

分 置

PNC IJ1600 95-002

社内資料

本資料は 年 月 日付で登録区分、  
変更する。

01.10.-4 [技術情報室]

## 中性子検出器の開発研究

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究報告書)

1995年3月

北海道大学工学部原子工学科

この資料は、動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。については、複製、転載、引用を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒311-13

茨城県東茨城郡那珂川町成田4009

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49  
核燃料サイクル開発機構  
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technical Cooperation Section,  
Technology Management Division,  
Japan Nuclear Cycle Development Institute  
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184  
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

登録区分  
2001.10.04  
変更表示

社内資料  
PNC PJ1600 95-002  
1995年3月

## 中性子検出器の開発研究

山崎 初男、 沢村 晃子\*

### 要旨

原子炉施設、核燃料取扱施設等においては、施設内の線量監視や放射線業務従事者の被曝管理において、 $\gamma$ 線のみならず中性子の測定が不可欠である。

中性子検出器の一つである過熱液滴型検出器は $\gamma$ 線に感度がないこと、検出線量限界が現在実用に供されている中性子検出器に比べ低いことから、特に $\gamma$ 線と中性子が混在する作業環境における中性子線量や放射線従事者の中性子被曝を測定できる有望な検出器である。しかし、この検出器の作動理論や、その特性については未だ十分解明されていない。本研究は、過熱液滴型検出器の作動原理の理論解析を行い基本特性について解明するとともに、この検出器の応用範囲の拡大を目的とする。今年度は、以下について検討した。

- (1) 過熱液滴型検出器の動作原理の解析
- (2) 検出液体の検出動作に関連する物性値調査
- (3) 臨界エネルギーの計算
- (4) 検出器の試作

---

\*本報告書は山崎初男、沢村晃子が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号：060D0122

事業団担当部課室及び担当者：大洗工学センター安全管理部安全対策課 小泉勝三、高野良正

\*北海道大学 工学部 原子工学科



OFFICIAL USE ONLY  
PNC PJ1600 95-002  
March 1995

## Developement of Neutron Detector

Hatsuo Yamazaki\*  
Teruko Sawamura\*

### Abstract

Measurements of neutrons as well as  $\gamma$  rays are necessarily required in the management of area monitoring and occupational exposure in facilities related to a nuclear reactor, nuclear fuel and so on. A superheated drop detector(a neutron detector) is insensitive to  $\gamma$  rays and has a dose limit of detection lower than any other practical ones at present. Therefore, the detector is advantageous in monitoring the neutron dose and occupational neutron exposure in a work area, especially, which has the mixed radiation field with neutrons and  $\gamma$  rays. However, the principle of detection mechanism and the basic characteristics of this type of detector have not been fully understood yet. The purpose of this study is to analyze theoretically the detection process and to extend the applicability of this detector. In this fiscal year, the followings are discussed :

- (1)Theoretical analysis of the basic process of the superheated drop detector,
- (2) Material parameters of sensitive liquids related to the detection mechanism,
- (3) Calculation of critical energies,
- (4) Procedure to make trial detectors.

---

Work performed by Hatsuo Yamazaki and Teruko Sawamura under contact with Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation  
PNC Liaison:Safety Administration Section, Health & Safety Division.  
O-arai Engineering Center  
\*Department of Atomic Engineering, Faculty of Engineering, Hokkaido University



## 目 次

1. 緒言	.....	1
2. 過熱液滴型検出器の動作原理	.....	2
2. 1. 過熱液滴型検出器による中性子検出	.....	2
2. 2. 検出液体の選択	.....	3
3. 臨界エネルギーに関する理論	.....	6
3. 1. 過熱液体中の核生成	.....	6
3. 2. 均質核生成の理論	.....	7
3. 3. 放射線に誘発される非均質核生成	.....	9
4. 臨界エネルギー計算に必要な物性値の評価	.....	11
4. 1. 液体密度	.....	11
4. 2. 蒸気圧及び蒸気密度	.....	12
4. 3. 表面張力	.....	13
4. 4. 蒸発熱	.....	13
5. 液体物性値の計算値	.....	14
6. 臨界エネルギー値の検討	.....	17
6. 1. 臨界半径の計算	.....	17
6. 2. 臨界エネルギー評価式と実験結果との比較上の問題点	.....	18
6. 3. 臨界エネルギー : Apfel、Harper の実験値と評価式	.....	20
6. 4. Butene 検出器についての検討	.....	21
7. Butene 検出器の試作	.....	23
7. 1. 作成手順 (1) -Apfel タイプ-	.....	23
7. 2. 作成手順 (2) -Ing タイプ-	.....	25
7. 3. 試作検出器の照射・特性測定	.....	26
7. 4. 試作検出器の照射結果	.....	32
7. 5. 試作結果の検討	.....	43
8. 臨界エネルギーの測定法に関する検討	.....	45
8. 1. 均質核生成に関する測定	.....	45
8. 2. 放射線誘起核生成の測定	.....	46

8. 3. 過熱液滴型検出器の臨界エネルギー測定法の検討	.....47
9. まとめ	.....52
10. 参考文献	.....53

## 1. 緒言

原子炉施設、核燃料取扱施設においては、作業環境中の空間線量率や放射線業務従事者の被曝管理において、 $\gamma$ 線のみならず中性子の測定が不可欠である。

I C R P 1 9 9 0 年勧告において放射線荷重係数の見直しが行われ、特に中性子についてエネルギー群別に放射線荷重係数が与えられ、100 keVから2 MeVのエネルギーに対しこの荷重係数は従来の2倍になっている。このことはより検出限界の低い検出器の開発が必要なことを示している。

中性子検出器の一つである過熱液滴型検出器は $\gamma$ 線に感度がないこと、検出限界が現在実用に供されている中性子検出器に比べ低いことから、特に $\gamma$ 線と中性子が混在する作業環境における中性子線量率や放射線従事者の中性子被曝を測定できる有望な検出器である。しかし、この検出器の作動理論や、その特性については未だ十分解明されていない。このため、この過熱液滴型検出器の作動原理の理論解析を行い基本特性について解説するとともに、この検出器の応用範囲の拡大を目的とする。

今年度は、過熱液滴型検出器の作動原理の理論解析、基本特性の把握、及び応用範囲の拡大を図るため、以下の検討を行った。

- (1) 過熱液滴型検出器の動作原理解析
- (2) 検出液体の検出動作に関連する物性値調査
- (3) 臨界エネルギーの計算
- (4) 検出器の試作

本文は以下のように構成されている。第2章では過熱液滴型検出器による中性子検出動作原理と、基本動作把握に適した検出液体としてButeneを選択することを述べた。第3章では過熱液滴型検出器の基本的パラメータであり、検出感度・検出感度を主に支配する臨界エネルギーの理論を概観し、第4、5章では理論に基づいて臨界エネルギーを評価するために必要な物性値の計算を行っている。第6章では、これまでに報告されている臨界エネルギー実験値と前章で得た計算値との比較、比較の際の問題点、Buteneを検出液体とする場合の臨界エネルギー等について述べた。第7章にはButene検出器の試作法とその結果が示されている。第8章では過熱液滴型検出器によらない臨界エネルギー測定法について検討しており、第9章では全体のまとめと今後の方針が検討されている。

## 2. 過熱液滴型検出器の動作原理

### 2. 1. 過熱液滴型検出器による中性子検出

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

Seitzによれば、放射線による核生成は液体に付与される熱スパイクによるとされている<sup>1)</sup>。核が2)の過程に移行する条件は、生成された核の半径に依存する。生成された核の半径が、熱力学的条件により決まる臨界半径より小さければ核は周りの液体圧力により消滅し、大きければ成長する。半径が臨界半径と等しい核の生成に要するエネルギーを臨界エネルギーと呼ぶ。臨界エネルギーE<sub>c</sub>以上の中性子エネルギーが液体に付与された場合、核は可視気泡へと成長する。

中性子検出器の場合は、検出器使用条件下で、沸点が使用温度より低い液体を検出液体とする。検出液体を液滴状に弹性を有する支持媒質中に分散しておき、検出器保存時には加圧しておく。使用前に加圧を除去すると、液滴は過熱状態になる。液体構成原子核と中性子の相互作用により誘起される荷電粒子によるエネルギー付与がE<sub>c</sub>を越えると、生成核は成長し、それは液滴全体が蒸発し終わるまで続く。液滴は可視気泡となるのでこれを目視、或いは他の方法で計数する。

中性子検出感度K(E<sub>n</sub>)は、以下のようになる。

$$K(E_n) = V \sum_{i,j} N_i \sum_j \sigma_{ij}(E_n) S_{ij}(E_n) \quad (2.1)$$

V : 検出器体積 N<sub>i</sub> : 検出液体を構成するi-核種密度

$\sigma_{ij}$  : i-核種のj種-荷電粒子（以下ij-粒子と書く）放出反応断面積

S<sub>ij</sub> : ij-粒子の可視気泡生成確率

S<sub>ij</sub>は、ij-粒子のエネルギー分布をε<sub>ij</sub>(E<sub>j</sub>) とすると、

$$S_{ij}(E_n) = \int_{\text{エネルギー付与} > E_c} \varepsilon_{ij}(E_j) dE_j / \int_{E_{ij, \min}}^{E_{ij, \max}} \varepsilon_{ij}(E_j) dE_j \quad (2.2)$$

ここで、E<sub>ij, max</sub>・E<sub>ij, min</sub>はij-粒子の最大及び最小エネルギーである。分子の積

分は、エネルギー付与  $> E_0$  を満たす  $E_j$  について行なう。

以上より、検出器応答は臨界エネルギー  $E_0$  と共に、液体構成原子核と中性子の相互作用、荷電粒子阻止能等に依存することになる。

## 2. 2. 検出液体の選択

現在までに表 2. 1 に示す液体を検出液体とする検出器について報告されている。その中で、フレオン 12 は最も沸点が低く臨界エネルギーが小さい液体として注目されてきた。過熱液滴型検出器の特徴の一つである、高感度性の観点からは最も有利な液体と考えられる。表 2. 1 中のその他の液体は、実用性よりも検出器の動作原理を明らかにするために試用されたと考えられよう。

