RI 中性子線源

古渡 意彦

(日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所 放射線管理部)

A Radioisotope Neutron Source and its Application for Dosimetry

Munehiko Kowatari

Division of Radiation Protection, Nuclear Science Research Institute, Japan Atomic Energy Agency

ABSTRACT

A various kinds of radioactive neutron sources have been developed since neutron had been first discovered. The reactions which are mainly taken advantage for generating neutrons as radioactive neutron source are (α, n) reaction, (γ, n) reaction and nuclear fission reaction. Only $^{241}\text{Am-Be}$ and ^{252}Cf neutron sources are now available due to reliable reproducibility of neutron emission, long half-lives and less disturbing gamma ray emission. Both are designated as a "reference neutron source" by ISO 8529 series describing principle of establishment of neutron calibration field. Total neutron emission rate from neutron source must be well defined in terms of sophisticated method by national metrological laboratory. In order to serve a reliable neutron calibration field produced by a RI neutron source, correction factor for anisotropic emission from cylindrical-shaped neutron source must be experimentally determined for neutron fluence rate at a point of test in the calibration laboratory.

Keywords: RI neutron source, ^{252}Cf , $^{241}\text{Am-Be}$, neutron dosimetry, calibration

1. はじめに

この分野で十分ご経験のある読者諸賢に「中性子のつくりかた」を解説する、という難題をいただき、「今更何をお伝えすべきか」とほとんど困り果てました。そこで、本稿においては、当方が通常業務で維持管理している、「中性子校正場」を構築する際に使用している RI 中性子線源、ノウハウを中心に紹介します。読者諸賢のご研究に直接関連しないと承知していますが、なにかの役に立てば幸甚です。

さて、本稿では、放射性同位元素 (RI) を用いた中性子発生について概説した後、これまで一般的に利用されてきた中性子線源について紹介します。その後、国際標準化機構 (ISO) で標準 RI 中性子線源として定められた、 $^{241}\text{Am-Be}$ 及び ^{252}Cf 中性子線源に触れます。その後、中性子標準と校正場構築に関すること、について以下に概説します。

2. RI 中性子線源

2.1. RI を用いた「中性子のつくりかた」

RI 線源から中性子を発生させる、というのは、物理実験として、 α 線を物質に照射し、結果として発生する放射線 (中性子) を観測、またはその反応断面積を測定する、というのが最初のアプロ

ーチでした[1]。原子炉・加速器の利用の状況によらず、RI を用いて中性子を「つくる」場合には、放射線と物質の核反応を利用することになります。中性子を「つくる」場合、そのような核反応として、 (α, n) 反応、 (γ, n) 反応及び核分裂反応があります。ここでは、これまで用いられてきた、 (α, n) 反応及び (γ, n) 反応を利用した RI 中性子線源について触れ、核分裂反応を用いた RI 中性子線源については、次項の ^{252}Cf 線源で触れます。

(α, n) 反応を用いる場合、 α 線放出核種からの α 線を軽元素のターゲットに衝突させ、中性子を得るものです。Li, Be, B, F がターゲットに選定されてきましたが、Be を用いる以下の核反応が、中性子収率の観点で広く用いられてきました。

(α, n) 反応を用いる RI 中性子源としては、ごく初期には ^{226}Ra からの α 線を用い、ターゲットを Be とした、 $^{226}\text{Ra-Be}$ 線源が用いられてきました。この線源は、臭化ラジウムとベリリウムの粉体を混合して作成され、Ra と Be の重量比が、1:5 になるように調製されます[2]。1 グラムの Ra、つまり 1 Ci ($=3.7 \times 10^{10}$ Bq) 当たりの中性子発生数は、 $1.2 - 1.7 \times 10^7 \text{ n s}^{-1} \text{ g}({}^{226}\text{Ra})^{-1}$ と測定で求められています[2]。得られる中性子スペクトルは幅広く、平均エネルギーは概ね 5 MeV とされています[2]。

^{226}Ra -Be 線源は広く用いられてきましたが、 ^{226}Ra は α 線放出核種であると同時に、高収量の γ 線放出核種でもあります。(放出 γ 線のエネルギーも大きいので中性子発生において、後述の (γ, n) 反応を伴うこともよく知られています[2].) この点から、「中性子源」としての利便性は高いとは言えません。

これ以外の (α, n) 反応を用いる RI 中性子源としては、歴史的には、 ^{210}Po 、 ^{239}Pu 等が α 線放出核種として利用されてきました。 ^{239}Pu を用いる場合、同様にターゲットに Be を用いることが中性子を高収率で得るために重要で、この線源の場合、 ^{239}Pu と Be の合金を精製することで作成されます[2]. 特徴としては、合金であるため中性子線源としての再現性が高く(つまり、個体差が小さく)、長寿命(^{239}Pu 半減期: 24,110 year)で、 γ 線放出が少ない、ことが挙げられます。中性子の発生数は、 $8.5 \times 10^4 \text{ n s}^{-1} \text{ g} (^{239}\text{Pu})^{-1}$ とされています[2].

