



Title	過熱液滴型検出器の臨界エネルギーに関する検討
Author(s)	沢村, 晃子; Sawamura, Teruko; 山崎, 初男 他
Citation	北海道大學工学部研究報告, 173, 31-38
Issue Date	1995-05-31
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/42442
Type	departmental bulletin paper
File Information	173_31-38.pdf



過熱液滴型検出器の臨界エネルギーに関する検討

沢村 晃子 山崎 初男

(平成6年12月28日受理)

Investigation on Critical Energy of Superheated-liquid-drop Detector

Teruko SAWAMURA and Hatsuo YAMAZAKI

(Receiver December 28, 1994)

Abstract

A superheated-liquid-drop detector utilizes bubble formation induced by ionizing radiation in a superheated liquid. Several values characteristic to properties of the liquid are calculated by semi-empirical equations in order to estimate the critical energy of bubble formation for freon and butene. The theoretical expressions and the experiments determining the critical energy, which have been reported, are discussed and compared with each other. To investigate the detailed process of the bubble formation, butene is proposed as a sensitive liquid. The expected characteristics of the butene detector are described.

1. 序 論

過熱液体中の可視気泡の形成現象を利用する放射線検出器が開発され、主に中性子検出に利用されている。動作原理は泡箱と同じである。泡箱では動作温度より高い沸点を有する液体を加圧しておき、圧力を急速に取り除くと過熱状態を得る。過熱状態の液体中を荷電粒子が通過すると飛跡に沿って小さな蒸気の泡ができる、その泡を観測するものである。

最近、実用化・市販されている中性子検出器は泡箱を微小液滴状につくり(これを過熱液滴, superheated-liquid-dropと呼ぶ)これを弾性的物質(支持媒質と呼ぶことにする)中に均一に分散させたものである。過熱液体の体積を小さくし、更に液体容器を均一性のよい弾性的物質とすることにより、従来泡箱で問題であった不純物や容器表面の微小な傷に起因する局所的な沸騰を避けることができ、安定で手軽な検出器とすることができたのである。

これまで、フロンその他の低沸点液体について、中性子に対する応答測定及び気泡生成の臨界エネルギーの実験的評価、計算との比較等が行われてきた²⁾³⁾。しかし、未だ放射線による気泡核生成過程の理論的取り扱いが確立されておらず、幾つかの臨界エネルギー導出式が提案されている。また、放射線の液体への付与エネルギーがどの位核生成のエネルギーへと寄与するのかも明らかにされていない。

本論文では、これまでに報告されている実験で検出体として用いられている液体について、臨界エネルギーを温度の関数として計算し、実験結果の比較検討を行った。計算に必要な液体の諸物性値は、R.C. Reid他 "The Properties of Gases and Liquids" (4th ed.) によって算出した⁴⁾。

気泡核生成過程の詳細を議論するためには、生成に関わるパラメータが系統的に変化でき、更に単純な液体を検出体とすることが有利である。この観点から沸点の異なる4種のButene (C₄H₈)を検出体とする過熱液滴型検出器について検討した。これらの液体の臨界エネルギー及び関連する諸物性値も共に示してある。また、Butene 検出器の予期される特性等についても述べる。

2. 臨界エネルギー

過熱液体中の可視気泡の形成は次の2段階を経て行われると考えられている。

- 1) 核の生成
- 2) 核から可視気泡への成長

放射線による可視気泡生成の場合は、放射線の通過軌跡に沿っての熱スパイクにより液体の一部が蒸発して微小蒸気泡をつくり、その微小蒸気泡が核となると考えられる¹⁾。蒸気核内の圧力が核表面張力と核外の液体圧力との和より小さいときは、押しつぶされるし、大きい場合は成長することになる。平衡条件は、

$$P_{in} = P_l + 2\gamma(T)/R_c \quad (1)$$

P_{in} : 蒸気核内の圧力, P_l : 液体圧力, $\gamma(T)$: 液体の表面張力, 温度 T の関数,
 R_c : 蒸気核半径

である。言い換えると、蒸気核半径 R が、 $R > R_c$ のとき、蒸気核は可視気泡へと成長する。 R_c は臨界半径、 $R = R_c$ の蒸気核は臨界核、臨界核生成に要するエネルギーは臨界エネルギーと呼ばれている。可視気泡の生成のためには、エネルギー $E >$ 臨界エネルギー E_c が液体に付与されなければならない。

