講 座

中性子による計測と利用

X. 中性子ラジオグラフィ

4. RI 線源による中性子ラジオグラフィ[†]

石川 勇

日本原子力研究所東海研究所アイソトープ部利用開発室
311-13 茨城県東茨城郡大洗町成田町

Key Words: neutron radiography, radioisotope, neutron source, californium-252, moderation, collimation

1. はじめに

これまで原子炉の中性子を利用する中性子ラジオグラフィについて解説されてきたが、この項では、ラジオアイソトープ (RI) 中性子源を利用するラジオグラフィ技術について紹介する。中性子ラジオグラフィ技術全体の最近の研究や利用の概要については、それぞれの専門誌^{1), 2)} において紹介されているが、残念ながら研究活動と利用状況を反映して RI 中性子源を利用した記述はあまりない。ここでは、はじめに RI 中性子ラジオグラフィに特異な点を述べたのち、国内における研究および利用状況、諸外国の状況について紹介する。

2. RI を中性子源とする場合

中性子ラジオグラフィ技術において、中性子源としてアイソトープを用いるために必要なのは、いかに中性子束密度の低い照射場でも実用

になる像が得られるような技術である。1932年に中性子が発見されて以来、技術的な進展がなく、1964年になってようやく非破壊試験に関する国際学会に中性子ラジオグラフィのセッションが持たれた。そのころ出版された H. Berger の書物³⁾ によれば、ラジオグラフィの中性子源としての検討項目は、中性子エネルギーと強度、 γ 線エネルギーと強度、価格、大きさ、移動の容易さ、遮蔽の問題それに実用性が含まれる。加速器による場合と同様に、アイソトープを中性子源とする場合、熱中性子ビームを得るためには、高速中性子の減速とコリメーションの解決が重要な点である。

ラジオアイソトープの中性子源については、この講座のⅢ. 中性子源⁴⁾ のはじめに述べた。若干補足すると、1956年にそれまで使われていた Ra-Be 線源よりもずっと強力なカリホルニウム-252 が新しい中性子源として初めて紹介⁵⁾ された。それから40年経過した今日でも、この線源は、広い範囲での応用に用いられ掛け替えのない、独特なアイソトープとして評価されている。最近、利用できるようになったインターネットでも、アイソトープを用いた中性子ラジオグラフィ施設のディレクトリーを入手することができる。ANL の G. R. Imel がデータ

[†] Neutron Beam Analysis and Its Application. X. Neutron Radiography. 4. Neutron Radiography with Radioactive Source. Isamu ISHIKAWA: Department of Radioisotopes, Japan Atomic Energy Research Institute, Narita-cho, Oaraimachi, Higashi-Ibaraki-gun, Ibaraki Pref. 311-13, Japan.

ベース化したもので、それによるとブラジル、ドイツ、ロシア、アメリカ、日本に 1.85×10^{11} Bq Am-Be, 3.7×10^{13} Bq Sb-Be, 1 mg - 150 mg の Cf などが 9 か所に装備されていることがわかる。関心のある方は、<http://anlsun.ebr.anlw.anl.gov/docs/nr/index.htm> を訪ねるとよい。

^{252}Cf 中性子源から熱中性子を得るには、線源を適当な中性子減速材で取り囲み、平均 2 MeV の高速中性子を減速・熱化する。減速材としては水、パラフィンまたはポリエチレンが適当である。ANISN コードで計算⁶⁾ されていて、水の場合、半径 15 cm, ポリエチレンの場合 12.5 cm で、実験値とほぼ一致している。

減速後系外へ熱中性子をビームとして取り出すには、コリメータを減速材に挿入する。コリメータ出口で高い熱中性子束密度を得るには、コリメータの入口が熱中性子束密度のピーク位置になるように、また熱中性子束を乱さないように配置する。その位置は中性子源から約 2.5 cm である⁶⁾。ヨーロッパ共同体委員会の中性子ラジオグラフィワーキンググループがまとめた、熱中性子ラジオグラフィのためのコリメータと題する書物⁷⁾ がある。かなり詳しく記述されていて、日本原子力研究所(原研)・大洗研の ^{252}Cf 中性子源を用いる中性子・ γ 線同時ラジオグラフィ装置が図面入りで紹介されている。

中性子ビームの利用に関する資料としては、 ^{252}Cf 線源からの高速中性子を減速して、一方向に強調された熱中性子ビームを取り出すための中性子ホイットターの最適条件を実験的に検討した報告など^{8),9)} がある。

3. 国内の RI 中性子ラジオグラフィ

原研では、「 ^{252}Cf 中性子源利用技術の研究」のテーマで、実験施設、装置の整備および利用技術に関する基礎研究を昭和50年度から進めた。その後、 ^{252}Cf 中性子源の中性子応用計測、放射化分析、中性子ラジオグラフィなどの利用技術に関する需要、要望について調査¹⁰⁾ を行

