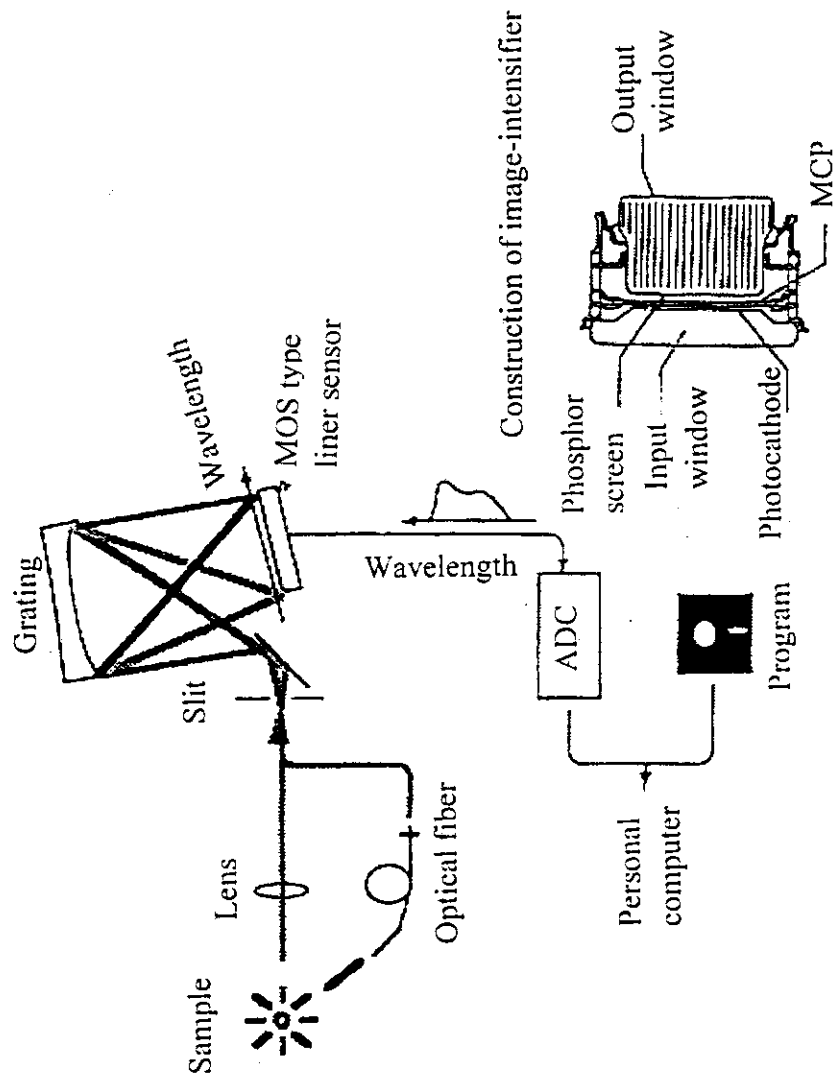


Table 3-1-4 Schematic drawing of the polychromator system M5098 with an image-intensifier.

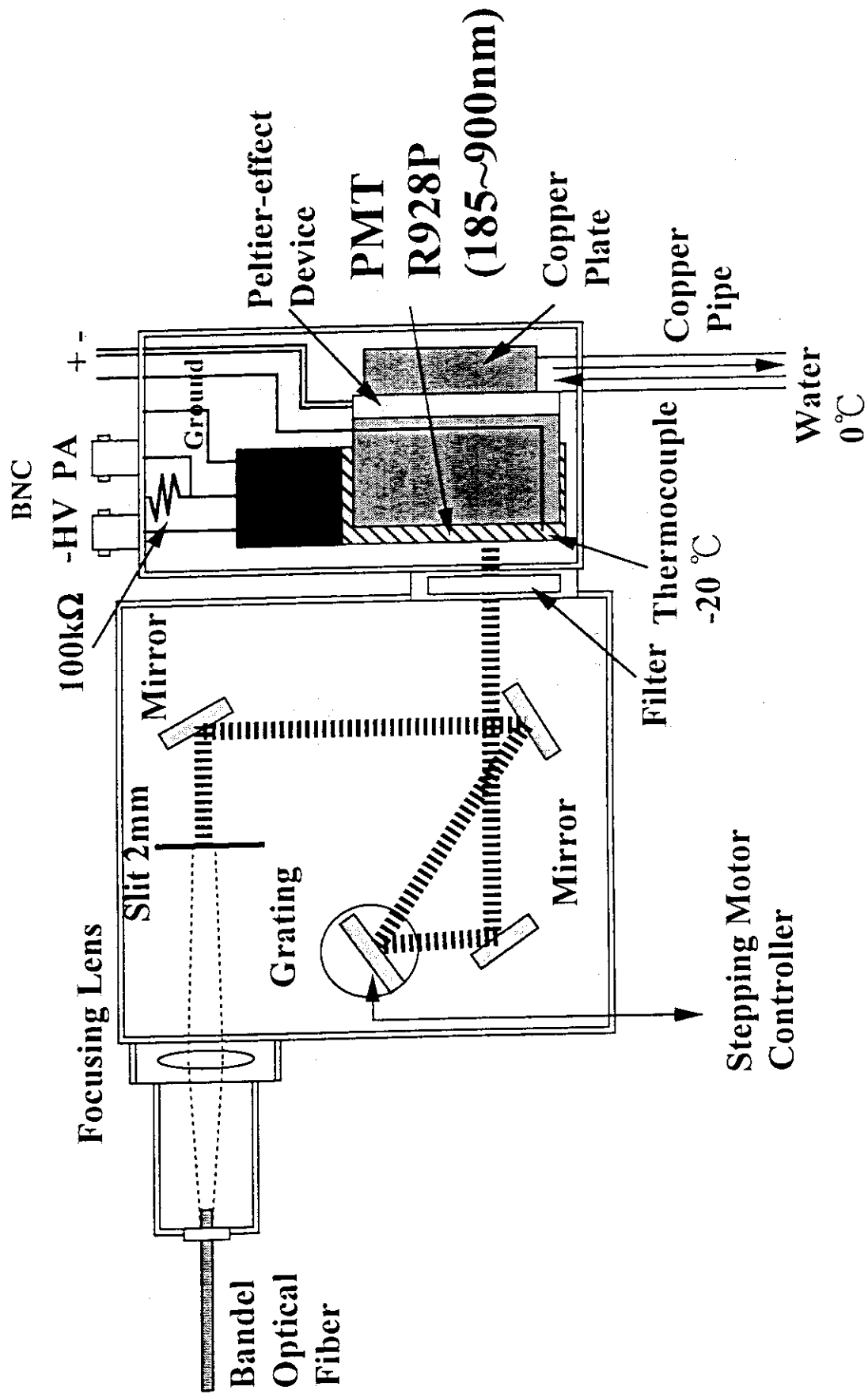


Fig. 3-1-5 Schematic drawing of the photon counting spectrometer with a R928P PMT.

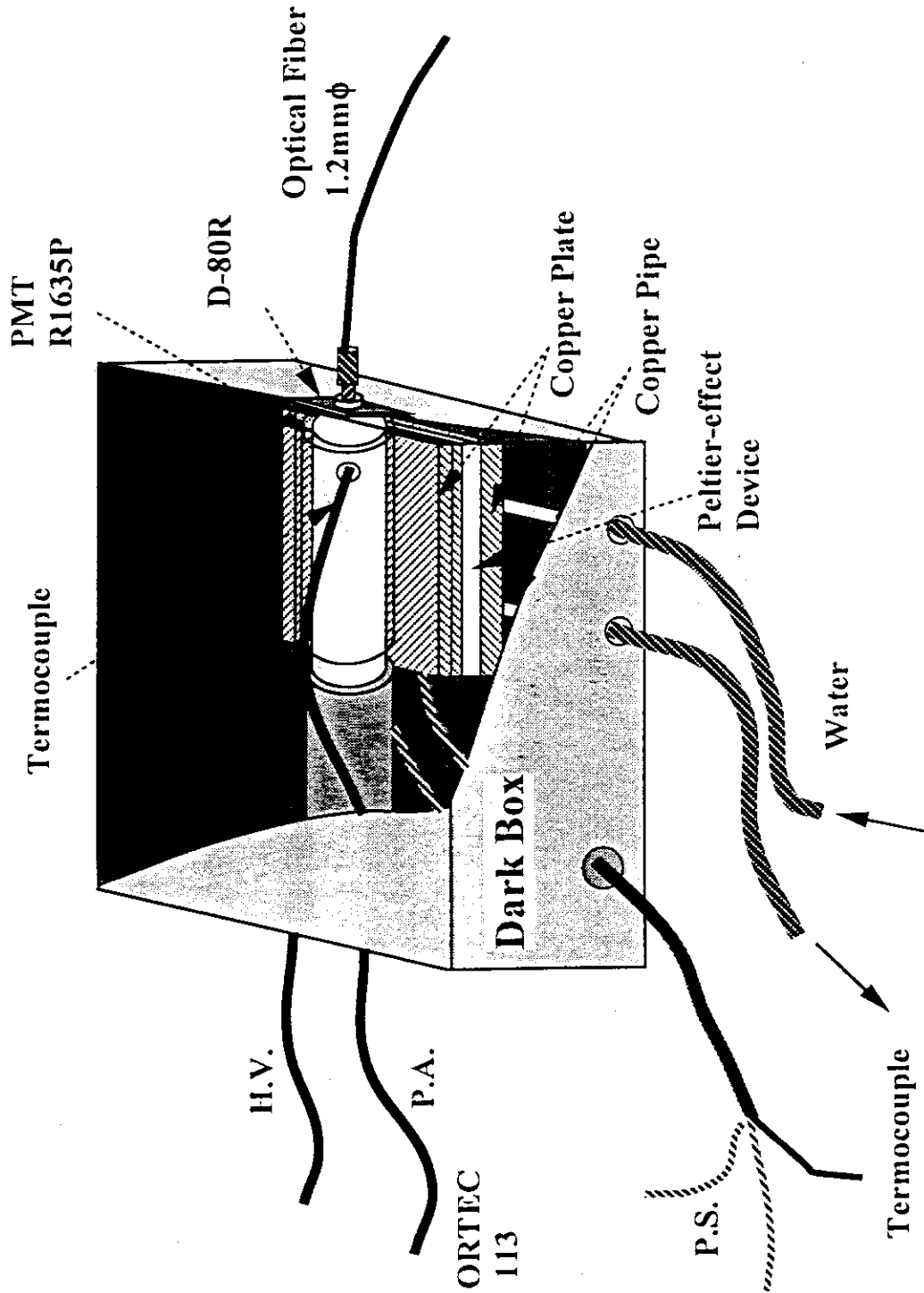


Fig. 3-1-6 Schematic drawing of the integrating photon counting system with a R1635P PMT.

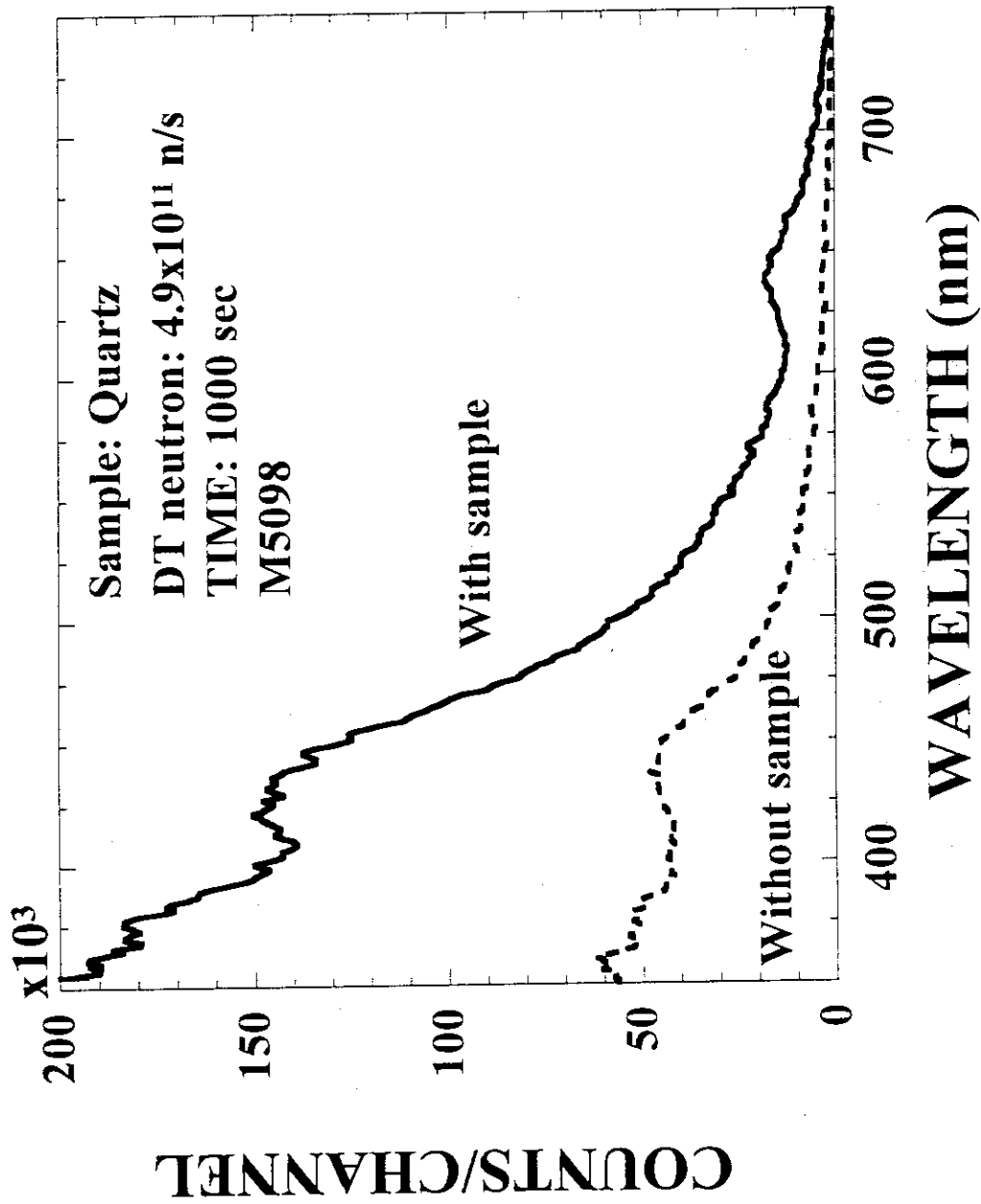


Fig. 3-3-1 Comparison between wavelength spectrum with a sample and that without the sample.
(measured with polychromator system M5098)

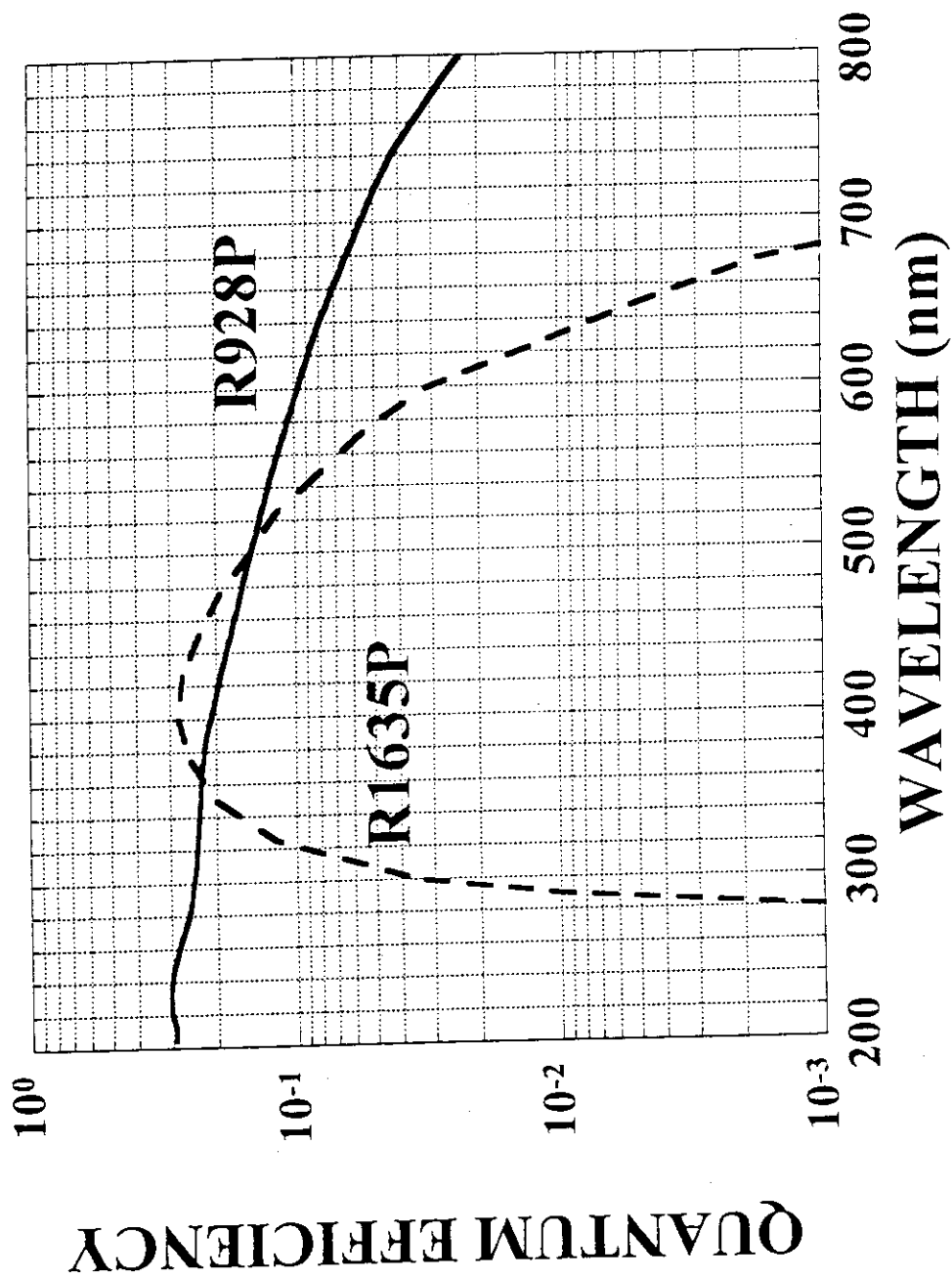


Fig. 3-3-2 Quantum efficiencies of photomultiplier tubes (R928P and R1635P).

