一般論文

核分裂片飛跡のスパーク計数法による
熱中性子束密度の測定森嶋彌重^{*1}, 古賀妙子^{*1}, 丹羽健夫^{*1}, 本田嘉秀^{*2}
河合 廣^{*1}, 長野文彦^{*2}, 西脇 安^{*3}

(1975 年 4 月 21 日 受理)

Measurement of Thermal Neutron Flux by Means of
Spark Counting Technique of Etched Nuclear TracksHiroshige MORISHIMA,^{*1} Taeko KOGA,^{*1} Takeo NIWA,^{*1} Yoshihide HONDA,^{*2}
Hiroshi KAWAI,^{*1} Fumihiko NAGANO^{*2} and Yasushi NISHIWAKI^{*3}

The measurements of thermal neutron flux were made by means of electrical spark counting technique of etched nuclear tracks on polycarbonate foils of 18 μm thickness. By this method, spark counts of etch-pits below 400/cm² on the foil can be counted within about 10% relative standard deviation and the minimum detectable limit of thermal neutron fluence was about 10⁵/cm². The result of the thermal neutron distribution in a reactor (UTR-B) by electrical spark counting technique was in good agreement with that estimated by Au activation method within 6% deviation. The leakage of thermal neutron from the reactor operated at 0.1 watts for 3 hours was also determined to be $1.2 \times 10^6/\text{cm}^2$ (about 0.5 mrad/3 hr) by this method.

I 緒 論

中性子線束あるいは中性子線量の測定法としては、従来いろいろな方法が利用されてきたが、重荷電粒子である核分裂片の固体に対する放射線損傷の研究とエッチング法の利用により、いわゆる核分裂片による固体飛跡検出法が大変有用であることが認められるようになった¹⁻⁵⁾。固体飛跡検出器としては現在、主としてガラス、雲母およびプラスチックなどの絶縁性固体が用いられ、エッチングされたこれらの核分裂片飛跡の観察、計数法

としては、光学顕微鏡¹⁻⁶⁾や投影法⁷⁾とともにレプリカ法⁷⁾が用いられてきたが、これらの方法は多数の試料を処理する場合には、時間がかかり、また疲労度も大きい。ため、検出用薄膜上の核分裂片飛跡のスパーク計数法が W.G. CROSS と L. TOMMASINO⁸⁾により開発された。この方法は、検出用薄膜を金属板電極とナイフエッジ電極との間にはさみ電圧をかけ、検出用薄膜上のエッチホールをナイフエッジ電極により走査して、放電パルスの計数を行なったものであるが、さらに高密度のエッチホールの計数と迅速化のために改良され、両電極とも平面として電圧をかけ、生じる放電パルスを計数した⁹⁻¹²⁾。そして、核分裂物質と固体飛跡検出用薄膜の適当な組合せにより、測定可能な中性子エネルギーとその中性子線束密度を変えることが可能となり、中性子線量測定に適用された。E.T. AGARD ら¹³⁾は、広い範囲のエネルギー域における中性子線量測定を検討した。S. PRETTE ら^{14,15)}は、放射線管理のための中性子線量計として利用の可能性を示した。スパーク計数法は、また核分裂片飛跡のみならず、アルファ粒子飛跡計数にも応用されることが報告され^{6,16-18)}、(n, α) 反応やウラン鉱中のラドン

^{*1} 近畿大学原子力研究所保健物理学研究室；東大阪市小若江 3-4-1 (〒577)

Lab. of Health Physics, Atomic Energy Research Institute, Kinki Univ.; 3-4-1, Kowakae, Higashi-Osaka-shi, Osaka-fu.

^{*2} 近畿大学理工学部原子炉工学科；東大阪市小若江 3-4-1 (〒577)

Dept. of Nuclear Reactor Engineering, Faculty of Science and Technology, Kinki Univ.; 3-4-1, Kowakae, Higashi-Osaka-shi, Osaka-fu.

^{*3} Div. of Health, Safety and Waste Management, International Atomic Energy Agency; Kaerntner Ring 11, Vienna, Austria.

