



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	核融合炉ニュートロニクスにおけるエッチトラック法の応用 : 絶対感度較正と黒鉛体系の測定
Author(s)	藤田, 文行; Fujita, Fumiyuki; 小口, 一成 他
Citation	北海道大學工學部研究報告, 139, 9-17
Issue Date	1988-02-20
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/42071
Type	departmental bulletin paper
File Information	139_9-18.pdf



核融合炉ニュートロニクスにおけるエッチトラック法の応用 ——絶対感度較正と黒鉛体系の測定——

藤田文行 小口一成 吉澤道夫*
成田正邦 中村知夫** 前川洋**

(昭和62年9月30日受理)

Application of Etched Track Method to Fusion Neutronics

Fumiyuki FUJITA, Kazunari OGUCHI, Michio YOSHIKAWA,
Masakuni NARITA, Tomo-o NAKAMURA, Hiroshi MAEKAWA

(Received September 30, 1987)

Abstract

A fission track detector(FTD) is a kind of solid state nuclear track detectors using the etched track method. It is a neutron detector which has an excellent spatial resolution. We examined the absolute sensitivity of this detector in detail. It was found that irradiation, chemical processing and calibration of FTD should be handled with appropriate and adequate care. For application to the fusion neutronics, we measured the fission rate distributions in a graphite assembly installed in front of a 14 MeV neutron source. The FTD allows for the useful measurement of the local fission rate as a spectrum index in the fusion blanket neutronics experiments.

1. はじめに

鉱物, ガラス, プラスチックなどの絶縁性固体は, 荷電粒子が入射したときに放射線損傷(潜在飛跡)を生じる。これを化学エッチングによって拡大すると, 可視トラックとして光学顕微鏡で容易に観測できるようになる。この現象を利用した固体飛跡検出器(Solid State Nuclear Track Detector; SSNTD)は, 空間分解能に優れているので核融合炉ニュートロニクスの実験手法の一つとして最近注目されている。しかし, その実用例は少ない¹⁾。SSNTDを, 核融合炉ニュートロニクスに応用する際には次のような特徴がある²⁾。

検出器を小さく薄く作ることができるので, 検出器が中性子場を乱すことが少なく, 反応率分布を微細に測定できること。積算型の測定器なので中性子束の小さな場合でも測定可能であること。SSNTDの劣化をもたらすような大線量の場合を除き, ベータ線やガンマ線の影響を受けない

基礎原子核工学講座

* 現在日本原子力研究所

** 日本原子力研究所

こと。

一方、次のような諸点が重要となる。

- ①飛跡のエッチング像が比較的明瞭で、迅速計数のために各種の自動計数装置を利用できること。
- ②中性子束、核分裂率などの分布測定を行うための基礎データとしての絶対感度が、決定できること。

本研究は、核融合炉ブランケット模擬体系で SSNTD を利用することを最終目的としている。

- ①に着目して、SSNTD であるプラスチック(ポリカーボネイト)と核分裂片ラジエータとを組合わせた核分裂片飛跡検出器 (Fission Track Detector; FTD) を用いた。これによって、自動計数装置による核分裂片飛跡の迅速計数が可能となった。本論文では FTD について、②の中性子絶対感度決定法の詳細な考察を行う。

核融合炉ブランケットの設計には、ブランケット媒質内の中性子の振舞いを正確に知る必要がある。このため、核融合炉ニュートロニクスの研究で用いられている計算手法及びデータベースを検証するベンチマーク実験が重要となっている。日本原子力研究所の Fusion Neutronics Source (以下 FNS と略す) において、核融合炉模擬ブランケット (黒鉛体系) の核分裂率分布絶対測定の実験を行い、小型核分裂電離箱による実験結果と比較した。

実験によると、FTD の中性子感度は、SSNTD であるポリカーボネイトの経年変化や製造ロッドの違いにより若干異なることがわかったので、本論文のように感度決定法を確立し、定式化しておくことは極めて重要である。また、絶対測定を行う際には、感度をその都度較正する必要があることも分った。

