

1 はじめに

近年、中性子を利用する施設や、中性子が二次的に発生する機器を備えた施設が増加している。これにともない、熱領域から高速領域の広いエネルギー領域にわたって分布する中性子に対する個人被曝管理が重要となりつつあり、このような広範囲のエネルギー領域の中性子に対して十分な感度を有し、なおかつ作業員が着用可能となる小型軽量の個人中性子線量計が必要となる。しかし、このような個人中性子線量計の開発は非常に難しく、国内はもとより、諸外国においても満足のいく個人中性子線量計は供給されていない。

そこで本研究では、固体飛跡検出器 CR-39プラスチック（以下「CR-39」という）を用い、熱領域から高速領域までの中性子に対し十分な感度を有する個人中性子線量計の開発を目的として、線量計の試作と性能評価を行った。

中性子の検出原理として、熱領域及び中速中性子に対しては、Al-Li合金とCR-39を密着させ、 ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ 反応を利用し、反跳 ${}^3\text{H}$ 及び α 粒子の飛跡を計数することにより中性子を検出し、高速中性子に対しては、ポリエチレンラジエータとCR-39を密着させ、中性子と水素原子核との弾性衝突反応を利用し、反跳陽子の飛跡を計数することにより中性子を検出することとした。

2 熱領域及び中速中性子の測定に関する基礎特性

Al-Li合金とCR-39を密着させた場合、中性子検出感度 S_0 は次式で与えられる。

$$S_0 = \frac{N_0 C_1 C_2 \sigma_E}{4 \Lambda} \{ R_1 \cos^2 \theta_1 + (R_2 - R_2') \cos^2 \theta_2 \} \quad (1)$$

ここで、 N_0 :アボガドロ定数、 C_1 :Al-Li合金中のLi比、 C_2 : ${}^6\text{Li}$ の同位体比、 σ_E : ${}^6\text{Li}$ の(n, α)反応断面積、 Λ :Liの質量数、 R_1 : α 粒子の実効飛程、 θ_1 : α 粒子の検出臨界角、 R_2 :反跳 ${}^3\text{H}$ の実効飛程、 R_2' : R_2 のうち飛跡が生成しない部分の飛程、 θ_2 :反跳 ${}^3\text{H}$ の検出臨界角、である。

このうち $N_0, C_1, C_2, \sigma_E, \Lambda$ は与えられている。しかし $R_1, \theta_1, R_2, R_2', \theta_2$ はエッチング条件などにより異なるため、各々実験的に求めなくてはならない。

2-1 α 粒子の飛跡成長率 V_{D1} と検出臨界角 θ_1

まず、未照射のCR-39を30% NaOH・80°Cでエッチングしたときの、エッチング前後の重量差より求めたバルクエッチング量を図1に示す。これよりこのエッチング条件におけるバルクエッチング率 V_B は、 $V_B = 8.25 \pm 0.22 [\mu\text{m}/\text{hr}]$ となった。

次に、RaD・E線源による α 粒子の飛跡の直径を測定した。その結果を図1に示す。これより α 粒子の飛跡成長率 V_{D1} は $V_{D1} = 12.4 [\mu\text{m}/\text{hr}]$ となった。

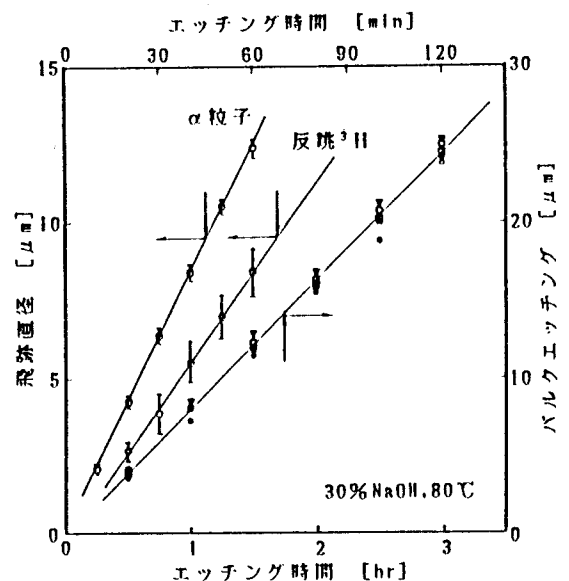


図1 バルクエッチング率と α 粒子・反跳 ${}^3\text{H}$ の飛跡成長率

V_B 、 V_D 、飛跡方向にエッチングされる速度 V_T 、及び検出臨界角 θ の間には、次の関係が成り立つ。

$$V_T = \frac{V_B \{V_B^2 + (V_D/2)^2\}}{V_B^2 - (V_D/2)^2} \quad (2)$$

$$\theta = \sin^{-1} \frac{V_B}{V_T} = \sin^{-1} \frac{V_B^2 - (V_D/2)^2}{V_B^2 + (V_D/2)^2} \quad (3)$$

