

# 中性子イメージング検出器の性能評価試験

阪大レーザー研<sup>a</sup>、

有川安信<sup>a\*</sup>、長井隆浩<sup>a</sup>、井上裕晶<sup>a</sup>、宇津木卓<sup>a</sup>

The evaluation of the characteristics of the neutron imaging detector

Institute of Laser Engineering<sup>a</sup>,

Yasunobu Arikawa<sup>a</sup>, Takahiro Nagai<sup>a</sup>, Hiroaki Inoue<sup>a</sup>, Masaru Utsugi<sup>a</sup>

The neutron imaging detector has been developed for shadowgraph image for large size infra-structures. The detector consists with a neutron scintillation pixel array made by a fast response liquid scintillator filled in the aluminum-hanicam plate, an optical relay lens and a time-gated image intensifier CCD camera. L-band linac was used to generate pulsed x-rays to demonstrate the detectors. Electron beam was injected into a lead plate to generate pulsed a high energy x-ray. The x-ray shadowgraph image of the 10-cm sized heavy iron construction was clearly observed, and 10-ns fast gating was also demonstrated.

## 1. はじめに

1MeV程度のエネルギーを持つ高速中性子を用いたシャドウグラフ画像診断法は、橋桁などのメートル級サイズの鉄筋コンクリートの内部構造を非破壊で検査できるとして注目されている。その為に高速中性子の検出感度が高く、画像分解能の良く、大型の中性子画像検出器の開発が求められている。高速中性子に感度を持たすために、肉厚のシンチレーターで、多数の細かいピクセル状に規則正しく並んだシンチレータープレートが必要である。また中性子による断層診断画像の解像度を上げるために、被写体以外から散乱によって計測器に到来する中性子を消す必要がある。中性子源を1ns以下のパルス源にして、中性子画像計測器に高速ゲート機能を持たせて、被写体から抜けてくる中性子のみが観測できる時刻をゲーティング撮影する。従って計測器にはナノ秒の高速ゲート機能が必要である。

## 2. 計測器設計

各ピクセル間でシンチレーション光が交わらないよう、セパレートされた構造が必要である。プラスチックシンチレーターをファイバー状にして、10万本程度配列する方式も有るが、非常に高価であり、大型化

に不向きである。本研究では、目の細かいアルミハニカム板の隙間に液体性シンチレーターを充填し、周囲をガラス窓付きの容器で封じた、シンチレーターアレーを開発した。

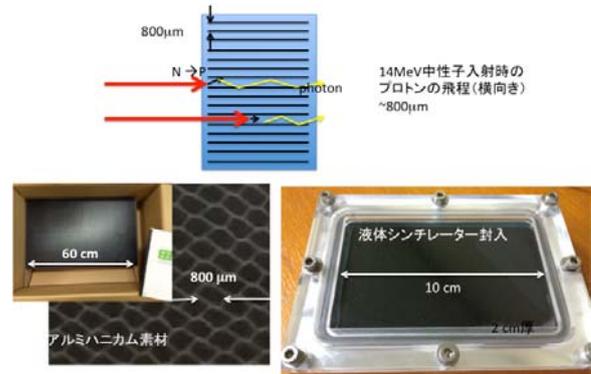


図1 開発したハニカムシンチレータープレート

図1に示すシンチレーター面を高NAのリレーレンズを用いて、3nsの高速ゲート機能を有する、イメージインテンシファイアCCDカメラに結像した。

## 3. Lバンドライナックを用いた実験

Lバンドライナックからの電子ビームを鉛板に発生させ、数MeV領域のx線パルスを作り出した。開発した画像計測システムを用いて、高エネルギーX線の断層撮影性能の評価を行った。図2に実験セットアッ

\* T. Sanken, 06-6879-8380, taro@sanken.osaka-u.ac.jp; \*\*O. Sanken, 06-6879-8508, oyabunn@sanken.osaka-u.ac.jp