2. 核分裂片飛跡検出器の感度較正

2.1 核分裂片飛跡検出器 (FTD) の構成

FTD は、ウラン、トリウムなどの核分裂箔を核分裂片ラジエータとして固体飛跡検出器(SSNTD)に密着させたものであり、中性子による核分裂片を飛跡として形成する。核分裂性物質は一般にアルファ放射体であるから、FTD にはアルファ線に不感な SSNTD を用いる必要があり、プラスチックとしてはポリカーボネイトが広く使われている。SSNTD として、ポリカーボネイト(帝人タキロン PC-1600, 500 μm 厚)を用いた。また、本研究では、素材は同じであるが、製造過程の差異及び経年変化による感度特性の違いを調べるため、製造ロッドの異なる 2 種の製品を用いている。以後、この 2 種を PC 1 及び PC 2 と呼び、区別する。PC 2 は、PC 1 に比べエッチングによる飛跡の拡大が遅いことが分った。このため、以下で述べるエッチング及び計数の設定条件は、PC 1, PC 2 で異なる。

本実験では、密着型のラジエータとして、厚板ラジエータ (核分裂片の飛程よりも十分厚いもの) を用いた。この場合、飛跡形成に寄与するラジエータの有効領域は核分裂片の飛程で決まるため、ラジエータ中の核分裂物質の絶対量を求める必要がないという利点がある。使用したラジエータを表 2-1 に示す。検出器は、図 2-1 に示すように、2 枚のポリカーボネイトの間にラジエー

表 2-1 核分裂片ラジエータ

	Th 金属箔 (Th)	減損ウラン金属箔 (D-U)	濃縮ウラン・アルミニウム 合金金属箔(E-U)
大 き さ (mm)	12.7 ϕ	12.7 ϕ	~10 \times 10
厚 さ (mm)	0.127	0.025	0.2
濃 縮 度 (存在比)	1.0Th-232	3.78×10^{-4} U-235	0.113 U-238

タを挟み、ポリカーボネイトとラジエータとの密着性を良くするために4ヶ所をハトメで固定させた。また、ラジエータを固定させるために13mmφの穴を開けた紙スペーサを用いた。通常は、入射中性子からみて0°側を検出器とし180°側はサポートとした。

2.2 感度校正実験

FNSは強力なD-T中性子源である。FNSの第一ターゲットルームに通じる80°ビームライン³⁾を用いて照射を行った。この様子を図2-2に示す。検出器をターゲットより20, 30, 40cmの位置に配置し、適当な照射量(飛跡密度が $2\sim 3\times 10^4$ [tracks/cm²]程度)が得られたものから順に取り出した。この程度の飛跡密度なら、計数の際、十分な統計精度を得るのに比較的少ない視野数で済み、かつ飛跡の重なりが容易に識別できるため、計数者の負担を軽減できる。総発生中性子数の測定は、アルファモニターによっている³⁾

