HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	絶縁性固体飛跡検出器による強いγ線を伴う中性子場の測定
Author(s)	藤田, 文行; 今, 秀記; 植松, 均 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 86, 1-7
Issue Date	1978-02-03
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/41450
Type	departmental bulletin paper
File Information	86_1-8.pdf

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

北海道大学工学部研究報告
第86号 (昭和53年)

Bulletin of the Faculty of Engineering,
Hokkaido University, No. 86 (1978)

絶縁性固体飛跡検出器による強いγ線を伴う中性子場の測定

藤田文行* 今 秀記* 植松 均**
山田沢明*** 成田正邦* 山崎初男*

(昭和52年8月25日受理)

Neutron Measurement by Solid-state Track Detectors in Mixed Fields of Intense γ Rays and Neutrons

Fumiyuki FUJITA Hideki KON Hitoshi UEMATSU
Sawaaki YAMADA Masakuni NARITA Hatsuo YAMAZAKI

(Received August 31, 1977)

Abstract

Measurement of thermal and fast neutrons was carried out by solid-state track detectors in mixed fields of intense γ rays and neutrons. Two types of detectors were used in the experiment. The first type is a sheet of mica or polycarbonate set in contact with thorium or uranium foil (fission track detector). The second type consists of a sheet of polycarbonate alone (recoil track detector). Neutron flux distribution was obtained in a fuel element of a sub-critical assembly using the first type of detector. Both types of detectors were used in the determination of the neutron flux in an e-n target of spherical shell structure irradiated by an electron beam from a 45 Med LINAC. The optimum etching condition and the sensitivity of the second type of detector were determined.

Results obtained from the measurements performed with solid-state track detectors were compared with those by the activation technique. The agreement was quite well. It was found that the solid-state track detector was excellent in the experiment of nuclear reactor physics.

1. はしがき

荷電粒子の絶縁性固体の中の飛跡の生成は，放射線損傷における基礎現象のひとつであり，これを放射線検出器として利用するものが，絶縁性固体飛跡検出器 (Solid-State Track Detector, 以下 SSTD と呼ぶ) である[1]。特に，中性子の検出が可能[2]であることが分ってから，SSTD は，核物理，放射線物理，宇宙科学，考古学等，極めて広い範囲で利用されるようになった[3),4)]。しかし，原子炉物理実験における SSTD の利用は比較的少ない[12)]。この理由としては，従来原子炉

* 原子工学科 基礎原子核工学講座
** 現在は日本原子力事業株式会社
*** 現在は東京工業大学大学院修士課程

物理での中性子の検出は放射化法やカウンターによる計数法が一般的であって，化学的操作を必要とするSSTDはあまり注目されなかったと考えられる。

SSTDは強いγ線を伴う中性子場において，選択的に中性子を検出でき，高い空間分解能を持ち，さらにカウンターによる計数法で使われる様な電子回路を必要としない，などの利点を持っている。SSTDの様に記録性を持った検出器としては，写真フィルム（原子核乾板）なども使われている。中性子検出器として両者を比較すると，フィルムはγ線のかぶりが多く，またトラックの観測に熟練を要する。これに対して，SSTDはγ線との識別能力が大きく，またトラックの観測に熟練の度合が少なくてすむという点も有利である。

本研究では，強いγ線を伴う中性子場において，SSTDにより熱中性子及び高速中性子の測定を行った。実験には2つのタイプの検出器が用いられた。第1のものは，トリウム又はウラン箔に密着した，雲母あるいはポリカーボネイト板（fission track detector）で構成されている。第2のタイプはポリカーボネイト板のみから成っている（recoil track detector)。第1のタイプのSSTDを用いて，北大未臨界集合体の燃料要素内熱中性子束分布を求めた。これら2つのタイプのSSTDを用いて，北大45 MeV LINACからの電子ビームで照射された球殻状e-nターゲット内の高速中性子束分布を決定した。さらに，第2のタイプのSSTDの最適エッチング条件と高速中性子検出効率が求められた。