ブ図を示す。

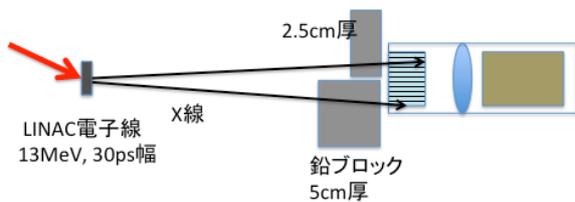


図2 実験セットアップ図

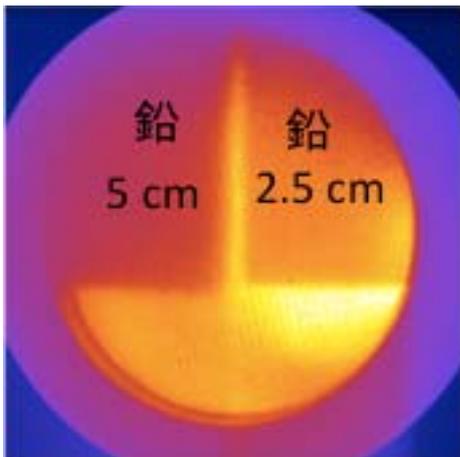


図3 2.5cmと5cm厚の鉛ブロックの断層撮影画像

図3に示すように、2.5cmと5cm厚の鉛板のシャドウグラフ撮影に成功した。この透過性から数MeV域のX線が画像化で来た事、明瞭なエッジの形状から分解能はX線に足して3mm程度である事が分かった。分解能はシンチレータ内で走る荷電粒子の自由行程で決まるため、X線の場合は電子で3mm程度、中性子の場合はプロトンとなりこれは1mm以下と成る事が予測される。図4に示すのは10cmサイズの光学用マグネットマウントを断層撮影した画像である。金属性の外側箱板を透視して、内部のネオジウム磁石がどのような構造に成っているのか判別がつく。

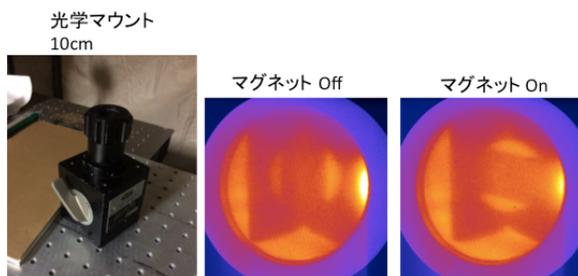


図4 光学マグネットマウントのX線シャドウグラフ写

真。

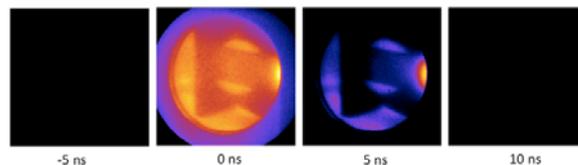


図5 イメージインテンシファイアに高速ゲートをかけて高速度撮影した画像。

図5に示すのは、イメージインテンシファイアに高速ゲートをかけたときの画像である。X線が計測器に入る時刻を0nsとすると、10ns後には完全に信号が消えている事が分かる。Lバンドの電子ビームパルス幅は30psであるから十分短く、この結果はシンチレータの減衰寿命が十分高速であり、なおかつイメージインテンシファイアのゲート機能が有効に機能した事、結果高速度撮影は可能である事を示す結果になった。

#### 4. まとめ

大型検体の非破壊検査技術を目指して、高速中性子シャドウグラフ計測のための中性子画像計測器の開発を行なっている。産研のLバンドライナックを使用して、画像計測器の性能評価試験を行った。一連の実験によって、本研究で開発した中性子画像計測器は、中性子画像分解能は1mm程度であり、時間分解能も10ns以下である事が証明され、目標が達成された。今後は大型化、中性子での画像検出を行なう。Lバンドライナックで、電子エネルギー26MeVにし、ターゲットを1cmの鉛にすれば、1000発程度の積算で信号になると推測している。引き続き研究を行う予定である。

# ガンマ線照射による ZnO 単結晶の発光寿命の高速化

阪大レーザー研

山ノ井航平\*, Melvin Empizo, 有田廉、岩野圭介、岩佐祐希、有川安信、猿倉信彦、乗松孝好

Post-growth control of the response times of bulk ZnO single crystals by gamma-ray irradiation

Institute of Laser Engineering

Kohei Yamanoi\*, Melvin Empizo, Ren Arita, Keisuke Iwano, Yuki Iwasa, Yasunobu Arikawa, Nobuhiko Sarukura, Takayoshi Norimatsu

Hydrothermal-grown bulk ZnO single crystals are investigated before and after gamma-ray irradiation. The irradiation does not alter the optical transparency in the visible region. The gamma-rays only induce modified near-band-edge (UV) emission with blue-shifted peaks and shortened response times. The response times shorten by 140 to 440 ps from the initial values before irradiation. We attribute these observations to the creation of shallow defects by gamma-ray irradiation. Our results present a possible control of the response times with post-growth radiation treatment. Bulk ZnO single crystals with improved response times as fast as 400 ps are useful for relevant scintillator-based applications.