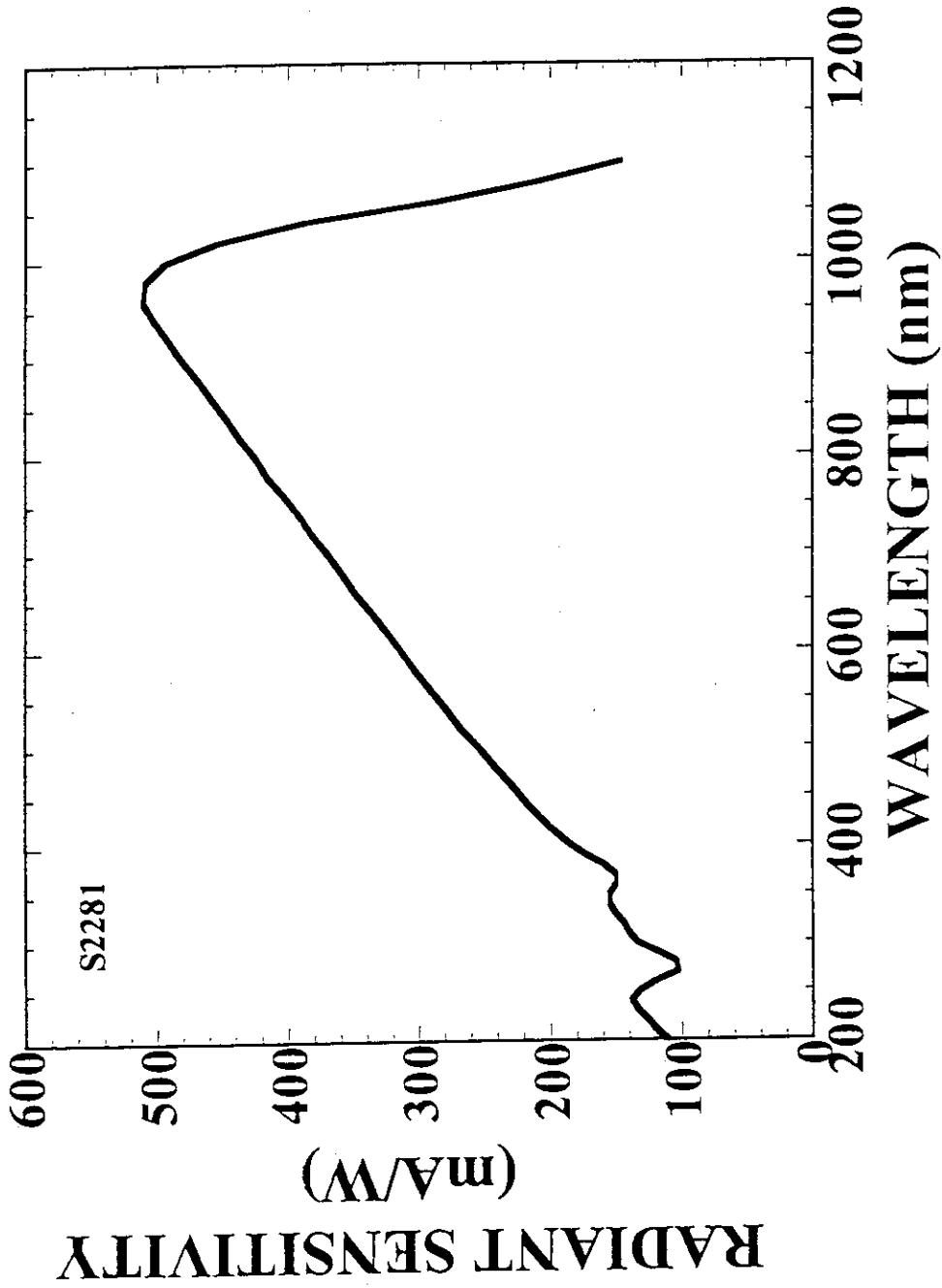


Fig. 3-3-3 Radiant sensitivity of photodiode (S2281).

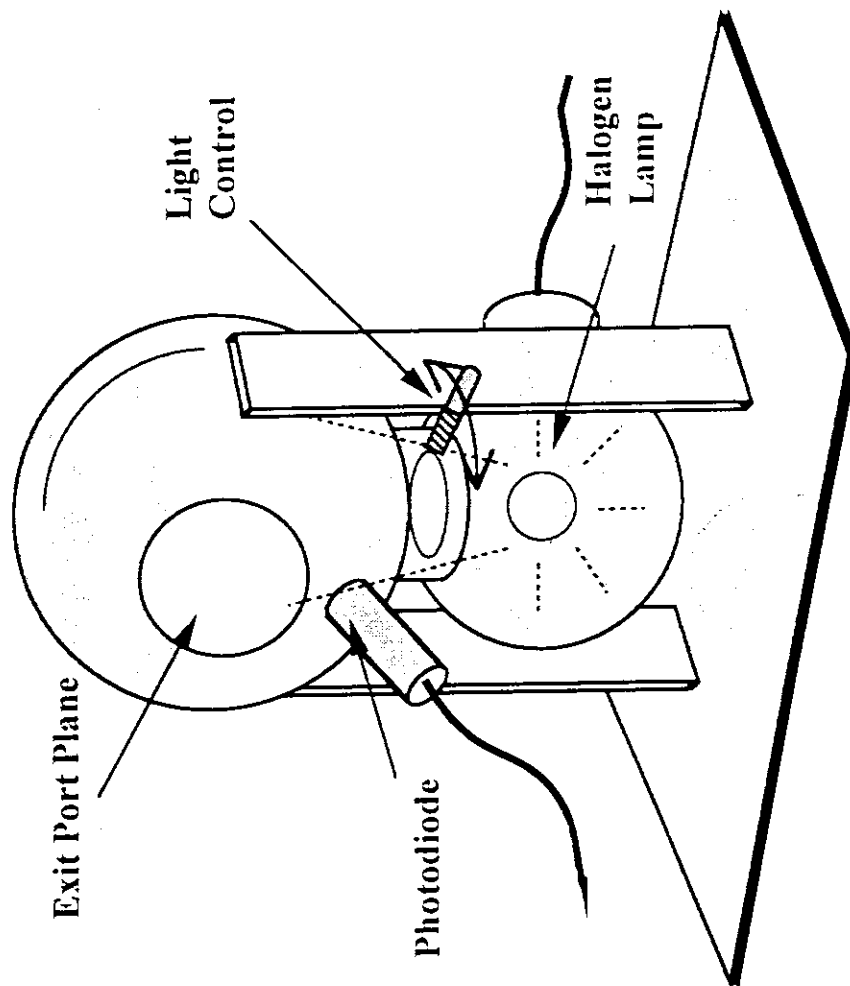


Fig. 3-3-4 Schematic illustration of the uniform light source system (USS-600).

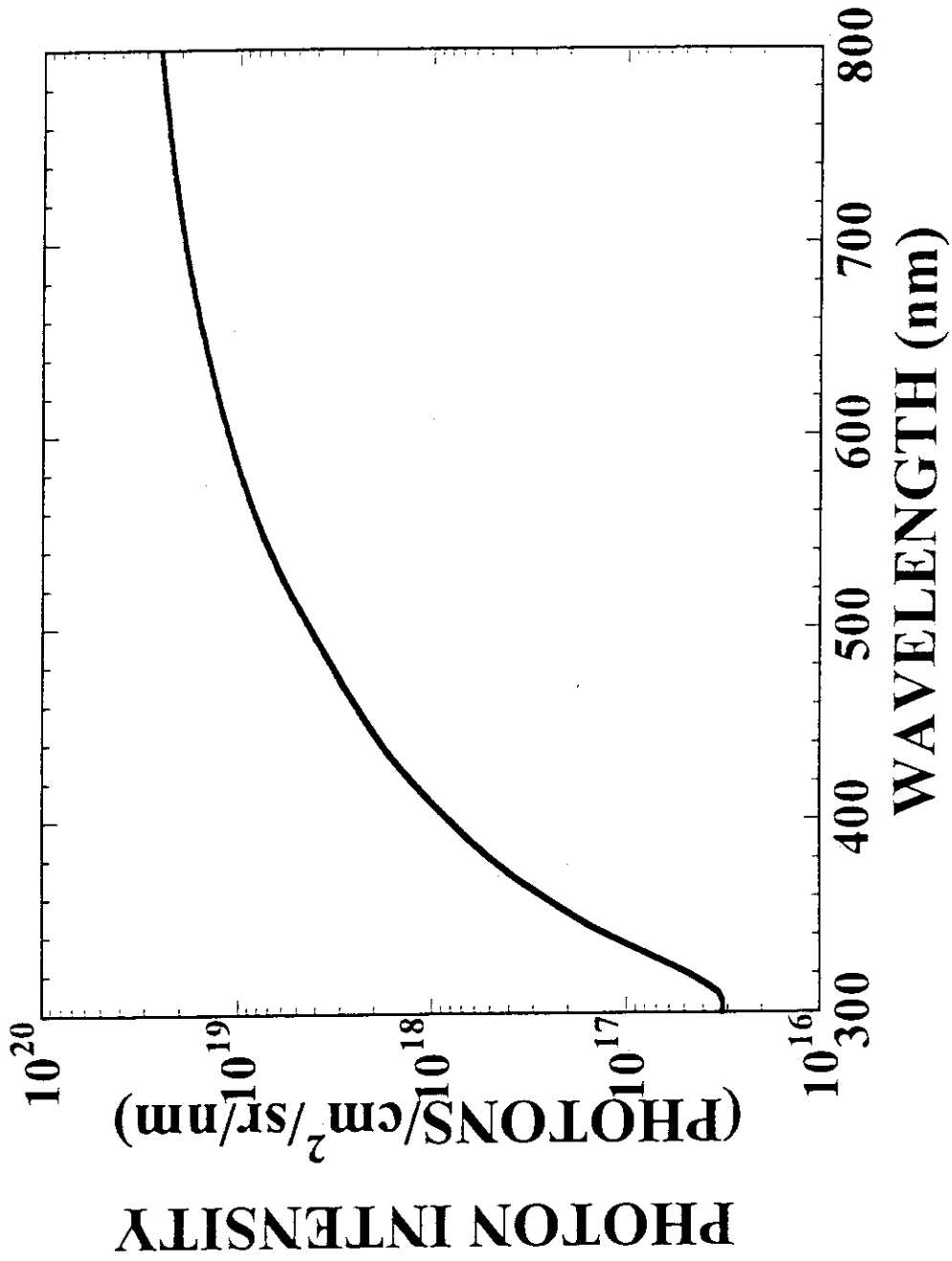


Fig. 3-3-5 Wavelength spectrum of uniform light source.

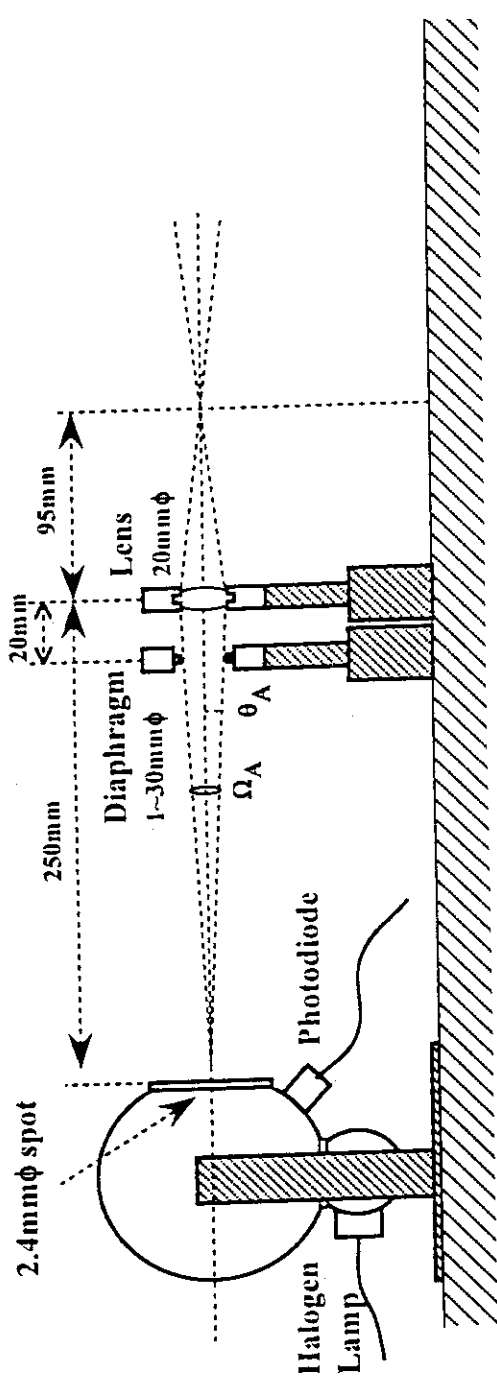


Fig. 3-3-6(a) Layout of the calibration experiment using the uniform light source system, a diaphragm and lens.

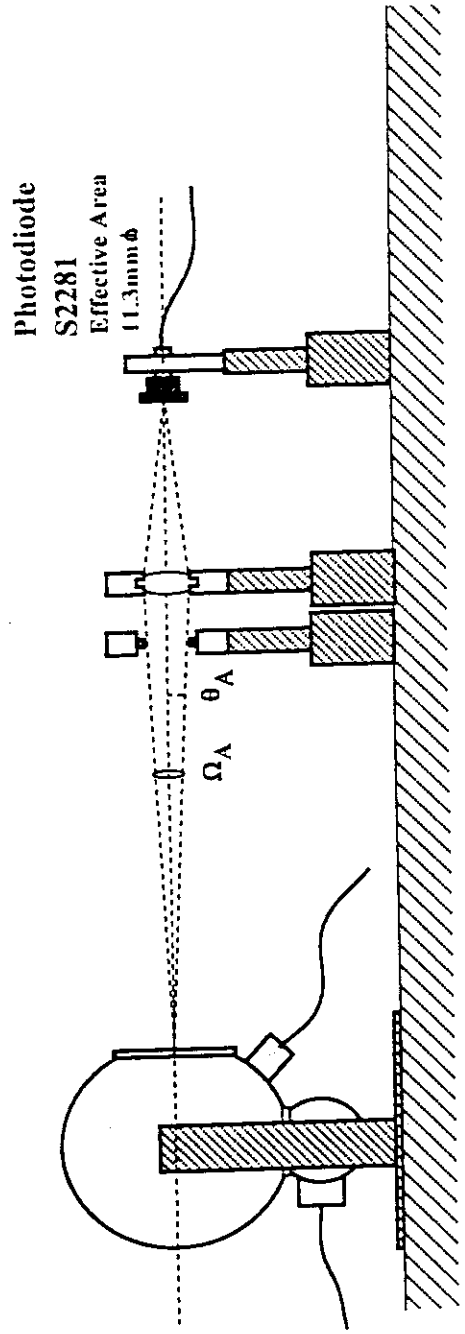


Fig. 3-3-6(b) Schematic drawing of the calibration experiment to measure photons from the uniform light source with a photodiode.

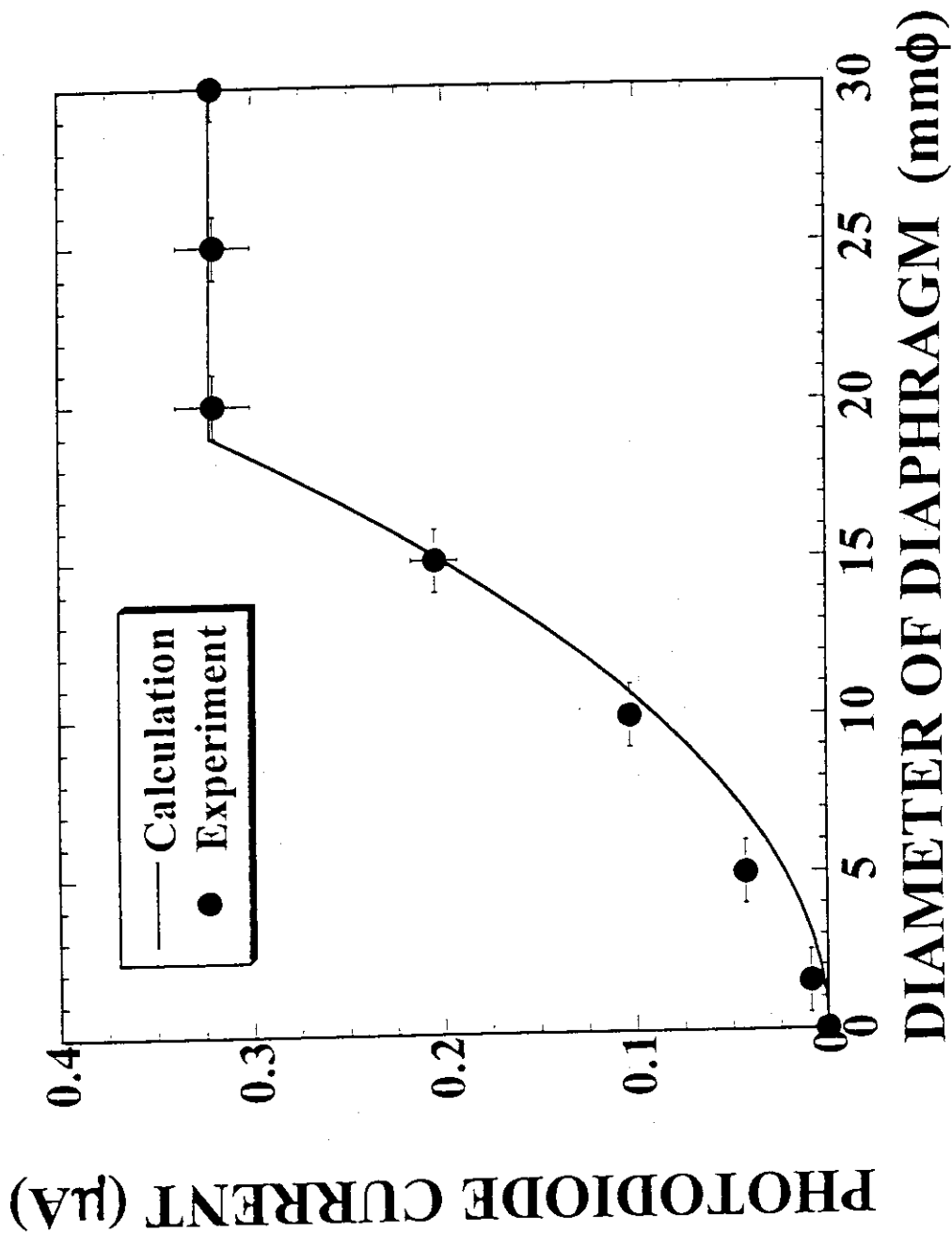


Fig. 3-3-7 Photodiode current as a function of the diameter of diaphragm.