温度 T での臨界エネルギー E_c は N. M. Semanova らによると、次式で与えられる⁵⁾。

$$E_c = \frac{16\pi}{3\gamma} \frac{\gamma(T)^3}{(P_s - P_l)^2 (1 - V'/V'')^2} \left(1 + \frac{2H_{fg}}{(P_s - P_l)(V'' - V')} - \frac{3T d\gamma}{\gamma dT} \right) \quad (2)$$

ここで、 H_{fg} : 単位体積当たりの蒸発熱, P_s : 温度 T での平衡蒸気圧, P_l : 液体圧力, $V' \cdot V''$: 平衡曲線上での液体と蒸気の比体積, $P_{in} - P_l = (P_s - P_l)(1 - V'/V'')$ である。次式は Harper の臨界エネルギー表現である³⁾。

$$E_c = \frac{4\pi}{3} R_c^3 H_{fg} + 4\pi R_c^2 (\gamma(T) - T \frac{d\gamma}{dT}) + \frac{4\pi}{3} R_c^3 P_l \quad (2')$$

Apfel によれば²⁾

$$E_c = 4\pi R_c^2 \gamma(T) + \frac{4\pi}{3} R_c^3 \Delta P, \quad \Delta P = P_l - P_s(T) \quad (3)$$

Seitz の泡箱の理論では¹⁾,

$$E_c = \frac{4\pi}{3} R_c^3 H_{fg} + 4R_c^2 \gamma(T) + \frac{4\pi}{3} R_c^3 P_l \quad (4)$$

(2)~(4)を比較すると以下のようなになる。

1. 通常の検出器条件下では、

$$\Delta P < 0$$

2. 一般に $d\gamma(T)/dT < 0$

により、(2')が最も大きい E_c を与え、(3)が最も小さい E_c を与える。

本論文では、(2')及び(3)により臨界エネルギーを温度の関数として計算し、これまでの実験結果と比較する。buteneについては(2')が計算されている。

3. 臨界エネルギー E_c 計算に必要な液体物性値の評価

臨界エネルギーの計算に際し、関連する物性値を温度の関数として知ることが必要である。本論文では、専ら、R.C. Reid 他 "The Properties of Gases and Liquids" (4th ed.) を参照して計算を行った⁴⁾。R.C. Reid らの著書からの引用式・表・グラフには、本文中の式番号と共に著書中の式番号等を*を付して併記した。

3. 1. 液体密度 $\rho_l(T)$

液体体積は、Hankinson & Thomasによると、

$$V_s/V^* = V_R^{(0)}[1 - \omega_{SRK} V_R^{(0)}] \quad (5)(*3-11.1)$$

$$V_R^{(0)} = 1 + a(1 - T_r)^{1/3} + b(1 - T_r)^{2/3} + c(1 - T_r) + d(1 - T_r)^{4/3} \quad (*3-11.2)$$

$$0.25 < T_r < 0.95$$

$$V_R^{(0)} = [e + fT_r + gT_r^2 + hT_r^3]/(T_r - 1.00001) \quad (*3-11.3)$$

$$0.25 < T_r < 1.0$$

$$a = -1.52816 \quad b = 1.43907 \quad c = 0.81446 \quad d = 0.190454$$

$$e = -0.296123 \quad f = 0.386914 \quad g = -0.0427258 \quad h = -0.0480645$$

ω_{SRK} : Hankinson-Brost-Thomson & Rackett 液体体積相関係数

V_s : 1 モル当たりの液体体積 [cm³/mol] V^* : 特性体積 [cm³/mol]

$T_r = T/T_c$: 換算温度 T_c : 臨界温度

液体の分子量を $M(g)$ とすると液体密度 $\rho_l(T)$ は、次式で与えられる。

$$\rho_l(T) = M/V_s \times 1000 \quad [\text{kg/m}^3] \quad (6)$$

3. 2. 蒸気圧 P_{vp} 及び蒸気密度 ρ_{vp}

Pitzer 展開によると

$$\ln(P_{vpr}) = f^{(0)}(T_r) + \omega f^{(1)}(T_r) \quad (7)(*7-2.6)$$

$P_{vpr} = P_{vp}/P_c$: 換算蒸気圧

$$f^{(0)} = 5.92714 - 6.09648/T_r - 1.28862 \ln(T_r) + 0.169347 T_r^6 \quad (*7-2.7)$$

$$f^{(1)} = 15.2518 - 15.6875/T_r - 13.4721 \ln(T_r) + 0.43577 T_r^6 \quad (*7-2.8)$$