Zinc oxide (ZnO) is a II-VI semiconductor compound which can be used in a variety of optoelectronic applications. Due to its wide and direct band gap (3.3 eV or  $\sim 380$  nm) and large exciton binding energy (60 meV), ZnO can sustain intense and efficient short wavelength near-band-edge excitonic emission at room and even higher temperatures. We have previously reported excellent scintillation properties of hydrothermal-grown ZnO.<sup>1</sup> The ZnO crystal has a fast response time of about 1.0 ns irrespective of the optical excitation source. ZnO response times can be further improved by impurity doping with the introduction of additional quenching channels or by the possible use of nanostructures which maximize the oscillator strength. Exploring other methods to control response times, effects of radiation environments are of particular interest. Exposure to high energy and ionizing radiations results to altered structural, optical, and electrical properties. Electron and proton irradiations of bulk ZnO crystals have already been investigated and provide not only insights on ZnO applications but also information on defects – their creation and manifestations.

In this regard, we present our results on the gamma-ray irradiation of bulk ZnO single crystals. The ZnO samples grown by the hydrothermal method are irradiated with 10 to 150 kGy radiation doses. The gamma radiation only induces modified near-band-edge emission of the ZnO

crystals. We offer the creation of shallow defects on the crystals as an explanation of our observations. These results provide an alternative method to improve ZnO response times for scintillator applications with post-growth radiation treatment.

Bulk ZnO single crystals were sliced from a large boule grown by the hydrothermal method. Samples with  $10 \times 10 \times 0.5$  mm<sup>3</sup> dimension and (0001) orientation were then polished on both sides to have a mirror finish. The crystals were irradiated with gamma-rays carrying 1.17 to 1.33 MeV energies from a <sup>60</sup>Co source. The <sup>60</sup>Co source was calibrated with water and had a dose rate of 71.1 Gy/h at 1.0 m. Absorbed doses of 10, 50, 100, and 150 kGy were applied on the ZnO crystals at room temperature and ambient atmosphere. The optical properties of the bulk ZnO before and after irradiation were investigated using optical transmission and photoluminescence (PL) spectroscopies. All of the measurements before and after irradiation were conducted at room temperature. The

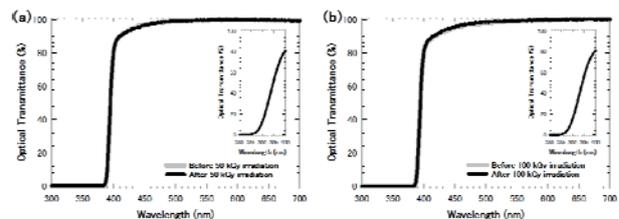


Fig. 1 Optical transmittance spectra of the bulk ZnO single crystals before and after (a) 50 and (b) 100 kGy gamma-ray irradiation

\* K. Yamanoi 06-6879-8730, yamanoi-k@ile.osaka-u.ac.jp

characterizations of the irradiated samples were done immediately after radiation treatment to prevent any absorption relaxation and room-temperature annealing effects.

The typical optical transmission spectra of the bulk ZnO single crystals before and after gamma-ray irradiation are shown in Fig. 1 (a) and (b). Similar to the sample color, no noticeable change in transmission is observed after irradiation. Both non-irradiated and irradiated crystals have the same absorption edges (393 nm) and visible region transparency ( $\sim 100\%$ ). Gamma-ray irradiation does not affect the optical properties of the bulk ZnO single crystals in the visible region.