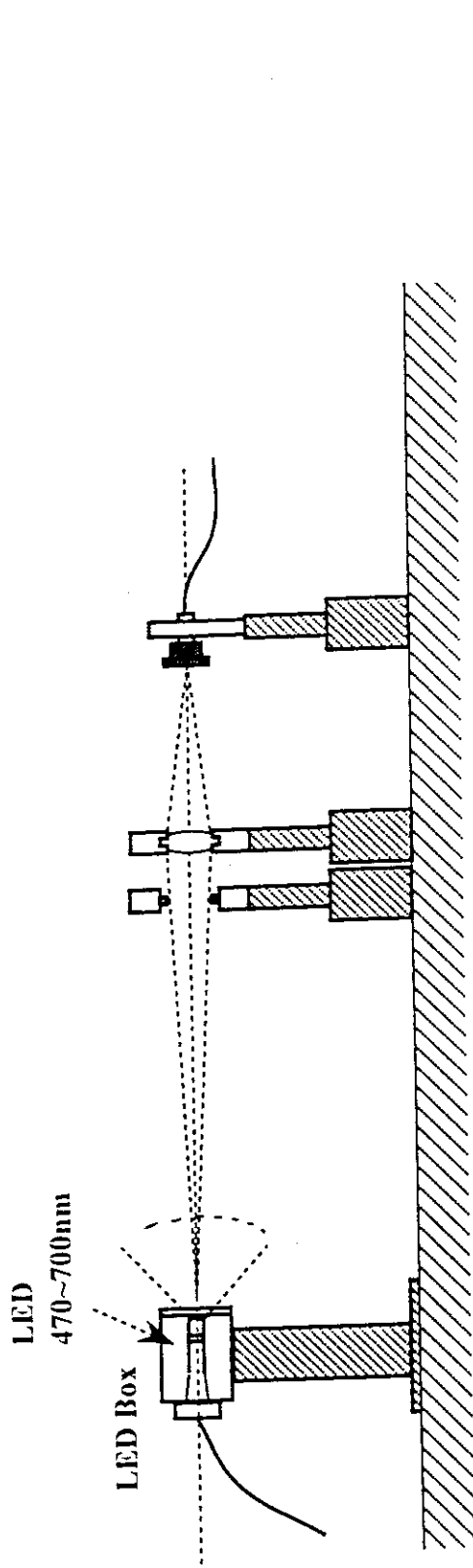


Fig. 3-3-8(a) Schematic drawing of the calibration experiment to measure transmission efficiency of optical fiber (a).

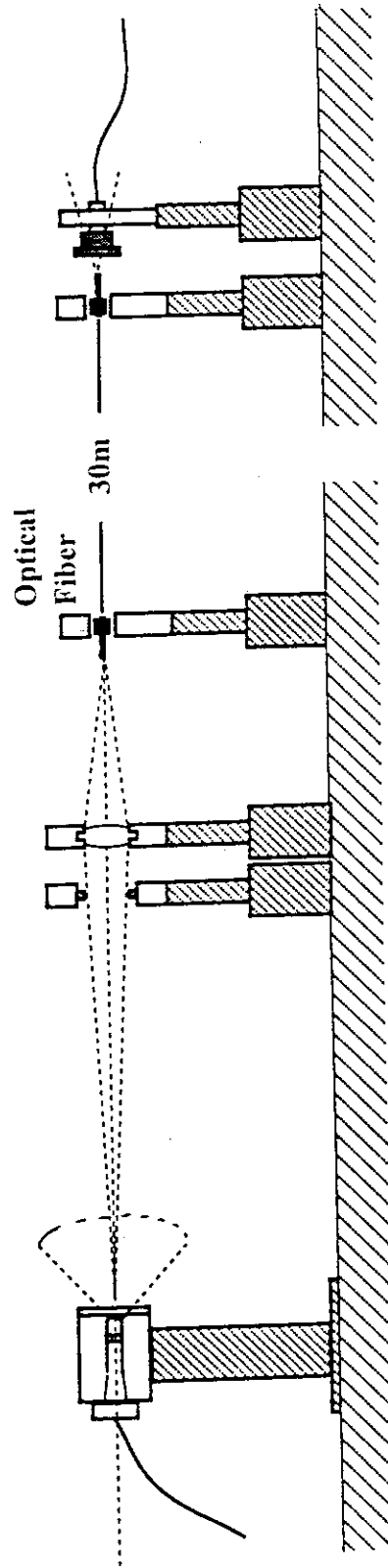


Fig. 3-3-8(b) Schematic drawing of the calibration experiment to measure transmission efficiency of optical fiber (b).

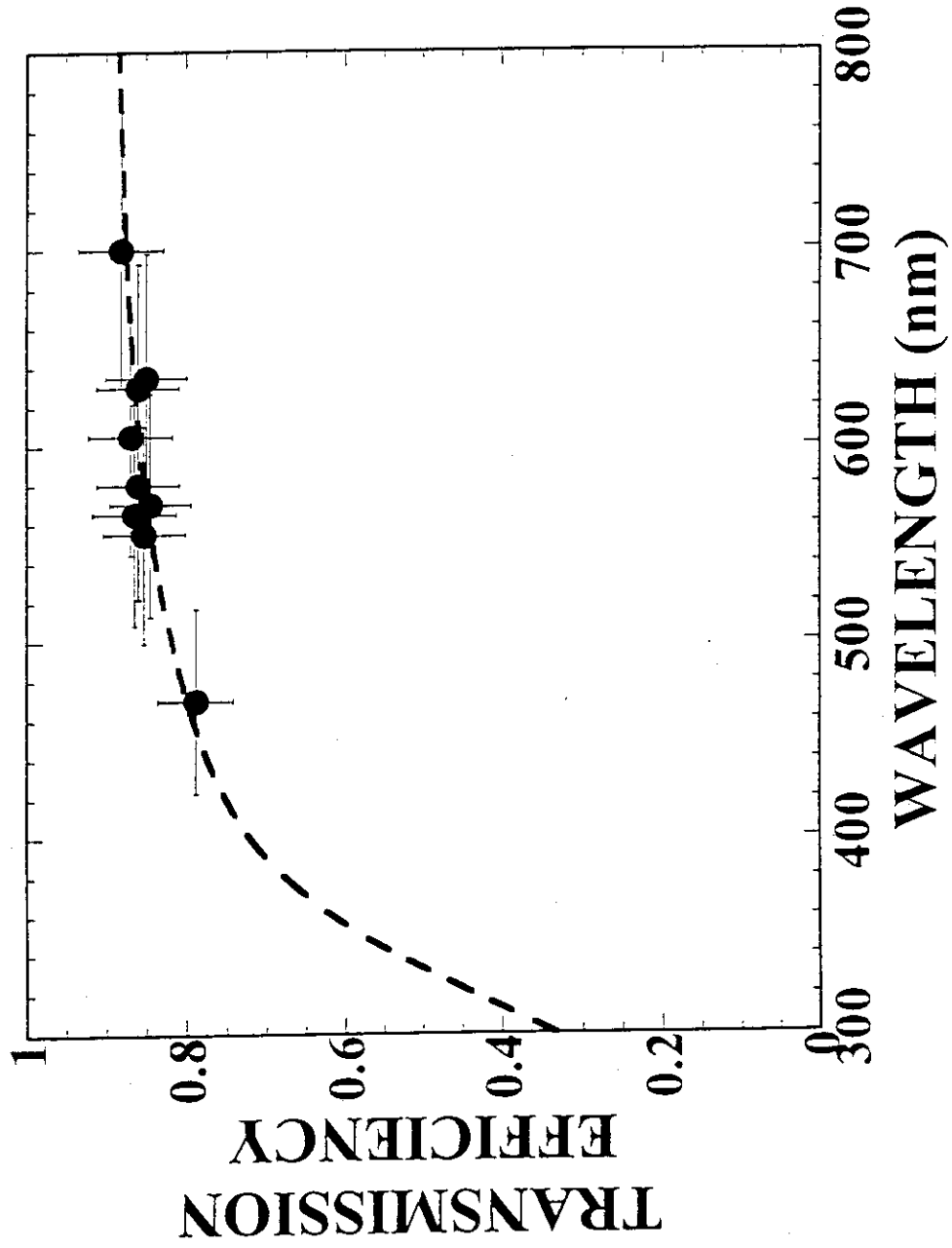


Fig. 3-3-9 Transmission efficiency of optical fiber.

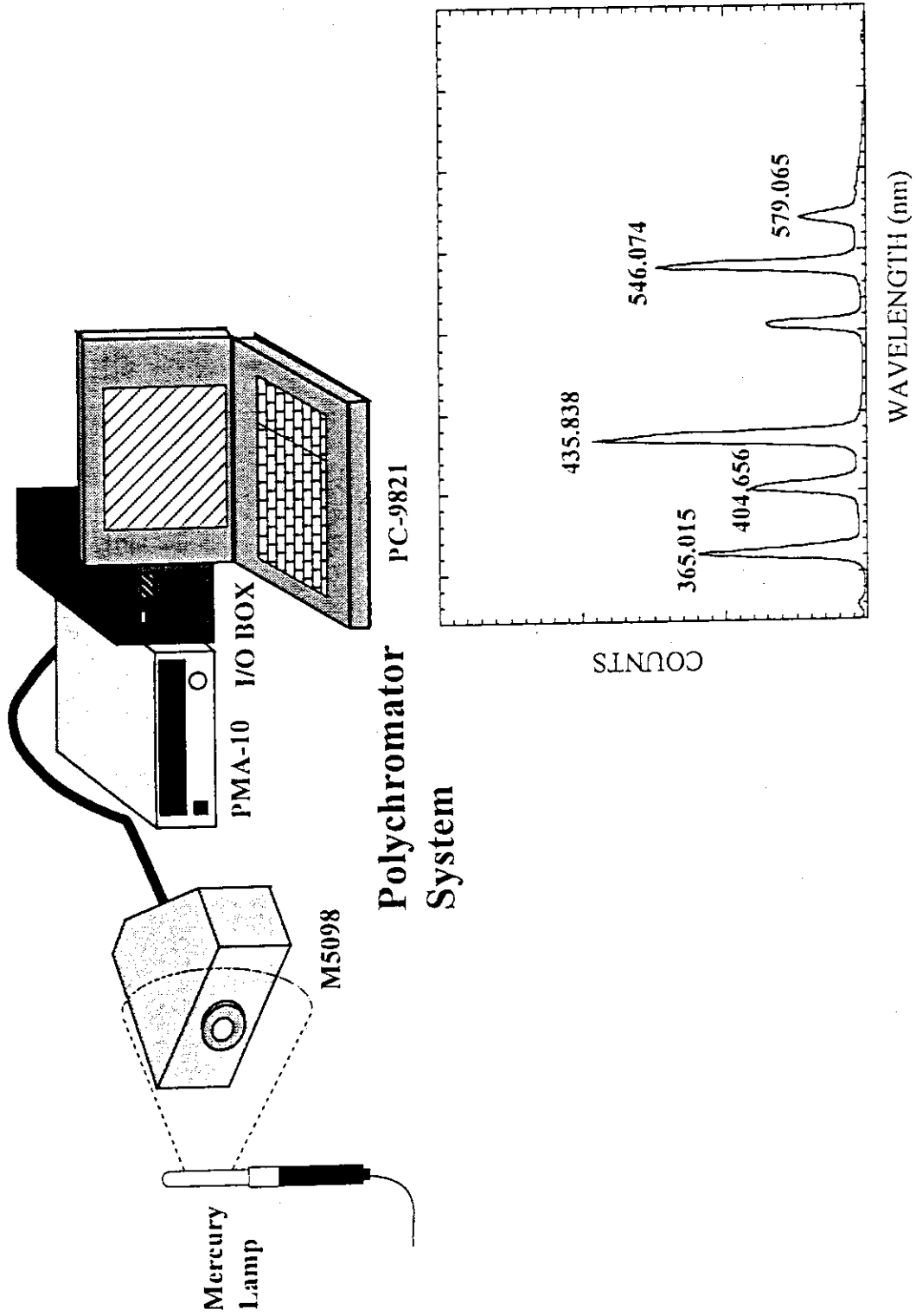


Fig. 3-3-10 Schematic illustration of the experiment for wavelength calibration, and the wavelength spectrum of mercury lamp.

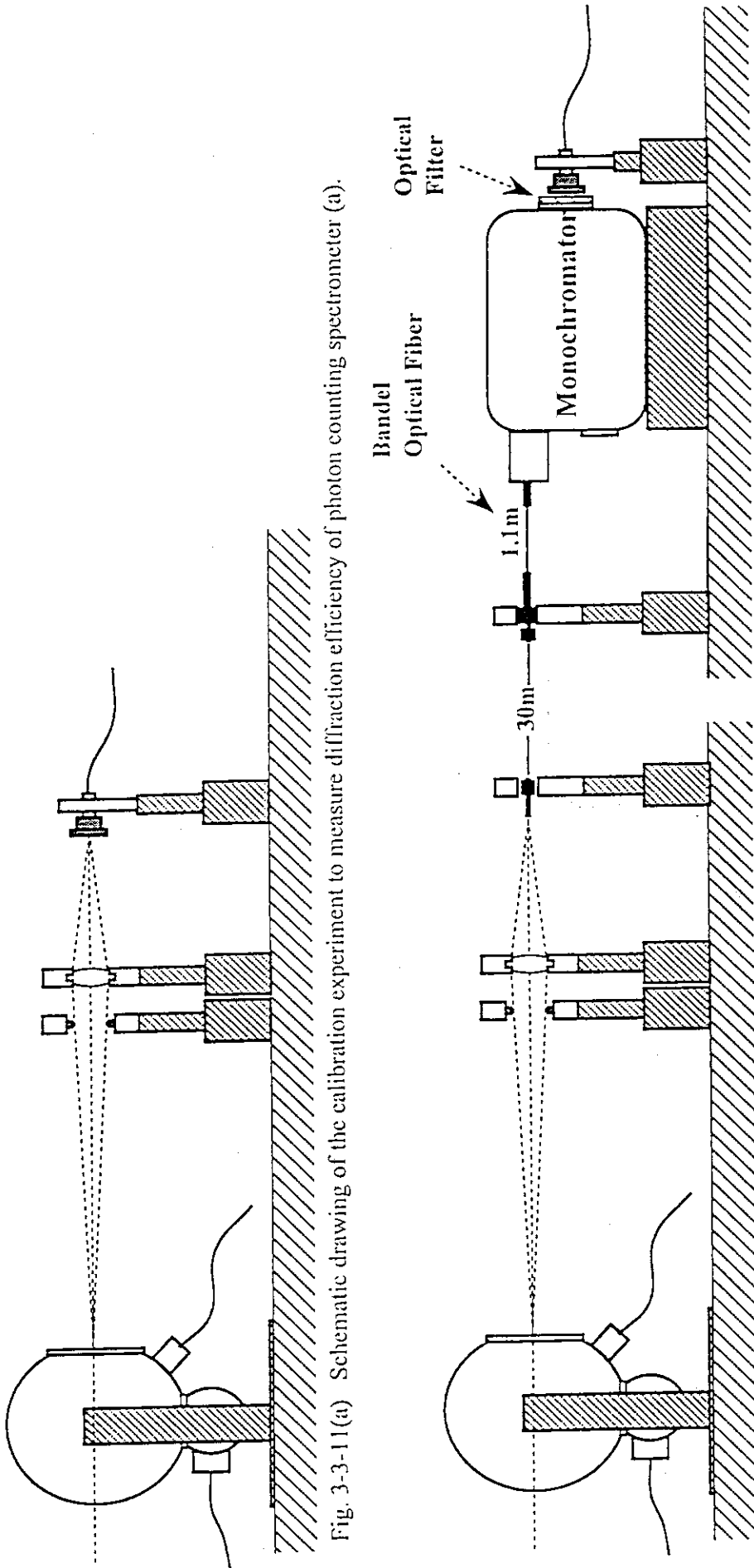


Fig. 3-3-11(a) Schematic drawing of the calibration experiment to measure diffraction efficiency of photon counting spectrometer (a).

Fig. 3-3-11(b) Schematic drawing of the calibration experiment to measure diffraction efficiency of photon counting spectrometer (b).