よって(3)式より $\theta_1 = 16.1^\circ \pm 1.5^\circ$ となった。

2-2 反跳 ^3H の飛跡成長率 V_{D2} と検出臨界角 θ_2

Al-1%Li合金と CR-39の間に $5.62[\text{mg}/\text{cm}^2]$ の吸収層を入れ、 α 粒子をカットし反跳 ^3H の飛跡だけが検出されるようにして、武蔵工大炉・熱中性子柱出口 ($1.8 \times 10^6 [\text{n}/\text{cm}^2 \cdot \text{sec}]$)で照射し、エッチング後、真円形の飛跡を選んでその直径を測定した。その結果を図1に示す。これより反跳 ^3H の飛跡成長率 V_{D2} は $V_{D2} = 8.7 [\mu\text{m}/\text{hr}]$ となった。

α 粒子と同様にして(3)式より θ_2 を求めると、 $\theta_2 = 34.4^\circ \pm 1.3^\circ$ となる。

2-3 α 粒子及び反跳 ^3H の実効飛程 R_1 , R_2 及び R_2

Al-1%Li合金と CR-39の間に $0 \sim 9.44[\text{mg}/\text{cm}^2]$ の吸収層を入れ、熱中性子柱出口で照射し、30%NaOH・80°Cで30分エッチングした後飛跡密度を測定した。

その結果を図2に示す。 $9.44[\text{mg}/\text{cm}^2]$ の吸収層を入れた場合には、 α 粒子及び反跳 ^3H はほとんど検出されなかった。そこで R_2 は $R_2 = 9.5[\text{mg}/\text{cm}^2]$ であるとした。

α 粒子の場合は、飛跡方向にエッチングされる速度が反跳 ^3H の速度より大きいので、より浅く浸入したもので検出されると考えられる。顕微鏡で検出されるために必要な最低の飛跡の深さが α 粒子と反跳 ^3H で同じと仮定して、バルクエッチング率と飛跡方向にエッチングされる速度より R_1 を計算すると、 $R_1 = 1.5[\text{mg}/\text{cm}^2]$ となった。

また、吸収層がないときの飛跡密度より R_2 を計算すると、 $R_2 = 5.96[\text{mg}/\text{cm}^2]$ となった。

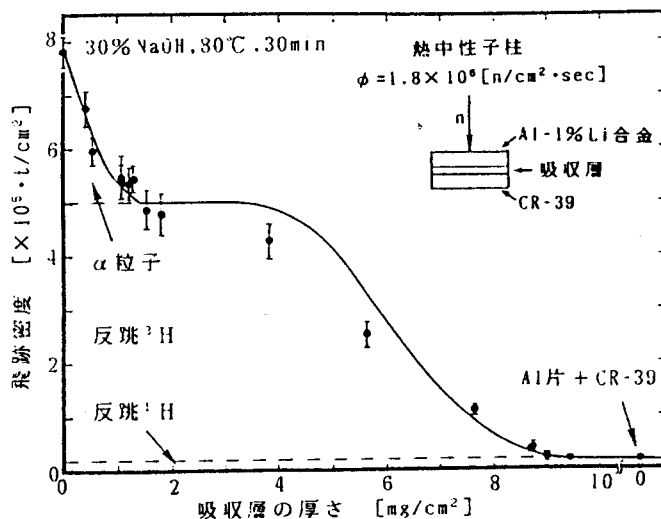


図2 吸収層の厚さに対する飛跡密度の変化

3 高速中性子の測定に関する基礎特性

高速中性子に対しては、長瀬ランダウア社より入手したTS-16N (長瀬ランダウア社が最近バッジサービスを開始した CR-39の商品名) を利用し、中性子感度は長瀬ランダウア社の技術資料によることにした。ただし、エッチング条件が異なるため (長瀬ランダウア社: 18%NaOH70°C, 15.5hr、本研究: 30%NaOH, 80°C)、単色中性子による校正が必要となる。

そこで、電子技術総合研究所のバンデグラフ加速器において、1mmのポリエチレンラジエータを付けたTS-16Nを144keV及び565keVの単色中性子で照射し、これを校正用とした。