本研究では、検出液体には表 2. 2 に示す Butene を用いることにした。フレオン 12 に比べると沸点が高く、実用上の不利はあるが、以下の理由により、動作原理の理論解析、基本特性の把握に適した検出液体として Butene を選定した。

Butene は表 2. 2 に示すように、原子組成が単純で、中性子検出に関わる原子の種類が少ない (C のみか或いは C, H)。そのため、検出感度特性の計算が簡単で、計算に要するパラメータ数も少ない。即ち、気泡生成に関わる荷電粒子は、中性子との弾性散乱による反跳 C (或いは反跳 H も含まれるかもしれない) のみである。前述(2.2)式中の粒子のエネルギー分布を

$$\varepsilon_{ij}(E_j) = \varepsilon_c(E_j, E_n)$$

と置くことができる。 $\varepsilon_c(E_j, E_n)$  はエネルギー  $E_n$  の中性子との弾性散乱により放出される反跳 C 原子核のエネルギー分布である。C 原子核の検出液体中の阻止能を  $\frac{dE}{dx}(E_j)$  とすると、飛跡に沿って長さ  $\iota$  中に付与されるエネルギーは、

$$\int_x^{x+\iota} \frac{dE}{dx}(E_j) dx = \beta_c(E_j, x, \iota) \quad R_j > x > 0$$

( $R_j$  : エネルギー  $E_j$  の C 原子核の飛程)

となり、 $\beta_c$  は飛程に沿っての座標  $x$  の関数になる。(図 1. 1 参照)

その最大値を

$$\beta_{cm}(E_j, \iota) = \max \{ \beta_c(E_j, x, \iota) \}$$

とする。気泡生成条件は以下のように書ける。

$$\beta_{cm}(E_j, \iota) > E_c \quad (2.3)$$

Buteneを用いることには、以下の利点がある。

- 1) Buteneの場合、後に述べるこれまでに考えられている臨界エネルギーの理論によるならば、C原子核についてのみ(2.3)を考慮すればよい。(2.3)式の結果に基づき、(2.1)、(2.2)に従って感度を評価できる。
- 2) C原子の阻止能の分子構造への依存を無視出来るならば、表中の各Buteneについて、 $\beta_{cm}(E_j, \iota)$ は共通になる。 $E_c$ は熱的パラメータのみで決定され、異なる構造のButeneを用いることにより、 $E_c$ のみを変化できる。数種のButeneについて計算、実験を比較することにより、臨界エネルギー $E_c$ に関する理論の妥当性、未知のパラメータ $\iota$ 等について検討することが出来る。



図 2. 1 飛跡に沿って長さ  $\iota$  中に付与されるエネルギーの計算モデル

表2. 1 現在まで報告されている実験での使用過熱液体<sup>2)</sup>

液体	密度 <sup>+, ++</sup> (g/cm <sup>3</sup> )	沸点 * (°C)	蒸気圧** (atm)	実験者***
フロン12 CCl <sub>2</sub> F <sub>2</sub>	1.311 <sup>++</sup>	-29.8	5.8	a) b) c) d)
フロン114 C <sub>2</sub> Cl <sub>2</sub> F <sub>4</sub>	1.455 <sup>++</sup>	3.5	1.9	a) b)
フロン142B C <sub>2</sub> H <sub>3</sub> ClF <sub>2</sub>	2.165 <sup>++</sup>	-9.3	3.0	a) b)
isobutane C <sub>4</sub> H <sub>10</sub>	0.5942 <sup>+</sup>	-11.7	3.1	a) b)
cis-2-butene C <sub>4</sub> H <sub>8</sub>	0.6213 <sup>+</sup>	3.7	3.7	a)

\*at 1 atm. and at 20 °C

\*\*at 1 atm. and at 20 °C

\*at 1 atm. \*\*at 20 °C

a)Apfel b)Ing c)Kang d)Harper

\*\*\*後出の参考文献参照

表2. 2 構造の異なるButene液体<sup>2)</sup>

液体名と構造式	密度 <sup>+</sup> (g/cm <sup>3</sup> )	沸点 * (°C)
1-Butene CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> CH:CH <sub>2</sub> C <sub>4</sub> H <sub>8</sub>	0.5951	-6.0 °C
cis-2-Butene CH <sub>3</sub> CH:CHCH <sub>3</sub> C <sub>4</sub> H <sub>8</sub>	0.6213	+3.7
trans-2-Butene CH <sub>3</sub> CH:CHCH <sub>3</sub> C <sub>4</sub> H <sub>8</sub>	0.6042	+0.8
iso-Butene (CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> C:CH <sub>2</sub> C <sub>4</sub> H <sub>8</sub> (=iso-Butylene, 2-Methylpropene)	0.5942	-7.0

\*at 1 atm. and at 20 °C

\*at 1 atm.

### 3. 臨界エネルギーに関する理論

#### 3. 1. 過熱液体中の核生成

液体から蒸気への相転移曲線（P-T図に表されるような）を相転移せずに（つまり新しい相の発現無しに）横切る場合がある。液層からのこの移行が一定圧力線に沿って行われた時は液体は過熱されたと呼ぶ。このような移行が一定温度線に沿って生じた場合は液体はその温度の蒸気圧より低圧で液相を保持する。

即ち、図3. 1 中の温度  $T_0$  と圧力  $P_0$  で液体である物質について、温度を徐々に  $T_0$  から  $T_1$  の状態にしたとき、温度が相変化のラインを超えて、本来は気体になる温度  $T_1$  になっても元の液体状態で存在し、また圧力を徐々に  $P_0$  から  $P_1$  の状態にしたとき、本来は気体になる圧力  $P_1$  になっても元の液体で存在する状態、すなわち本来相変化が起こる温度或いは圧力になどても元の相（液体状態）を保っている状態がある。これは、一種の準安定状態である。このような移行が起きた場合は、系は準安定状態にあると言われる。

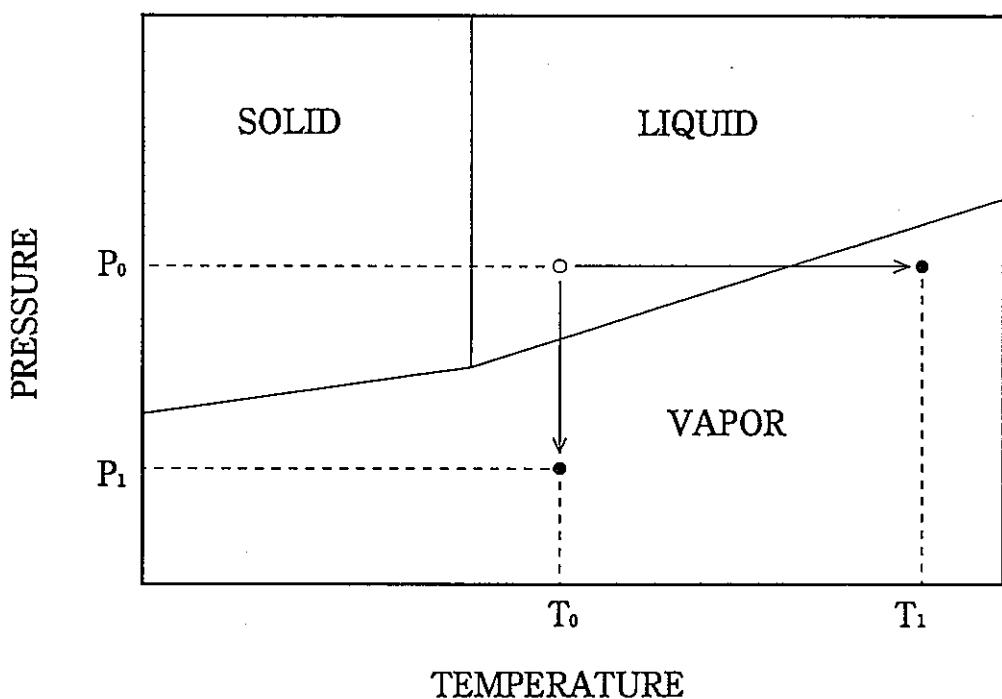


図3. 1 固体・液体・気体の相変化図

僅かな温度増加或いは圧力減少による、ある合理的な時間内の蒸発、気泡生成の観測により、準安定状態が過熱限界に到達していることを知ることができる。この限界点は空洞生成しきい点 (cavitation threshold) と呼ばれている。過熱限界を越えると沸騰が始まる。

準安定液体中の空洞生成の議論では、しばしば、純粹液体中の空洞核生成 (cavitation nucleation) と純粹液体中に何か別な物、例えば、他の純粹物質・固体不純物・液体に作用する放射線等による核生成とを区別する方が扱いやすい。前者は均質核生成と呼ばれ、後者は非均質核生成と呼ばれている。

非均質核生成の場合は、空洞生成しきい値は着目する液体の諸特性以外の、気泡核の種類やサイズ等に依存することになるであろう。

均質核生成の場合は、空洞生成しきい値は液体の引っ張り応力に相当する。均質核生成の研究は液体の性質を研究するために行われており、理論・実験が報告されている。

放射線が核生成を行なう場合は上述のように非均質核生成に分類される。第2章で述べたように、生成された核が成長する条件が、気泡生成条件である。以下では、均質及び放射線に誘発される非均質核生成の理論について述べる。

### 3. 2. 均質核生成の理論

この理論では密度の揺らぎが微小蒸気泡の生成消滅を引き起こすと仮定されており、揺らぎのあるものが合理的な時間内で観測可能な蒸気泡に成長する確率が計算されている。この理論に関する基本的な研究はDöringによって行われた<sup>3)</sup>。