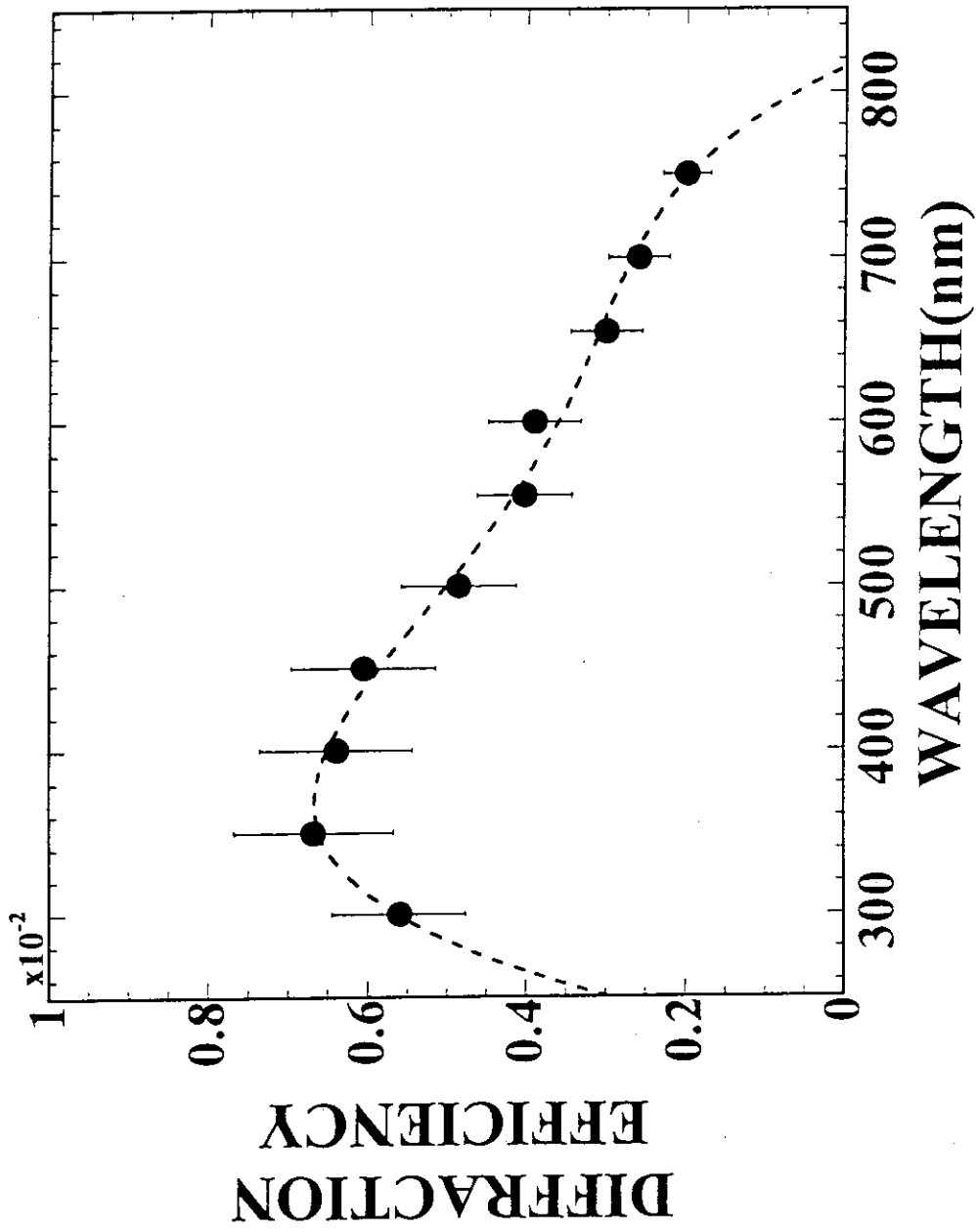


Fig. 3-3-12 Diffraction efficiency of photon counting spectrometer.

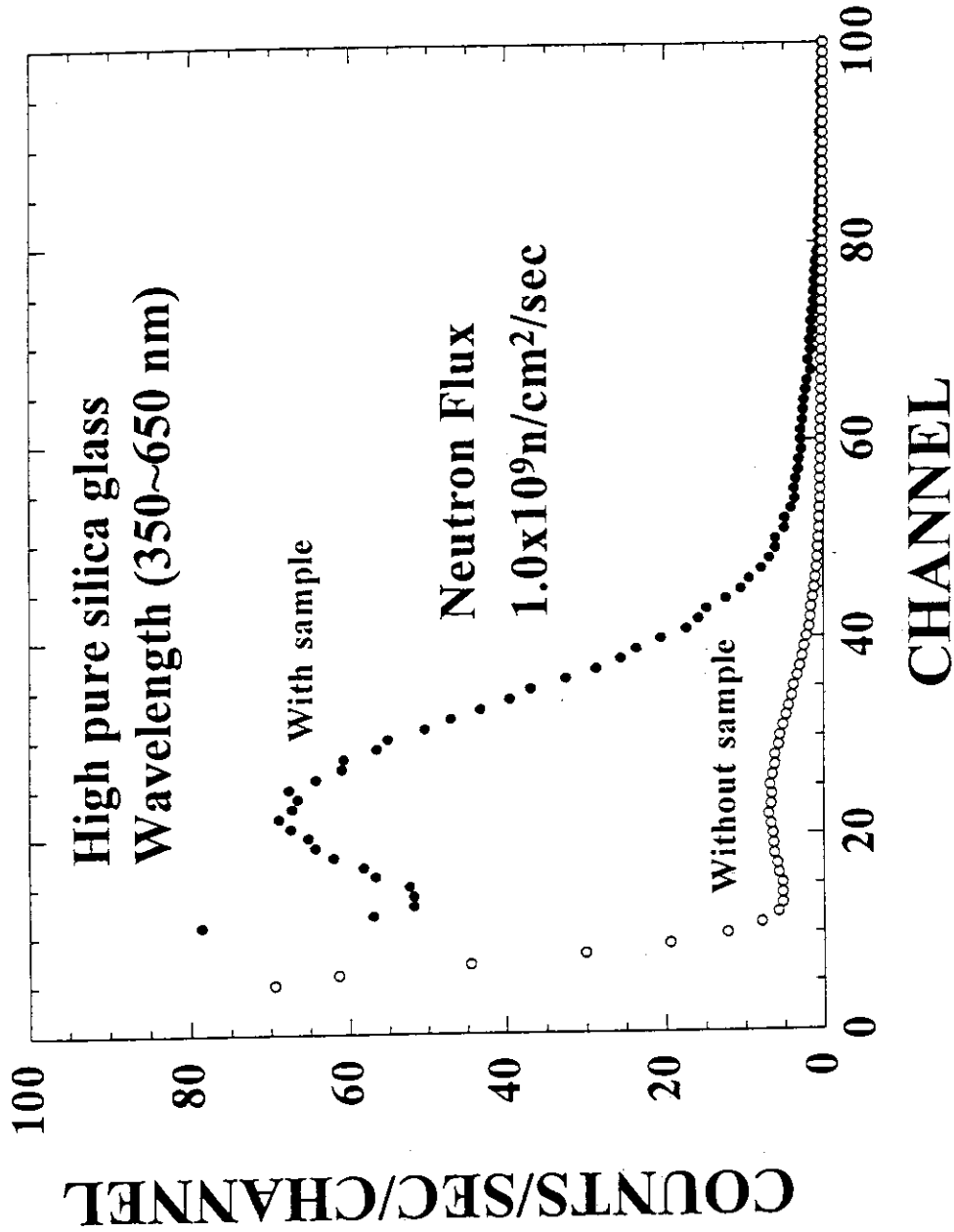


Fig. 3-3-13 Photon counting rate measured with photomultiplier tube.
(measured with integrating photon counting system with a R1635P PMT.)

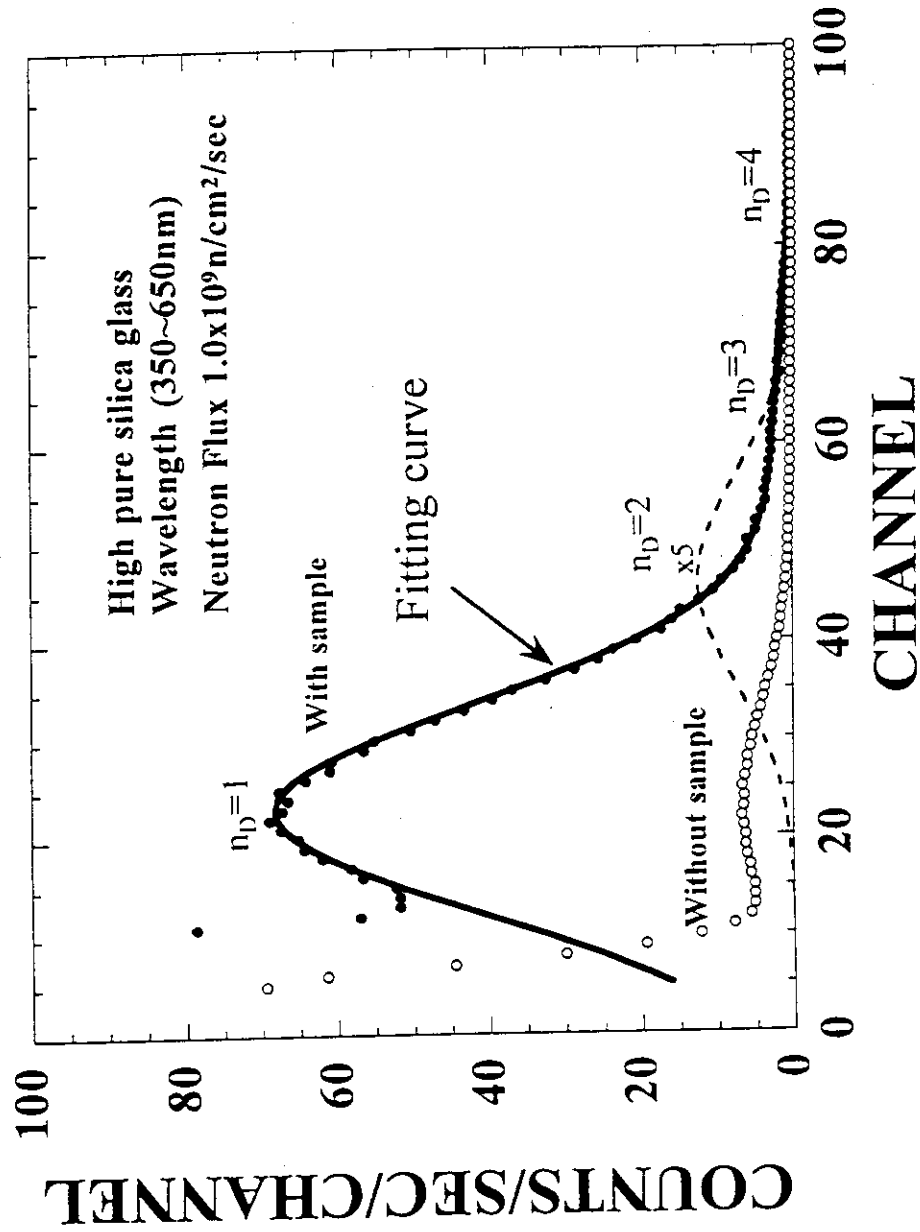


Fig. 3-3-14 Fitting curve for photon counting shown in Fig. 3-3-13.

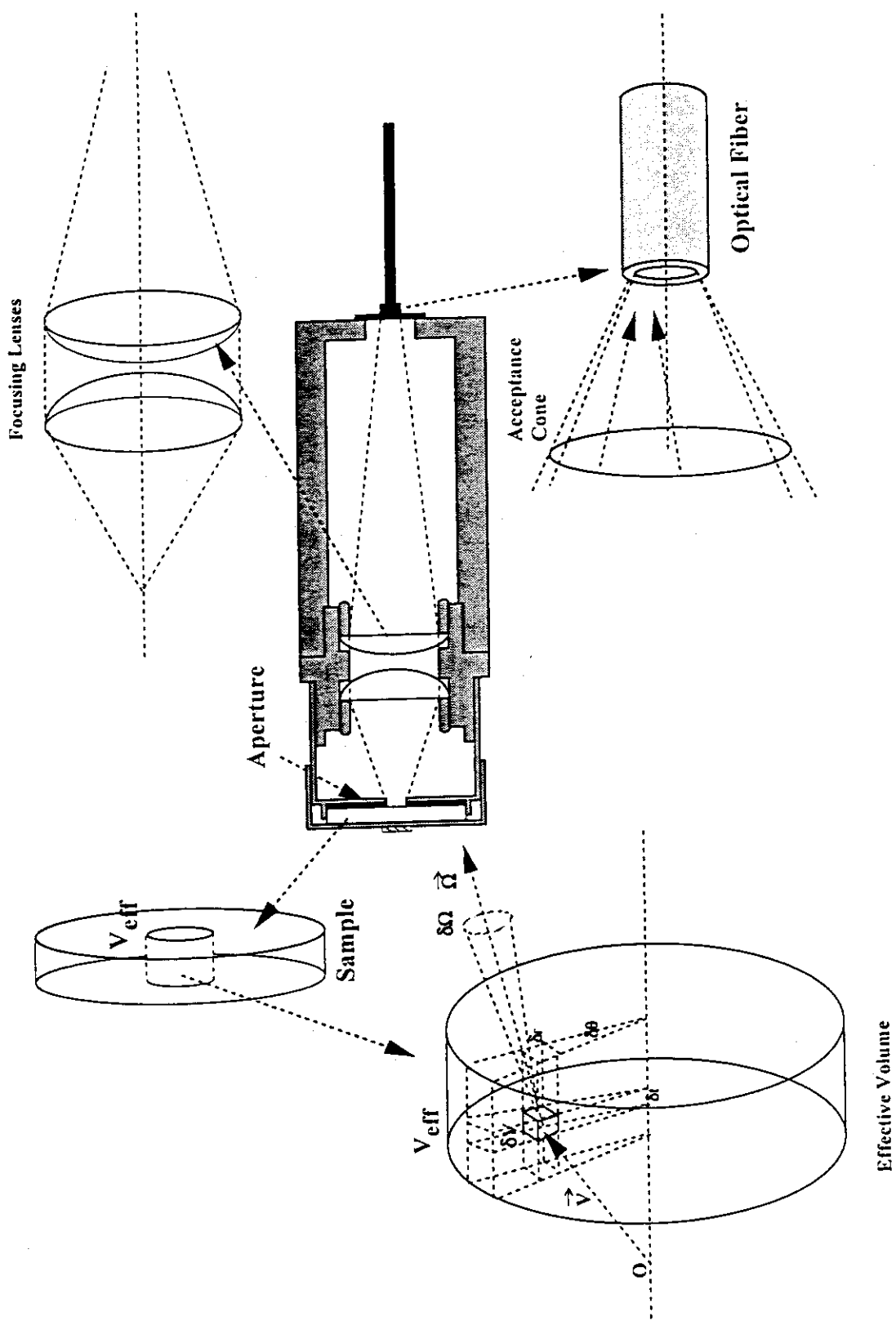


Fig. 3-3-15 Schematic diagram of calculation for geometrical efficiency of focusing lens system.

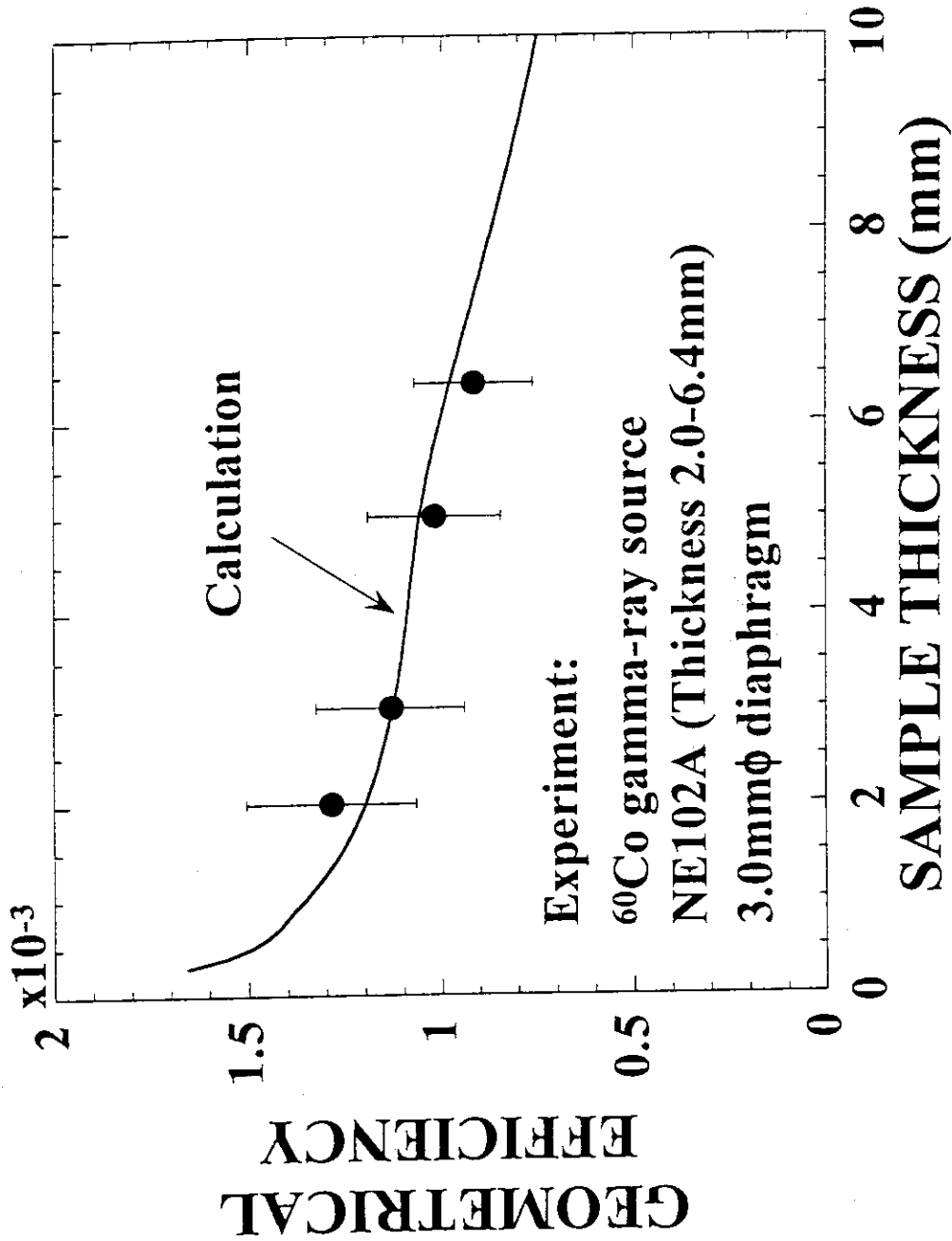


Fig. 3-3-16 Comparison of experimental and calculated geometrical efficiencies.