エッチング時間に対する感度を調べた結果、90分のエッチングにより技術資料(144keV: $2.84 \times 10^{-4} [\text{t}/\text{n}]$, 565keV: $3.16 \times 10^{-4} [\text{t}/\text{n}]$)とほぼ等しい感度(144keV: $2.56 \times 10^{-4} [\text{t}/\text{n}]$,

565keV: 3.20×10^{-4} [t/n]) が得られた。これらの比の平均より、本研究 (30% NaOH, 80°C, 90 m) における感度は、技術資料による感度に補正係数 0.956 を乗じたものとした。

4 感度特性と線量計の試作

4-1 感度計算

図 3 に、① Al-3%Li合金とCR-39を密着させた素子の中性子感度、② ①の素子を13.8%ホウ素入りポリエチレン1cmで覆った素子の中性子感度、③ 1mmのポリエチレンラジエータを付けたTS-16Nの中性子感度を示す。①の感度は(1)式より、②の感度は二次元輸送コードDOT3.5を用いて計算した。また、③の感度は長瀬ランダウア社技術資料による感度に補正係数0.956を乗じたものである。

ここで、①の素子に対してはAl-3%Li合金とCR-39の間に7.64[mg/cm²] (アルミニウム箔2枚)の吸収層を入れ更に補正係数0.644を乗じ、③の素子に対しては補正係数0.811を乗じ、これらの感度を加えると、図4に示すように線量当量曲線に近い感度エネルギー特性を得ることができる。図5に1mSv当りの飛跡密度のエネルギー依存性を示す。エネルギー依存性は、0.01eV~3keV, 200keV~10MeVの間は±50%以内であることがわかる。