DöringによるとZ1個の分子を含む液滴中のHONの単位時間当たりの生成数は

$$J = Z_1 [6 \gamma / \{(3-b)\pi m\}]^{1/2} \cdot \exp(-\lambda/kT) \cdot \exp(-W_k/kT)$$

b=(p\_v-p\_l)/p\_v 、 p\_v・p\_l : 蒸気及び液体の圧力

$$W_k = 16\pi \gamma^3 / (p_v - p_l)^2 = 16\pi \gamma^3 / (bp_v)^2$$

$\lambda$  : 1モル当たりの蒸発熱

$\gamma$  : 表面張力

m : 液体の分子量

$$\begin{aligned} \text{(dimendion: } J &= [\#] \{ [N/m]/[kg] \}^{1/2} = [\#] \{ [kgm/(sec \cdot sec)/m]/[kg] \}^{1/2} \\ &= [\#]/sec) \end{aligned}$$

Gibbsによると  $W_k$  は準安定状態の安定度の目安である。  $W_k$  は最初任意の寸法の蒸気泡を生成する可逆等温仕事を計算し、次に仕事を極値にする（極小にする）寸法変数の値を求ることによって得られる、核化のエネルギーbariaの値である。

即ち、蒸気泡の半径を  $R$ 、液体の表面張力を  $\gamma$ 、  $\Delta P = (p_v - p_1)$  とすると、

$$W = 4\pi \gamma R^2 - (4\pi/3) R^3 \Delta P = 4\pi R^2 [\gamma - R \Delta P/3]$$

$$dW/dR = 0 \rightarrow R_c = 2\gamma / \Delta P \rightarrow W_k = 4\pi \gamma (4\gamma / \Delta P)^2 (\gamma / 3)$$

である。

蒸気泡の発生は確率現象である。しきい値は、例えば  $J = 1$  で定義される。  
 $J = 1$  とおくと、上式は、

$$Z_1 [6\gamma / \{(3-b)\pi m\}]^{1/2} \cdot \exp(-\lambda/kT) \cdot \exp(-16\pi\gamma^3/(bp_v)^2/kT) = 1$$

$$[\lambda + 16\pi\gamma^3/(bp_v)^2]/kT = \ln \{ Z_1 [6\gamma / \{(3-b)\pi m\}]^{1/2} \}$$

$$[16\pi\gamma^3/(bp_v)^2]/kT = \ln \{ Z_1 [6\gamma / \{(3-b)\pi m\}]^{1/2} \} - \lambda/kT$$

$$= \ln [C(T)]$$

$$C(T) = Z_1 [6\gamma / \{(3-b)\pi m\}]^{1/2} \exp(-\lambda/kT)$$

により、 $\gamma$ 、 $\lambda$ 、 $Z_1$ 、 $m$ 、 $p_v$ 、が与えられると、空洞生成しきい値に対応する  $p_1$ - $T$  曲線がえられる。<sup>4)</sup>

均質核生成の理論の確証のために、第8章に示すように種々の液体について空洞生成しきい値が測定されており、蒸気泡の発生が観測されはじめる  $p_1$ 、 $T$  と上述の  $p_1$ - $T$  曲線とが比較されている。

### 3. 3. 放射線に誘発される非均質核生成

第2章で述べたように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<sup>1)</sup>。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、

$$P_{in} = P_l + 2\gamma / R_c \quad (3.1)$$

$P_{in}$ ：蒸気核内の圧力、 $P_l$ ：液体圧力、 $\gamma$ ：液体の表面張力、  
 $R_c$ ：蒸気核半径

ここで  $P_{in}$ 、 $\gamma$ 、は温度  $T$  に依存し、 $R_c$  もまた温度の関数である。

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が臨界エネルギー  $E_c$  である。

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

$$E_c = \frac{16\pi}{3} \frac{\gamma(T)^3}{(P_s - P_l)(1 - V'/V'')} \left( 1 + \frac{2H_{fg}}{(P_s - P_l)(V'' - V')} - \frac{3Td\gamma}{\gamma dT} \right) \quad (3.2)$$

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、 $V'/V''$ ：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。(3)式は  $V'/V'' = 0$  とすると

$$E_c = \frac{4\pi}{3} R c^3 H_{fg} + 4\pi R c^2 \left( \gamma(T) - T \frac{d\gamma}{dT} \right) + \frac{4\pi}{3} R c^3 (P_l - P_s) \quad (3.2')$$

となる。

Harper は臨界エネルギー表現として次式を提案している<sup>6)</sup>。

$$E_c = \frac{4\pi}{3} R c^3 H_{fg} + 4\pi R c^2 \left( \gamma(T) - T \frac{d\gamma}{dT} \right) + \frac{4\pi}{3} R c^3 P_l \quad (3.3)$$

Apfelによれば<sup>7)</sup>

$$Ec = 4\pi R c^2 \gamma(T) + \frac{4\pi}{3} R c^3 \Delta P, \quad \Delta P = P_i - P_s(T) \quad (3.4)$$

Seitzの泡箱の理論では<sup>1)</sup>、

$$Ec = \frac{4\pi}{3} R c^3 H_{fg} + 4\pi R c^2 \gamma(T) + \frac{4\pi}{3} R c^3 \Delta P \quad (3.5)$$

(2')～(5)を比較すると以下のようになる。

1. 通常の検出器条件下では、

$$\Delta P < 0$$

Harper以外は体積膨張エネルギーとして(a)、Harperの(3)のみが(b)としている。

$$\frac{4\pi}{3} R c^3 (P_i - P_s) \quad \text{---(a)}$$

$$\frac{4\pi}{3} R c^3 P_i \quad \text{---(b)}$$

液体中に半径Rcの空洞の生成仕事は(b)である。(a)は、圧力P<sub>s</sub>の蒸気でその孔を満たすことによって戻される仕事 (the work returned)が考慮されている。<sup>8)</sup>

2. 通常の使用条件では

$$d\gamma(T)/dT < 0$$

である。よって、(3.3)が最も大きいE<sub>c</sub>を与え、(3.4)が最も小さいEcを与える。

本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(3.3)及び(3.4)により計算し、各実験結果の比較検討を行った。その結果に基づき、Buteneについては(3.3)により臨界エネルギーを算出している。

#### 4. 臨界エネルギー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. Reid他" The Properties of Gases and Liquids"(4th ed.) を参照して計算を行った<sup>9)</sup>。R. 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。

##### 4. 1. 液体密度

液体体積は、Hankinson & Thomas によると、

$$V_s/V^* = V_R^{(0)} [1 - \omega_{SRK} V_R^{(\delta)}] \quad (3.6) \quad (*3-11.1)$$

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

0.25 < T\_r < 0.95

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

0.25 < T\_r < 1.0

a=-1.52816	b=1.43907	c=-0.81446	d=0.190454
e=-0.296123	f=0.386914	g=-0.0427258	h=-0.0480645

$\omega_{SRK}$  : Hankinson-Brobst-Thomson & Rackett 液体体積相関係数

$V_s$  : 1モル当たりの液体体積 [cm<sup>3</sup>/mol]     $V^*$  : 特性体積 [cm<sup>3</sup>/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  $\rho_s(T)$  は、次式で与えられる。

$$\rho_s(T) = M/V_s \times 1000 \quad [\text{kg}/\text{m}^3] \quad (3.7)$$

## 4. 2. 蒸気圧及び蒸気密度

Pitzer展開によると

$$\ln(P_{v_p,r}) = f^{(0)}(T_r) + \omega f^{(1)}(T_r) \quad (3.8)(*7-2.6)$$

$$P_{v_p,r} = P_{v_p}/P_c \quad : \text{換算蒸気圧}$$

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

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

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

$$\alpha = -\ln(P_c) - 5.97214 + 6.09648\theta^{-1} + 1.288862\ln(\theta) - 0.169347\theta^6$$

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

$$\theta = T_b/T_c = T_{b,r}$$

$T_b$  : 沸点、  $T_c$  : 臨界温度、  $T_{b,r}$  : 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。

$$V = ZRT/P_{v_p} \quad , \quad Z : \text{圧縮係数} \quad (3.9)$$

R : 気体定数、 83.144 bar·cm<sup>3</sup>/(mol·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。(\*Fig3-1、\*Table3-2を参照した)

$$Z \sim Z^{(0)} \sim 1 - g(T_r)P_r \sim 1 - (14.85e^{-3.8T_r}) P_r$$

蒸気密度  $\rho_{v_p}$  は

$$\rho_{v_p} = M/V \times 1000 = P_{v_p}M/(ZRT) \times 1000 \quad [\text{kg/m}^3] \quad (3.10)$$

### 4. 3. 表面張力

温度依存表面張力については次式を採用した。

$$\gamma(T) = P_c^{2/3} T_c^{1/3} Q (1-T_r)^{11/9} \quad (3.11) \quad (*12-3.6)$$

$$Q = 0.1196 [1 + T_{br} \ln(P_c / 1.01325) / (1 - T_{br})] - 0.279 \quad (*12-3.7)$$

これを用いると  $Td\gamma(T)/dT$  は、

$$Td\gamma(T)/dT = (11/9) \gamma T_r / (1 - T_r) \quad (3.12)$$

となる。表面エネルギー  $\bar{W}_s$  は、

$$\bar{W}_s = 4\pi R_c^2 \gamma \{1 + (T/\gamma) d\gamma/dT\} \quad (3.13)$$

### 4. 4. 蒸発熱

Vetereにより、

$$H_{vb} = RT_c T_{br} \frac{0.4343 \ln P_c - 0.69431 + 0.89584 T_{br}}{0.37691 - 0.37306 T_{br} + 0.15075 P_c^{-1} T_{br}^{-2}} \quad (3.14) \quad (*7-11.5)$$

## 5. 液体物性値の計算値

表5. 1に示す、フレオン及び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図5. 1~5. 5に示されている。