$$\omega = \alpha/\beta$$

$$\alpha = -\ln(P_c) - 5.97214 + 6.09648\theta^{-1} + 1.28862 \ln(\theta) - 0.169347\theta^6$$

$$\beta = 15.2518 - 15.6875\theta^{-1} - 13.4721 \ln(\theta) + 0.43577\theta^6$$

$$\theta = T_b/T_c = T_{br}$$

T_b : 沸点, T_c : 臨界温度, T_{br} : 換算沸点

1 モル当たりの体積 V は、以下により求められる。

$$V = ZRT/P_{vp}, \quad Z: \text{圧縮係数} \quad (8)$$

$$R: \text{気体定数, } 83.144 \text{ bar} \cdot \text{cm}^2/(\text{mol} \cdot \text{K})$$

理想気体の場合は $Z=1$ であるが、一般には $Z=f(T_r, P_r) < 1$ である。

P_r が小さい場合は次のように近似できる。(* Fig 3-1, * Table 3-2 を参照した)

$$Z \sim Z^{(0)} \sim 1 - g(T_r)P_r \sim 1 - (14.85e^{-3.87r})P_r$$

蒸気密度 ρ_{vp} は

$$\rho_{vp} = M/V \times 1000 = P_{vp}M/(ZRT) \times 1000 \quad [\text{kg/m}^3] \quad (9)$$

3. 3. 表面張力 $\gamma(T)$

温度依存表面張力については次式を採用した。

$$\gamma(T) = P_c^{2/3} T_c^{1/3} Q (1 - T_r)^{11/9} \quad (10) (* 12-3.6)$$

$$Q = 0.1196 [1 + T_{br} \ln(P_c/1.0325)/(1 - T_{br})] - 0.279 \quad (* 12-3.7)$$

これを用いると $Td\gamma(T)/dT$ は、

$$Td\gamma(T)/dT = (11/9)\gamma T_r/(1 - T_r) \quad (11)$$

となる。表面エネルギー W_s は、

$$W_s = 4\pi R_c^2 \gamma \{1 + (T/\gamma) d\gamma/dT\} \quad (12)$$

3. 4. 蒸発熱 H_{vp}

Vetere により、

$$H_{vp} = RT_c T_{br} \frac{0.4343 \ln P_c - 0.69431 + 0.89584 T_{br}}{0.37691 - 0.37306 T_{br} + 0.15075 P_c^{-1} T_{br}^{-2}} \quad (13) (* 7-11.5)$$

4. 液体物性値の計算値

表 1 に示す、フロン及び Butene-系液体等について、前節に示した式により計算した結果を示す。温度 0~50℃ までの、液体密度、蒸気圧、蒸気密度、圧縮係数、表面張力等の計算値が Fig. 1~Fig.5 に示されている。

表 1 液体とその性質

liquid and chemical formula	density (g/cm ³)	boiling point at 760mmHg	Vapor pressure at 20°C (atm)
1-Butene CH ₃ CH ₂ CH : CH ₂	0.5951	- 6.0 °C	2.6
cis-2-Butene CH ₃ CH : CHCH ₃	0.6213	+ 3.7	1.8
trans-2-Butene CH ₃ CH : CHCH ₃	0.6042	+ 0.8	2.0
isoButene (CH ₃) ₂ C : CH ₂	0.5942	- 7.0	2.6
Fleon-12 CCl ₂ F ₂	1.3	-29.8	5.8
Fleon-114 C ₂ Cl ₂ F ₄	1.5	3.5	1.9
isobutane C ₄ H ₁₀	0.6	-11.7	3.1