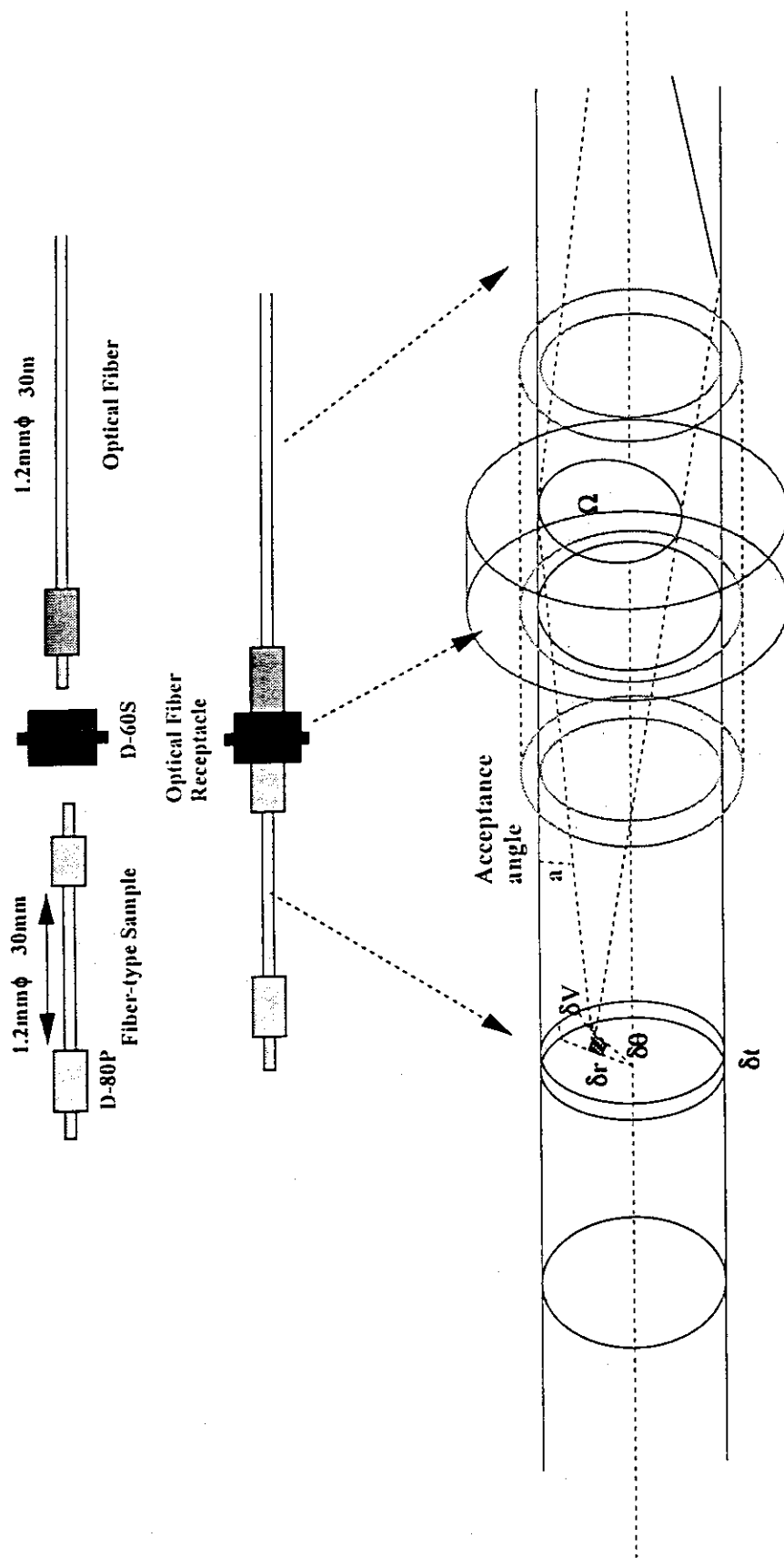


Fig. 3-3-17 Schematic illustration of a fiber type sample, an optical fiber and a receptacle, and schematic diagram of calculation for geometrical efficiency of fiber type sample.

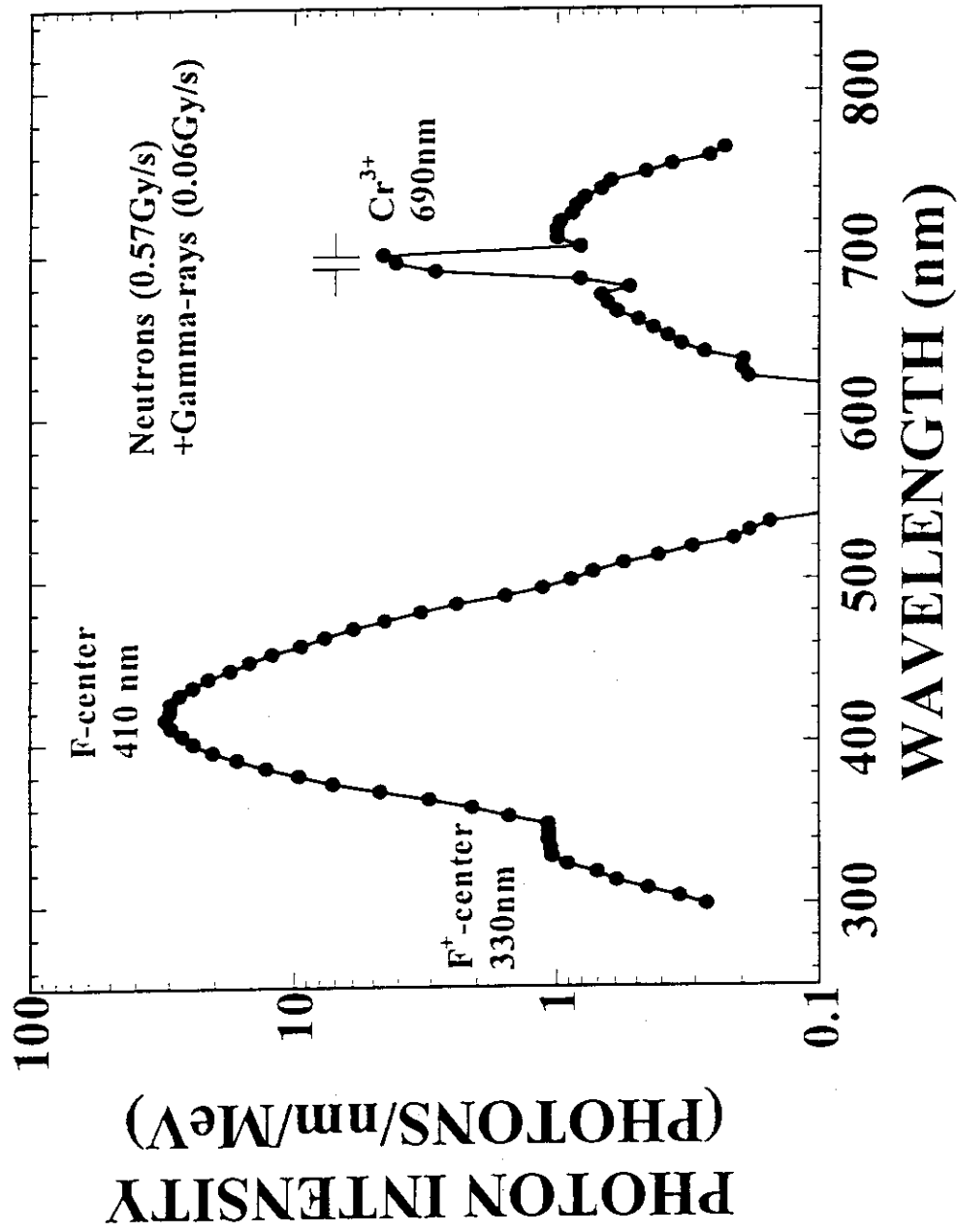


Fig. 4-1-1 Wavelength spectrum of photons emitted from sapphire (sapphire-1) during 14 MeV neutron irradiation. (measured with photon counting spectrometer with R928P)

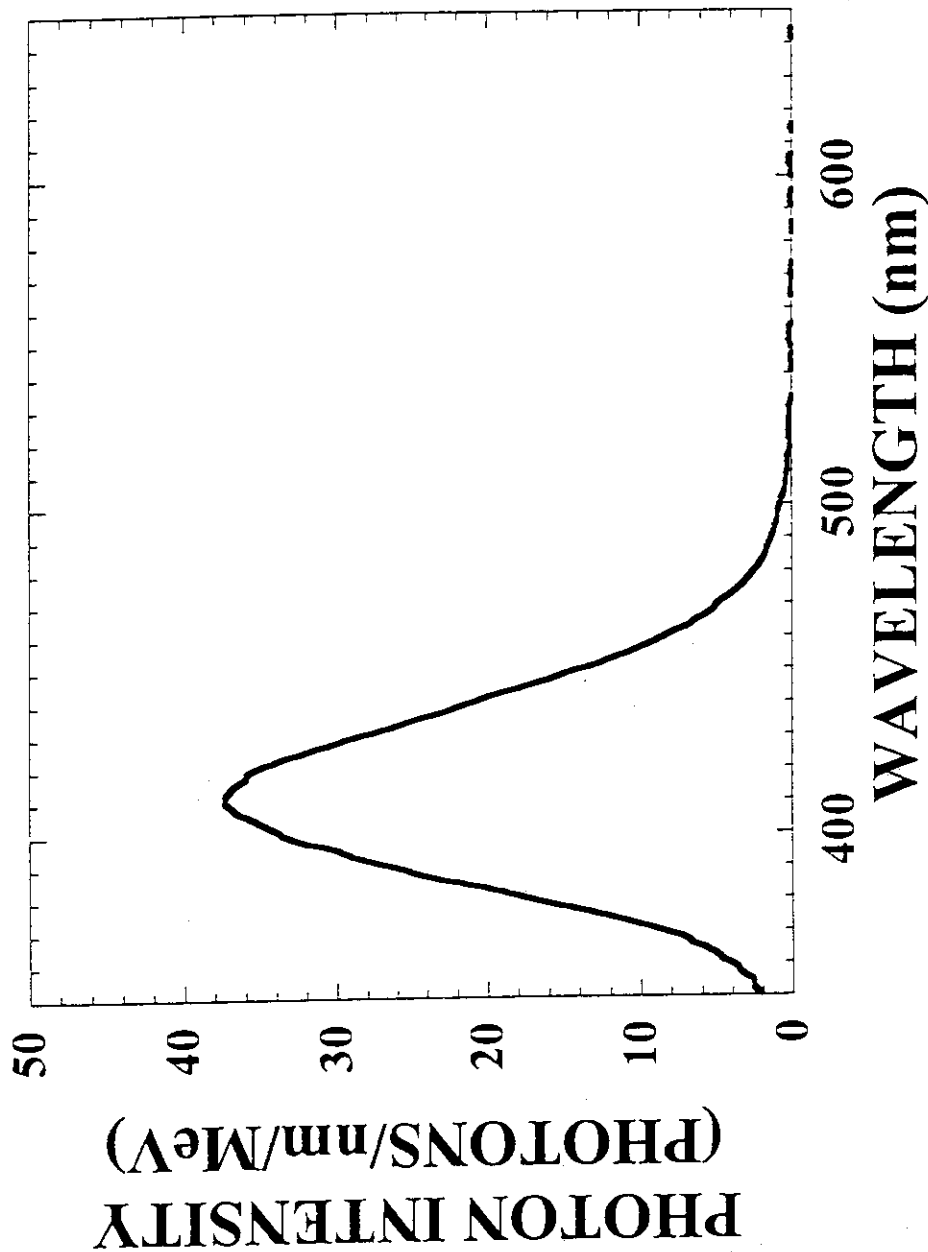


Fig. 4-1-2 Wavelength spectrum of photons emitted from sapphire (sapphire-2) during 14 MeV neutron irradiation. (measured with polychromator system M5098)

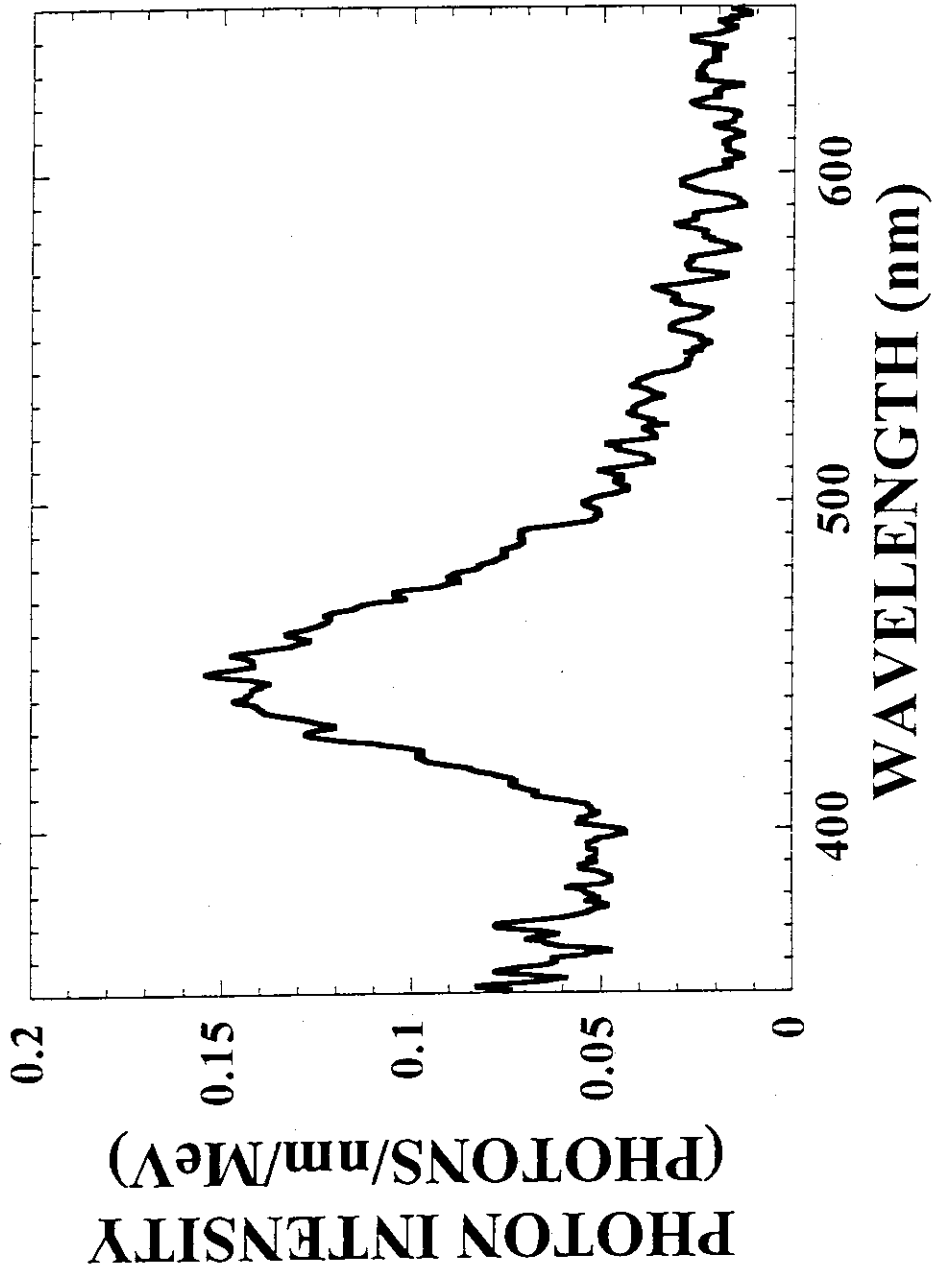


Fig. 4-1-3 Wavelength spectrum of photons emitted from high-purity silica glass during 14 MeV neutron irradiation. (measured with polychromator system M5098)

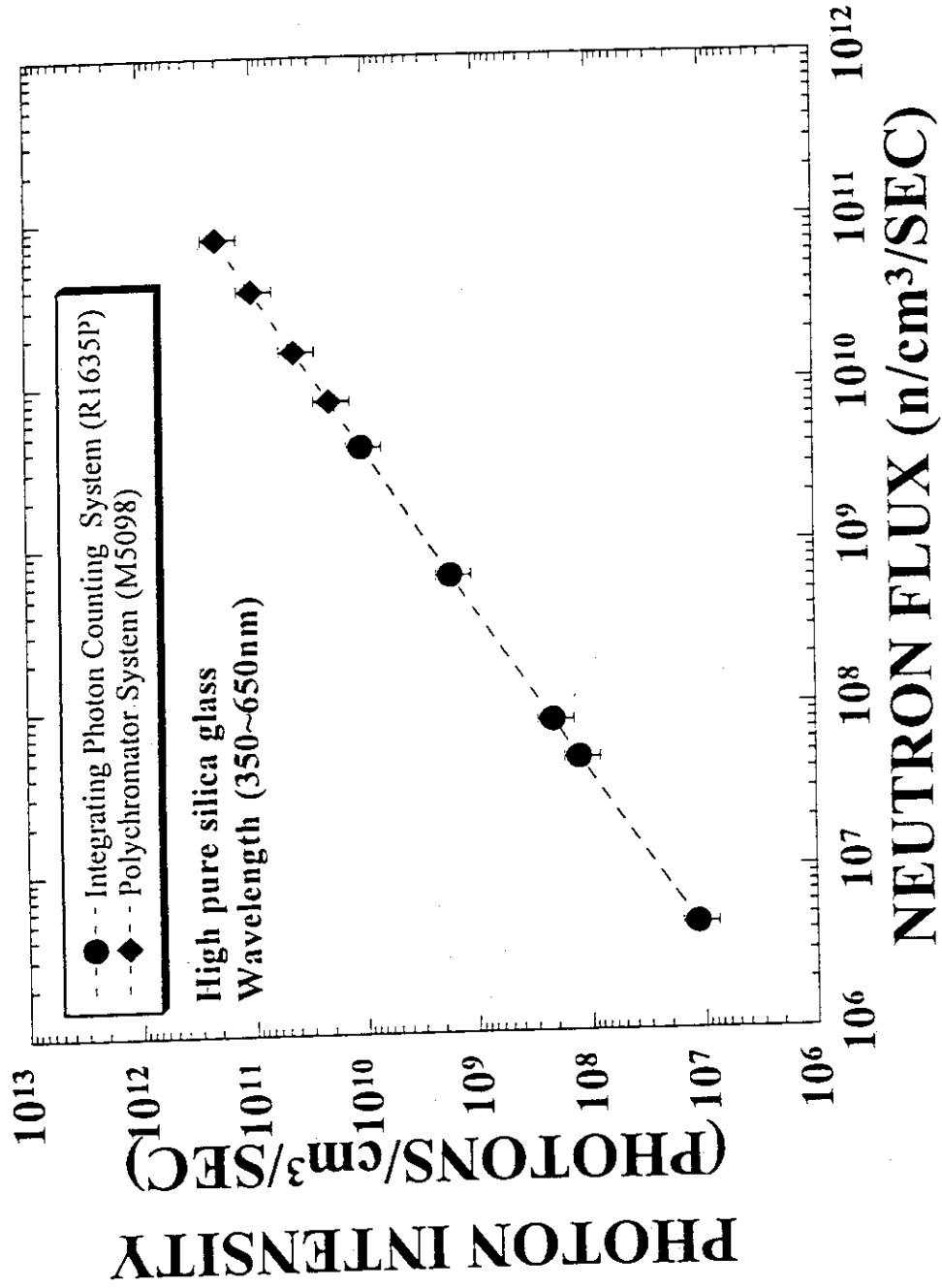


Fig. 4-1-4 Relation between photon emission intensity and D-T neutron flux.