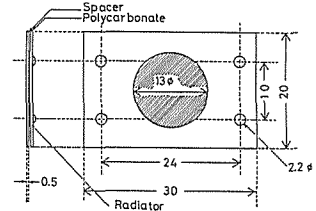


図2-1 核分裂片飛跡検出器の概略図

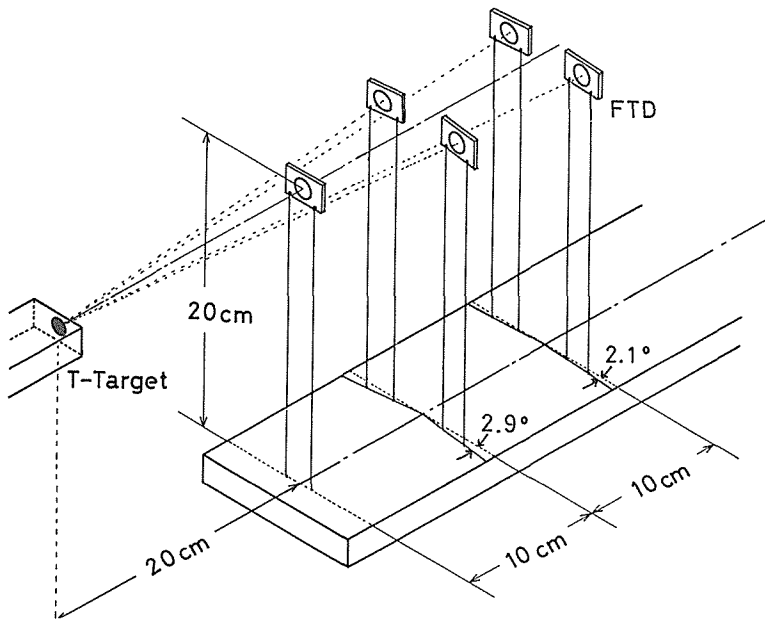


図2-2 感度校正の照射体系模式図

エッチングは、飛跡を拡大させるための重要な化学処理であり再現性を良くするための条件を統一することが不可欠である。エッチング体系を図2-3に、また、PC1及びPC2に対して決めたエッチング条件を表2-2に示す。

計数には光学顕微鏡(OLYMPUS FHT)とそれに後続する自動計数装置LUZEX450を用いる。倍率は600倍(対物レンズ;40倍,LUZEX撮像管;15倍)である。LUZEX450の計数モードをoversize countingにし、反跳飛跡の計数を避けた。計数条件を同じく表2-2に示す。(エッチング及び計数条件の詳細は付録Aに譲る。)

感度 k_i は、次式で定義される。

$$P = \sum_{i=1}^n \int_0^{\infty} k_i \sigma_f^i(E) \Phi(E) dE \quad (1)$$

P , $\Phi(E)$ および $\sigma_f^i(E)$ は、それぞれ、計数で得た飛跡密度、中性子フルエンスおよび核分裂ミクロ断面積を示す。また、添字 i は核分裂性物質の種類を示す。壁などにより散乱される散乱中性子が飛跡形成に及ぼす影響を考慮して感度 k_i を求めた。(感度算出の詳細については付録 B 参照。)

2.3 結 果

感度較正実験は PC 1 について 3 回 (1983, 1984, 1985 年), PC 2 について 1 回 (1985 年, 但し Th 較正は 1986 年) 行った。結果を表 2-3 にまとめる。各測定値の誤差は 5% 以下である (計数による統計誤差 ~3%, アルファモニターの誤差 ~2.4% であり, エッチングなどによる不確定性は考慮していない)。また, 散乱中性子の飛跡形成への寄与は, Th 及び D-U ラジエータの場合誤差の範囲でほぼ 0% であった。これに対し, E-U ラジエータでは, ターゲットより 30 cm の位置の検出器に対して 10~20% の有意な寄与が認められた。これより, 散乱中性子は Th-232 や U-238 の核分裂を誘起しない実効的なしきい値以下のエネルギーを有すると推定できる。

表 2-2 エッチング条件と計数条件

ポリカーボネイト	エッチング			計 数 オーバーサイズ
	溶液	温度	時間	
PC 1	30wt%KOH	60°C	30min.	3 μm
PC 2	"	"	35min.	2 μm

表 2-3 感度較正実験の結果

ポリカーボネイト			PC 1			PC 2	
実験年度			1983	1984	1985*	1985(但し, Thは1986年)	
各ラジエータ中の感度 [cm ⁻²]	Th	k_{Th}	10.4	6.67	6.41	7.83 $\times 10^{18}$	
	D-U	k_8	7.39	5.94	5.41	6.64 $\times 10^{18}$	
		k_5	2.79	2.25	2.04	2.51 $\times 10^{15}$	
	E-U	k_5	5.72	4.37	3.52	5.63 $\times 10^{17}$	
		k_8	6.46	4.94	3.89	6.36 $\times 10^{16}$	