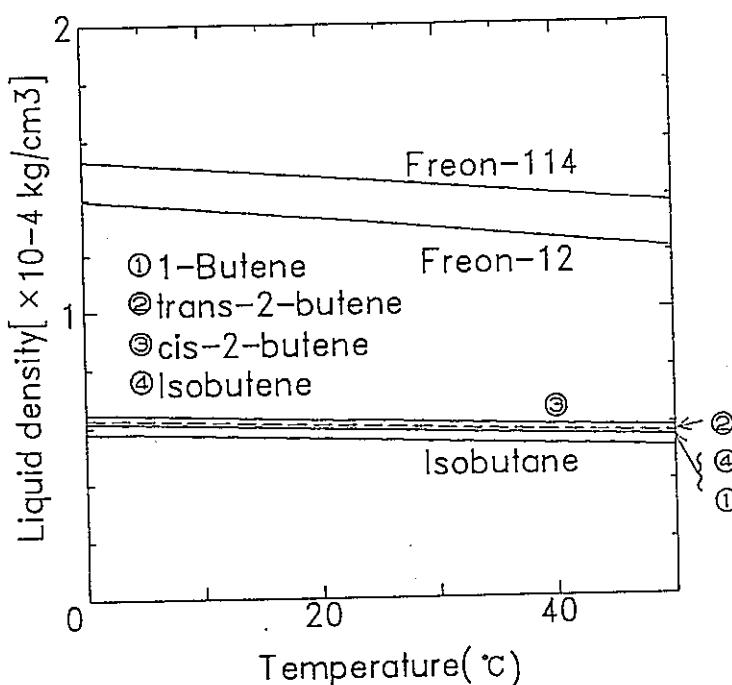


図5. 1 液体密度と温度の関係

表5. 1 液体とその性質<sup>2)</sup>

\*1 atm, 20 °C    \*\*1 atm, 25°C

liquid	density (g/cm <sup>3</sup> )	boiling point at 760mmHg	Vapor pressure at 20 °C(atm)
1-Butene	0.5951*	-6.0 °C	2.6
cis-2-Butene	0.6213*	+3.7	1.8
trans-2-Butene	0.6042*	+0.8	2.0
iso-Butene	0.5942*	-7.0	2.6
Freon-12	1.311 **	-29.8	5.8
Freon-114	1.455 **	3.5	1.9
isobutane	0.5942*	-11.7	3.1

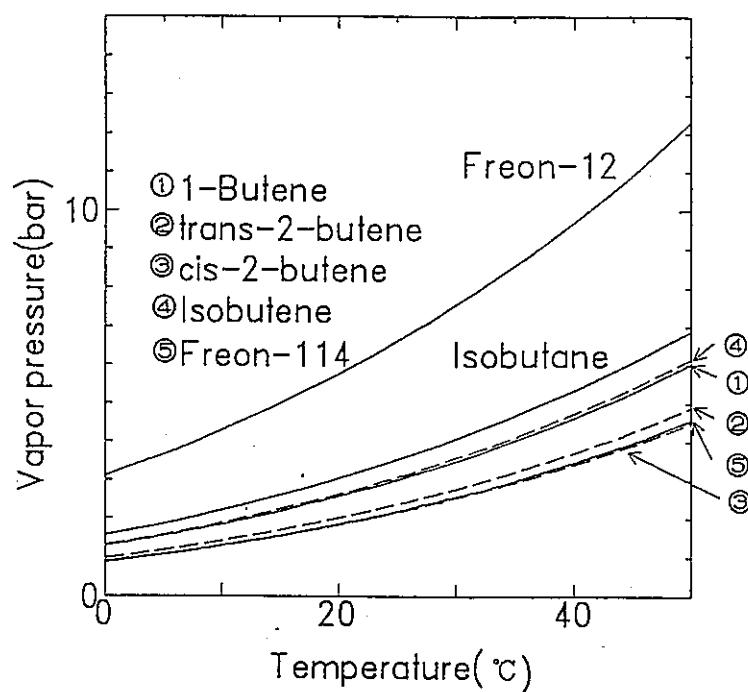


図 5. 2 蒸気圧と温度の関係

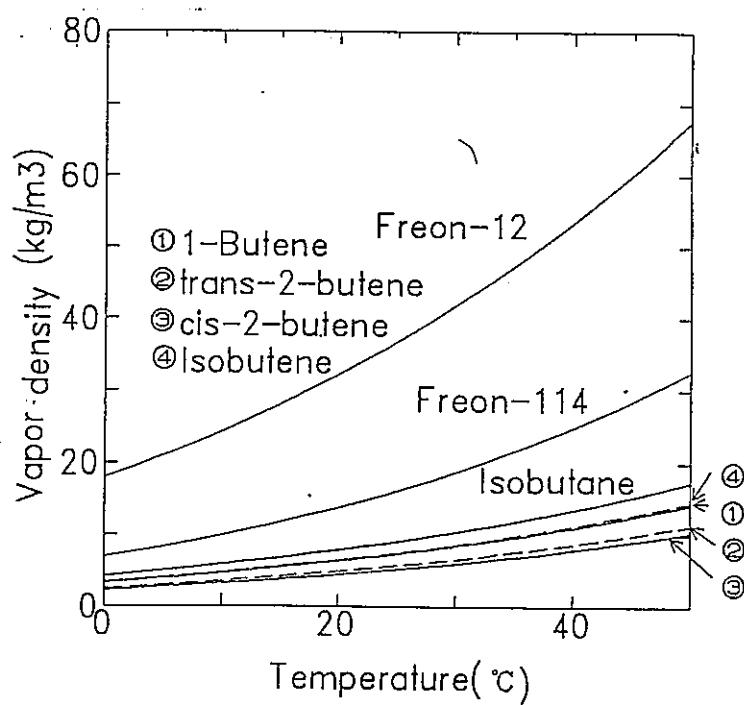


図 5. 3 蒸気密度と温度の関係

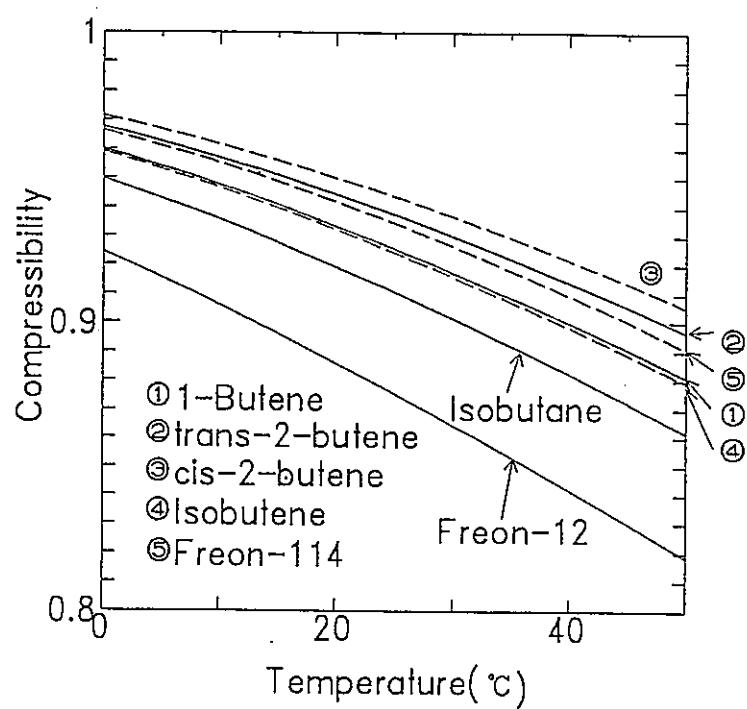


図 5. 4 圧縮係数と温度の関係

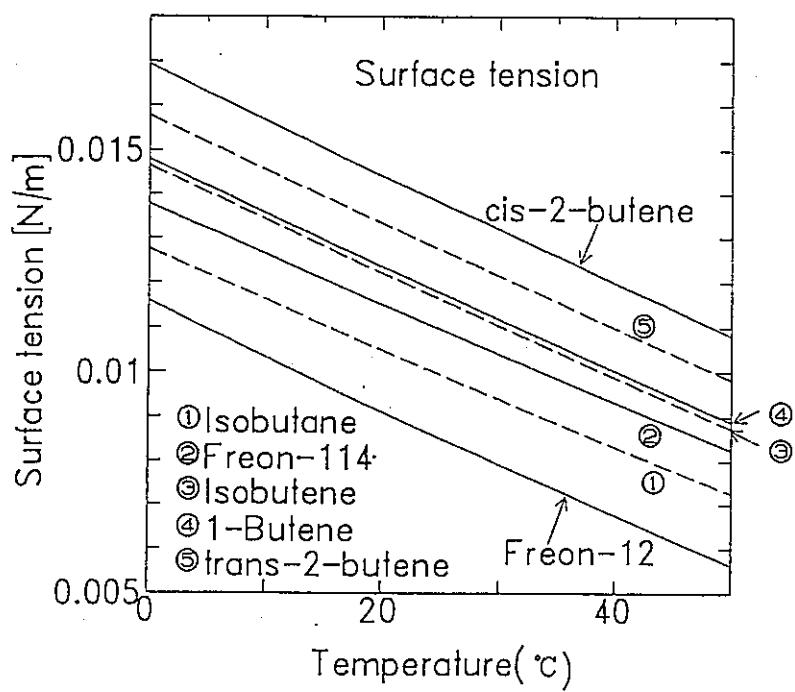


図 5. 5 表面張力と温度の関係

## 6. 臨界エネルギー値の検討

### 6. 1. 臨界半径の計算

前節の計算値を用いて表5. 1の液体について臨界半径を計算した。結果を図6. 1～6. 2に示す。臨界半径は、20°Cで $10^{-8} \sim 10^{-6}$  m程度であることがわかる。