およびその娘核種の個人被曝線量測定, さらに反跳反応による速中性子測定などにも応用される。

欧米では, エッチホルルのスパーク計数法が固体飛跡計数法のもっとも簡便なものとして, 可搬型の装置が実用化されているが, 著者らは国産材料の $18\ \mu\text{m}$ 厚のポリカーボネートを飛跡検出用薄膜とし, 核分裂物質ターゲットとして, 天然ウランの組合せで近畿大学原子炉 UTR-B で中性子照射を行ない, 炉内熱中性子束密度測定およびスパーク計数法について検討を行なった。

II 実 験

1. 材 料

核分裂片飛跡検出用薄膜としては $18\ \mu\text{m}$ 厚の帝人(株)製ポリカーボネートを, 核分裂物質のターゲットとしてステンレス製板 ($\phi 3.3\text{ cm}$) に電着した天然ウランを用いた。電着されたウラン量は, 2π ガスフロー計数装置 (旧富士通製, GCS-1A) により, その α 放射能を測定することにより算出し, 格子付電離箱 (大阪電波製, GIC-I) による α 線エネルギースペクトル測定により, ウラン以外の核分裂物質の混在しないことを確認した。核分裂物質ターゲットと飛跡検出器であるポリカーボネートを密着し, セロテープで固定して照射試料とした。

2. 中性子照射

Fig. 1 に示した近畿大学原子炉 UTR-B の中央黒鉛反射材上, 試料照射用ストリンガー (No. 4) の照射孔 5 点および原子炉遮蔽タンク上蓋の中央にある原子炉起動用中性子源挿

Horizontal View of UTR-B Sample Hole of Stringer

Fig. 1 Schematic representation of sample locations in reactor (UTR-B).

入孔付近において, 熱出力 0.1 W で中性子照射を30分~6時間行なった。熱中性子束密度の較正は金箔の放射化法により行ない, 最高熱中性子束密度は $2 \times 10^6/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ であった。

3. エッチング法

中性子照射後, ポリカーボネートを 60°C の 30% 水酸化カリウム溶液に 20 分間浸し, マグネチックスターラーで攪拌しながらエッチングを行なった。ポリカーボネートは流水で水洗の後, 60°C で乾燥しデシケータ中に保存した。

4. 光学顕微鏡による観察

オリンパス(株)製顕微鏡 (ECE Tr-II), 倍率 400 倍で, 薄膜上のエッチピットの計数を 30 視野について行なった。

5. スパーク計数法¹²⁾

装置の検出部を Fig. 2 に示した。検出部の外装はベ

Fig. 2 Circuit diagram and detector set of electrical spark counting.

ークライト製で, 電極板は直径 2.6 cm の銅製とし, 飛跡検出用ポリカーボネートに, もう一方の電極であるアルミニウム蒸着のポリカーボネート (蒸着アルミニウムの厚さ: $500\text{ \AA}$, 帝人(株)製) を重ねて, 1.85 kg の鉛板をのせ, 電極間にはさんだポリカーボネートに均一に圧力がかかるようにして, スパーク放電が一樣となるようにし, Fig. 2 に示した回路でスパーク計数を行なった。操作は, まず電圧 $1,400\text{ V}$ でスパークによるパンチング (コンデンサー容量: $0.5\ \mu\text{F}$) を行ない, つぎに小孔のできたポリカーボネートを新しいアルミニウム蒸着ポリカーボネートに重ね, 750 V の低い電圧でスパーク (コンデンサー容量: $5 \times 10^{-4}\ \mu\text{F}$) を行ない, 通常の $1,000$ 進計数装置 (富士電機製, SA-250) でスパークパルスを計数した。

III 結果と考察

1. ポリカーボネートにおける核分裂片飛跡の計数法について

(1) 光学顕微鏡による計数

絶縁固体中の重荷電粒子飛跡は μm 以下で、そのままでは電子顕微鏡でのみ観察できる大きさであるが、エッチングにより拡大され、300~400 倍の光学顕微鏡で観察計数できるようになる。中性子照射による核分裂物質ターゲットにおける核分裂表面密度は、中性子束密度 ($/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$)、中性子照射時間 (sec)、核分裂断面積 (cm^2)、および核分裂物質の原子数密度 ($/\text{cm}^2$) の積として求められ、ターゲット中の核分裂核種が1種類であるときは、次式で示される。

$$F = \int_0^E \int_0^t W \frac{N}{A} \sigma(E) \phi(E, t) dt dE$$

ここで、 F =核分裂数表面密度 ($/\text{cm}^2$)

W =ターゲット中の核分裂核種の表面濃度 (g/cm^2)

N =アボガドロ数

A =核分裂核種の原子量

$\sigma(E)$ =エネルギー E の中性子に対する核分裂断面積 (cm^2)