*1985年の PC 1 の測定サンプルは 1 枚。他の測定は 4~5 枚。

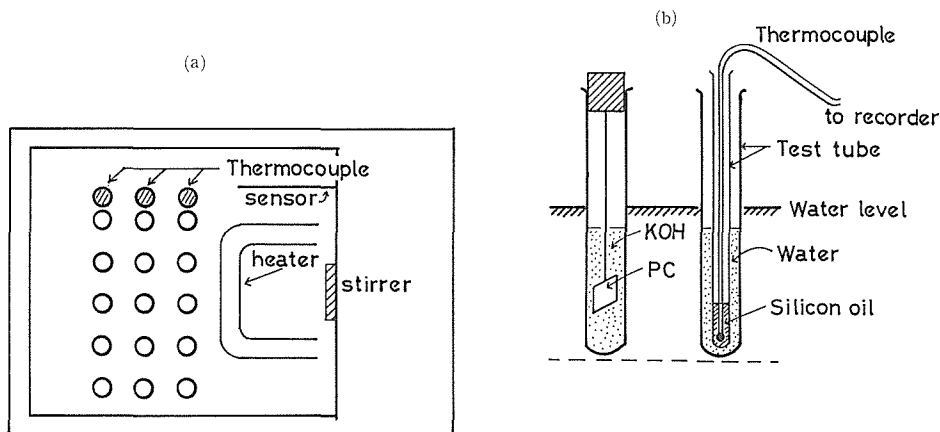


図 2-3 エッチング体系図

(a) 恒温槽 (b) エッチング状態

3. FNS 黒鉛体系での核分裂率分布絶対測定

核融合炉ブランケット模擬体系として、黒鉛 60 cm 平板体系を設置して核分裂率分布測定を行った。黒鉛は減速能が大きく、中性子スペクトルが軟化するため、熱中性子から 14 MeV までの広い範囲の感度領域に渡るエネルギー積分実験となる。

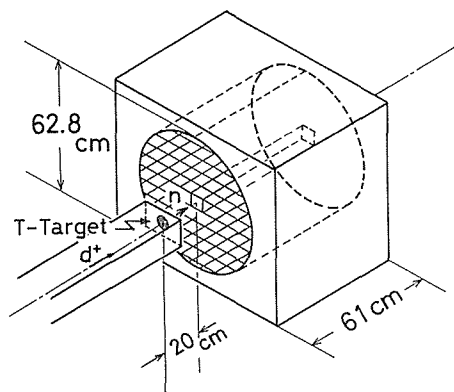


図 3-1 黒鉛体系模式図

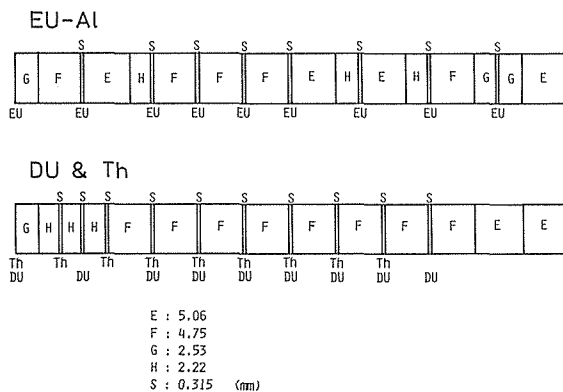


図 3-2 FTD 照射配置

U-235, U-238, Th-232 の核分裂率分布を核分裂片飛跡検出器 (FTD) によって測定し、これを小型核分裂電離箱 (Micro-Fission Chamber; MFC) による測定結果⁴⁾と比較した。

実験体系の模式図を図 3-1 に示す。黒鉛体系は、感度較正実験と同じ 80° ビームラインに設置されており、実効半径 31.4 cm、厚さ 61 cm の円柱平板で、黒鉛ブロックによって組み立てられている。体系の中心軸に沿って、21 mm 径の実験孔が用意されている。使用ラジエータは表 1-1 の 3 種類である。ポリカーボネイトは PC 1 であり、計数結果から核分裂率を算出するための感度は、表 2-3 の 1984 年の値を用いた。

実験孔に黒鉛ブロックを詰め、それらの 3 mm の隙間に、図 3-2 のように FTD を配置し中性子照射を行った。予備解析により、すべての検出器の飛跡密度が約 2×10^2 [tracks/cm²] となるような照射フルエンス ($10^9 \sim 10^{10}$ [neutrons/cm²]) に達したところで順次前方から FTD を取り出した。E-U については 3 回、D-U と Th では 5 回に分けて検出器を取り出した。ターゲットでの総発生中性子数は 1×10^{15} [neutrons] 程度であり、同じくアルファモニターによっている。照射したポリカーボネイトは 2.2 節で並べた手順でエッチング・計数した。