い、中性子ラジオグラフィについては当時すでに国内で実施しているところもあり、期待のできる技術であるとの評価が高かった。原子力関係の分野では、原子炉を用いたラジオグラフィのサービス機関がすでにアメリカ、フランスで行われていたため、国内でも ^{124}Sb -Be 中性子源を用いる計画が進んでいた。また、航空機関係の分野では、高度の信頼性を要求する分野であるため、これまで X 線や γ 線で不可能とされてきた厚い金属に隠れたアルミニウムの腐食の検査やハニカム構造の接着部の欠陥検査に中性子ラジオグラフィが有効であるとの情報を得、技術者をアメリカに派遣して ^{252}Cf 中性子ラジオグラフィの技術取得を行うなどの取り組みをした。そして、近い将来航空機の検査技術の一つとして中性子ラジオグラフィによる検査が規格化されるものと予測していた。そのため、国内でも実用化に先立って適用条件についての積極的評価実験が望まれていた。さらに一般工業分野では、火薬検査、電線検査、溶接部の検査などへ適用する準備を進めていた。

この調査結果を踏まえて、本格的に原研では中性子ラジオグラフィ技術の開発研究に取り組んだ。昭和49年、 ^{252}Cf 中性子源 250 μg (5 GBq) を導入し、実験装置、施設などを整備した¹¹⁾。さらに昭和51年には、 ^{252}Cf を 0.5 mg (10 GBq) に増量するとともに中性子ラジオグラフィ装置を設計、製作した^{12),13)}。特性試験の後、応用研究として、軽水炉燃料ピン中への侵入水の検出実験、航空機および重機械などの各種部品材料のラジオグラフィ適用性、航空機用アルミハニカム構造材の接着材の欠陥検出への適用性および航空機緊急脱出装置における火薬リレーの検査などを試み、それぞれ実用化への見通しを得た。

中性子ラジオグラフィの実用性を左右する重要な点は像質と撮像に要する露出時間の二つである。この二つは、① ^{252}Cf 中性子の減速・熱化、②熱中性子ビームの減速系外への取出し、③熱中性子ビームのコリメーション、④熱中性

子像検出方法、の四つによって決まる。平均エネルギー約 2 MeV の高速中性子を放出するので、熱中性子ラジオグラフィを行うには、これらの高速中性子を適当な減速材を用いて効率良く減速し、エネルギーの低い熱中性子に変えることが必要である。また、生成した熱中性子を減速材の外側へできるだけ強いビームとして取り出す工夫が必要である。そして、鮮鋭な像を得るため、熱中性子のビームの方向が揃ったもので、熱中性子源の実効的な線源寸法が出来るだけ小さくするというビームのコリメーションに関する検討が必要である。さらに、得られた熱中性子ビームの強度に応じた像の検出方法に関する検討が必要である。

以上四つの要因に関する基礎的実験の結果を踏まえて設計・製作¹⁴⁾した照射装置の断面を図に示した。1 mg (20 GBq) の ^{252}Cf 中性子源をこの装置のほぼ中央、S で示した位置に置き、 ^{252}Cf 中性子源の周りは減速材として選んだ高密度ポリエチレンで取り囲んである。その外側

には ^{252}Cf 中性子源から放出される一次 γ 線と減速材中で熱中性子捕獲反応の結果発生する捕獲 γ 線とを遮蔽するために厚さ 4 cm の鉛を置いてある。その外側には、中性子を遮蔽するためホウ酸入りパラフィン置き、全体を金属製容器に収めた。装置の特徴は、コリメータの出口において直径 20 cm の大きな照射野を持ち、熱中性子の入口部の直径が 10, 20, 40 mm とそれぞれ異なった水平方向 2 個、垂直方向 1 個、計 3 個の発散型コリメータを備えていることである。図 2 は熱中性子ラジオグラフィ装置の外観である。4 個のキャスターと 4 個のフックにより屋外の任意の場所へ移動して使用できる。装置の重さは 1 150 kg であり、装置の表面における漏洩放射線量率は中性子 $57 \text{ mrem} \cdot \text{h}^{-1}$ 、 γ 線 $58 \text{ mR} \cdot \text{h}^{-1}$ 、合計 $115 \text{ mrem} \cdot \text{h}^{-1}$ 、表面から 1 m の位置においては中性子と γ 線とを合わせて $10 \text{ mrem} \cdot \text{h}^{-1}$ である。これらの値は放射性同位元素等車両運搬規則に定められた放射線量率以下になっており、装置を車両により外へ持ち出すことが可能である。コリメータの出口すなわちフィルム位置における熱中性子束密度は $3 \times 10^3 \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であり、この値は原子炉を中性子源として用いる場合と比べると 4-5 桁低く、 γ 線量率に対する熱中性子束密度の割合は $2.9 \times 10^4 \text{ cm}^{-2} \text{ mR}^{-1}$ である。この熱中性子ビームにはかなりの γ 線が混在している