$\phi(E \cdot t)$ =エネルギー E の中性子束密度 ($/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$)

である。核分裂物質として天然ウランを用いた場合、照射位置においては熱中性子による ^{235}U の核分裂以外の核分裂数の寄与 (速中性子による ^{238}U の核分裂など) は、全体の3%をこえないと思われる。ターゲット中の電着された核分裂核種は、非常に薄い膜 (最大厚さ $0.11 \mu\text{m}$) を成しており、その厚さは核分裂片の飛程 (密度 $19.3 \text{ g}/\text{cm}^2$ の物質中で $7.1 \sim 12.9 \mu\text{m}^{19)}$ 以下であり、自己吸収は無視できる。上式により計算で求めた核分裂数の表面密度の理論値と、倍率400倍の光学顕微鏡で計数したエッチピット数との関係を Fig. 3 に示した。最小自乗法により、 $y = 1.03x - 0.12$ の直線関係が得られたが、検鏡法によるエッチピット計数において、検出用薄膜単位面積 (cm^2) 当り 220 個、すなわち核分裂物質電着面積 (4.52 cm^2) 当り 1,000 個以上のエッチピットに対しては約 20% の相対標準偏差を、これより少ないエッチピット数の測定の場合には、約 30% の相対標準偏差を示した。そして、ターゲット中の天然ウランの表面濃度 $2.2 \sim 22 \mu\text{g}/\text{cm}^2$ において、ポリカーボネートを検出器とした場合、飛跡検出の効率 $\varepsilon (\varepsilon = P/F, P: \text{エッチピット表面密度}, F: \text{核分裂数表面密度})$ は 1.02 ± 0.27

Fig. 3 Relation between microscopically observed numbers of etch-pits and expected numbers of fissions.

Fig. 4 Sparking rate decays.

が得られ、鶴田⁴⁾による雲母、ガラスと同様、飛跡検出効率率はほぼ 100% であった。

(2) 核分裂片飛跡のスパーク計数について

照射したポリカーボネートは、検鏡法の場合と同様にエッチングした後、前記の方法でスパーク計数を行なった。パンチング電圧1,400V、カウンティング電圧750Vにおけるそれぞれの計数率は、Fig. 4 に示したように時間とともに指数関数的に減少したが、1,400Vにおけるパンチング計数はほぼ数秒で終るため、そのスパーク

パルスの計数には高速計数装置を用いても数え落しがあり, 改めてより低い電圧 (750 V) で再計数を行なうことが必要である。両電極に電圧をかけた場合, コンデンサーに蓄えられた電気がエッチホールでスパークすると, 負電極となっている蒸着アルミニウムが蒸発する。つぎに, 充電によりコンデンサーの電圧が次第に上がり, つぎのエッチホールでスパークする。1 回スパークしたエッチホールの所は, 電極部分のアルミニウムが蒸発しているの, 同じエッチホールで 2 度スパークする確率は小さい。高密度エッチホールの検出用薄膜では, 1 つのエッチホールでスパークすると, スパークによって蒸発したアルミニウムの孔 ($\phi 0.6 \sim 0.7$ mm) の面積中に含まれる他のエッチホールでは, もはやスパークせず, 数え落しの原因となる。したがってスパーク計数値の上限は蒸発アルミニウム孔の大きさが関係するが, 著者らの実験条件では約 $400/\text{cm}^2$ であった。E.T. AGARD ら¹³⁾ による結果では, 検出用薄膜として $10\text{ }\mu\text{m}$ の Makrofol G により, スパーク計数値の上限は約 $220/\text{cm}^2$ と報告しているが, W.G. CROSS と L. TOMMASINO^{9,10)} によると, 同じ薄膜で $5,000/\text{cm}^2$ まで測定可能であるとしている。このスパークの際のアルミニウムの蒸発は, スパーク計数の際のいろいろな条件に依存するが, 特に電極にかけるべき最適のパンチングおよびカウンティング電圧は, アルミニウム蒸着薄膜のアルミニウムの厚さに依存することが報告されている¹³⁾。アルミニウム蒸着膜厚 $500\text{ }\text{\AA}$ におけるそれぞれの最適電圧は, $1,400\text{ V}$ および 750 V であった¹²⁾。