SSTDによって得られた結果は，放射化法の結果と比較され，これらの一致は非常に良いことが確められた。SSTDが中性子の検出において，非常に高い空間分解能を持っており，原子炉物理実験にも有用であることが確認された。

2. 実験及び結果

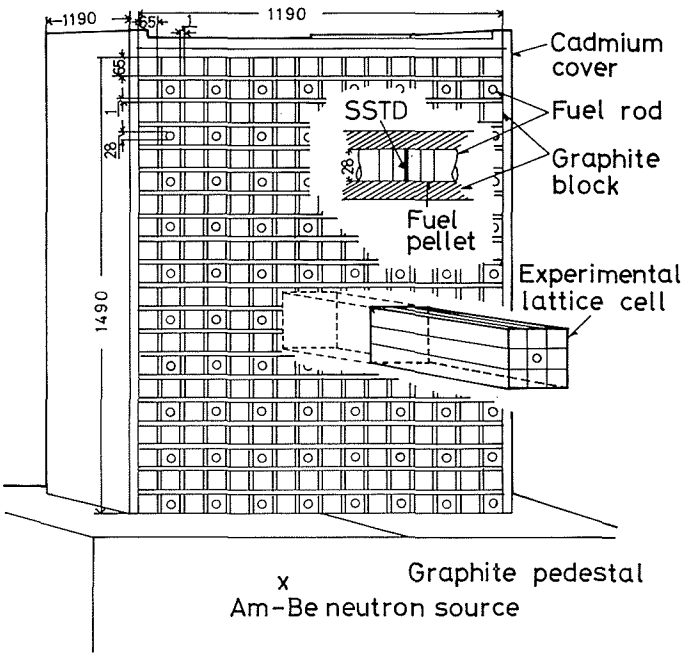
2.1 Fission Track 法

(1) 未臨界集合体　　標準的な熱中性子場でFission Track法の実験を行ない，Auの放射化実験と比較して，その信頼性を確かめた。

北大の中性子増倍装置室の未臨界集合体は，Am-Be中性子源（5Ci）からの中性子をグラファイトにより減速し，さらに熱化して安定な熱中性子場を与えている。集合体の概観を第1図に示す。

試料は核分裂性物質として天然ウラン箔を用い，SSTDとして天然雲母を用いた。

中性子照射時間をT，中性子束を$\phi(E)$とすると，顕微鏡で観察できるエッチピットの表面密度P_sは次式で与えられる。



第1図　未臨界集合体概観

$$P_s = T\int_{\text{thermal}} K(E)\,\phi(E)\,dE \qquad (1)$$

ここで，$K(E)$ は複合感度と呼ばれ

$$K(E) = \frac{1}{2}\,\rho\frac{N_a}{A}\,R(1-\sin\theta_c)\,\sigma(E) \qquad (2)$$

で与えられる。詳細は A1. に譲る。
従って

$$\phi_{\text{th}} = \frac{P_s}{K_{\text{th}}\cdot T} \qquad (3)$$

となり，熱中性子束 ϕ_{th} が求まる。天然ウラン金属の複合感度は，$(4.78\pm0.17)\times10^{-5}$ である[5]。

エッチング溶液は 30% HF，30% H_2SO_4 の混合液で，40°C・15 分間のエッチングを行った。エッチピットの観察には Olympus Model FHT 531 の顕微鏡を使用した。

Au による放射化法と SSTD 法で測定した熱中性子束の値を第 1 表に示す。SSTD と Au の放射化法による測定結果は，実験誤差の範囲内で良く一致する。放射化法によって熱中性子束を求めるためには，箔による中性子の自己吸収などの補正が必要となるが，SSTD においてはその必要がない。また，核分裂破片の直接測定ができるのも利点である。