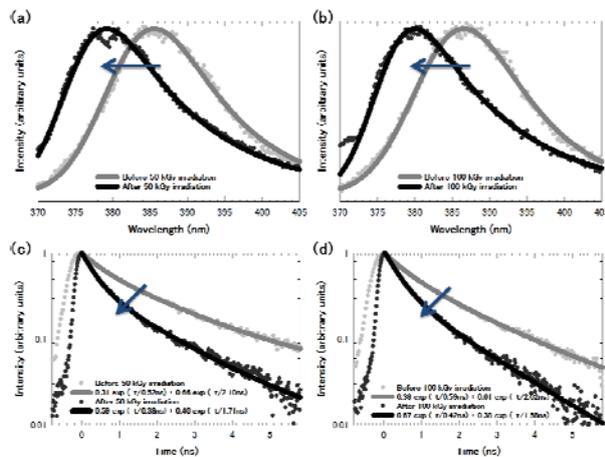


Fig. 2 Spectral and temporal profiles of the room temperature near-band-edge emissions of the bulk ZnO single crystals before and after (a and c) 50 kGy and (b and d) 100 kGy gamma-ray irradiation. The arrows indicate the change after irradiation

The spectral and temporal profiles of the near-band-edge emissions of each sample before and after irradiation are depicted in Fig. 2. The UV emissions around 380 to 390 nm correspond to the near-band-edge emission of ZnO. The characteristic emissions of the samples change after irradiation. Electron and proton-irradiated ZnO crystals also exhibit modified near-band-edge emissions. After gamma-ray exposure, the emission peaks are blue-shifted by 6 nm (177 eV), while the spectral linewidths about 17 nm (73 eV) are not significantly affected. Moreover, the response times of the ZnO crystals before and after irradiation are determined by double exponential fitting of the decaying part of the temporal profiles. The fast component is ascribed to free excitons, while the slow

component is ascribed to free and trapped carriers. Gamma-ray exposure has shortened both the fast and slow components of the response times by 140 to 440 ps. The shift in the emission peak is almost the same for different radiation doses.

Bulk ZnO single crystals are expected to have excellent optical band-to-band transitions. The room temperature wide scan PL spectra of the samples (not shown here) do not exhibit any defect-related emissions in the visible wavelengths. Gamma-ray irradiation of the ZnO crystals does not cause any detrimental effects such as decreased optical transmittance or visible absorption bands as compared to gamma-irradiated undoped and doped ZnO thin films and ZnO-based scintillation glasses. Without any observed inherent defects, the band-to-band transitions are the only ones being altered by the gamma-ray irradiation. We attribute the modified near-band-edge emission to the radiation-induced shallow defects. Since gamma-rays carry substantial energy, they can create defects on the crystals. These shallow defects can serve as carrier traps or nonradiative recombination centers leading to shortened response times. An increased radiation dosage creates more defects on the crystal. This explains why the response times are shorter for ZnO crystals irradiated with a higher dose. Moreover, the blue-shift of the emission peaks can be ascribed to band-bending and screening effects due to the built-in electric field created by the trapped carriers.

We presented the improvement of the response times of bulk ZnO single crystals by post-growth radiation treatment. The crystals were irradiated by gamma-rays at room temperature and ambient atmosphere. Gamma-ray radiation only induced modified near-band-edge emission with blue-shifted peaks and shortened response times. After irradiation, the response times improved by around 140 to 440 ps. The altered optical properties were attributed to the creation of shallow defects after irradiation. Realizing scintillator-based applications, these results nevertheless provide another way to improve ZnO response times by post-growth radiation treatment rather than the preparation with intentional doping or the use of micro/nanostructured crystals.

## Reference

- 1) M. Tanaka et al., Appl. Phys. Lett. **91** 231117 (2007).

## DNA 損傷を指標とした吸収線量の新規評価法の開発

ラジオアイソトープ総合センター<sup>a</sup>、産研量子ビーム科学研究施設<sup>b</sup>、福井大学附属国際原子力工学研究所<sup>c</sup>  
近畿大学 大学院 総合理工学研究科<sup>d</sup>

清水喜久雄<sup>a\*</sup>、藤乗幸子<sup>b</sup>、松尾陽一郎<sup>c</sup>、中嶋隆登<sup>d</sup>

Development of dosimetry method of the radiations based on the yield of DNA lesions  
Kikuo Shimizu<sup>a</sup>, Sachiko Tojo<sup>b</sup>, Youichirou Matuo<sup>c</sup>, Ryuto Nakashima<sup>d</sup>