図 1 高性能 ^{252}Cf 中性子ラジオグラフィ照射装置

図 2 熱中性子ラジオグラフィ装置外観

ことを示して、ラジオグラフの撮像にあたっては格別の工夫が必要であることを示している。高速中性子の熱化の尺度となるカドミウム比はインジウム箔を用いて測定した結果1.7で、熱中性子ラジオグラフィにおいては適当な値である。

本装置の特徴はコリメータの出口において直径 20 cm の大照射孔を持つ三つのコリメータを有し、三方向同時照射が可能なことで、これによって作業能率は大幅に改善した。本装置の導入によって、熱中性子束密度が低く、露出に長時間を要するという ^{252}Cf 中性子ラジオグラフィの欠点を補うことができた。そして比較的大きい照射野 (200 mm ϕ) を持つ 3 方向ビームの同時使用の有効なことを明らかにするとともに、各ビーム照射孔での熱中性子純度は十分に高く、ラジオグラフのコントラストは原子炉熱中性子ビームの場合に匹敵するほどのよい結果が得られた。

また、 ^{252}Cf 線源の増強 (250 μg - 1 mg) により高分解能フィルムの使用が可能となり像質を改善することができたが、さらに、検出部に改良を加えて明るい像を得るため、マイクロチャンネルプレートを用いた撮像系の最適化とその性能評価実験を行った。その結果、この方式が低い中性子束下での迅速撮像に有効であることを確認することができた。また、増強された像を高感度 TV カメラを通し、デジタル画像処理する装置を整備した。

本装置により原子力、宇宙・航空および一般工業部品に対する有用なラジオグラフが得られた。その上、新しい技術として、 ^{252}Cf からの中性子と γ 線とを同時に利用し、図 3 に示すような熱中性子像と γ 線像を同時露出撮像する新しい方法を考案した。

^{252}Cf 線源以外のアイソトープ中性子源によるラジオグラフィ装置の検討もある。原研・大洗研の材料試験炉では、原子炉燃料中の水素化物や燃料棒内への浸水の非破壊検査に適用することを目的として、 ^{124}Sb -Be 中性子源の実用

図 3 ^{252}Cf 中性子源による熱中性子および γ 線同時ラジオグラフィの一例 (加工品ダミー)
上: 熱中性子ラジオグラフ, 下: γ 線ラジオグラフ

化の可能性を検討¹⁵⁾した。

4. 国外の RI 中性子ラジオグラフィ

外国における中性子ラジオグラフィ技術の様子については、最近の文献¹⁶⁾に詳しく述べられている。

1960年代に中性子ラジオグラフィ技術が進展する中で、1968年秋、点線源に近い新しいアイソトープ中性子源として、 ^{252}Cf 線源の特性が Savannah River 研究所から報告¹⁷⁾され、1970年代の始めには数 g の利用の可能性が示唆された。その後、長所を活かした新しい試みやラジオグラフィ線源としての評価などの報告がある¹⁸⁾⁻²⁰⁾。最近、アメリカで緊急な要請に基づく中性子ラジオグラフィシステムが検討²¹⁾されたり、1968年に新しい線源としての提案の時とは違った新たな再演を期待するような報告²²⁾がされている。現在、 ^{252}Cf の供給はアメリカとロシアの2か国しかない。したがって、その利用もアメリカが盛んで、一例は次の

ようである。

^{252}Cf 線源による中性子ラジオグラフィのうち航空機の非破壊検査では、線源が小さくて、これに替わるものは今のところない。たとえば、アメリカの McClellan 空軍基地では、この検査のおかげで翼の中のハニカムの腐食や接着材の剥離による飛行中の故障を少なくしている。腐食の原因は、燃料の漏れや水の侵入が考えられ、中性子による試験を始めて以来、日常的な保守点検の時間を少なくすることができるとともに、経費の節約にもなっている。また、テキサス州のあるプラントではヴァンデグラーフや原子炉によるシステムの操作と保守のコストとを比較検討し、カリホルニウム-252 の 150 mg を備えた施設が選択され、設計されている。

RI 中性子源を用いるラジオグラフィの今後は、周辺技術やハードウェアの進歩とともに技術に改良が加えられることは言うまでもない。特に、ハードウェアの一つである検出器は、弱い中性子照射場における撮像のため、より高感度で中性子にのみ有感で、 γ 線には感じないものが理想である。最近、普及し始めた中性子用のイメージングプレート (IP)^{23), 24)} も新しい検出器として有望であろう。すでに様々な利用の試みがあり、画期的な技術の改革も期待したい。中性子源として、今後とも ^{252}Cf が用いられるが、高い投資を必要とするため、米国のような線源の貸出システムと技術のサービス体制 (ORNL, REDC)²⁵⁾ が構築されるのが望ましい。