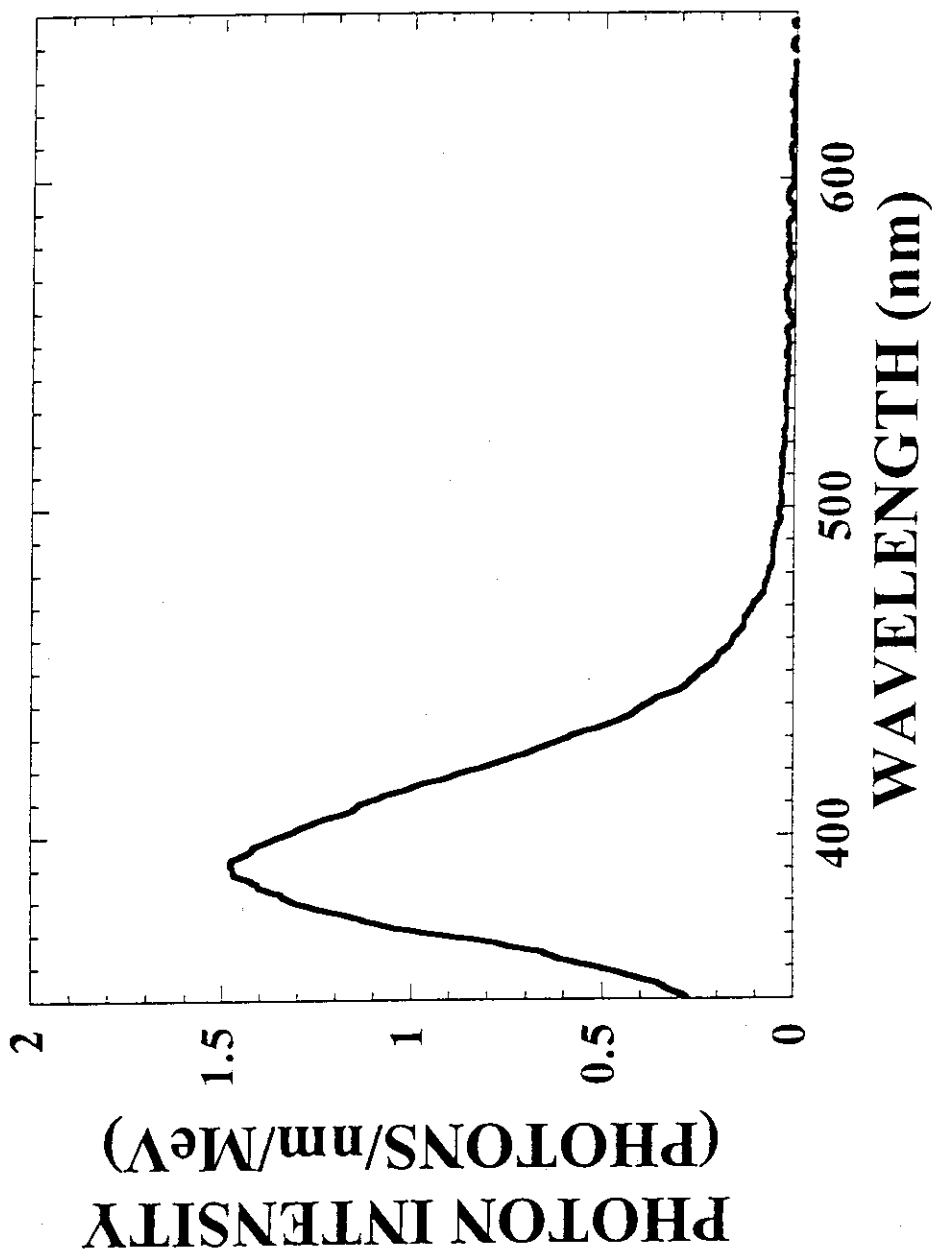


Fig. 4-1-5 Wavelength spectrum of photons emitted from Ge doped silica glass during 14 MeV neutron irradiation. (measured with polychromator system M5098)

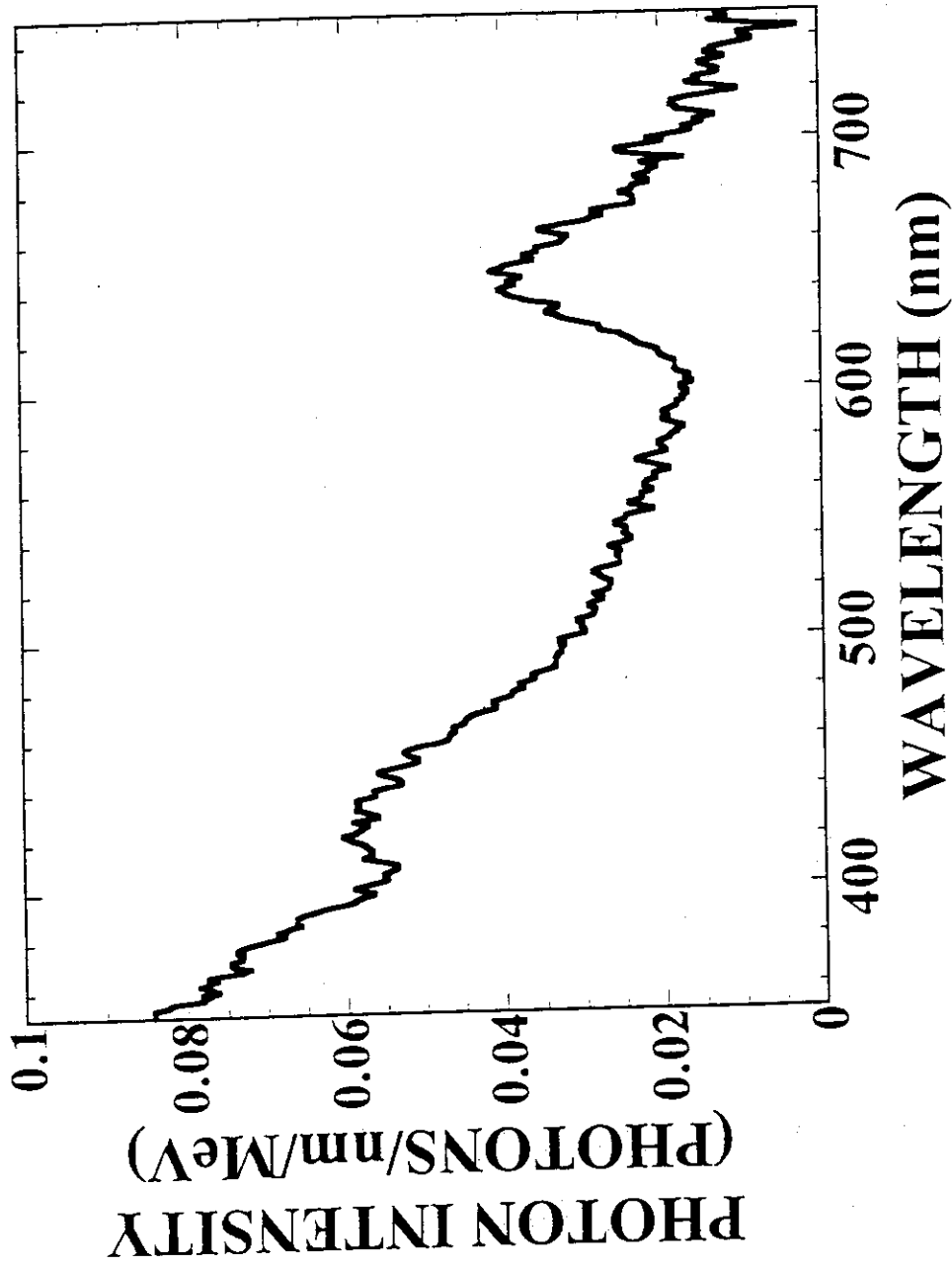


Fig. 4-1-6 Wavelength spectrum of photons emitted from quartz during 14 MeV neutron irradiation. (measured with polychromator system M5098)

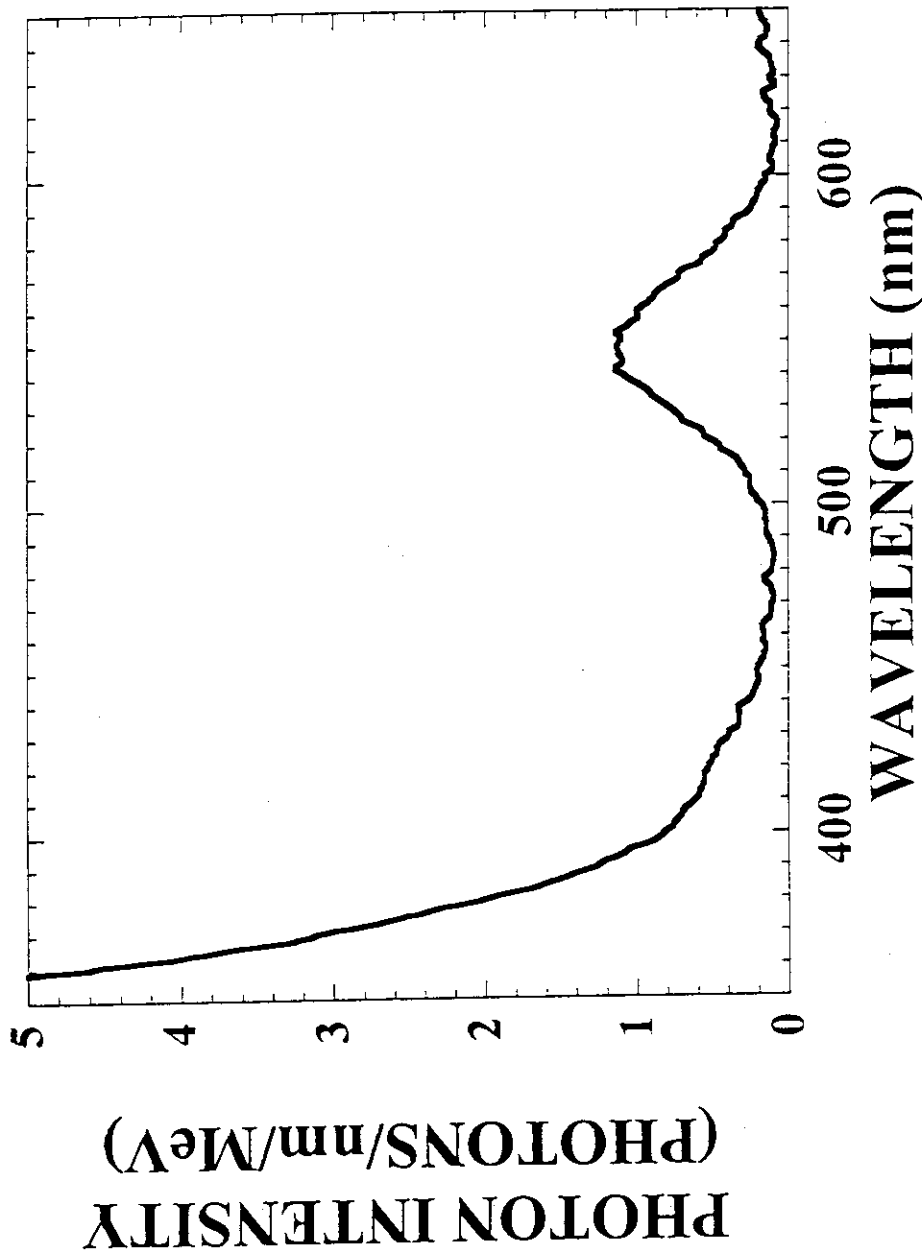


Fig. 4-1-7 Wavelength spectrum of photons emitted from calcium fluoride during 14 MeV neutron irradiation. (measured with polychromator system M5098)

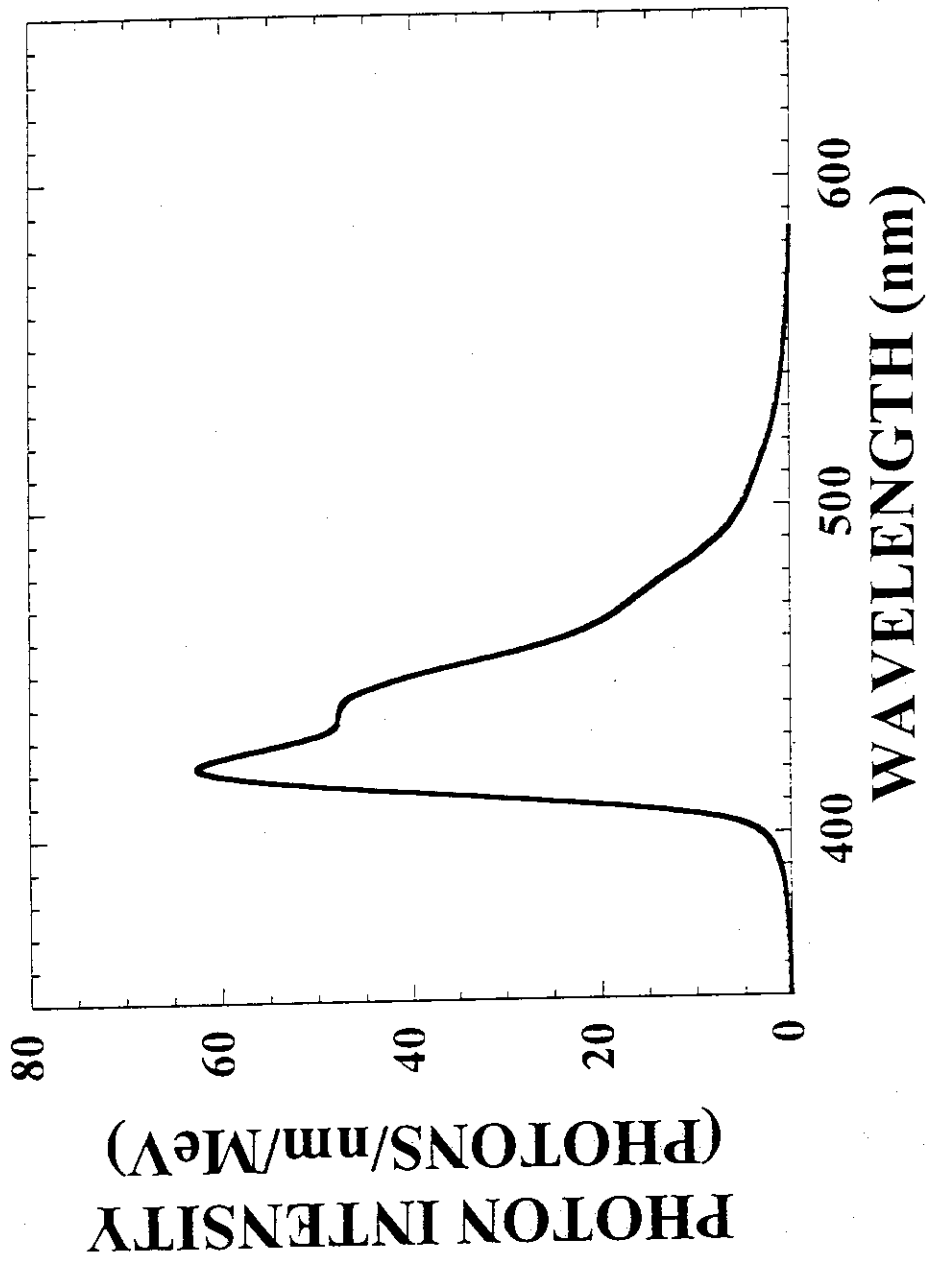


Fig. 4-1-8 Wavelength spectrum of photons emitted from plastic scintillator (NE102A) during 14 MeV neutron irradiation. (measured with polychromator system M5098)