Radioisotope Research Center<sup>a</sup>, Research Laboratory for Quantum Beam Science<sup>b</sup>, RINE. University of Fukui<sup>c</sup>,  
Graduate School of Science and Engineering, Kinki University<sup>d</sup>

The biological dosimeter that measures biological responses to ionizing radiation is useful for radiation protection. We are aiming at developing novel dosimetric system using DNAs based on radiation biology and molecule biology. Quantitative PCR (Real-time PC) is used to amplify and quantify a radiation irradiated DNA molecules. The DNA molecules irradiated with ionizing radiation suffer damages such as strand brakes and oxidation of base, and this Real-time PCR method is based on the fact that such DNA lesions caused by ionizing radiation block DNA synthesis by DNA polymerase, resulting in a decrease in the amplification of a damaged DNA template compared with that of non-damaged DNA templates. In this study, the protocol of PCR was refined in order to improve the sensitivity and reproducibility.

In order to know which damage was effective for block of DNA polymerase reaction, we also examined the amount of 7, 8-dihydro-8-oxoguanine (8-oxoG) which were produced by  $\gamma$  ray and carbon ion particle. The amounts of 8-oxoG produced by  $\gamma$  ray and carbon ion particle was about the same. This means that blocking effect on PCR of high LET radiation such as carbon ion particles results from DNA strand breaks, not base damages such as 8-oxoG.

**【研究背景】**放射線防護・放射線安全の観点から、個人線量計による被ばく量の管理は重要である。TLD素子やフィルムバッジ等が実用化されているが、これら既存の個人線量計のメカニズムは、熱ルミネッセンス現象やフィルムの感光作用など、物理・化学的作用を応用したものである。一方で、放射線影響の要因は細胞中のDNAの切断や酸化損傷が主である。本研究では、リアルタイムPCRを用いたDNA鎖切断収量を指標とした吸収線量の評価法について検討した。

### 【研究方法】

出芽酵母 S288c の *URA3* 領域(804 bp)を PCR によって増幅した DNA をサンプルとした。この DNA サンプルに大阪大学産業科学研究所のコバルト 60 線源によるガンマ線を照射した。また、DNA サンプルに放

射線医学総合研究所の HIMAC による炭素粒子線を照射した。これらの照射 DNA サンプルを鋳型としリアルタイム PCR により DNA 合成量を測定した。照射 DNA サンプルの初期鋳型量を求めることで、吸収線量を評価した。解析は Eco Real-TimePCR System (illumina)を使用した。低 LET (linear energy transfer) であるガンマ線と高 LET である炭素粒子線を照射した DNA サンプルに対してリアルタイム PCR を行い LET 差の違いを検討した。次にリアルタイム PCR 法が主に鎖切断を認識していると考え、放射線によって引き起こされる可能性の高い特定の塩基損傷を鎖切断に変換することで高感度化を検討した。放射線により高頻度に生じる損傷に対して特異的に働く AP-リアーゼ (AP-エンドヌクレアーゼ) や DNA-グリコシダーゼなどの機能を有する種々の酵素をサンプル DNA に作用させた後にリアルタイム PCR にて解析を行った。また、DNA

\* K. Shimizu, [shimizu@irc.osaka-u.ac.jp](mailto:shimizu@irc.osaka-u.ac.jp), 06-6850-6103

酸化損傷量の評価のため、8-OHdG (8-hydroxy-2'-deoxyguanosine) 量の測定を行った。calf thymus DNA (SIGMA)をサンプルとし、calf thymus DNA サンプルにガンマ線またはイオンビームの照射を行った。照射 DNA サンプルを 8-OHdG Check ELISA (日本老化学研究所)を用い 8-OHdG に特異的なモノクローナル抗体を反応させ、マイクロプレート測定装置 iMark (Bio-Rad)を用い 8-OHdG 量の測定を行った。また、低 LET であるガンマ線照射サンプルと、高 LET であるイオンビーム照射サンプルにおける 8-OHdG 量の比較を行った。

**【結果・考察】** 高線領域 1-100 Gy 照射 DNA サンプルにおけるリアルタイム PCR 法の結果より、電離放射線の吸収線量の増加に伴って DNA 増幅割合が低下することが確認できた。また、低線領域 0.01-1 Gy 照射 DNA サンプルにおいても同様の傾向が見られた。この傾向より、吸収線量が増幅するとポリメラーゼ連鎖反応が強く阻害されることがリアルタイム PCR 法により確認できた。これにより損傷評価が可能であると考えられる。また、ガンマ線照射 DNA サンプルに比べ、炭素線照射 DNA サンプルの方が DNA 増幅効率の低下が大きいことが示された。このことより LET の違いにより DNA 上に質的に異なる損傷が生じていることが考えられる。