なお、我が国の法体系では、 ^{239}Pu は核燃料物質に該当します。所有するだけでも、規制当局の許可を事前に受け、そのうえで線源の受け入れ、使用が可能となります。さらに、不要となった線源の譲渡及び廃棄は、極めて困難であり、実際のところは、(線源製造会社のある)米国に返送するという選択肢をとることになります。

(γ, n) 反応を用いる場合、 γ 線放出核種として ^{124}Sb と ^{226}Ra が用いられてきました。 (α, n) 反応を用いる RI 中性子源からは、連続スペクトルを有する中性子が得られるのとは対照的に、単色の γ 線から、単色性の高い中性子を得ることができたことも、この種の線源が用いられてきた要因となっています。

^{124}Sb -Be は、1.692 MeV の γ 線を用い、Be との (γ, n) 反応により、 $24 \pm 2.2 \text{ keV}$ の中性子を得るものです。中性子発生数は、 $1.0 \times 10^7 \text{ n s}^{-1} \text{ Ci}^{-1}$ とされています[2]. この線源については、 ^{124}Sb の半減期: 60.2 day という短い半減期により、発生中性子数の減少が大きいという問題があります。

これまで見てきたとおり、1960 年代には種々の RI 中性子源が使用されましたが、現在も“標準的な線源”として残っているのは、 ^{241}Am -Be 及び ^{252}Cf 中性子線源のみになります。これらの線源について、RI 中性子線源として広く利用可能なのは、密封線源の形態です。多くはステンレス鋼製二重カプセルに封入され、販売元から供給されます。我が国で入手することを考えると、2017 年 5 月現在では、新規に購入可能な RI 線源は、 ^{241}Am -Be 及び ^{252}Cf 線源で、米国 QSA Global 社から購入することになります。

2.2. ^{241}Am -Be 線源

原子炉を用いた超ウラン元素の精製技術の進展により、 (α, n) 反応を用いる RI 中性子線源のうち、現時点では ^{241}Am -Be が広く普及し、入手も容易な線源です。この中性子源は、平均約 4 MeV と比較的高エネルギーの中性子を放出し、中性子放出に

伴う γ 線の量が割合少ないという特徴があります。 ^{241}Am の半減期は 432.2 year と長く、長期間の使用にも堪えます。近年の動向では、後述の ^{252}Cf と比較して初期費用とランニングコストが低価格に抑えられるため、 ^{241}Am -Be は普及しています。しかしながら、中性子発生効率があまり高くないため、高強度の中性子源は現実には製作困難です。

中性子標準の国際規格である ISO8529 series [3]-[5] に示されている ^{241}Am -Be 線源からの中性子スペクトルを Fig. 1 に示します。4MeV 付近を中心に複雑な構造のスペクトルが得られることが特徴的です。中性子の発生数は、 $2.2 \times 10^3 \text{ n s}^{-1} (37 \text{ MBq})^{-1}$ です[6]. 例えば、37 MBq の ^{241}Am -Be 線源をお持ちの場合、距離の逆二乗則に従うとして、50 cm 離れた位置での中性子束は、約 $0.07 \text{ n cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ となります。

Fig. 1. Neutron spectrum from a ^{241}Am -Be source.

Fig. 2. Neutron spectrum from a ^{252}Cf source.