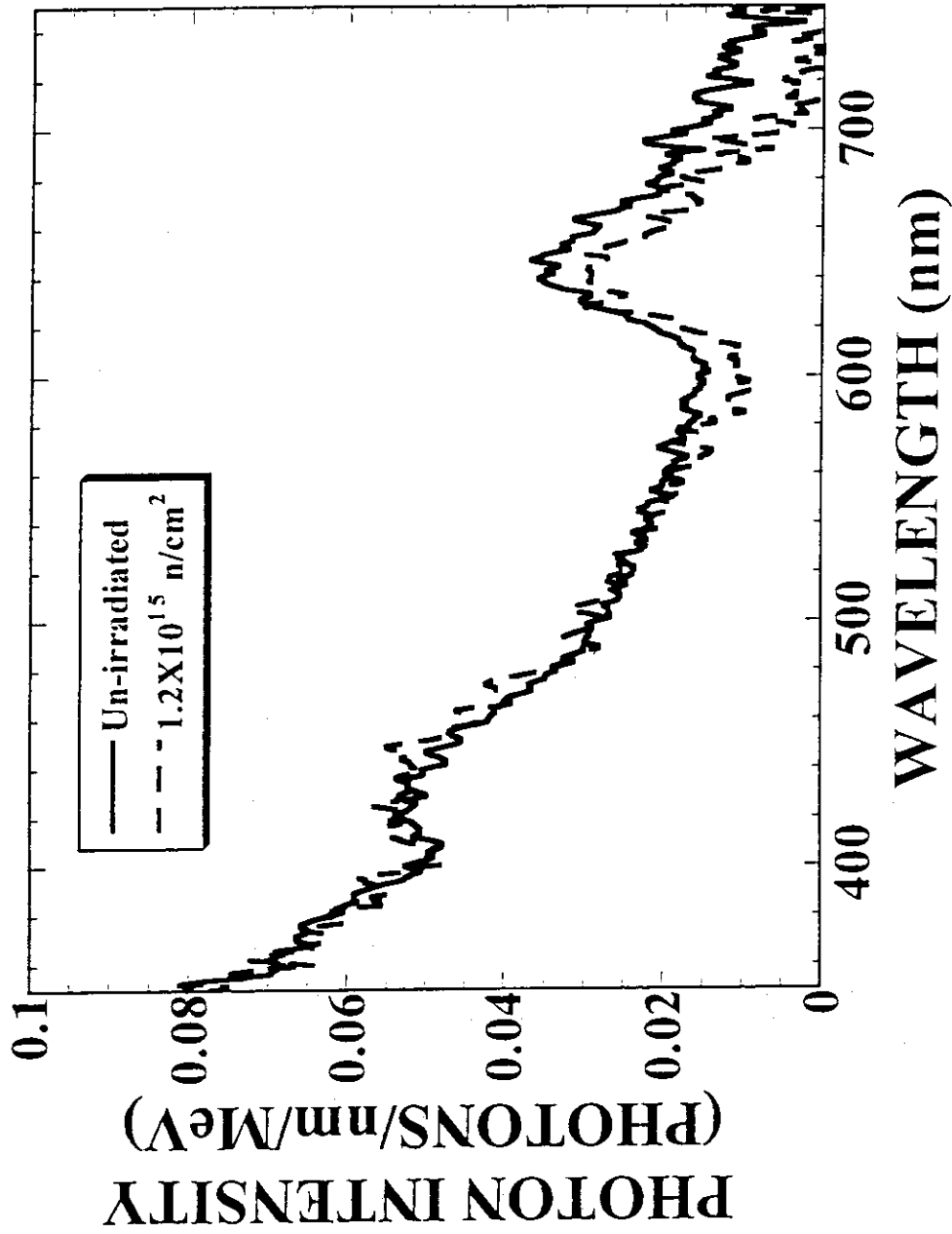


Fig. 4-1-9 Comparison between wavelength spectrum of photons emitted from un-irradiated quartz and that from irradiated quartz. (measured with polychromator system M5098)

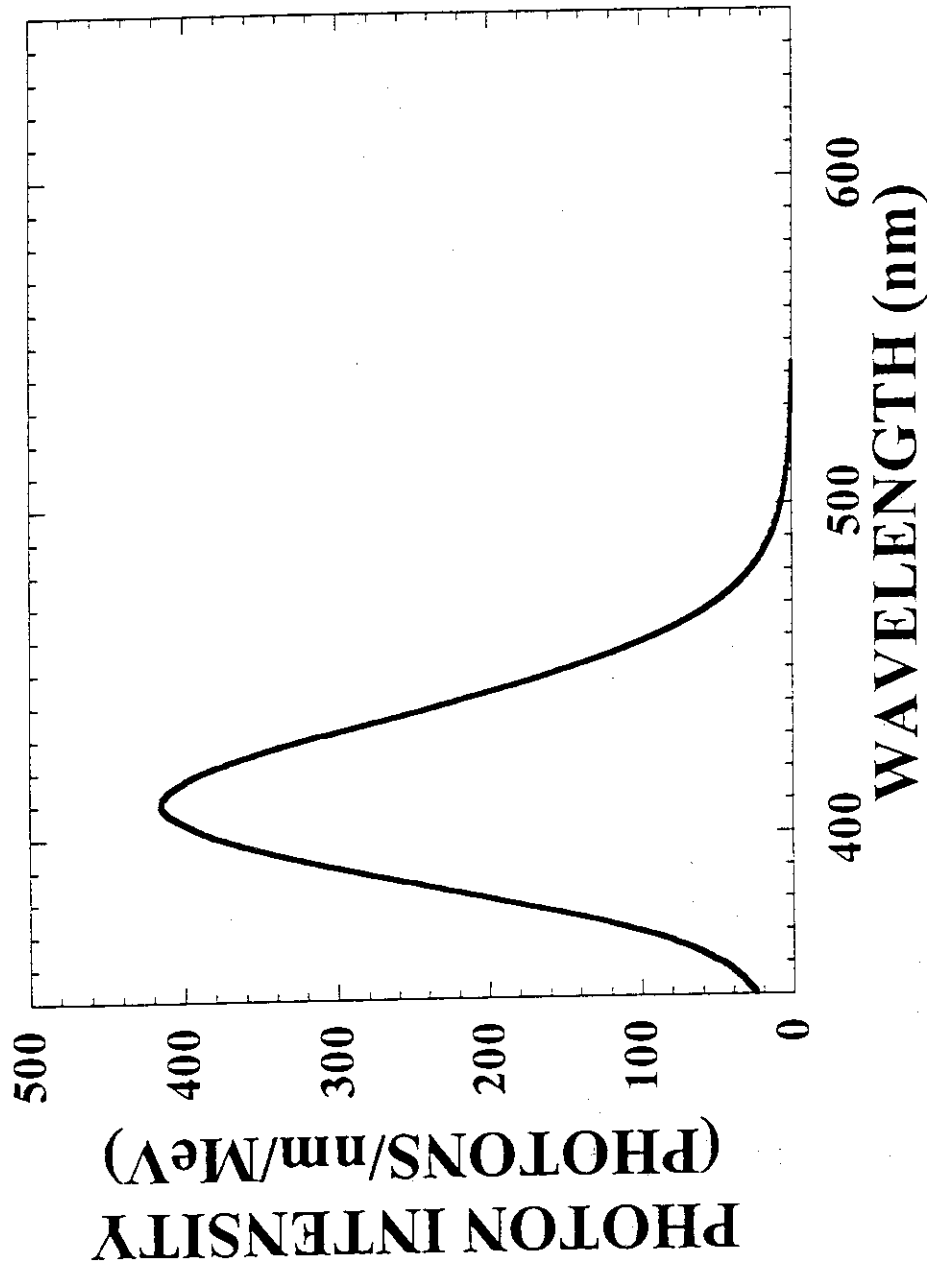


Fig. 4-1-10 Wavelength spectrum of photons emitted from sapphire (sapphire-2) during ^{60}Co gamma-ray irradiation. (measured with polychromator system M5098)

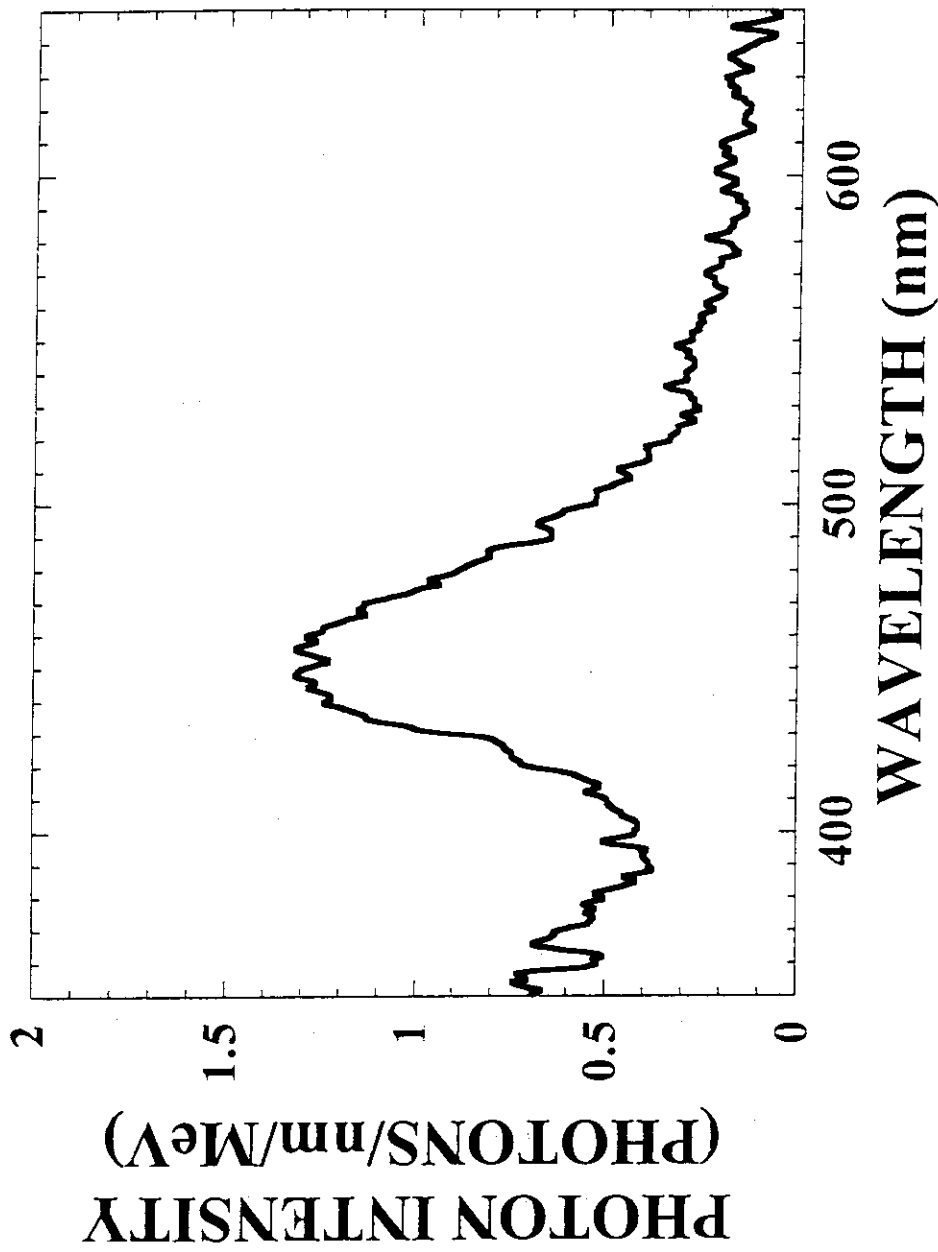


Fig. 4-1-11 Wavelength spectrum of photons emitted from high-purity silica glass during ^{60}Co gamma-ray irradiation. (measured with polychromator system M5098)

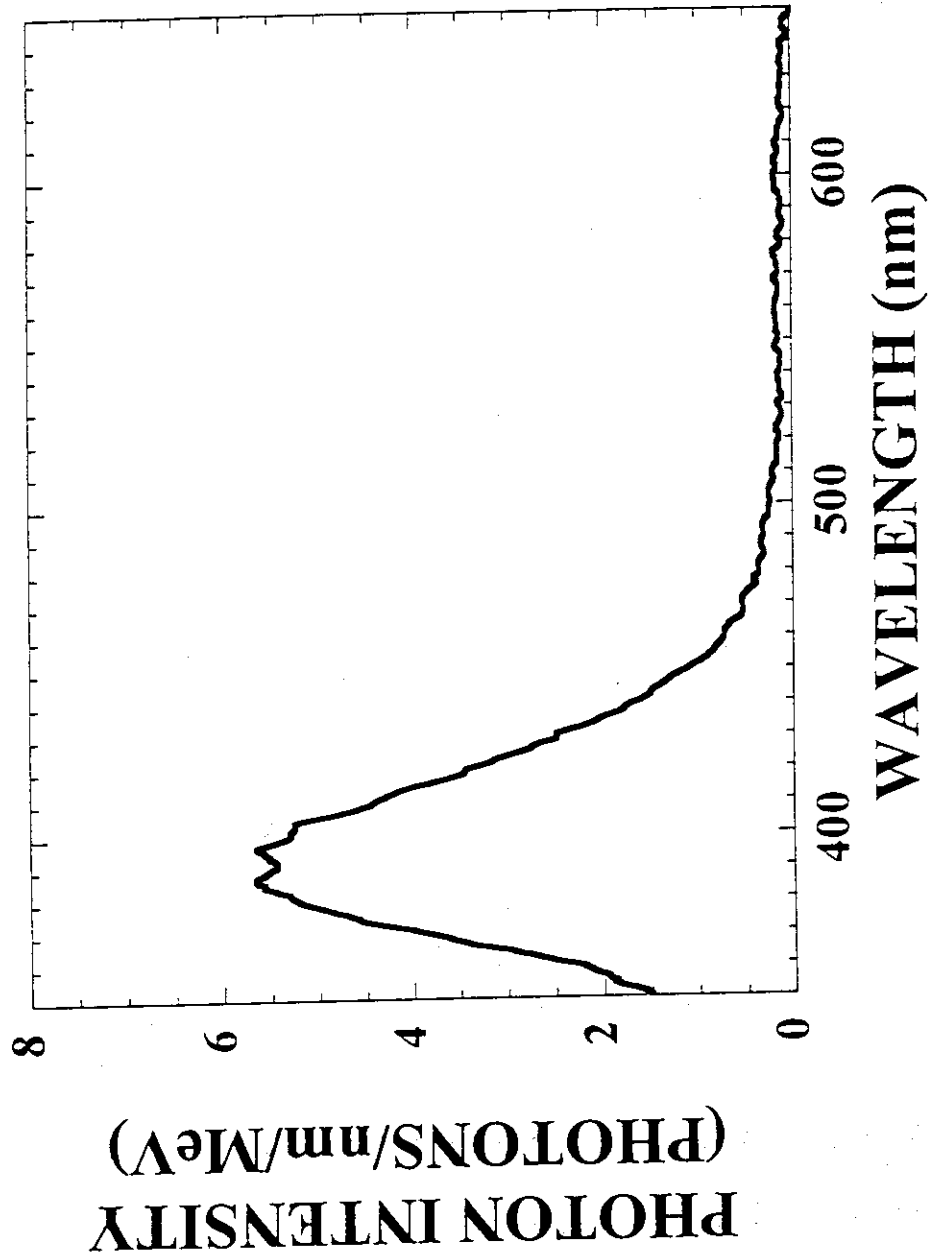


Fig. 4-1-12 Wavelength spectrum of photons emitted from Ge doped silica glass during ^{60}Co gamma-ray irradiation. (measured with polychromator system M5098)

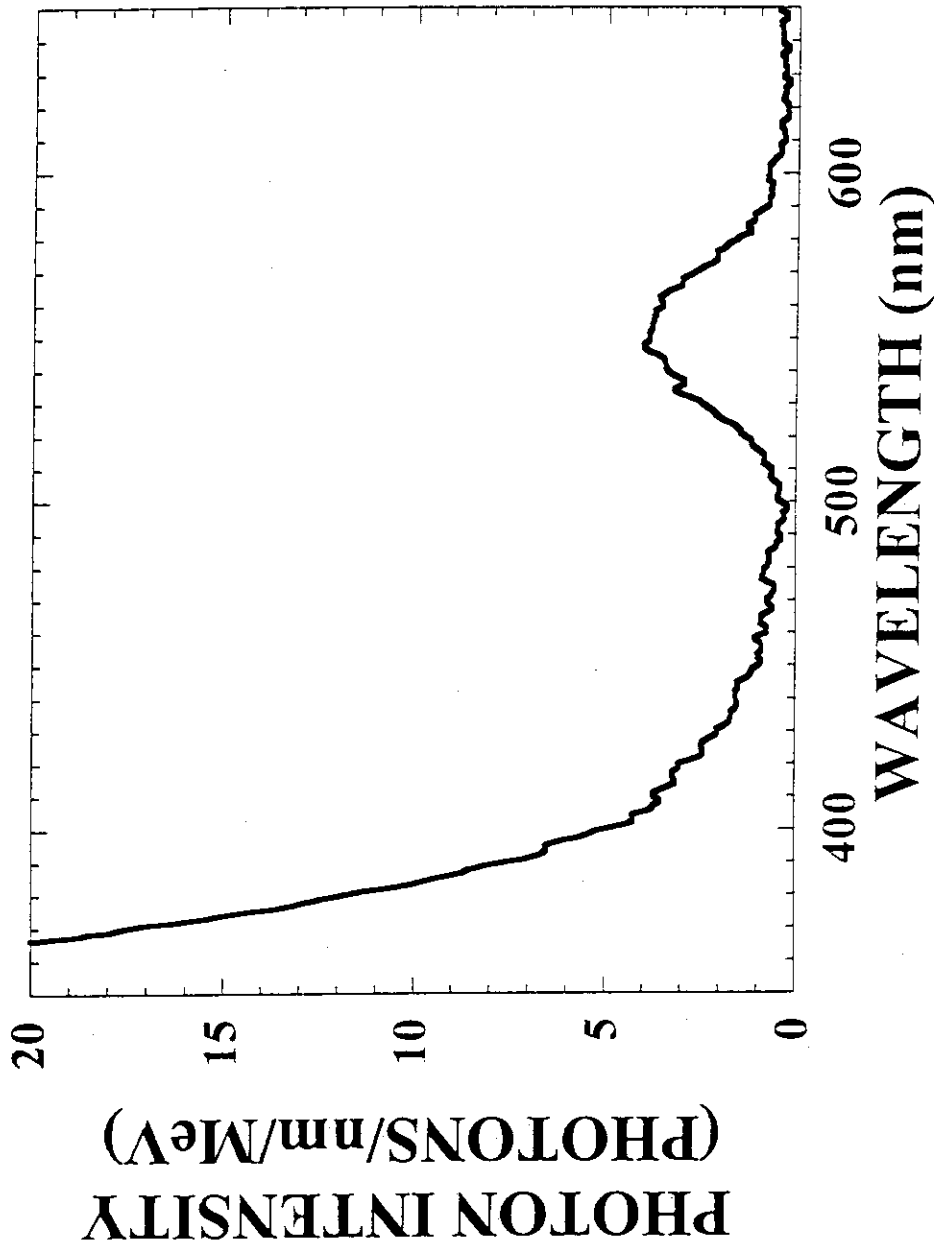


Fig. 4-1-13 Wavelength spectrum of photons emitted from calcium fluoride during ^{60}Co gamma-ray irradiation. (measured with polychromator system M5098)