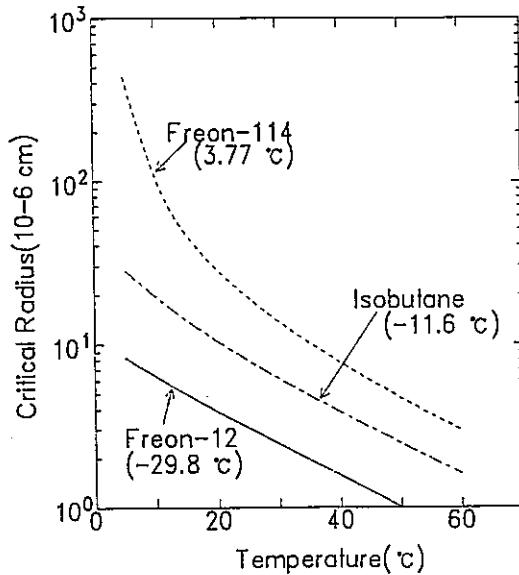


図6. 1 フレオン、イソブタンの臨界半径

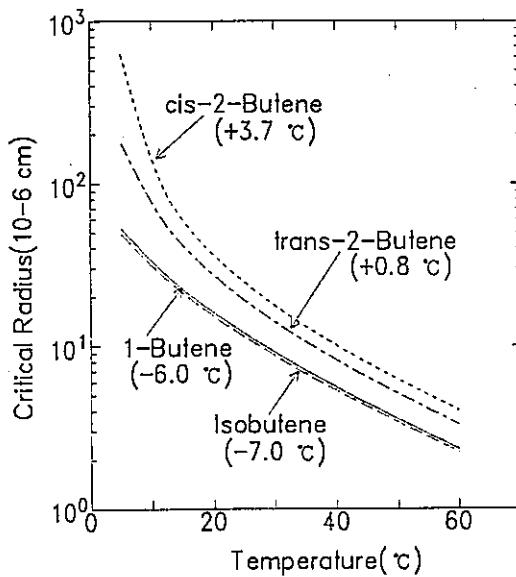


図6. 2 Buteneの臨界半径

## 6. 2. 臨界エネルギー評価式と実験結果との比較上の問題点

臨界エネルギーは3. 3で示した評価式のどれを用いるかで異なる。実験値と計算値を比較することにより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、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。2. 2節で導入した $\iota$ の評価である。

2. 1節. で簡単に述べたように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~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。

臨界核生成条件は

$$\beta_{cm}(E_j, \iota) > E_c$$

であるが、次節で示すApfellはこれを以下のように近似して臨界エネルギーの実験値を算出している。 $\beta_{cm}(E_j, \iota) \sim (dE/dx)|_{E_j} \times \iota$  とし、更に

$$E_j > E_{j, thre}$$

$$\beta_{cm}(E_{j, thre}, \iota) \sim (dE/dx)|_{E_{j, thre}} \times \iota = E_c$$

とする。

実験では、気泡 (= 臨界核) を生成する最低中性子エネルギー  $E_{n, min}$  が測定される。その値から、反跳C原子核の最大エネルギーを求め、その値を  $E_{j, thre}$  としている。更に、 $E_{j, thre}$  のC原子核の阻止能  $(dE/dx)|_{E_{j, thre}}$  を求めている。

次に、核生成に寄与するエネルギー付与の空間的拡がり "  $\iota$  " を指定しなければ、実験と理論の比較ができない。

"  $\iota$  " 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。Harper<sup>6)</sup> の記号を用いて示すならば、

$$\iota = aR_c \quad (= bR_c (\rho_v/\rho_1)^{1/3}, a = b \cdot (\rho_v/\rho_1)^{1/3})$$

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

で定義されるa及びbの値が検討されている。これまでに提案されているa, bの理論と実験による値を表6. 1に示す。

次節の実験と計算の比較では、Apfelの実験値を用いているので、Apfelのaを用いて、 $\iota = 2R_c$  として  $(E_c)_{\text{実験}}$  を示している。

実験で得られるのは臨界阻止能、 $(dE/dx)|_{E_{c, \text{the}}}$  であり、 $E_c$ ではないことに留意したい。

表6. 1 気泡核生成時の有効長パラメータ

Authors	a	b	theoretical or experimental
Bell <sup>11)</sup>	6.07		theoretical for sphere
Apfel <sup>7)</sup>	2		experimental
Dietrich <sup>12)</sup>	12.96		theoretical for cylinder*
Harper <sup>10)</sup>		3.73~4.8	experimantal 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。

### 6. 3. 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<sup>7)</sup>。そこでは、前述したように $L=2R$ 。（即ち $a=2$ ）として $E_c$ -実験値を評価している。その結果  $\eta = E_c$ <sub>実験値</sub>/ $E_c$ <sub>理論値</sub>として $\eta$ 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<sup>7)</sup>。Harperは、フレオン-12の $^{252}\text{Cf}$ 中性子に対する温度依存検出感度を0~40°C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 $^{252}\text{Cf}$ 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<sup>10)</sup>。

図6. 1は、フレオン等の臨界エネルギーを評価式(3.3)と(3.4)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<sup>13)</sup>、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ある。

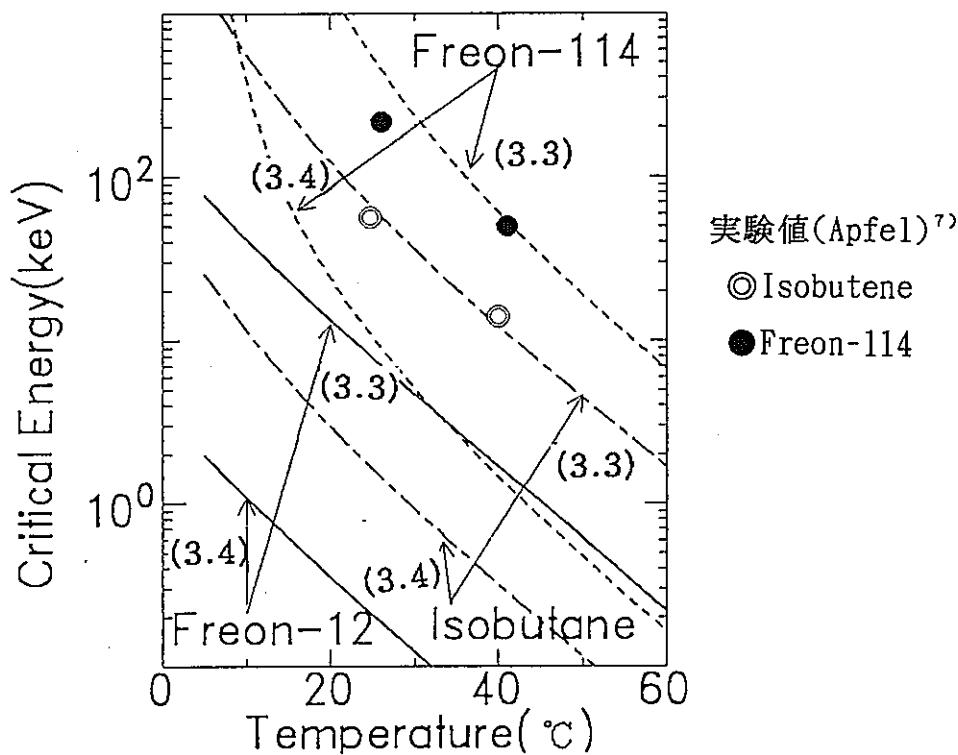


図6. 3 評価式(3.3)と(3.4)による臨界エネルギーと実験値<sup>7)</sup>

Apfelの実験値は、評価式(3.3)とかなりよく一致している。評価式(3.3)と(3.4)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(3.3)を採用するならばApfelの実験値に対し $\sim 100\%$ 近くになり、(3.3)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(3.3)によって計算した。結果を図6.4に示す。また、図6.5には、20°Cの場合の臨界エネルギーと液体沸点の関係を示した。

#### 6. 4. Butene検出器についての検討

図6.3と6.4を比較すると、Butene検出器の特性を予測することができる。図6.5より、Buteneはフレオン-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、フレオン-12の20°Cの臨界エネルギーと同程度になるには、温度を50~60°C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