2.3. ^{252}Cf 線源

自発核分裂による中性子源として、代表的な核種が、 ^{252}Cf 線源です。Fig. 2 に示す通り、 ^{252}Cf 線源は、2.1 MeV 付近にピークを持つ Maxwell 型の中性子エネルギースペクトルを有しています。 ^{252}Cf の半減期は 2.645 year で、中性子放出に寄与するのは、3.1%の確率で生じる自発核分裂です。一崩壊あたり、平均 3.5 個の中性子を放出します[2]. 中性子発生数は、 $4.32 \times 10^6 \text{ n s}^{-1} (37 \text{ MBq})^{-1}$ で

Table 1 Reference radionuclide neutron sources for calibrating neutron-measuring devices [3]

Source	Half-Life [year]	Fluence-average energy [MeV]	Dose-equivalent- average energy [MeV]	Specific Source Strength	Spectrum averaged fluence-to-dose-equivalent conversion coefficient [pSv cm ²]
²⁵² Cf(D ₂ O moderated)*	2.65	0.55	2.1	2.1×10^{15} (s ⁻¹ kg ⁻¹)	105
²⁵² Cf	2.65	2.13	2.3	2.4×10^{15} (s ⁻¹ kg ⁻¹)	385
²⁴¹ Am-B (α ,n)	432	2.72	2.8	1.6×10^{-5} (s ⁻¹ Bq ⁻¹)	408
²⁴¹ Am-Be (α ,n)	432	4.16	4.4	6.6×10^{-5} (s ⁻¹ Bq ⁻¹)	391

* : ²⁵²Cf 密封線源を直径 30 cm の重水球で覆った線源

す[6].

²⁵²Cf 線源は、他の中性子線源に比べて γ 線の放出が少なく、単位放射能あたりの中性子発生量が多い等の特徴は非常に魅力的で、検層などで広く用いられています。一方、線源価格が極めて高価であると同時に、比較的短い半減期のため、トータルコストの面で上述の ²⁴¹Am-Be 線源を所有する方が運用面で有利です。

3. 中性子標準と中性子校正場

本稿において紹介するのは放射線のうちの中性子標準ですが、当該分野に限らず、放射線測定においては、測定値の信頼性をどのように確保するか、ということは重要な課題です。特に、放射線防護上の線量計測にあつては、「この線量は正しいのか？」という問いに対し、適切に回答するとともに、その値について保証することも重要です。これを達成するためには、放射線測定器（特に線量計と呼ばれます）の校正が不可欠です。校正手法も、異なる国、異なる研究所において実施されたとしても、使用する線源の種類と線量計が同じであれば、照射室の大きさ、使用する治具等が異なっている、ある不確かさの範囲内で同じ校正定数が得られるように規格化されています。

中性子線量計の校正手法に関する ISO には、ISO8529 series [3]-[5]があり、使用される線源、評価されるべき物理量、校正の原理、具体的な手法、校正に影響を与える要因とその除去方法、と広くカバーされています。中性子標準では線量計測分野における中性子線量計からの線量の信頼性確保に主眼が置かれており、評価すべき物理量とそれに伴う線量の関連付けが特徴的と言えます。Table 1 では、現在 ISO 8529-1 で標準化された RI 中性子線源を示します。

3.1. 中性子標準と物理量

線量計測 (dosimetry) 分野で用いられる中性子の単位のうち、基準となるのは fluence (フルエンス) です。一方、読者諸賢は、中性子科学をご専門とされており中性子束を表現するのに、flux (フラックス) を用いていると思います。

フルエンス (Φ) は、断面積が da である球を通過する粒子の数を dN としたとき、 $\Phi = dN/da$ で定義されます[7]。フルエンスの SI 単位は、m² (または cm²) です。定義では、面ではなく da という断面積を持つ球を導入している点が重要で、これにより中性子の入射方向を指定せずに、任意の方向から入射する中性子に対しても、単一方向から入射する中性子にも、同一の同じ定義を適用できます。一方の Flux (フラックス) は、単位時間 dt 内での粒子数の増加を dN としたとき、 $\dot{N}=dN/dt$ で定義されます。フラックスの SI 単位は、s⁻¹ となります[7]。

中性子線源からの全中性子放出率 B (n s⁻¹) は、主に標準研究所で値付けされ、トレーサビリティのある物理量となります。日本の場合は、国立研究開発法人 産業技術総合研究所 (AIST) で線源からの全中性子放出率 B の値付けが行われています。B を極めて正確に決定する手法にはいくつか提案があり、既に運用されています[8]。線源の個体により、同一種類同一強度の RI 線源で、正確に半減期補正をしたとしても、理論値通りの同一の値が得られません。そのため、中性子校正場構築の際には、B の決定が極めて重要となります。当方が維持管理している中性子校正場には、2 つの 37 GBq の ²⁴¹Am-Be 線源があり、それぞれ 2017 年 5 月時点で、 2.35×10^6 n s⁻¹ 及び 2.12×10^6 n s⁻¹ となっており、この違いを説明するには、線源製造過程で ²⁴¹Am と Be との混合によるなんらかの影響を考慮する必要があります。