発生中性子数で規格化した原子一個当たりの核分裂数で定義される、位置 z における核分裂率 $R(z)$ は次式で与えられる。

$$R(z) = \frac{P(z)}{Y_n k} \left[\frac{\text{fissions}}{\text{atom} \cdot \text{source neutron}} \right] \quad (2)$$

ここで、 $P(z)$ は位置 z における FTD の飛跡密度、 Y_n は総発生中性子数、 k は感度である。

測定によって得られた核分裂率分布を、MFC による測定結果と二次元輸送計算コード DOT3.5 による計算結果 (これは、核データファイル JENDL-3PR1 を用いて、FNS において計算された) と共に図 3-3 に示す。黒鉛中では中性子スペクトルが軟化するので、U-235 の核分裂率が他の核種に比べて 3~4 桁大きくなり、体系中心部で盛り上がりを見せている。MFC の測定結果は、同一の検出器で位置を変えて測定したために、比較的滑らかな分布を示している。一方、FTD は各々の位置に別々の検出器を設置してあるため、結果に若干のばらつきがみられた。

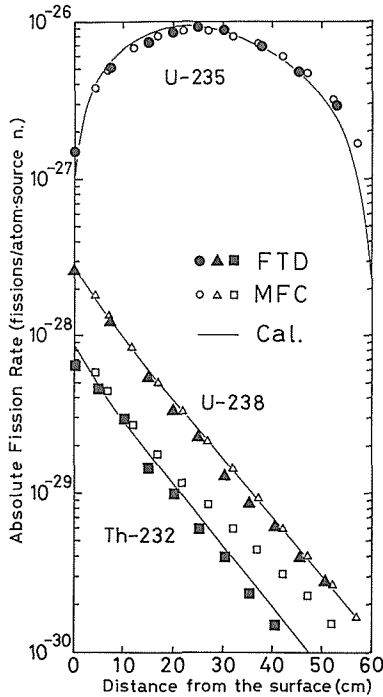


図3-3 核分裂率分布絶対測定結果

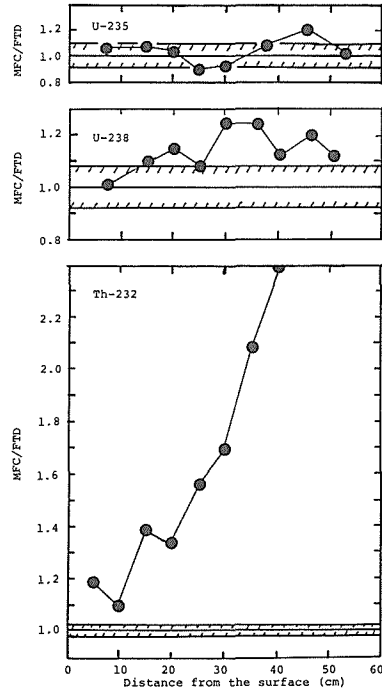


図3-4 MFCとFTDの測定結果比較

FTDとMFCの実験結果を比較したのが図3-4である。分母にFTDの値をとり、分子にMFCの結果をとった。図中の斜線部はFTDの実験誤差範囲を示す。

4. 考察および結論

核分裂片飛跡検出器(FTD)を用いて核分裂率を絶対測定する際には、ポリカーボネイトのロッド番号の違いや、経年変化及び化学処理による系統的な誤差を少なくするために、較正用サンプルと測定用サンプルを同時にエッチングして、その都度感度を定める必要がある。また、感度較正に際しては、散乱中性子の影響(特に、E-Uラジエータに対し)を考慮する必要がある。

体系実験に関して、実験値同志を比較した図3-4をみると、U-235については、MFCとFTDの結果は良い一致を示している。U-238についても両者はほぼ一致しているが、体系後部でMFCがFTDより20%程度大きな値を示している。FTDが黒鉛ブロックの間に挟まれているのに対して、MFCの後ろはケーブルを通すための空隙となっているのが、不一致の原因の一つと考えられる。また、Th-232では、MFCの結果がFTDに比べて2倍以上も大きい。これは、MFCの中に熱中性子に有感な不純物が混入していたためと考えられる。本実験を通じて、測定原理の異なる検出法によるクロスチェックの有用性が再確認できた。