第 1 表 北大未臨界集合体熱中性子束（中性子源：Am-Be）

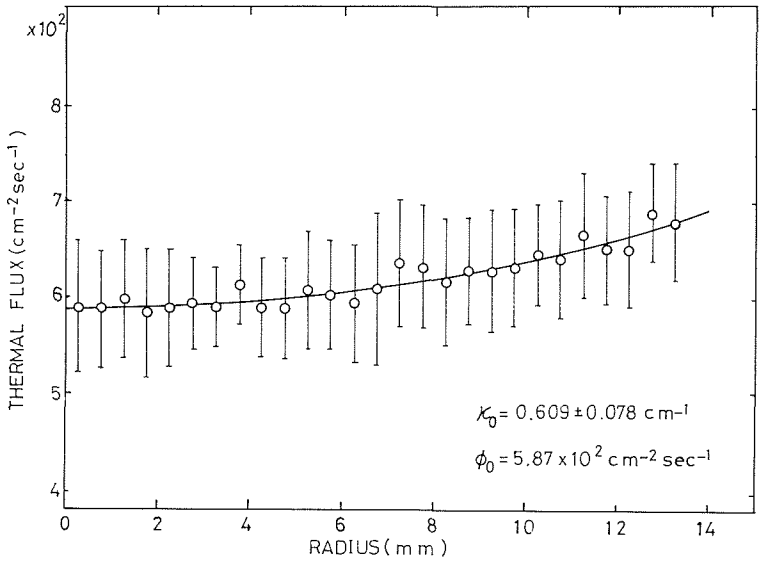
測定法	測定値
SSTD 法——核分裂性物質：天然ウラン SSTD：天然雲母 エッチング条件：30% HF+30% H_2SO_4, 40°C, 15 分	$(4.29\pm1.38)\times10^3\ \text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$
放射化法——放射性物質：Au	$(3.28\pm0.20)\times10^3\ \text{cm}^{-2}\cdot\text{sec}^{-1}$

SSTD を用いて，未臨界集合体の燃料セル中の核分裂破片と中性子空間分布を測定し格子定数を求めた。測定に当っては，SSTD としてポリカーボネイト板（厚さ 500 μm）を使用し，UO_2 燃料ペレットの間にはさみ込み，U からの核分裂片を検出することにより熱中性子束を決定した。ウラン燃料の半径方向の中性子束分布を SSTD で測定した結果を第 2 図に示す。放射化法に較べても極めて空間分解能が良く，125 μm の間隔で UO_2 燃料中の中性子束の微細な分布を決定できた。

第 2 図に示された熱中性子束分布から，最小自乗法を用いて熱中性子拡散距離の逆数 κ_0 が求まる[6),7)]。燃料中の拡散方程式を解くことによって熱中性子束 $\phi(r)$ は $\phi_0 I_0(\kappa_0 r)$ として得られる。ここで，ϕ_0 は燃料中心での熱中性子束であり，$I_0(\kappa_0 r)$ は第 1 種 0 次変形ベッセル関数である。$\phi_0 I_0(\kappa_0 r)$ でフィッティングした結果得られる κ_0 の値を第 2 表に，理論値と比較して示す。半径数 cm 程度の体系に拡散理論を適用することは，事実上かなり無理なことではあるが，理論値と比較することにより，得られた結果を使用することは可能である。

(2) 北大 45 MeV LIANC による鉛ターゲットの与える標準高速中性子場

高速炉物理において，理論と実験のチェックのためや，このエネルギー領域における断面積やエネルギ分布の測定のため，中性子束の絶対値・空間分布さらにエネルギー・スペクトルの決まった標準高速中性子場が必要である。

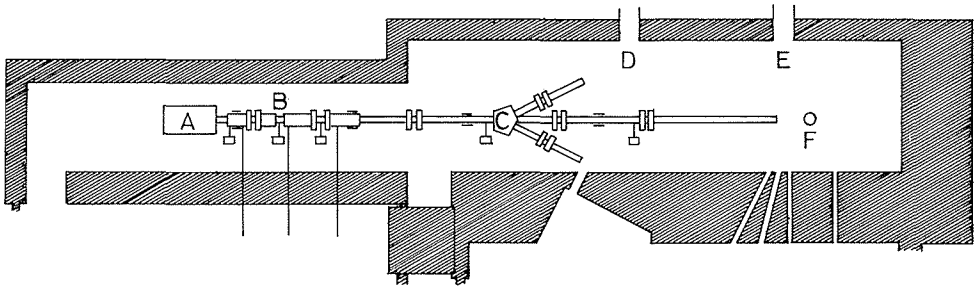


第2図　天然酸化ウラン燃料内熱中性子束分布

第2表　天然酸化ウラン燃料中の熱中性子拡散パラメータ　(20°C)