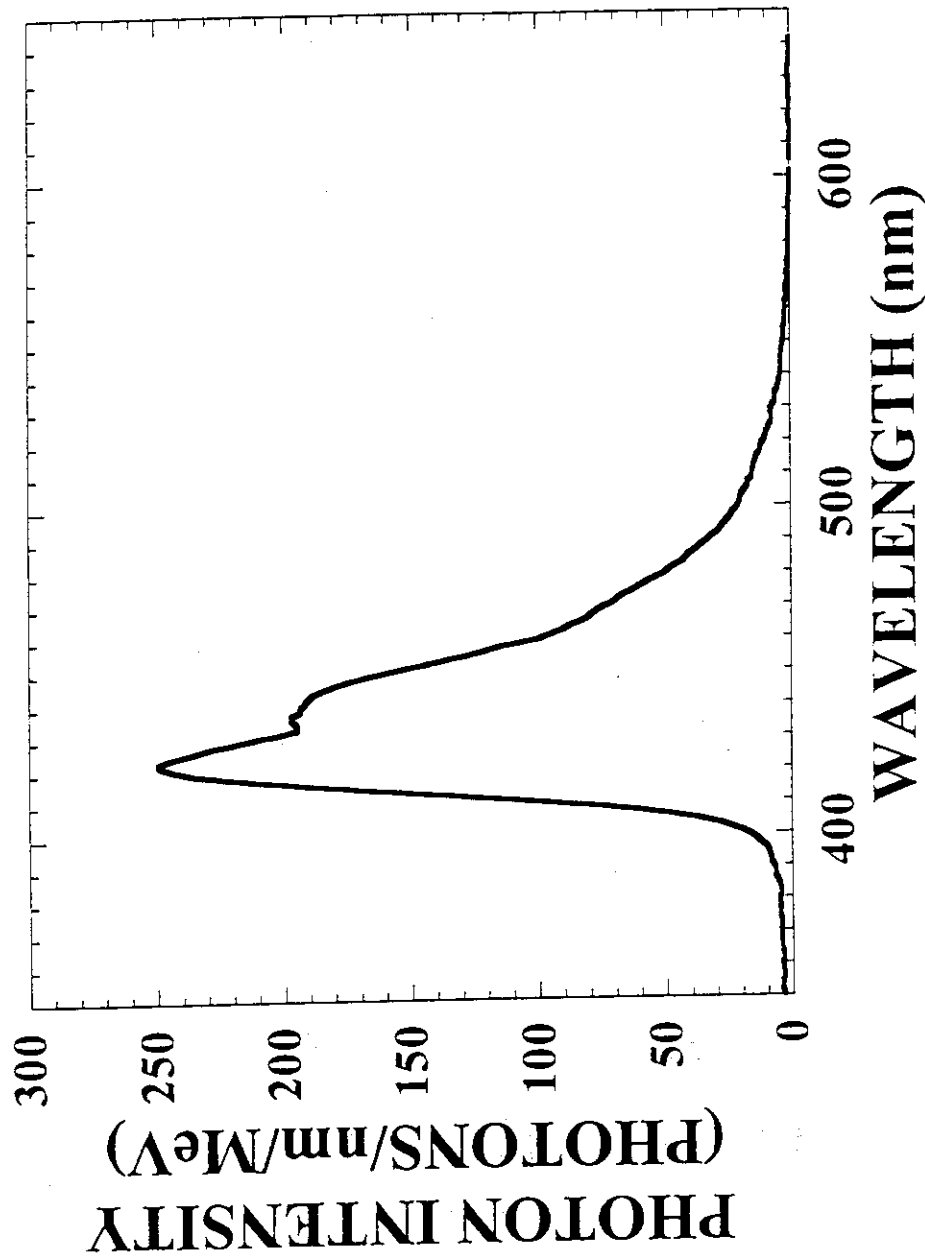


Fig. 4-1-14 Wavelength spectrum of photons emitted from plastic scintillator (NE102A) during ^{60}Co gamma-ray irradiation. (measured with polychromator system M5098)

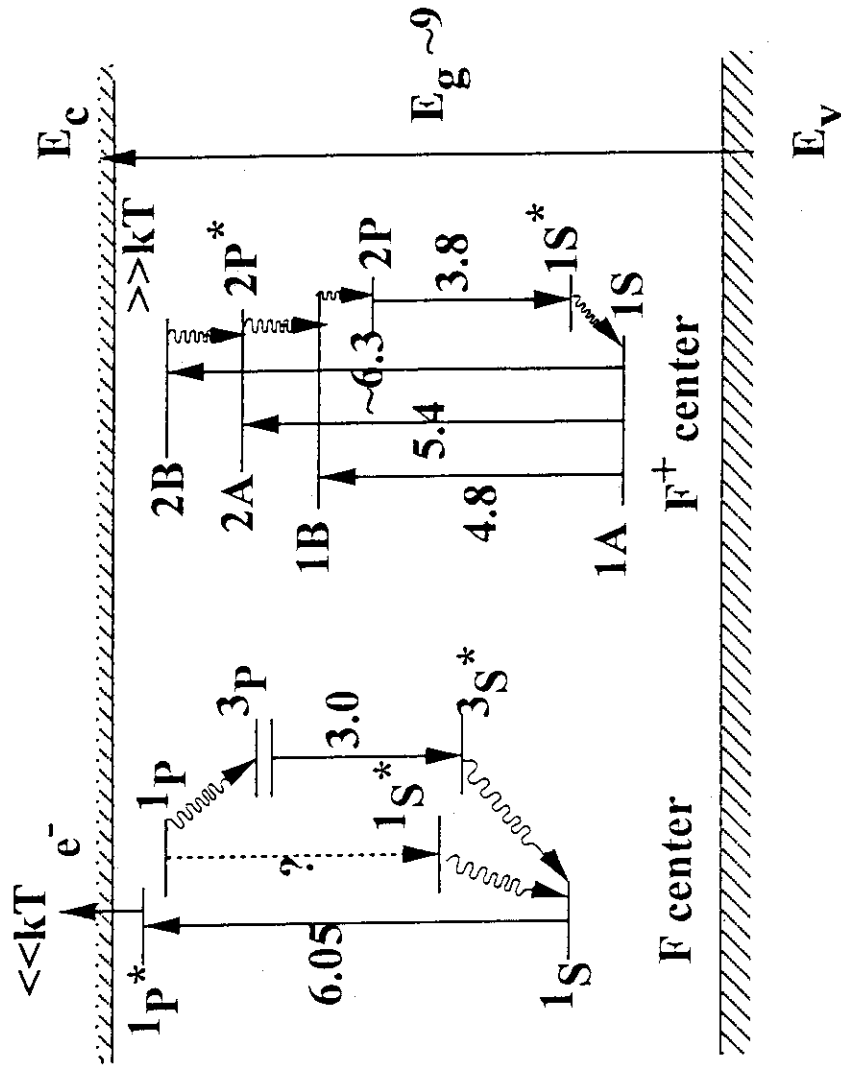


Fig. 4-2-2 Flat-band diagram of Al_2O_3 summarizing the relative energy positions of F-type and F^+ -type vacancies. (B.D.Evans, Journal of Nuclear Materials 219 (1995)202-223.)

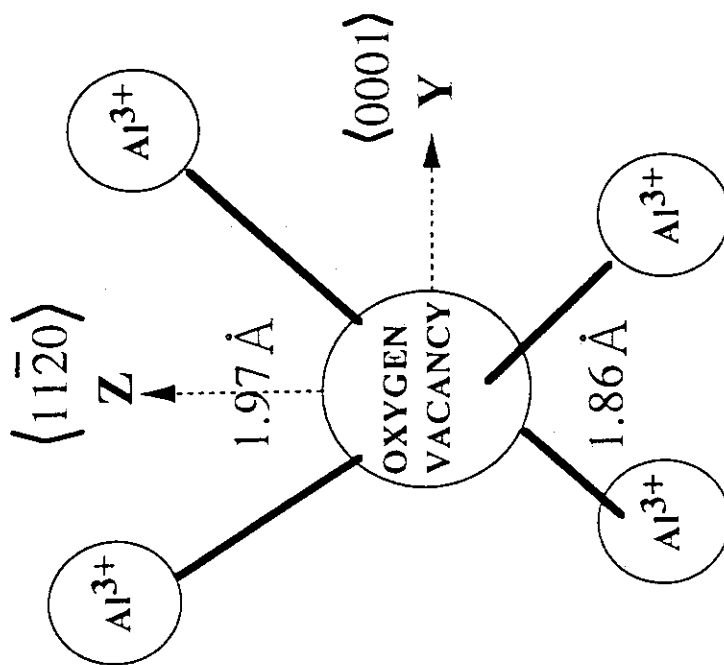


Fig. 4-2-1 Model of F-type centers in $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$. (B.S.Gourary and F.J.Adrian, Solid State Phys. 10(1960) 127.)

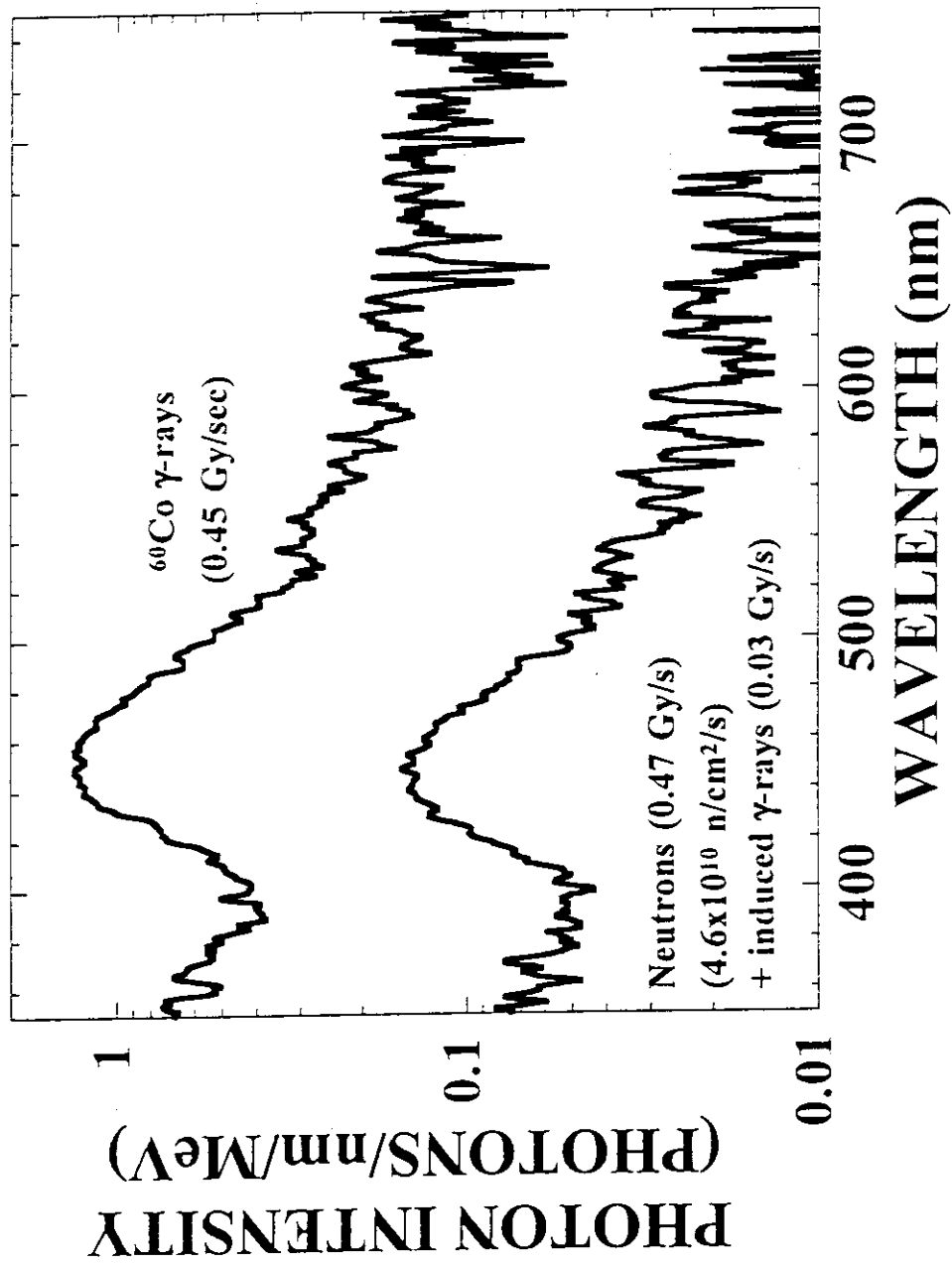


Fig. 4-2-3 Wavelength spectra of emitted photons in 14MeV neutron and ^{60}Co gamma-ray irradiation experiments for the same high-purity silica glass.

Table 2.1.1 Calculated neutron and gamma-ray fluxes.
(D-T neutron intensity: 3.0×10^{12} n/sec)

Distance from target (mm)	Neutron (n/cm ² /sec)	Gamma-ray (γ /cm ² /sec)
15	7.5×10^{10}	9.0×10^9
30	2.3×10^{10}	2.8×10^9
45	1.1×10^{10}	1.3×10^9

Table 2.1.2 Calculated dose rates for samples.
(D-T neutron intensity: 3.0×10^{12} n/sec,
25.4mm ϕ x 4mm^t sample was placed at 12mm from target.)

Sample	D _{neutron} (Gy/sec)	D _{γray} (Gy/sec)	D _{Total} (Gy/sec)
Sapphire	0.92	0.10	1.0
High pure silica glass	1.0	0.12	1.1
Ge doped silica	1.0	0.11	1.1
Calcium fluoride	1.3	0.06	1.4
Plastic scintillator	5.8	0.15	6.0

Table 3.1.1.1 Summary of performances on photon measurement systems for 14MeV neutron irradiation experiment.

Measurement system	Detector	Wavelength	Features
Polychromator System (M5098)	Image Intensifier (V3346U) +MOS Type Liner Sensor (SS304-1024F)	350~750 nm	Visible Multi-channel type
Photon Counting Spectrometer	Photomultiplier (R928P)	250~900 nm	Ultraviolet to infrared Single-channel type
Integrating Photon Counting System	Photomultiplier (R1635P)	350~650 nm	High sensitivity in visible range Non spectrometer

Table 3.3.1 Summary of efficiencies of photon measurement system
 (photon counting spectrometer with a R928P PMT).
 (Wavelength $\lambda=400\text{nm}$)

	Quantity	Efficiency	Uncertainty
Effective volume	V_{eff}	3.0mm ϕ x 2.0mm	
Wavelength bandwidth	$\Delta \lambda_M$	10nm	
Transmission efficiency of optical fiber	η_F	0.70	± 0.04
Geometrical efficiency of lens system	η_L	0.0013	± 0.0002
Quantum efficiency of PMT	η_Q	0.20	± 0.02
Diffraction efficiency including loss of grating, mirrors and slits.	η_M	0.0063	± 0.0008
Total efficiency of photon counting spectrometer (counts*nm/photons)		1.2×10^{-5}	$\pm 0.3 \times 10^{-5}$

Table 3.4.1 Summary of error analysis on photon measurement system.

	Factor	Uncertainty	Uncertainty	
Random error	Photon counting	<10%	Statistical error	
	Absorbed dose for neutron and secondary gamma-ray	<13%	4πD-T neutron intensity	
			Sample position	
			Dose calculation	
System error	Absorbed dose for ⁶⁰ Co gamma-ray	<6%	Dose measurement	
	Quantum efficiency of PMT	10%	Dose calculation	
			Uneven quality	
	Transmission efficiency of optical fiber	6%	Uniform light source system	
	Diffraction efficiency	14%	Uniform light source system	
			Quantum efficiency of photodiode	
	Geometrical efficiency	19%	Uncertainty in calibration experiment	
			Maximum difference between calculation and experimental efficiencies	
	Total error	Random error+System error	<31%	

Table 4.1.1 Characteristics of the samples irradiated by 14MeV neutrons and ^{60}Co gamma-rays.
 (○:14MeV neutron ●: ^{60}Co γ -ray)

Sample		Size	Polychromator System	Photon Counting Spectrometer	Integrating Photon Counting System
Sapphire-1	KYOCERA (SA-100)	25.4mm ϕ \times 5mmt	○	○	
Sapphire-2	RARE METAL	10mm ϕ \times 2mmt	○●		○
High pure silica glass	MITUBISHI CABLE	1.2mm ϕ \times 30mmt fiber	○●		○
Ge doped silica glass	MITUBISHI CABLE	1.2mm ϕ \times 30mmt fiber	○●		○
Quartz	KU-QUARTZ	16mm ϕ \times 8mmt	○	○	
Calcium fluoride	ORIEL	25.4mm ϕ \times 6.4mmt	○●		○
Plastic scintillator-1	NE (NE102A)	25.4mm ϕ \times 2~6.4mmt	○●	○	○●
Plastic scintillator-2	NE (NE102A)	1.2mm ϕ \times 30mmt fiber	○●		○●

Table 4.1.2 Number of emitted photons per unit absorbed energy in the visible range from 350 to 650nm for samples.

Sample	Peak wavelength (nm)	14MeV neutrons+induced γ -rays (photons/MeV)	^{60}Co γ -rays (photons/MeV)
Sapphire-1	410	2200 \pm 700	
Sapphire-2	410	2500 \pm 800	27000 \pm 8000
High pure silica glass	450	17 \pm 5	170 \pm 50
Ge doped silica	390	83 \pm 30	410 \pm 130
Quartz	450, 650	14 \pm 4 (350~750nm)	
Calcium fluoride	<350, 550	270 \pm 80	1300 \pm 400
Plastic scintillator	422	3000 \pm 900	11000 \pm 3000
			Ref. 10300 \pm 710

Table 4.2.1 Impurities in α -sapphire (SA-100).

Impurity	Si	S	Fe	Na	K	Ca	Ti	Y	Zr	Cr	Total
(ppm)	10	4	2	1	1	1	<1	<1	<1	<1	<28

Table 4.2.2 Impurities in KU-quartz.

Impurity	OH	Fe	K	Na	Ca	Al	Mg	Cu	Mn	Ti
(ppm)	821	1.6	1.4	1.0	1.0	0.4	0.4	0.1	0.02	0.01

Table 4.2.3 Summary results of the photon emission efficiency (photons/MeV) on the same silica sample obtained in 14MeV neutron and ^{60}Co gamma-ray irradiation experiments.

Irradiation	Photon emission rate	
14MeV neutron	Luminescence (neutron)	5 ± 3
	Luminescence (γ -ray)	9 ± 3
	Cherenkov	3 ± 1
	Total (photons/MeV)	17 ± 5
^{60}Co γ -ray	Luminescence (γ -ray)	135 ± 50
	Cherenkov	35 ± 10
	Total (photons/MeV)	170 ± 50