以上、固体飛跡検出器(SSNTD)を核融合炉ブランケット模擬体系に適用して、その有効性を確認できた。さらに、SSNTDの空間分解能の良さを利用すると、非均質体系内の界面附近の状態を詳細に測定することが可能である。

付録 A エッチング及び計数条件

A-1 エッチング

あらかじめ一定温度に保たれた恒温槽に試験管を並べ、この中に 25 ml のエッチング溶液を入れ、恒温にしてからエッチングを行う。この際、ポリカーボネイト表面の気泡の発生を回避するため、98%エタノールで表面を洗浄してから、ポリカーボネイトが垂直になるよう、針金で吊して試験管に入れる。

温度は 25 ml の純水が入った試験管の中に基準温度計を入れて決める。また、熱電対の電圧値をペンレコーダで記録し、エッチング中の恒温性を確かめる。エッチング後ポリカーボネイトを純水ですすぎ、さらに 10 分間超音波洗浄を行う。

A-2 計 数

本実験で用いた厚板核分裂片ラジエータの場合、エッチング後の飛跡は $0\ \mu\text{m}$ から $15\ \mu\text{m}$ 程度まで幅広く分布する。また、飛跡には、核分裂片飛跡以外に、ポリカーボネイト構成原子（炭素や酸素）の反跳飛跡やラジエータ（E-U の場合）中のアルミニウムの反跳飛跡が混在する。しかしこれらの反跳飛跡は、通常、核分裂片飛跡よりも小さい。この事実を利用し、本研究では、LUZEX450 の計数モードを oversize counting にし、設定条件以上の大きさの飛跡のみを計数する方法をとった。ここで oversize counting は、設定されたサイズよりも走査線方向の最大弦長が大きな飛跡を計数する機能である。この方法により、核分裂飛跡の約 80% を計数し、また反跳飛跡を計数しない。計数は、1 視野を $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ とし、図 A-1 に示すラインに沿って A, B, C……の順に、1000 カウントに達するまで行った。飛跡サイズ分布の一例を図 A-2 に示す。図中の $0\sim 1\ \mu\text{m}$ でのピークは、主に反跳飛跡によるものであると推定される。

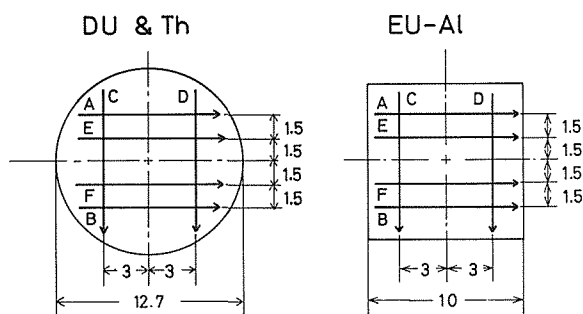


図 A-1 FTD 計数の走査方法

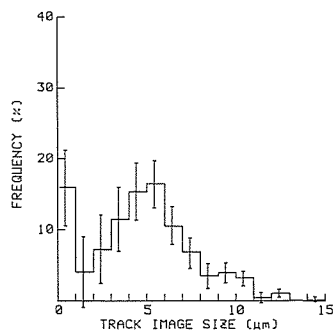


図 A-2 飛跡サイズ分布 (PC2)

付録 B 散乱中性子を考慮した感度の算出

計数によって得られる核分裂片の飛跡密度 P [tracks/cm²] は、入射中性子のフルエンス $\Phi(E)$ [neutrons/cm²] と核分裂マイクロ断面積 $\sigma_f^i(E)$ [cm²] に比例する。ラジエータが、 n 種類の核分裂性物質で構成されているとき、比例定数を k_i とすれば、次式が成立する。

$$P = \sum_{i=1}^n \int_0^{\infty} k_i \sigma_f^i(E) \Phi(E) dE \quad (\text{B1})$$