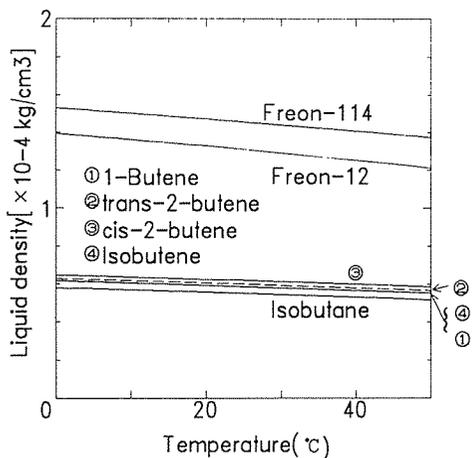


Fig. 1 Liquid density vs. Temperature

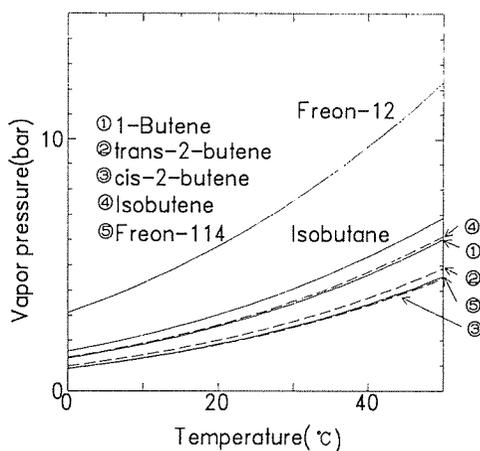


Fig. 2 Vapor pressure vs. Temperature

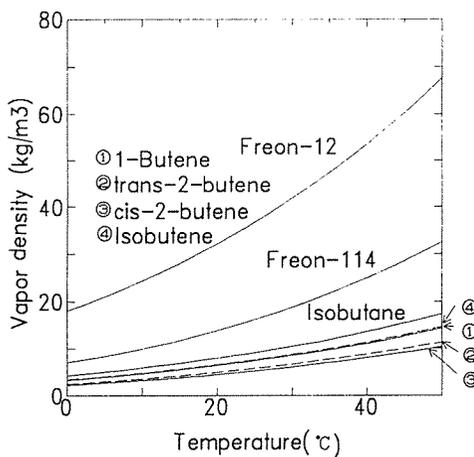


Fig. 3 Vapor density vs. Temperature

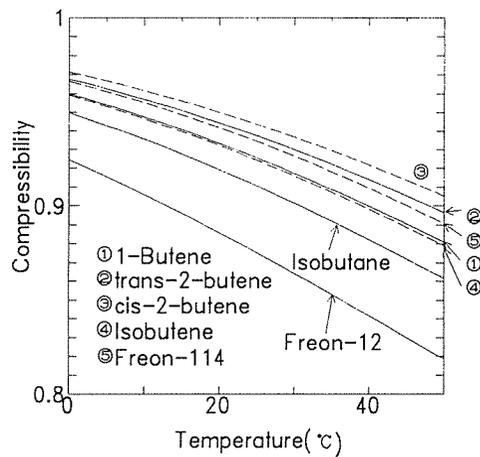


Fig. 4 Compressibility vs. Temperature

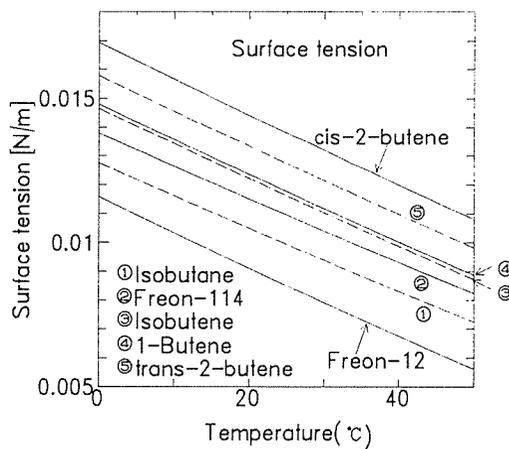


Fig. 5 Surface tension vs. Temperature

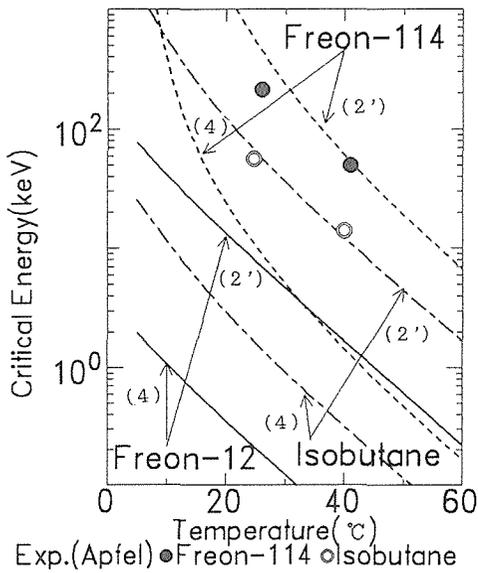


Fig. 6 Critical Energy derived by (2') and (4), and experimental values²⁾

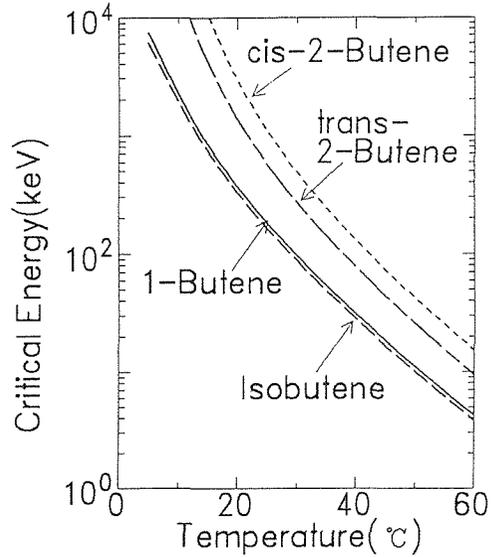


Fig. 7 Critical energy of butene derived by (2')

5. 臨界エネルギーの検討

5. 1. 臨界エネルギー評価式と実験結果との比較での問題点

前節の計算値を用いてフロン等について臨界半径並びに臨界エネルギーを計算した。結果を Fig.6, 7 に次節で説明する実験結果と共に示す。実験値と計算値を比較することにより 2 節で示した臨界エネルギー評価式を検討することが出来よう。しかし、この比較を行なう上で、もう一つ問題がある。それは、どの位の空間領域に付与されたエネルギーが核生成に寄与するかということである。

中性子検出器の場合、核生成エネルギーを付与するのは、過熱液体構成原子と中性子との核反応で放出される荷電粒子である。中性子エネルギーを \sim MeV 程度と考えると、液体にエネルギーを付与する粒子は主に中性子散乱による液体構成原子反跳核である。液体への付与エネルギー E_b はそれらの原子核の液体中での阻止能を (dE/dx) とし、気泡核生成への有効長を L とすると、 $E_b \sim (dE/dx) \times L$ である。臨界核生成の条件は、