電着された核分裂物質の量より計算した核分裂数表面密度と, スパーク計数法により測定したエッチホールの数との関係を Fig. 5 に示した。これによると, スパーク計数値が単位面積当たり約 400 個までは計算値と比例関係にあるが, 単位面積当たり 400 個以上になるとスパーク数は飽和状態になり, 前述の蒸発したアルミニウム面積より推定した計算値の上限値とほぼ一致している。直線関係にある範囲のスパーク計数値に対しては, 相対標準偏差 10% 以内で計数可能である。

2. 熱中性子フルエンスとスパーク計数値との関係

ターゲット中の核分裂物質としてのウラン量を $10\text{ }\mu\text{g}$ および $100\text{ }\mu\text{g}$ について (電着面積 4.52 cm^2), 照射熱中性子フルエンスと検出用薄膜上に生じたエッチホールのスパーク計数値との関係を Fig. 6 に示した。ウラン $10\text{ }\mu\text{g}$ では, 熱中性子フルエンス $10^7 \sim 10^{10}/\text{cm}^2$ の範囲において, スパーク計数値との間に直線関係が得られた。ウラン $100\text{ }\mu\text{g}$ になると, 熱中性子フルエンスとスパーク計数値との直線関係は, 熱中性子フルエンス, $3 \times 10^9/$

Fig. 5 Relation between counted sparks and expected numbers of fissions.

Fig. 6 Relation between counted sparks and thermal neutron fluence.

cm^2 が上限となり, それ以上ではスパーク計数値は飽和に達する。ターゲット中のウラン量と熱中性子フルエンスが直線関係にある範囲を, Table 1 に示した。E.T. AGARD ら¹³⁾ によれば, 核分裂物質を一定とした場合スパーク計数値と中性子フルエンスの間の直線性は, スパーク計数の際の陰極となるアルミニウム蒸着膜が薄いほど広がると報告している。今回の実験では, アルミニウ

Table 1 Measurable range of thermal neutron fluence using the spark counting method.

Detector	Fissile material natural U $\mu\text{g}/4.52 \text{ cm}^2$	Range of thermal neutron fluence ($/\text{cm}^2$)
Insulating foil		
	10 μg	10^7 — 10^{10}
Polycarbonate (18 μm)	100 μg	10^6 — 10^9
	1,000 μg	10^5 — 10^8

Fig. 7 Distribution of thermal neutron flux in No. 4 stringer of UTR-B. **Fig. 8** Rad response of a pure ^{235}U -detector between 0.012 and 0.17 eV.

ク計数値と熱中性子フルエンスとの間の直線性の範囲を決定できた。低レベルの熱中性子フルエンスの測定にはウラン量として 1 mg を使用して、熱中性子フルエンス $10^5/\text{cm}^2$ が測定可能となる。

3. スパーク計数法による炉内熱中性子束密度の測定

近畿大学原子炉 UTR-B の炉内熱中性子束密度を、前述のスパーク計数法および金箔放射化分析法により測定し、比較を行なった。核分裂物質(ターゲット)としては電着ウラン試料 10 μg を使用し、UTR-B の照射用ストリンガーにおける熱中性子束密度分布を **Fig. 7** に示した。熱中性子束密度は、ストリンガーの上部より徐々に上昇し、上端より約 60 cm の位置にある照射孔 No. 4 において最も高く、 $1.18 \times 10^6/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$ (金箔放射化法では $1.12 \times 10^6/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}$) となり、それ以下では減少した。両法による結果は、約 6% 以内で一致した。熱中性子束密度の非常に低い場所として、原子炉遮蔽タンク上蓋上の原子炉起動用中性子源挿入孔付近における 0.1 ワット、3 時間原子炉運転中の漏洩熱中性子フルエンスをターゲットとして、ウラン量 1 mg を用いて測定した結果、 $1.2 \times 10^6/\text{cm}^2$ であった。この値は、S. PRETRE の論文¹⁴⁾より、直角入射における熱中性子フルエンスの吸収線量への換算図 (**Fig. 8**) から概算すると、漏洩熱中性子吸収線量は約 0.5 mrad となった。

IV ま と め

飛跡検出固体として 18 μm 厚の帝人樹脂製のポリカーボネート、およびターゲットとして天然ウラン電着板を用いた核分裂片飛跡のスパーク計数法により、熱中性子束密度の測定を検討した結果をまとめると、

1. 光学顕微鏡下での観測では計数が困難であると思われるスパーク計数値約 $400/\text{cm}^2$ 以下のエッチピットのスパーク計数法による相対標準偏差は 10% 以下で、スパーク計数のみに要する時間は 2~3 分間であり、本法は非常に有効である。