照射 DNA サンプルの酸化損傷評価のため、代表的な損傷である 8-OHdG 損傷量の評価を行った。8-OHdG 損傷量の評価の結果、電離放射線の吸収線量の増加に伴って 8-OHdG 量の増加がみられた。ま

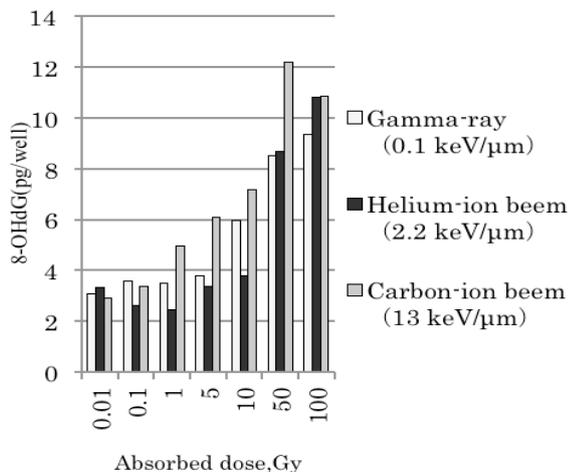


図1 LETの異なる3種類の放射線を照射したDNA中の8-OHdG量

た、低 LET であるガンマ線照射 DNA サンプルと、高 LET であるイオンビーム照射 DNA サンプルの 8-OHdG 量はほぼ同様の傾向を示した(図 1)。このことより、炭素線照射サンプルとガンマ線照射サンプルは同量程度の酸化損傷を受けていると考えられる。これらの結果よりリアルタイム PCR 法の DNA 増幅効率の低下は塩基損傷ではなく、主に鋳型 DNA 鎖切断に起因すると考えられる。そこで、電離放射線により生じる可能性のある塩基損傷を認識する酵素を利用し、それらの塩基損傷を鎖切断に変換することで、リアルタイム PCR 法の高感度化を検討した。照射した照射 DNA サンプルに酵素を作用させ、酵素反応後にリアルタイム PCR 法を行った。種々の酵素を使用し検討した結果 Fpg を作用させた実験において DNA 増幅効率の低下がみられた(図 2)。酵素反応を利用することでリアルタイム PCR 法の高感度化が可能であると確認できた。さらに酵素反応実験の発展として、様々な酵素を利用することにより特定の塩基損傷評価も可能であると考えられる。今後、酵素反応の最適化により、低線量領域における高感度化を目指している。

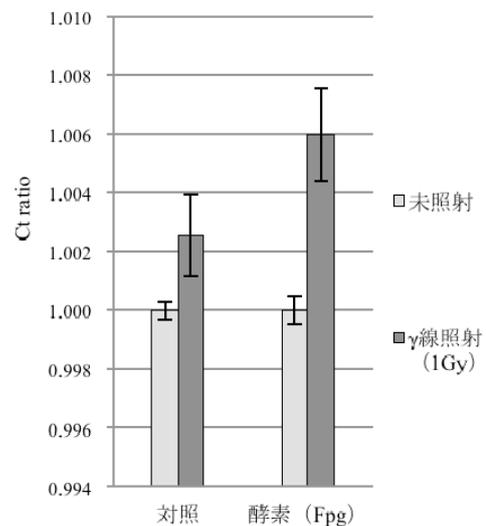


図2 PCR法におけるFpg反応効果

## 研究成果

(学位論文)

中嶋隆登:”DNA 損傷を指標とした放射線被ばく線量の評価”、修士論文 近畿大学大学院総合理工学研究科 (2015, 1, 30)

# 核融合炉用超電導磁石絶縁材料の照射効果に関する研究

工学研究科 環境エネルギー工学専攻<sup>a</sup>

西嶋 茂宏<sup>a\*</sup>、秋山 庸子<sup>a</sup>、三島 史人<sup>a</sup>、高橋 知寛<sup>a</sup>、小林 浩二<sup>a</sup>