	熱中性子拡散距離の逆数：κ_0 (cm^{-1})	熱中性子拡散距離：L (cm)
実　　験	0.609 ± 0.078	1.64 ± 0.21
輸送理論	0.520	1.93
拡散理論	0.582	1.72

LINAC により加速された電子ビームを球殻鉛ターゲットに照射し，制動放射により γ 線を発生させる。その γ 線が光核反応を起こし，球殻内部は強い γ 線を伴う高速中性子場となる。このターゲットによって作られる高速中性子場は，加速器によって作られる標準中性子場として有望である。第3図に実験体系の模式図を示す。ここで，鉛ターゲットは空洞直径 10 cm，鉛の肉厚 1 cm の球殻で，LINAC のビーム取出口から 128 cm 離して電子線照射された。光核反応によって放出される中性子のエネルギ分布は，ウランなどの核分裂によって放出される中性子のエネルギ分布，すなわち核分裂スペクトルに非常に近い。



A. 電子銃　B. 加速管　C. 電子ビーム振分用電磁石
D. E. TOF 実験孔　F. Pb-Target

第3図　45 MeV LINAC 概観

試料は核分裂性物質としてトリウム箔を用い，SSTD として厚さ 500 μm のポリカーボネィトを用いた。また，比較のための放射化箔として Ni を用いた。

高速中性子 ϕ_f に対するトリウムの複合感度は，$(0.15\pm0.01)\times10^{-5}$ である[5]。

エッチングは，30% KOH 溶液で，60°C·30 分間行って，顕微鏡でエッチピットを計数した。結果を第 3 表に示す。

強いγ線を伴う中性子場において，SSTD は選択的に中性子を検出し，Ni による放射化法の結果とも良く一致する。これにより，標準高速中性子場の中性子束の絶対値を決定できた。

第 3 表　北大 45 MeV LINAC-鉛ターゲットによる高速中性子束

(運転条件：パルス幅 3 μsec，くり返し 10 pps，ビーム電流 6.2 μA)

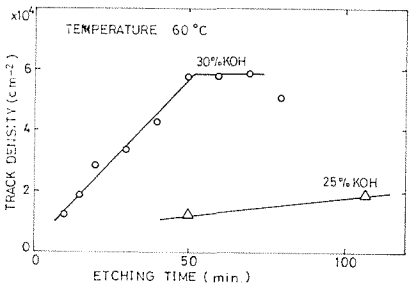
測　定　法	測　定　値
SSTD 法——核分裂性物質：トリウム SSTD：ポリカーボネイト エッチング条件：30% KOH, 60°C, 30 分	$(8.73\pm2.20)\times10^{14}$ cm^{-2}·sec^{-1}
放射化法——放射性物質：Ni	$(8.30\pm0.07)\times10^{14}$ cm^{-2}·Sec^{-1}

2.2 Recoil Track 法

実験は前節 2.1 (2) に同じく球殻鉛ターゲットを用いて行った。前節の実験では空洞中心での高速中性子束のみを求めたが，本実験では核分裂性物質を用いない手軽さから，標準高速中性子場の空間分布の測定を行った。

Fission Track 法と同じく，SSTD は厚さ 500 μm のポリカーボネイトを用いた。

トラックの形成が SSTD の表面において行われる Fission Track 法とは異なり，Recoil Track 法では，トラックは SSTD の内部にも形成される[8]。それゆえ，エッチピット数はエッチング時間に大きく関係することが予想される。予備実験としてエッチピット密度のエッチング時間に対する依存性を求めた。エッチングは 25% 及び 30% KOH 溶液に対して行った。結果を第 4 図に示す。