3.2. 中性子フルエンス率の導出

RI 中性子線源の場合、線源中心から距離 L cm にある校正点でのフルエンス率 ϕ ($\text{n cm}^{-2} \text{s}^{-1}$) は下式(1)に従って求めます。

$$\phi = \frac{B}{4\pi L^2} \times F_I(\theta) \times F_A(L) \quad (1)$$

ここで、 $F_I(\theta)$ 及び $F_A(L)$ は、それぞれ中性子放出の非等方性に対する補正係数及び空気による中性子の散乱に対する補正係数を示しています。さらに、中性子フルエンス率から評価すべき周辺及び個人線量当量への換算は、Table 1 にも示しているフルエンス線量当量換算係数を乗じて計算で求めます。

3.3. 中性子放出の非等方係数の導出

全中性子放出率はあらゆる方向に放出される中性子の総量であるものの、一般的に入手可能な円筒形ステンレスカプセルに入った線源からの中性子放出には角度依存があることがわかっています。ISO 8529-1 では $F_I(\theta)$ を測定で求めることになっているため、当方が維持管理する中性子校正場でもエネルギー応答がフラットなロングカウンタを用いた測定で導出しています。

例えば Fig. 3 で示すように、市販のステンレス製円筒型 $^{241}\text{Am-Be}$ 線源には、円筒軸を中心とした天頂角方向に中性子放出の角度依存があることが示されています。中性子校正場の場合、特に円筒の真横にあたる、 $\theta = 90$ 度の値を精度よく決定することが重要となります。この値も、全中性子放出と同様に個体差があり、同種の円筒形カプセルを使用しているのに同じ値を用いる、ということができません。しかしながら、その個体差は数パーセント程度となっています。

Fig. 3. Comparison of the measured angular distribution of the anisotropic emission from X3 type $^{241}\text{Am-Be}$ neutron source [9].

4. おわりに

本稿では、RI 線源から国際標準化機構 (ISO) で標準 RI 中性子線源として定められた、 $^{241}\text{Am-Be}$ 及び ^{252}Cf 中性子線源に簡単に触れ、中性子標準と校正場構築に関する計測の一部をご紹介しました。特に、(1) $^{241}\text{Am-Be}$ 及び ^{252}Cf 中性子線源についての特徴を整理し、(2) 中性子校正場で用いられる単位と主なパラメータについて紹介し、(3) 校正場構築時に必要な測定について述べました。本稿をきっかけとして、お手持ちの検出器チェック用中性子線源にもご興味が深まり、参考文献などもご覧いただけますと幸いです。

参考文献

- [1] J.B. Marion and J. L. Fowler, FAST NEUTRON PHYSICS part I: Techniques, interscience publishers Ltd., London (1960) pp.3 -48.
- [2] K. H. Beckurts and K. Wirtz, NEUTRON PHYSICS, Springer-Verlag (1964) pp.26-34.
- [3] ISO: ISO 8529, Reference neutron radiations, - Part 1, Characteristics and methods of production (2001).
- [4] ISO: ISO 8529, Reference neutron radiations, - Part 2, Calibration fundamentals of radiation protection devices related to the basic quantities characterizing the radiation field (2000).
- [5] ISO: ISO 8529, Reference neutron radiations, - Part 3, Calibration of area and personal dosimeters and determining of their response as a function of neutron energy and angle of incidence (1998).
- [6] 財団法人 原子力安全技術センター, 放射線施設のしゃへい計算実務マニュアル (双文社, 東京, 2007), 6.6, p. 6-113.
- [7] ICRU REPORT No. 85, FUNDAMENTAL QUANTITIES AND UNITS FOR IONIZING RADIATION (Revised). Journal of the ICRU 11 No. 1 (2011) Oxford University Press. pp.12.
- [8] 工藤 勝久, 循環式マンガンバス法による電総研標準 Cf-252 中性子源放出率の測定, 日本原子力学会誌 Vol. 23 (1981) No. 1 P 62-65 doi/10.3327/jaesj.23.62.
- [9] 古渡ら, $^{241}\text{Am-Be}$ 線源からの中性子放出の非等方係数の決定, RADIOISOTOPES Vol. 57 (2008) No. 9 P 559-569. doi/10.3769/radioisotopes.57.559.
- [10] Bardell, A. G., Burke, M., Hunt, J. B., Tagziria, H. and Thomas, D. J., Anisotropy of Emission from Radionuclide Neutron Sources, NPL Report CIRM 24, December (1998).