Study of Irradiation Effect on Insulation Material for Superconducting Magnet of Nuclear Fusion Reactor

Graduate School of Engineering<sup>a</sup>

Shigehiro Nishijima<sup>a\*</sup>, Yoko Akiyama<sup>a</sup>, Fumihito Mishima<sup>a</sup>, Tomohiro Takahashi<sup>a</sup>, Koji Kobayashi<sup>a</sup>,

Organic polymeric materials are used for the insulation material in the nuclear reactor. They are the most sensitive to radiation among the constituent materials of the nuclear reactor, and it is necessary to improve the radiation resistance. The insulation material is fabricated by impregnating the resin into the layers of polyimide films and glass cloths. Cyanate ester resin is to be used for the matrix because of its high radiation resistance. In this study, the composites fabricated with cyanate ester were degraded by gamma-ray irradiation, and interlaminar shear test was performed at the liquid nitrogen temperature. Based on the results, the fracture mechanism of the composite material was discussed.

国際熱核融合実験炉 (ITER) のトロイダル磁場 (TF) コイルでは、有機高分子をマトリックスとした絶縁材料が使われるが、有機高分子材料は放射線感受性が高く、核融合反応由来の放射線により劣化する。そのため、TF コイルに照射される  $1 \times 10^{22}$  n/m<sup>2</sup> (0.1 MeV 以上) の高速中性子に耐えうる絶縁材料の開発が必要である。

TF コイルの絶縁材料はガラスクロスとポリイミドフィルムを積層し、隙間を高分子材料で含浸させた複合材料であるが、一般的に層間せん断強度 (ILSS) が低いという問題点がある。ITER の場合、45MPa のせん断応力に耐えるだけの強度が必要である。近年、耐放射線性が高いとされるシアネートエステル (Cyanate ester; CE) 樹脂をマトリックスに用いることが検討されており<sup>1)</sup>、本研究では、その機械的特性を明らかにすることを目的とした。本研究では次の 2 つの観点から検討を行った。

- (i) 絶縁材料界面の接着強度に対する照射効果
- (ii) 種類の異なる CE の性能比較

絶縁材料のせん断破壊は、一般的に異材間の界面で起こることが多い。これまで樹脂-ガラスクロス界面の照射効果に関しては報告されている<sup>2)</sup>が、樹

脂-ポリイミドフィルム界面の強度に関してはほとんど検討が行われていないため、本研究ではこの点に着目して実験を行った。マトリックス樹脂として、CE 樹脂をエポキシ樹脂と重量比 4:6 で混合して用いた。S-ガラスクロスとポリイミドフィルムを交互に積層して絶縁材料を作製し、図 1 に示す目違い切欠き試験片の形状に加工して、<sup>60</sup>Co 線源により  $\gamma$  線を最大 10 MGy まで照射した。液体窒素中で矢印の方向から圧縮荷重を負荷することにより、層間せん断強度 (ILSS) の測定を行った。また、破断面の顕微鏡観察を行い、破壊形式に関する考察を行った。

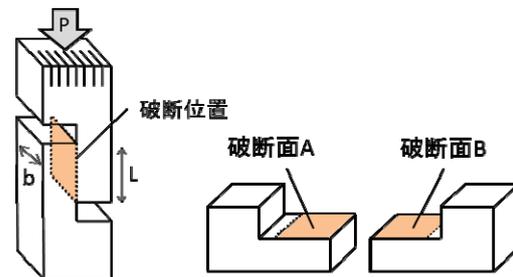


図 1 試験片形状と破断面観察の位置

実験の結果、図2に示すように  $\gamma$  線照射による ILSS の有意な変化は確認されなかった。さらに破断面観察を行った結果、いずれの吸収線量においても

\* S. Nishijima, 06-6879-7896, nishijima@see.eng.osaka-u.ac.jp

図3のように樹脂-ポリイミドフィルム界面の破壊とポリイミドフィルムを貫通する破壊が混在して見られたため、樹脂-ポリイミドフィルム間の界面劣化の影響は小さい傾向が見られた。また、絶縁材料の強度は総じて65 MPaを越えているため、ITERの絶縁材料として十分な強度を有していることが確認された。