そこで、①②③の素子の飛跡密度を T_1, T_2, T_3 [t/cm²] とすると、線量当量 D [Sv] は、

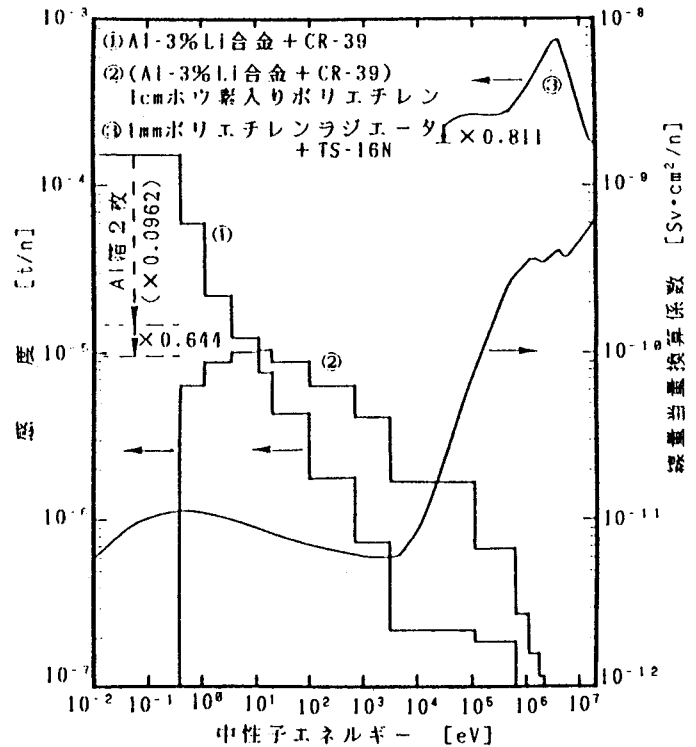


図3 基本3素子の感度と線量当量換算係数

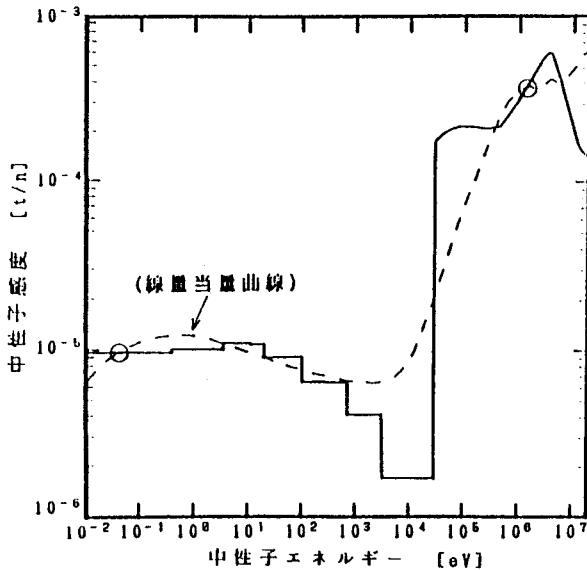


図4 試作線量計の中性子感度

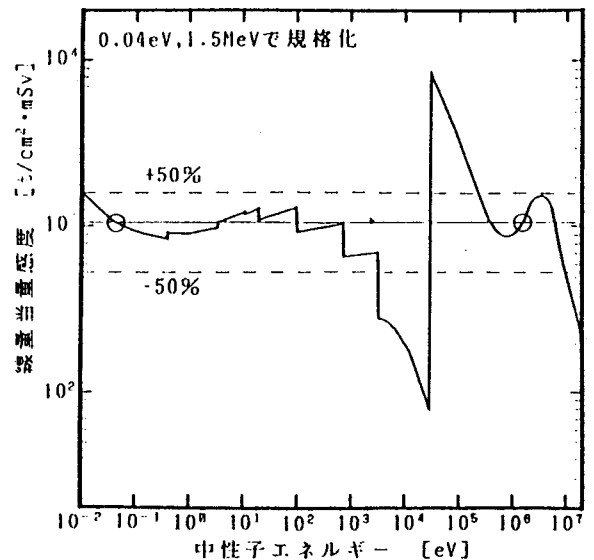


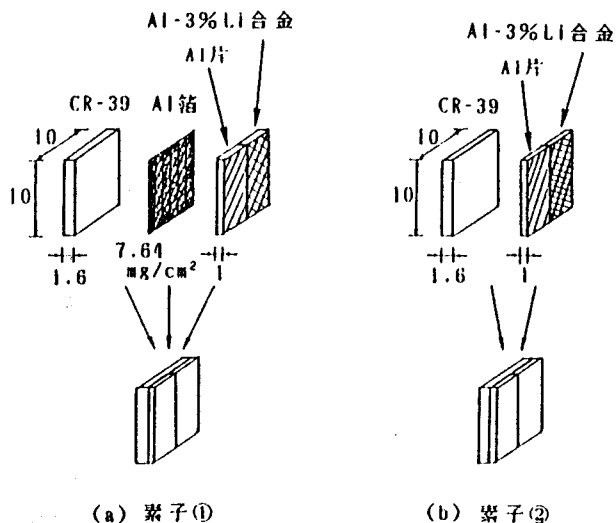
図5 1mSv当りの飛跡密度のエネルギー依存性

$$D = (0.644 T_1 + T_2 + 0.811 T_3) \times 9.34 \times 10^{-7} \quad (4)$$

として求めることができる。

4-2 線量計の試作

(4)式を用いて線量当量が評価できるよう、3種類の素子からなる図6のような線量計を試作した。素子①素子②においてCR-39にLiを含まないAl片を付けたのは、CR-39中の水素原子核と速中性子との弾性衝突による反跳陽子の影響を見るためである。従って、Al-3%Li合金を付けた部分の飛跡密度より、Al片を付けた部分の飛跡密度を差し引いた値が(4)式における T_1 、 T_2 に相当する。



5 線量計の性能評価

現状の中性子線量計に要求される必要性能に関する国内基準は存在しないため、本研究では以下に述べる米国の基準を参考にする。

(1) ANS I ; (1983)
(American National Standards Institute)

線量当量評価精度が±50%以内であること。

(2) N R C ; section 20.202 (1977)
(Nuclear Regulatory Commission)