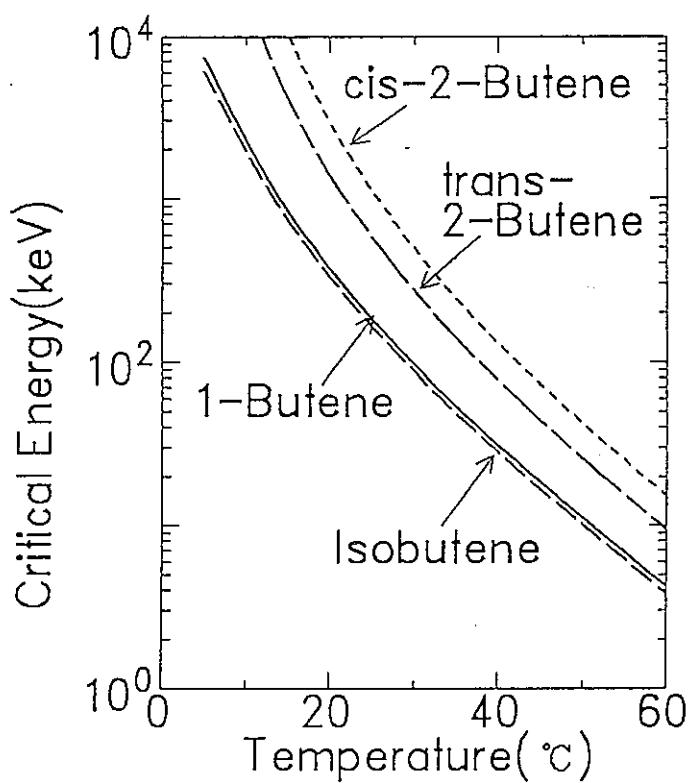


図6.4 評価式(3.3)による臨界エネルギー計算値

支配する原子核は両者共炭素と考えると、フレオン-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。

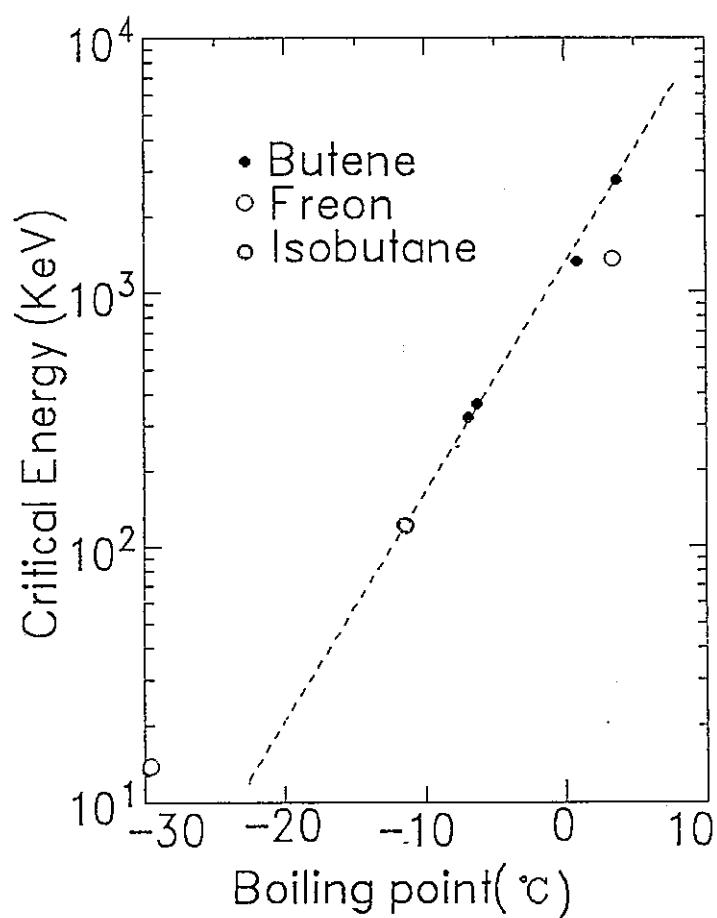


図 6. 5 20°Cにおける臨界エネルギーと沸点の関係

## 7. Butene検出器の試作

これまでに考案されている過熱液滴型検出器には主に2つのタイプがある。一方はR. E. Apfelによる“Superheated drop detector”（以下APFELタイプ）で、もう一方はH. Ingによる“Bubble-damage polymer detector”（INGタイプ）である。目視計数や繰り返し再使用が可能であるという点から、本研究の目的にはINGタイプが好都合である。そこで、まず第一段階として比較的作成の容易なAPFELタイプを試作し、Buteneが中性子検出器として研究目的を達成できるだけの感度を有するかどうかを調べることにした。

第二段階としてINGタイプ検出器の作成を行った。尚以下に述べる両タイプの作成手順は、動燃の小泉勝三氏が開発された手順に基づいたものである。

最初に沸点の最も低いイソブテンで試作した。以下では液体名をイソブテンとしている。

### 7. 1. 作成手順(1)－APFELタイプ－

- ① 10ccのキャップ付き容器にグリセリン5ccをピペットで入れる。
- ② 沸点以下に冷却したイソブテンを0.5cc以上（但し目分量で高さは約3mm、図7. 1参照）を入れ、キャップを漏れの無いように閉める。

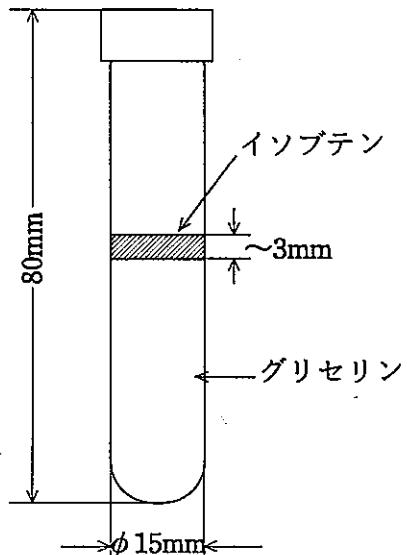


図7. 1 APFELタイプの試作

- ③ マルチ・ミキサーの台に容器を2本ずつ固定し、回転強度設定目盛（1-7）を6に設定して15分間振り混ぜる。その様子は図7. 2に示した。

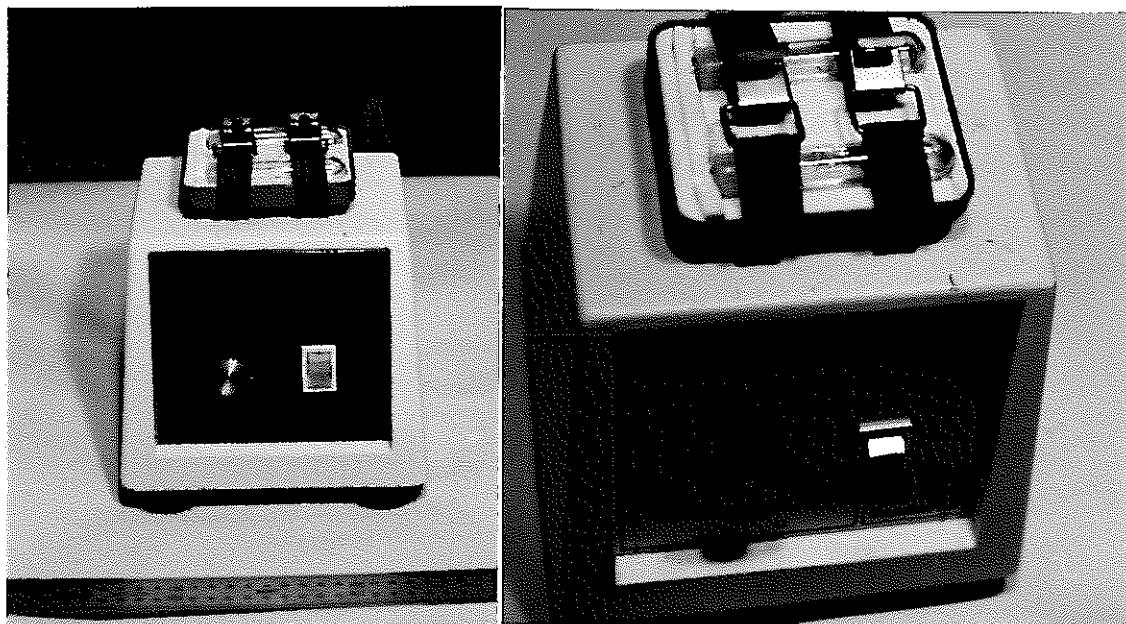


図7.2 検出液体+グリセリンの混合

④ 振り混ぜた後容器をミキサーから外し、室温以下で静かに放置する(40~50分)。

※ 作成の終了時点では、余ったイソブテンの蒸気圧で容器内は加圧されている。使用時にキャップを開け圧力を解放したとき初めて液滴は過熱状態になり、中性子に対して有感となる(sensitizationと呼ぶ)。

※ 振り混ぜた後の放置時間は重要である。液滴径が大きいものは上昇し、大きさの揃った液滴が容器内にほぼ一様に分布するようになる。また、これが十分でないと容器内の状態は不安定で、sensitizationの時に液滴の一部が自発的に気泡化してしまう。しかしその時間は長過ぎても良くない。イソブテンの比重は $0.594[\text{g}/\text{cm}^3]$ とグリセリン( $1.26[\text{g}/\text{cm}^3]$ )に比べ軽い。従って時間の経つにつれて液滴は上昇し消滅して、その数が減ってしまうのである。いろいろ試してみたところ、放置時間は少なくとも30分以上、長くとも60分が限度である。

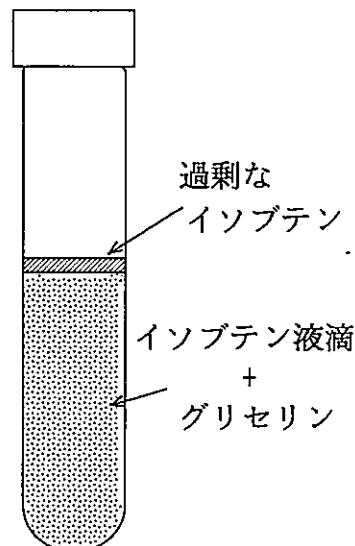


図7.3 放置時の状態

## 7. 2. 作成手順(2)－INGタイプ－

APFELタイプがグリセリンに過熱液滴を分散させただけであるのに対し、INGタイプではポリアクリルアミドに閉じ込めてしまう。具体的には、まずAPFELタイプを作成し、それに次の3つの溶液を加えることによって重合反応させる。

- (A) アクリルアミド、メチレンビスアクリルアミド混合液 (AMA)
- (B) テトラメチルジアミン (TEMED)
- (C) 過硫酸アンモニウム10%溶液

これらの量や混ぜ方などが、検出器の特性を左右するファクターである。

### ①～④までAPFELタイプと同じ

※ 但し③で振り混ぜる前に容器を約40°Cに湯せんした場合もある。これはイソブテンを液滴状にするに当たり、混ぜるときの温度を一定にし、グリセリンの粘度をある程度下げるためである。

- ⑤ 放置時間を終えたところでキャップを開け、(A)2ccと(B)60μlをピペットで正確に注入した。そしてキャップを閉め、ゆっくりと静かに混ぜる。激しく混ぜると、液滴の気化を促してしまうので注意する。
- ⑥ よく混ざったらキャップを開け、(C)60μlを速やかに注入し、やはりゆっくり振って混ぜ合わせる。(C)だけを後から入れるのは、入れた時点より重合反応が始まるためである。よってここでは、液滴がむら無く分散するよう注意しなくてはならない。このとき、混ぜたり反応熱が発生することによって、発泡が若干見られる。
- ⑦ 2～3時間以上は常温で置き、重合反応が完全に終了したのを見計らって、キャップを開けフレオン12（沸点以下に冷却しておく）を微量注入する。素早く漏れの無いようにキャップを閉める。これでフレオン12の保存時温度で決まる蒸気圧によって容器内は加圧され、重合中に生成した気泡も消滅する。

※ 使用するまでには、加圧後2~3時間以上置く。これもsensitizationの時の気泡発生を防ぐためである。

※ 加圧に用いる液体がフレオン12なのは、加圧時の環境温度での高い蒸気圧による。イソブテンの蒸気圧ではポリアクリルアミドを加圧するのに不十分であることが既に確認されている。