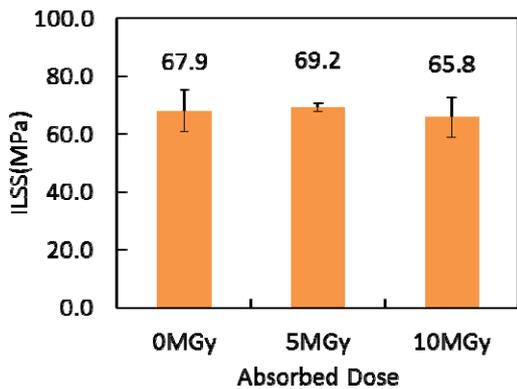


図2 各吸収線量におけるILSS

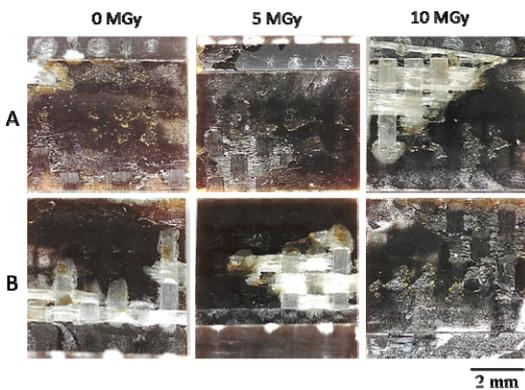


図3 吸収線量ごとの破断面観察

次に、樹脂自体の性質に着目し、種類の異なる2種類のCE(A, Bとする)を対象として、その照射効果を比較した。本実験でも前述の実験と同様にエポキシ樹脂と重量比4:6で混合して用いているが、作製したサンプルはポリイミドフィルムを含んでいない。照射効果の評価は、図1に示す目違い切欠き試験片を用いた層間せん断強度試験により行った。実験結果を図4に示す。その結果、CE-Aはγ線照射によりILSSがわずかに上昇する傾向が見られ、CE-Bは照射後も大きな変化が見られなかった。いずれも照射後も強度が低下しなかった理由として、CEの硬化時に形成

されるトリアジン環が剛直で安定なため、放射線による影響を受けにくいものと考えられたが、動的粘弾性測定によりそれぞれのCEのガラス転移温度(Tg)を測定したところ、図5に示すように、照射により両方のCEでTgが緩やかに低下する傾向が確認された。これは照射によって分子鎖の切断が起き、架橋密度が低下していることを意味している。結局、架橋密度の低下にもかかわらず、ILSSが変化しない、あるいは若干の増加が見られることになる。この機構については、応力緩和モデルを考えているが、さらなる詳細な検討が必要である。

今後は、さらに実際に近い使用条件下での強度変化を検討するため、組み合わせ応力下での破壊についても検討する予定である。

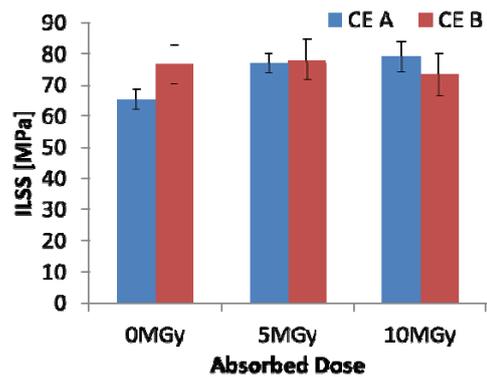


図4 各吸収線量におけるILSS

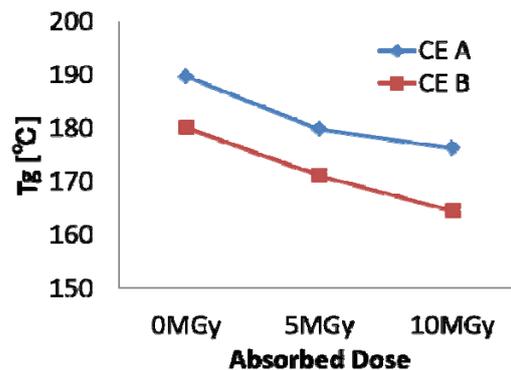


図5 各材料のガラス転移温度の変化

#### References

- 1) P. E. Fabian et al., Fus. Eng. Des. Vol. 61-62, pp. 795-799, 2002.
- 2) M. Hayashi et al., 26th ISS, p214, 2013.