文 献

- 1) 藤根成勲：特集，中性子ラジオグラフィ研究の最近の進歩と技術の応用，“中性子ラジオグラフィの概要”，原子力工業，**41**，(2)，10-20 (1995)
- 2) 小林久夫：中性子ラジオグラフィ最近の研究動向，日本原子力学会誌，**38**，434-441 (1996)
- 3) Berger, H.: "Neutron Radiography, Methods, Capabilities and Applications", Elsevier Publishing Company (1965)
- 4) 石川 勇：講座，中性子による計測と利用，Ⅲ. 中性子源，1. RI 中性子，*Radioisotopes*, **45**，646-651 (1996)
- 5) Technical advances, Californium-252—New neutron source?, *Nucleonics*, **14**, 105 (1956)
- 6) Hawkesworth, M. R.: AERE-R-9211 (1978)
- 7) Domanus, J. C. and Markgraf, J. F. W.: *Collimators for Thermal Neutron Radiography—an overview*, Commission of the European Communities, Neutron Radiography Working Group, D. Reidel Publishing Company (1987)
- 8) 和田延夫，立川 登，榎本茂正： ^{252}Cf 中性子ホイットターの最適設計，JAERI-memo 6367 (1976)
- 9) E. I. du Pont de Nemours and Company, Savannah River Plant : Californium-252 Progress, Report Number 7 (U), DPST-Cf-252-7, April 1971
- 10) 榎本茂正，富永 洋，和田延夫，今橋 強，立川登： ^{252}Cf 中性子源利用技術に関する需要 (調査報告)，JAERI-memo 7156 (1977)
- 11) Wada, N., Tominaga, H., Tachikawa, N., Enomoto, S., Yasui, T. and Yoshida, Y.: Neutron and Gamma Simultaneous Radiography using a ^{252}Cf Isotopic Neutron Source, *Neutron Radiography*, pp. 681-688, D. Reidel Publishing Company (1983)
- 12) 和田延夫，榎本茂正：可搬型 ^{252}Cf 中性子ラジオグラフィ装置，非破壊検査，**27**，165-170 (1978)
- 13) 和田延夫： ^{252}Cf 同位体中性子源を用いる熱中性子ラジオグラフィ，*Radioisotopes*, **30**，177-185 (1981)
- 14) Wada, N.: Low-flux Neutron Imaging for ^{252}Cf -based Thermal Neutron Radiography, *Neutron Radiography*, pp. 223-230, D. Reidel Publishing Company (1987)
- 15) 小向文作，瀬崎勝二：JMTR における Sb-Be 線源を用いた中性子ラジオグラフィ装置の検討，JAERI-memo 8054 (1979)
- 16) 藤根成勲：国内外における中性子ラジオグラフィ技術の工業利用の現状，放射線，**22**，71-78 (1996)
- 17) Reinig, W. C.: ^{252}Cf : A New isotopic source for neutron radiography, *Isot. Radiat. Tech.*, **7**, 62-63 (1969)
- 18) Shaw, C. B. and Cason, J. L.: Portable neu-

- tron radiographic camera using californium-252, *Material Evaluation*, 40-44 (1971-No. 2)
- 19) Berger, H. : The present state of neutron radiography and its potential, *ibid.*, 55-65 (1972-No. 3)
- 20) Barton, J. P. and Klozar, M. F. : An evaluation of ^{252}Cf as a neutron radiography source, *Isot. Radiat. Tech.*, **9**, 396-405 (1972)
- 21) Barton, J. P. : ARG Portable Neutron Radiography, LA-Sub-96-15 (1995)
- 22) Osborne-Lee, I. W. and Alexander, C. W. : Californium-252 : A remarkable versatile radioisotopes, ORNL/TM-12706 (1995)
- 23) 新村信雄 : 講座, 中性子による計測と利用, 3. 位置敏感型検出器 (中性子イメージングプレート), *Radioisotopes*, **45**, 813-819 (1996)
- 24) 新村信雄 : 中性子イメージングプレートによるラジオグラフィ画像の取得と特性, 放射線, **22**, 43-48 (1996)
- 25) Martin, R. C., Laxson, R. R. and Knauer, J. B. : Californium-252 Neutron Science User Facility at Oak Ridge National Laboratory, 3rd Topical Meeting on Industrial Radiation and Radioisotope Measurements and Applications, Oct. 6-9, 1996, North Carolina, USA
-