第 4 図　エッチング時間に対するトラック密度

得られたエッチピット密度—エッチング時間曲線から，実験を行う際の最適エッチング条件は 30% KOH 溶液で 60°C, 30 分間のエッチングであることが分った。

また，Recoil Track 法においても Fission Track 法と同様に複合感度 K を設定することができる。すなわち，(A-6) において，

$$K(E)=\frac{1}{2}(1-\sin\theta_c)\,l\left[\sum_i^n N^{(i)}\sigma_s^{(i)}(E)+\sum_j^m N^{(j)}\sigma_x^{(j)}(E)\right] \qquad (4)$$

とすると

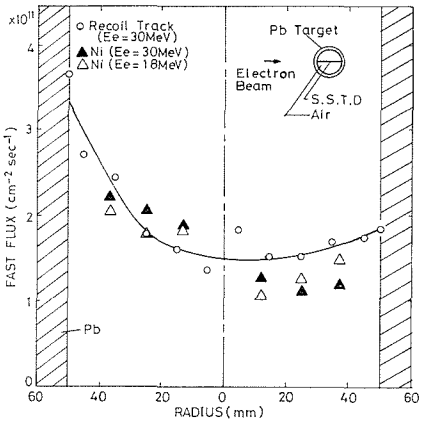
$$\phi_f=\frac{P_s}{K\cdot T} \qquad (5)$$

となり，Fission Track 法と同様な処理ができる。ただし，前述のことから複合感度もエッチング時間に大きく影響を受け，その依存性は先に求めたエッチピット密度—エッチング時間曲線に

準ずることが予想される。

本実験における Recoil Track 法複合感度は，トリウムを使用した Fission Track 法との比較により，$(0.36\pm0.03)\times10^{-6}$ と求められた。このような条件の下で，鉛ターゲットによる標準高速中性子場の中性子束分布測定を行い，その結果を Ni 箔による放射化法と比較した。それを第5図に示す。Ni 箔による結果はターゲット中心部で規格化した相対測定であり，高速中性子空間分布のプロフィールは Recoil Track 法の結果とよく一致した。

以上のことから，SSTD 法は高速中性子場において中性子束の絶対値と空間分布の微細な測定に適することが分った。



第5図　鉛ターゲット内高速中性子束分布

SSTD の空間分解能の良さという特長を利用して，未臨界集合体における炉格子定数が決定できた。さらに強い γ 線を伴う標準・高速中性子場における高速中性子の絶対値と空間分布が求まった。又，Recoil Track 法の応用として，東大高速中性子源炉「弥生」の炉心内中性子束分布の測定も行った[9]。

SSTD の特長をまとめると以下の様になる。

(1)　空間分解能が非常に高く，100 μm 間隔の程度まで中性子の空間分布を測定できる。

(2)　原子核乾板と同様に，情報を長期間にわたって保存でき，ポリカーボネイトの場合 2.5 年程度までは情報の保存が可能である[10]。

(3)　強い X, γ, β 線を伴う中性子場においても，選択的に中性子のみを検出できる。

(4)　検出器の形状や大きさを自由に変化させることができ，多様性に富んでいる。

(5)　残留放射能が非常に少なく安全性が高い。

(6)　電子回路を用いるカウンター計数法に比較して費用が安い。

ところで，光学顕微鏡でエッチピットを計数する作業は，原子核乾板の場合ほどの熟練は要しないが，実際問題として多くの時間を費やさなければならない。現在，エッチピットの迅速な計数法が開発されつつある。例えば，スパーク計数法，テレビジョン映像法などがそうである[11]。

実験にあたって御協力頂いた 45 MeV LINAC の谷田・佐藤両技官，中性子増倍装置研究室の東海林技官に感謝いたします。さらに，ポリカーボネイト入手に際して御尽力頂いた応用化学工学科の藤川助教授ならびに，帝人プラスティック研究所の田原省吾氏に深く感謝いたします。

付　　録

1. Fission Track 法

Fission Track 法によって得られるエッチピット表面密度 P_s [cm^{-2}] は次式で表わされる。

$$P_s = F\cdot\left\{qN_0\int\sigma_f(E)\,\Phi(E)\,dE\right\} \qquad \text{(A-1)}$$