$$E_b > E_c = (dE/dx)_c \times L$$

となる。実験で得られるのは臨界阻止能、 $(dE/dx)_c$ であり、 E_c ではない。

“ L ” の値をいかにすべきかという議論もいろいろなされている。Harper²⁾ の記号で書くと、

$$L = aR_c \quad (= bR_c(\rho_v/\rho_l)^{1/3}, a = b \cdot (\rho_v/\rho_l)^{1/3})$$

$$\text{或いは } L = br_0 \quad (r_0(\text{液体換算半径}) = R_c(\rho_v/\rho_l)^{1/3})$$

で定義される a 及び b の理論・実験による値を表 2 に示す。

本文の以下における実験・計算の比較では Apfel の実験値を用いているので、 $L = 2R_c$ として E_b

表2 気泡核生成時の有効長パラメータ

Authors	a	b	theoretical or experimental
Bell ⁶⁾	6.07		theoretical for sphere
Apfel ²⁾	2		experimental
Dietrich ⁷⁾	12.96		theoretical for cylinder*
Harper ⁸⁾		3.73~4.8	experimental for Freon-12

*エネルギー付与分布が円柱状の場合の半径を R_c としている。

を示している。

5. 2. 臨界エネルギー：Apfel, Harper の実験値と評価式

現在報告されている過熱液滴型中性子検出器の臨界エネルギーの実験値は、Harper と Apfel によるもののみである。Apfel は、中性子照射実験により 1985 年にフレオン-114 と Isobutane の臨界エネルギーを測定している²⁾。そこでは、前述したように $L=2R_c$ (即ち $a=2$) として E_b -実験値を評価している。その結果 $\eta = E_b \text{ 実験値} / E_c \text{ 理論値}$ として η を得て、荷電粒子による液体へのエネルギー付与のうち、気泡核生成エネルギーに寄与するのは3~5%であると述べている²⁾。Harper は、フレオン-12 の²⁵²Cf 中性子に対する温度依存検出感度を0~40℃の範囲で測定している。測定値は、 $b=3.73$ 及び 4.80 とするとそれぞれ減速無し及び減速した²⁵²Cf に対する理論感度と(相対値で)一致することを示している⁸⁾。