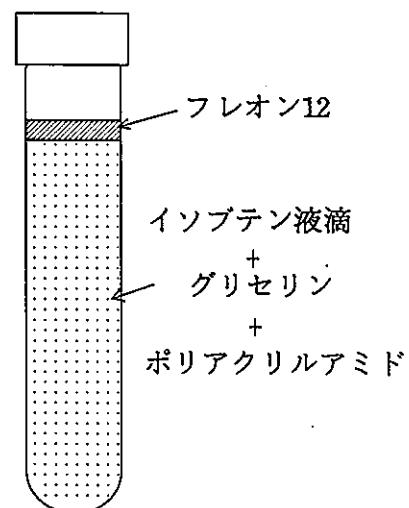


図7. 4 フレオン12の蒸気圧による加圧

### 7. 3. 試作検出器の照射・特性測定

#### (1) 照射体系

試作した検出器に中性子線を照射して、その応答を調べた。  
照射線源には $^{241}\text{Am-Be}$ を用いた。

線源形状は図7. 5、諸データを下に示す。

放射能（線源検定時）： $1.25 \times 10^7$  [Bq]  
平均中性子エネルギー：4.5 [MeV]  
半減期：458 [year]

検出器は図7. 6に示すアルミニウム・ホルダーに固定して照射した。図7. 7にその外観を載せた。加熱はテープヒーターをホルダー外側に巻き付けて行った。

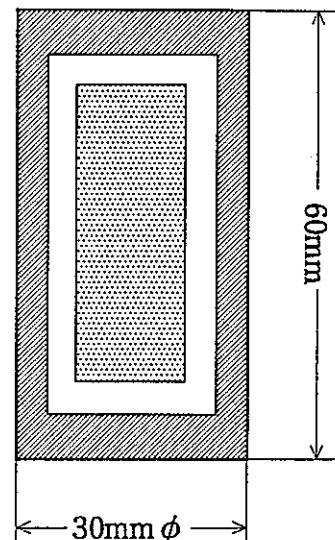


図7. 5  $^{241}\text{Am-Be}$ 線源の形状

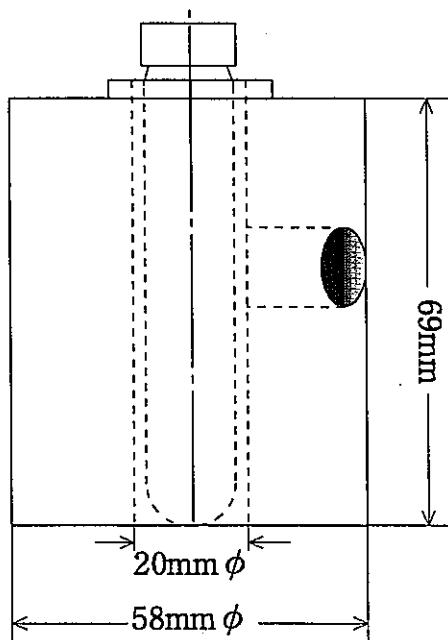


図7. 6 照射用検出器ホルダー

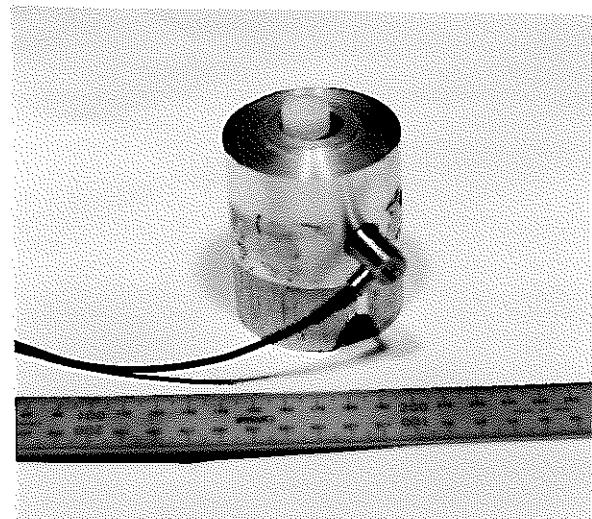


図7. 7 ホルダーの外観

## (2) 照射線量

試作したイソブテン検出器は、常温付近では臨界エネルギーが大きく、高い気泡生成確率は期待ができない。気泡の発生が観測し易いように線源との距離は50～160mmと近距離に設定した。この場合の線量当量率を計算する。

線源検定日の1969年2月21日から実験日までの時間をT [year]とすると、実験日の $^{241}\text{Am}$ -Be線源の放射能A [Bq]は

$$A = A_0 \exp(-\ln 2 \cdot T/T_{1/2})$$

$A_0$  : 線源検定日の放射能

$T_{1/2}$  : 有効半減期

ここで本実験期間より、実験日を1994年11月21日とすれば  $T=25.75$  [year]

$$\therefore A = 1.20 \times 10^7 \text{ [Bq]}$$

$r$  [cm]離れたところでの中性子束  $\phi$  は

$$\phi = \frac{A}{4\pi r^2} [\#/cm^2 \cdot sec]$$

尚、アルミニウムホルダーによる減速は無視する。

中性子束  $\phi$  を線量当量率  $DE$  [ $\mu$ Sv/sec] に変換する。 $^{241}\text{Am-Be}$  の放出する中性子の平均エネルギー～4.5[MeV]である。中性子束－線量当量換算係数  $C(E)$  に以下の値を用いて計算を行った。

$$C(E) = 4.13 \times 10^{-4} [\mu\text{Sv} \cdot \text{cm}^2]^{(14)}$$

$$\therefore DE = C(E) \cdot \phi = \frac{3.94 \times 10^2}{r^2} [\mu\text{Sv}/\text{sec}]$$

$$r = 5 \text{ [cm]} \text{ では } DE = 15.76 [\mu\text{Sv}/\text{sec}]$$

$$r = 16 \text{ [cm]} \text{ では } DE = 1.539 [\mu\text{Sv}/\text{sec}]$$

参考のため感度の保証されている市販過熱液滴型検出器(BD-100R-PND)を用いて  $r=150$ [cm]の所で計測した結果  $DE=(1.83 \pm 0.4) \times 10^{-2}$  [ $\mu$ Sv/sec] であった。

(この検出器は感度が高いため、本実験の照射位置では測定できなかった。) この実験値と  $DE \propto 1/r^2$  により  $r=5$ [cm]での線量を推定すると  $16.5 \pm 3.6$  [ $\mu$ Sv/sec] で計算値とほぼ一致した。この測定における照射線量の評価は計算値によった。

### (3) 計数システム

気泡の計数は、発生音を検出する方法を用いた(Apfelによるelectronic counting法)。計数体系を図7. 8に示す。INGタイプは目視でも計数できるが、1000を超える数の気泡を発生させた場合その作業は困難である。従って本実験では、両タイプ共にelectronic counting法を用いることにした。

アルミニウム・ホルダーに、圧電素子であるAcoustic Emissionセンサーを検出器に密着するように取り付けた。センサーで検出された音波をプリアンプで増幅し、ディジタル・ストレイジスコープに入力する。ここで気泡発生音と雑音を弁別するために、ディジタル・ストレイジスコープの“GO/NO GO判別”機能を利用した。判別出力をコンピューターで計数した。

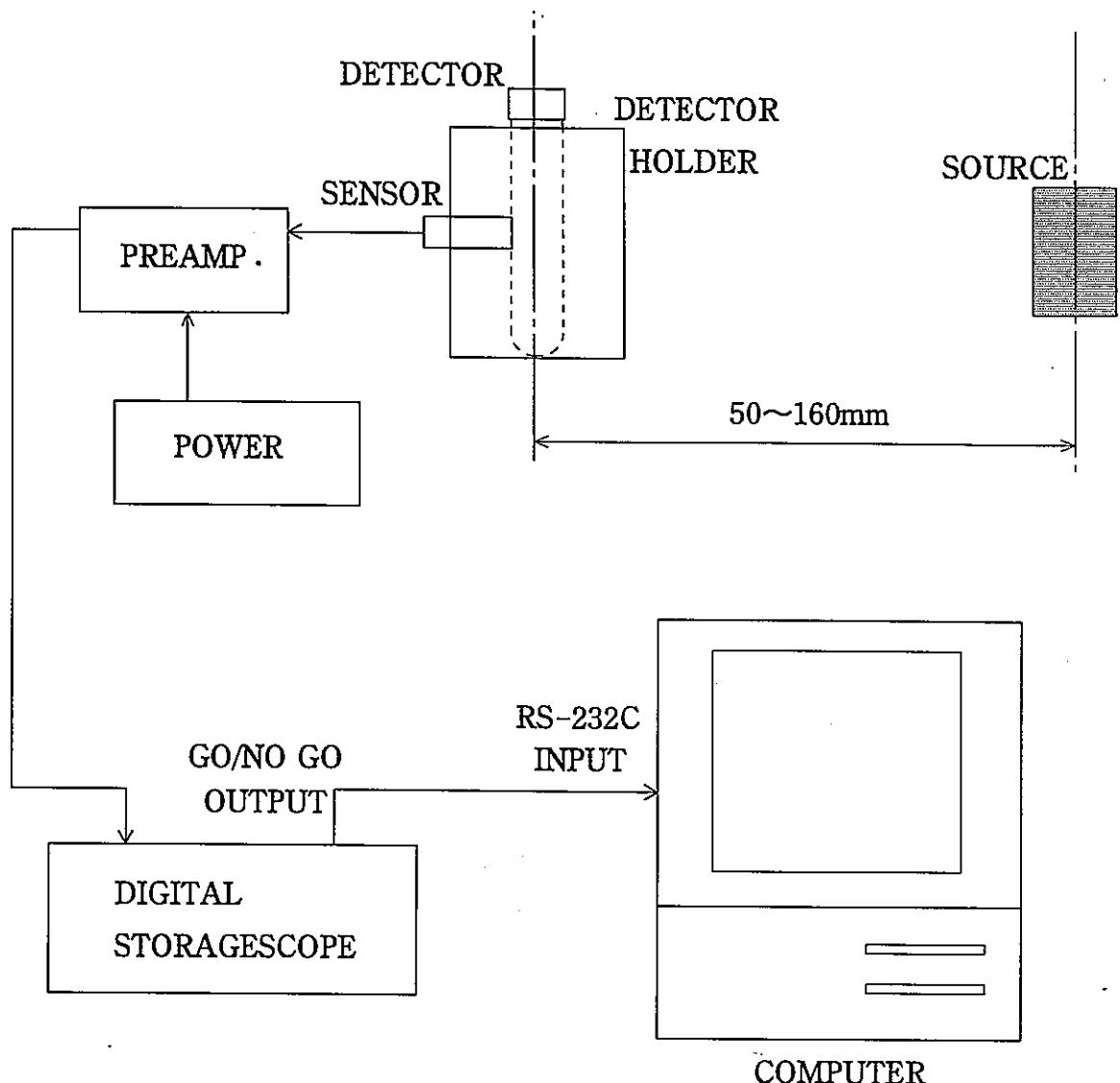


図7. 8 計数体系

#### 《GO/NO GO判別》

気泡生成時の放出音は後節で示すように振動しながら、その振動のエンヴェロープが~10 msecで減衰するような波形である。振幅、持続時間共にかなり変動する。被測定波形の立ち上がり時より5 msec間の振幅が設定値以上のものを気泡生成時の放出音として判別するすることにした。