ここで、添え字 i は、核分裂性物質の種類を示す。また、 i 種の核種の平均核分裂断面積 $\overline{\sigma_f^i}$ は、次式で表わされる。

$$\bar{\sigma}_f^i = \int_0^\infty \sigma_f^i(E) \Phi(E) dE / \int_0^\infty \Phi(E) dE = \int_0^\infty \sigma_f^i(E) S(E) dE / \int_0^\infty S(E) dE \quad (B2)$$

$S(E)$ は、検出器位置での中性子スペクトルである。いま、

$$\Phi = \int_0^\infty \Phi(E) dE \quad (B3)$$

とおくと、(B1), (B2)式より

$$P = \sum_{i=1}^n \{k_i \bar{\sigma}_f^i\} \Phi \equiv K \Phi \quad (B4)$$

となる。但し、 $K = \sum_{i=1}^n \{k_i \bar{\sigma}_f^i\}$ である。

ここで、 K を複合感度、 k_i を核種 i の感度と定義する。

一方、感度 k_i は次式で与えられる。

$$k_i = \eta N_i R_i \quad (B5)$$

ここで、 N_i 及び R_i は、それぞれラジエータ内の核種 i の数密度及び核分裂片の実効飛程である。 η は効率であり、幾何学的条件、エッチング条件、計数条件に依存する量である。 η は、各条件を統一することにより、一定値にすることができると考えられる。

いま、D-Uラジエータ中でのU-235とU-238の核分裂片の実効飛程は等しいことが実験的に確かめられている²⁾よって、同一ラジエータ中の感度はその数密度比、すなわち、存在比に比例する。本研究では、この関係をすべてのラジエータに適用して感度を求めた。

ラジエータに入射する中性子には、トリチウムターゲットから直接入射するものと、ターゲットルーム内で散乱を繰り返したすえ入射するものがある(前者を線源中性子、後者を散乱中性子と呼ぶことにする)。両中性子はともに核分裂を引き起こし、飛跡形成に寄与する。従って、感度の算出には線源中性子以外に散乱中性子の寄与を考慮する必要がある。

検出器は、広いターゲットルーム内の狭い部分にならべられているため、散乱中性子は検出器によらず一定である。また、散乱中性子の飛跡形成への寄与は、ターゲットからの総発生中性子数に比例する。

この仮定のもとに散乱中性子による寄与を考慮し、感度を求める。このとき、飛跡密度 P は次式で与えられる。

$$P = K^S \Phi^S + K^R \Phi^R \quad (B6)$$

ここで、添え字S及びRは、それぞれ線源中性子及び散乱中性子を示す。ターゲットから検出器までの距離を r [cm]、総発生中性子数を Y_n [neutrons]とすると、(B6)式は、

$$P/Y_n = K^S \cdot w/4\pi r^2 + CK^R \quad (C; \text{定数}) \quad (B7)$$

となる。 w は、発生中性子の異方性に対する重みであり、モンテカルロ法によって計算された値を用いた⁵⁾(B7)式を、回帰直線に当てはめ、 K^S 及び CK^R を求めた。さらに、感度はラジエー

表B-1 平均核分裂断面積

核種	平均核分裂断面積 $\bar{\sigma}$ [barn]	
	水冷ターゲット (1983, 1984年)	新水冷ターゲット (1985, 1986年)
U-235	2.025	2.166
U-238	1.047	1.1912
Th-232	0.3364	0.3878

タ中の核分裂性物質の存在比に比例することを利用し、算出した。

ところで、線源中性子に対する平均核分裂断面積 $\bar{\sigma}_f$ は、(B2) 式を離散化し、モンテカルロ法で得られた線源スペクトル⁵⁾ と 135 群断面積セット GICXFNS⁶⁾ を用いて計算した。各実験でのターゲットに対して得られた平均核分裂断面積を表 B-1 に示す。

参 考 文 献

- 1) Geiser, H., et al.; JÜL-1127-RG (1974)
- 2) 鶴田隆雄；日本原子力学会誌 14[9](1972)462
- 3) Maekawa, H., et al.; JAERI-M 83-219 (1983)
- 4) 前川 洋；私信
- 5) Seki, Y., et al.; J. Nucl. Sci. Technol. 20[8](1983)60
- 6) Seki, Y., et al.; JAERI-M 83-061 (1983)