Fig.6 は、フレオン等の臨界エネルギーを評価式(2')と(4)によって計算した結果である。図には Apfel 実験値も示した。Apfel は 1979 年にもフレオン-12・フレオン-114・cis-2-butene の臨界エネルギーを報告しているが⁹⁾、それらは 1985 年の値と整合がとれないので、ここでは 1985 年の報告値のみを挙げている。Apfel の実験値は、評価式(2')とかなりよく一致している。評価式(4)と(2')による臨界エネルギーは計算温度領域で5~数10倍異なっており、評価式(2')を採用するならば Apfel の実験値に対し $\eta \sim 100\%$ 近くになり、(2')が妥当であると思われる。

以上に基づき、Butene については臨界エネルギーを(2')によって計算した。結果を Fig.7 に示す。また、Fig.8 には、20℃の場合の臨界エネルギーと液体沸点の関係を示した。

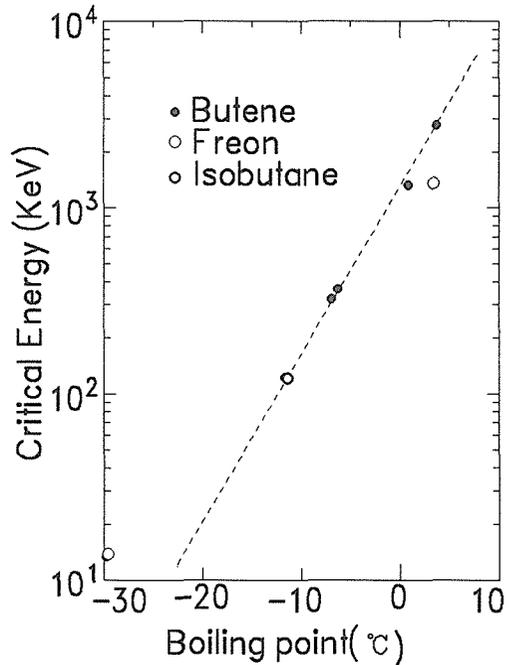


Fig. 8 Critical energy at 20°C vs. boiling temperature

6. Butene 検出器についての検討

Fig.6 と 7 を比較すると、Butene 検出器の特性を予測することができる。Fig.8 より、Butene はフロン-12 に比べ沸点が高いので、臨界エネルギーが大きい。臨界エネルギーが、フロン-12 の 20℃ の臨界エネルギーと同程度になるには、温度を 50~60℃ にしなければならない。構成原子・密度等の違いを考慮すると、厳密な議論は詳細な計算によらなければならない。しかし、検出しきい値を支配する原子核は両者共炭素と考えると、フロン-12 が中性子に有感な温度領域での臨界エネルギーと同程度の臨界エネルギーになるように温度設定をするならば、Butene は中性子に有感になり、臨界エネルギーを検討するための検出器となり得るであろう。

7. ま と め

過熱液滴検出器の臨界エネルギーを求めるために関連する液体物性値を温度の関数として計算した。計算結果を用いて臨界エネルギーを Apfel, Harper の用いた評価式により求め実験結果と比較検討した。実験値は少なく実験条件も限定された範囲内であるが、Harper らが用いている評価式が妥当であると考えられた。しかし、気泡生成過程の解明には温度だけではなく圧力変化、単色中性子照射、単純な液体による実験等の実験条件の組織的な設定が必要と思われる。その観点から Butene を検出体とすることを提案した。Harper の用いた評価式に基づき算出した臨界エネルギー値からは、~50℃ に設定すると Butene は中性子に有感な検出器として動作するとの予測が得られた。

尚、本研究の一部は、動力炉核燃料開発事業団の委託研究により実施したものであることを付記する。

参考文献

- 1) Seitz F. : Phys. Fluids, 1, 2 (1958)
- 2) Apfel R. E., Roy S.C. & Lo Y.C. : Phys. Rev., A 31, 3194 (1985)
- 3) Harper M. J. & Nelson M.E. : Rad. Prot. Dos., 47, 535 (1993)
- 4) Reid R.C., Prausnitz J.M. & Poling B.E.: The properties of Gases & Liquids, 4 th ed., (1987), McGraw-Hill, Inc.
- 5) Seminova N. M. & Ermakov G.V. J. Low Temp. Phys., 74, 119 (1989)
- 6) Bell C. R., Oberle N.P. Rohsenow W. Todreas N. & Tso C. : Ncl. Sci. Eng., 53, 458 (1974)
- 7) Deitrich L. W. & Connoly T.D. : Ncl. Sci. Eng., 50, 273 (1973)
- 8) Harper M. J. : Nuci. Sci. Eng., 114, 118 (1993)
- 9) Apfel R. E. : Nucl. Instrum Meth., 162, 603 (1979)