2. ターゲットとしての天然ウラン量 (10 μg ~1 mg) を変化させることによって、熱中性子フルエンス 10^5 ~ $10^{10}/\text{cm}^2$ までスパーク計数法により測定可能であった。

3. 原子炉内熱中性子束分布の測定を、核分裂片飛跡のスパーク計数法と金箔放射化分析法により比較した結果、約 6% 以内で一致した。

4. 熱出力 0.1 ワットで 3 時間運転された原子炉からの漏洩熱中性子を本法で測定して、その中性子フルエンスは $1.2 \times 10^6/\text{cm}^2$ (約 0.5 mrad/3 hr) であった。

この研究を通じ、実験材料の入手にひとかたならぬお

ム蒸着膜 500 $\text{\AA}$ のポリカーボネートのみにより実験を行なったため、ウラン量を変化させることにより、スパー

便宜を計っていただきました帝人株式会社に謝意を表します。

参 考 文 献

- 1) 阪上正信, 中西 孝; 日本原子力学会誌, 11(6), 332 (1969).
- 2) Y. NISHIWAKI, H. KAWAI, H. MORISHIMA, S. IWATA and T. TSURUTA; Rapid Methods for Measuring Radioactivity in the Environment (Proc. Symp. Neuherberg, 1971), p. 267 (1971), IAEA, Vienna.
- 3) Y. NISHIWAKI, T. TSURUTA and K. YAMAZAKI; *J. Nucl. Sci. Technol.*, 8(3), 162 (1971).
- 4) 鶴田隆雄; 日本原子力学会誌, 14(9), 462 (1972).
- 5) Y. NISHIWAKI, T. TSURUTA, T. ONO, K. YAMAZAKI, Y. FUKANO and M. MARUYAMA; *Bull. Tokyo Inst. Technol.*, 83, 131 (1968).
- 6) H. HASEGAWA, M. MATSUO, K. YAMAKOSHI and K. YAMAZAKI; *Radioisotopes*, 17 (9), 419 (1968).
- 7) 阪上正信; “粒子トラックとその応用”, p. 78 (1973), 南江堂, 東京.
- 8) L. TOMMASINO and W.G. CROSS; *Health Phys.*, 15, 196 (1968).
- 9) W.G. CROSS and L. TOMMASINO; Neutron Dosimetry in Biology and Medicine (Proc. Symp. Neuherberg/Munich, 1972), p. 283 (1972), IAEA, Vienna.
- 10) W.G. CROSS and L. TOMMASINO; *Radiation Effects*, 5, 85 (1970).
- 11) F.J. CONGEL, T.H. ROBERTS, D. DREIS, J. KASTNER, B.G. OLTMAN, R. GOLD and R.T. ARMANI; *Nuclear Instruments and Methods*, 100, 247 (1972).
- 12) Y. NISHIWAKI, H. KAWAI, H. MORISHIMA, T. KOGA and Y. OKADA; Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes (Proc. Symp. Vienna, 1972), p. 117 (1973), IAEA, Vienna.
- 13) E.T. AGARD, R.E. JERVIS and K.G. McNEILL; *Health Phys.*, 21, 625 (1971).
- 14) S. PRETRE; Neutron Monitoring for Radiation Protection Purposes (Proc. Symp. Vienna, 1972), p. 99 (1973), IAEA, Vienna.
- 15) M. SOHRABI and K. BECKER; ORNL-TM-3605, p. 1 (1971).
- 16) K. BECKER; *Health Phys.*, 16, 113 (1969).
- 17) D.R. STONE; *Health Phys.*, 16, 772 (1969).
- 18) D.R. JOHNSON, R.H. BOYETT and K. BECKER; *Health Phys.*, 18, 424 (1970).
- 19) J.B. NIDAY; *Physical Review*, 121, 1471 (1961).

資 料 頒 布 の お し ら せ

当会でまとめた下記資料を頒布しております。入手を希望される方は、本会事務局あてにお申し込みください。なお、郵送料は希望者が負担してください。

1. ICRP に関する学習資料 (残り数冊)
B 5 判, 71 頁, 定価 200 円 (郵送料 85 円)
2. 放射線事故等の原因分析と安全対策上の問題点の提起
A 4 判, 40 頁, 定価 300 円 (郵送料 70 円)
3. 放射線の許容線量——その性格と背景——
B 5 判, 93 頁, 定価 500 円 (郵送料 115 円)