3か月間で 20MeV以下の中性子に対し、0.3 mSvを越えていないことを確認できること。

5-1 照射試験による線量当量評価精度の検討

試作線量計を ^{241}Am -Be線源及び武蔵工大炉の熱中性子柱と照射室通路で照射し、富士電機社製中性子レムカウンタNSN10001による値と比較した。

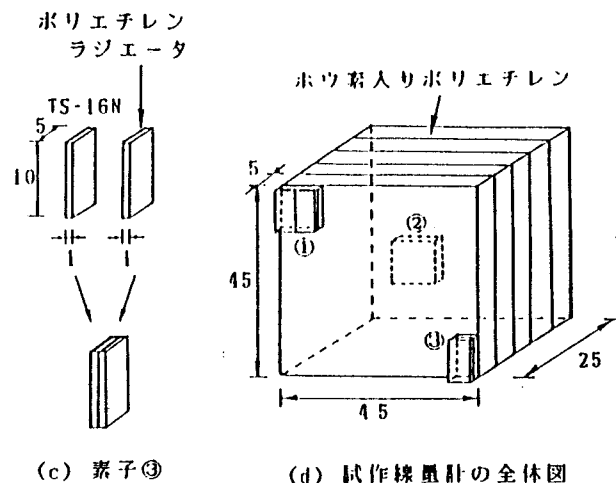


図6 試作線量計の構成

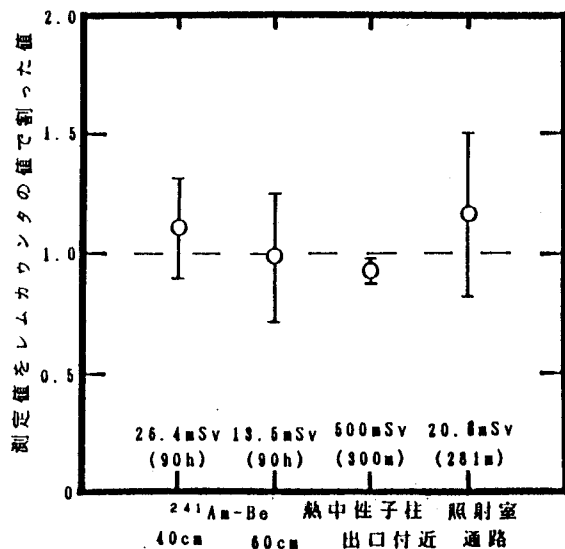


図7 試作線量計とレムカウンタとの性能比較

表1 試作線量計の照射実験結果

照射条件		^{241}Am -Be線源 (40cm)	^{241}Am -Be線源 (60cm)	熱中性子柱	照射室通路
線量当量	素子①	N. D.	N. D.	215±17 (142) ^{#1}	20.0±6.4 (12.7) ^{#1}
	素子②	N. D.	N. D.	35±1	N. D.
	素子③	29.2±5.5	13.3±3.6	213±18 (177) ^{#2}	4.2±3.0
線量当量[mSv]		29.2±5.5	13.3±3.6	463±26	24.2±7.1
参照値[mSv]		26.4	13.5	500	20.8
参照値との比		1.11±0.21	0.985±0.267	0.926±0.052	1.16±0.34

#1: Au箔による測定値 #2: In箔による測定値

実験結果は、表1及び図7に示すように、試作線量計とレムカウンタとの値はよく一致した。試作線量計の線量当量評価精度はレムカウンタと比較して±15%となり、ANSIの基準を満足すると考えられる。

5-2 検出限界の検討

各素子の最小検出線量をバックグランド飛跡密度の標準偏差 σ の3倍と定義する。実験に用いたCR-39及びTS-16Nの 3σ は、各々828[t/cm²]、606[t/cm²]となり、(4)式よりこれに相当する線量当量を各素子について求めると表2のようになった、これより試作線量計の最小検出線量は0.773[mSv]となる。

実用とするにはこの値は高いが、これは、特に低バックグランドな素子を選んで使用しなかったためである。

仮に、長瀬ランダウア社が実際に使用している、低バックグランドのTS-16Nを使用すると、 3σ は119.4[t/cm²]であるので、表2のように最小検出線量は0.112[mSv]となる。この値はNRCの基準を満足し、他の線量計に比べて充分実用となる低さである。

また、×600倍の光学顕微鏡において1視野当り300個の飛跡まで計数可能とすると、最大検出線量は、(4)式より0.529[Sv]以上となる。通常の個人モニタリングにおいてはこの値を越えることはないと考えられる。

6 結論

⁶Li(n, α)³H反応、¹H(n, n')¹H'反応を利用し、CR-39を検出素子に用いた、熱領域から高速領域までの中性子に対し十分な感度を有する個人中性子線量計を試作した。

試作線量計の線量当量評価精度は、レムカウンタと比較して±15%となり、ANSIの基準を満足すると考えられる。最小検出線量は0.773[mSv]であるが、現在使用されている低バックグランドのTS-16Nを使用すれば0.112[mSv]となり、NRCの基準を満足する。

・今後の予定

試作線量計の形状は、現在のフィルムバッジのように携帯するにはやや大きい。しかし¹⁰B同位体比は天然の19.7%から90%近くまで上げることができるので、実用的な大きさになる可能性がある。

今後、¹⁰B同位体比を上げた場合や線量計の方向依存性などを調べ、個人中性子線量計としての実用性を検討する予定である。

表2 最小検出線量

条件		I	II
3 σ に対する 線量当量 [mSv]	素子①	0.498	7.19×10^{-2}
	素子②	0.773	0.112
	素子③	0.459	8.65×10^{-2}
最小検出線量[mSv]		0.773	0.112

I：本試作線量計

II：低バックグランドTS-16Nを使用し、処理条件を長瀬ランダウア社と同じにした場合