ここで，$\sigma_f(E)$ は核分裂性物質の核分裂断面積，$\Phi(E)$ は中性子フルエンス，N_0 はトラック形成に寄与する核分裂性物質の単位面積当りの原子数である。

核分裂性物質中での核分裂片の飛程を R とし，ρ, A を核分裂性物質の密度及び原子量，N_a をアボガドロ数とすると

$$N_0 = \frac{1}{2}\rho\frac{N_a}{A}R \tag{A-2}$$

となる。

また，Fは核分裂片の検出効率で，Fission Track 法の場合，幾何学的効率が支配的である。

$$F = \frac{1}{2}(1-\sin\theta_c) \tag{A-3}$$

ここで，θ_cはエッチピット形成のための核分裂片の入射臨界角である。

qは核分裂当りの核分裂片数で，二体核分裂を仮定すると$q=2$となり，(A-2), (A-3)を(A-1)式に代入すると，

$$P_s = \frac{1}{2}\rho\frac{N_a}{A}R(1-\sin\theta_c)\int\sigma_f(E)\Phi(E)\,dE \tag{A-4}$$

となる。

2. Recoil Track 法

SSTD 内の原子核は高速中性子によって反跳されたり，(n, α) 反応などの核反応で，トラックを形成する。

トラックの体積密度 P [cm^{-3}] は次式で表わせる。

$$P = \int\left[\sum_i^n N^{(i)}\sigma_s(E)^{(i)} + \sum_j^m N^{(j)}\sigma_X(E)^{(j)}\right]\Phi(E)\,dE \tag{A-5}$$

ここで，$N^{(i)}$, $\sigma_s^{(i)}$ は核種 i の原子数及び散乱断面積，$N^{(j)}$, $\sigma_X^{(j)}$ は核種 j の原子数及び核反応 X に対する断面積である。

エッチングによって表面が溶け出した厚さをlとすると，顕微鏡で観察できるエッチピットの表面密度 P_s は，臨界角を θ_c として次式の様になる。

$$\begin{aligned} P_s &= \frac{1}{2}(1-\sin\theta_c)\,l\cdot P \\ &= \frac{1}{2}(1-\sin\theta_c)\,l\int\left[\sum_i^n N^{(i)}\sigma_s^{(i)} + \sum_j^m N^{(j)}\sigma_X^{(j)}\right]\Phi(E)\,dE \end{aligned} \tag{A-6}$$

引 用 文 献

1) Price, P. B. and Walker, R. M.: J. Appl. Phys., **33** (1962), 3407.
2) Walker, R. M., Price, P. B. and Fleischer, R. L.: Appl. Phys. Letters, **3** (1963), 28.
3) Fleischer, R. L., Price, P. B. and Walker, R. M.: Nuclear Tracks in Solids (1975), Univ. Calf. Press.
4) 阪上正信： 粒子トラックとその応用 (1973), 南江堂.
5) 鶴田隆男： 日本原子力学会誌, **14** (1972), 462.
6) Glasstone, S. and Edlund, M.: The Elements of Nuclear Reactor Theory (1952), D. Van Nostrand Co. Ltd.
7) Lamash, J. R.: Introduction to Nuclear Reactor Theory (1866), Adison Wesley.
8) Khan, H. A.: Nucl. Instr. Method. **113** (1973), 55.
Nishiwaki, Y., Tsuruta, T. and Yamazaki, K.: J. Nucl. Sci. Tech., 8 (1971), 162.
9) 成田正邦, 沢村晃子, 藤田文行, 植松 均, 今 秀記, 古橋 晃： 東大炉共同利用成果報告書, (51年度) ,35.
10) Piesch, E. and Sayed, A. M.: Nucl. Instr. Method, **119** (1974), 367.
11) Attix, F. H.: Topics in Radiation Dosimetry (1972), Academic Press.
12) Narita, M., *et al.*: J. Nucl. Sci. Tech., **14** (1977), 65.