ディジタル・ストレイジスコープのスクリーン

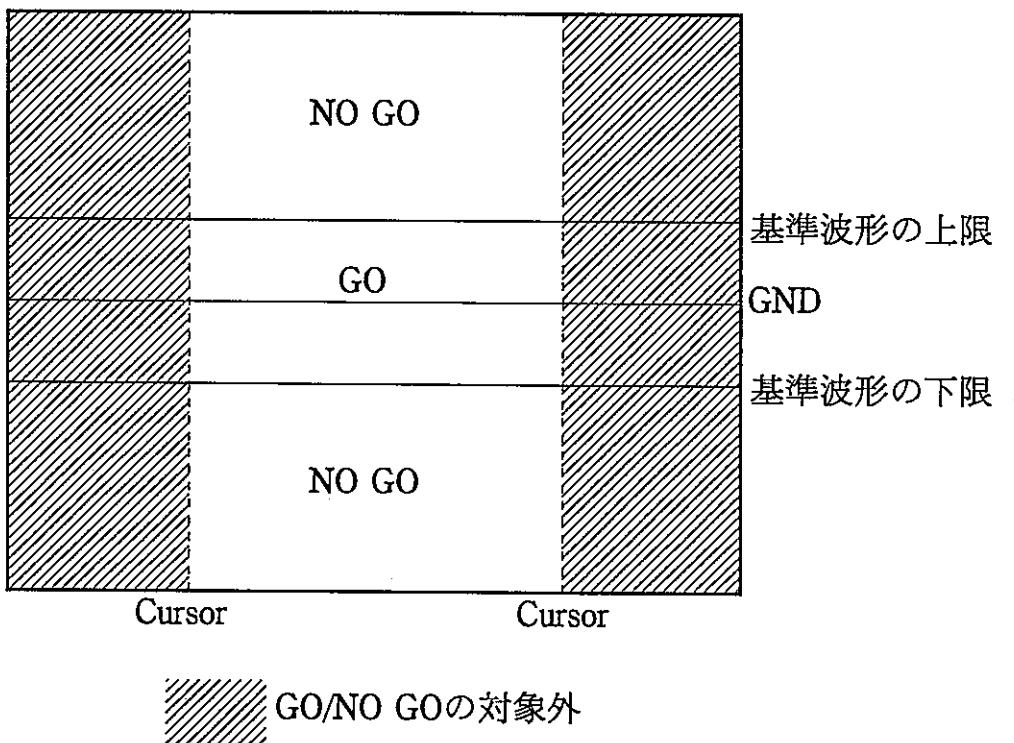


図 7. 9 "GO/NO GO" 判別時のスクリーン

詳細な手順を以下に示す。（図 7. 9 参照）  
ディジタル・ストレイジスコープの設定は本測定では

VOLTS/DIV : 50 [mV]  
掃引時間/DIV : 1 [msec]  
基準波形幅 : 50 [mV]  
カーソル幅 : 5 [msec]

とした。この領域内で、音波形が基準波形幅のGO領域を超えてNO GO領域に達したとき、NO GO 信号がパルスとして出力される。この方法は入力信号到来率が比較的低い場合のみ計数できる。測定可能到来率をファンクション・ジェネレーターによる一定繰返数パルスを入力して測定した。測定体系及び結果は図 7. 10、11 にそれぞれ示した。限界繰返し数は 15 [Hz] であった。図中の上限と下限に挟まれた範囲でのみ、正常な計数が可能である。本実験の設定掃引時間/DIV:1[msec]では約13[Hz]が上限になる。また、雑音は判別設定値はるかに小さく十分除去できた。

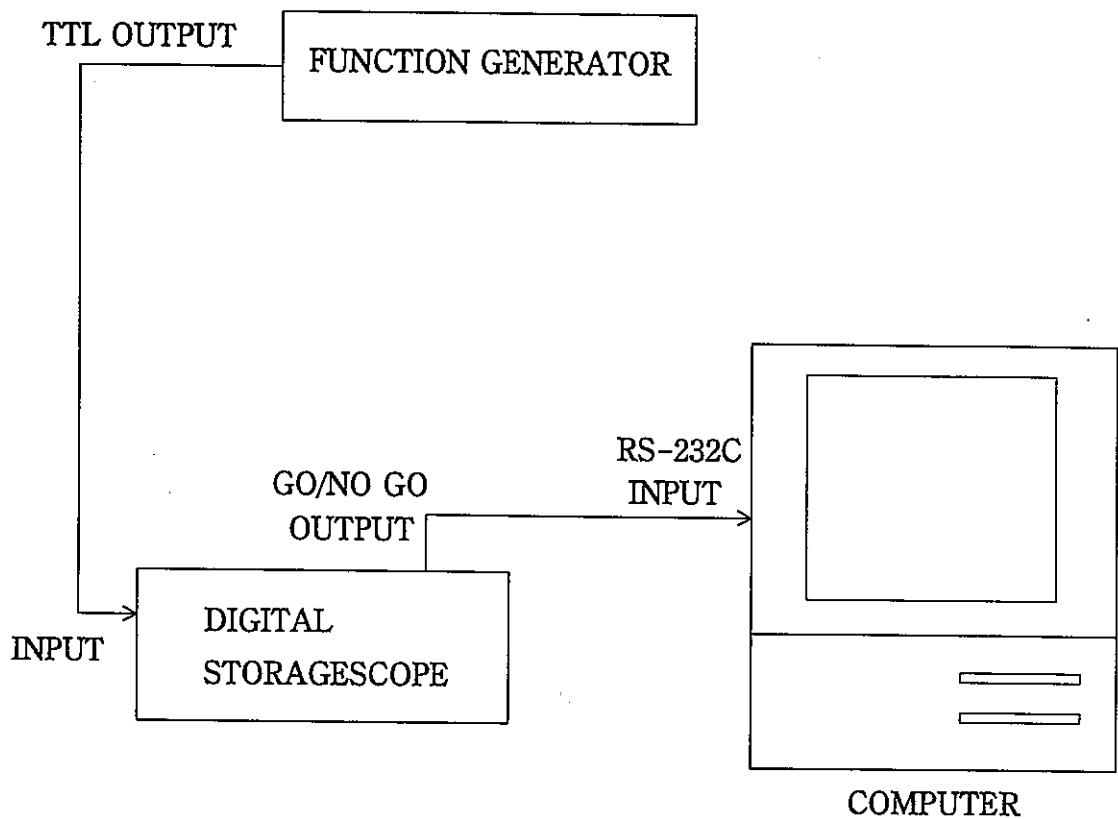


図7. 10 GO/NO GO判定の限界周波数測定体系

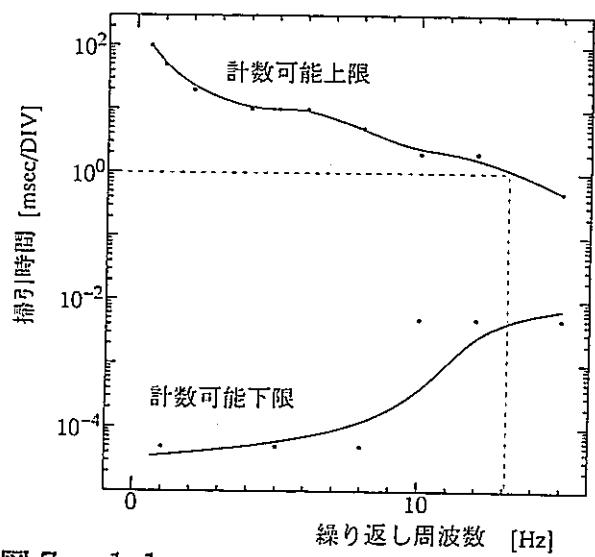


図7. 11  
GO/NO GO判定の限界周波数

## 7. 4. 試作検出器の照射結果

### (1) 生成気泡の観測

図7. 12にINGタイプの検出器における気泡の生成した様子を示した。左は sensitization前の状態である。ポリアクリルアミド上表面に見えるフレオン12の蒸気圧によって、容器内は加圧されている。この写真では判りにくいが、ポリアクリルアミド中には液滴が分散している。中央は中性子照射によって気泡が発生したものである。生成音の計数値によれば気泡数は138であった。目視計数 可能な気泡数は50ぐらいまでである。気泡の大きさにもかなりのばらつきがみられる。右は、生成音計数値で1000以上もの気泡ができた様子である。この状態になるとともに目視計数は不可能である。

本測定では、全ての計数を生成音検出によった。観測される気泡生成音波形については次で詳しく述べる。この計数法の信頼性は松本らの報告で確認されている<sup>15)</sup>。本測定中で、目視可能な場合にその計数値と生成音検出による計数値との一致が認められた。

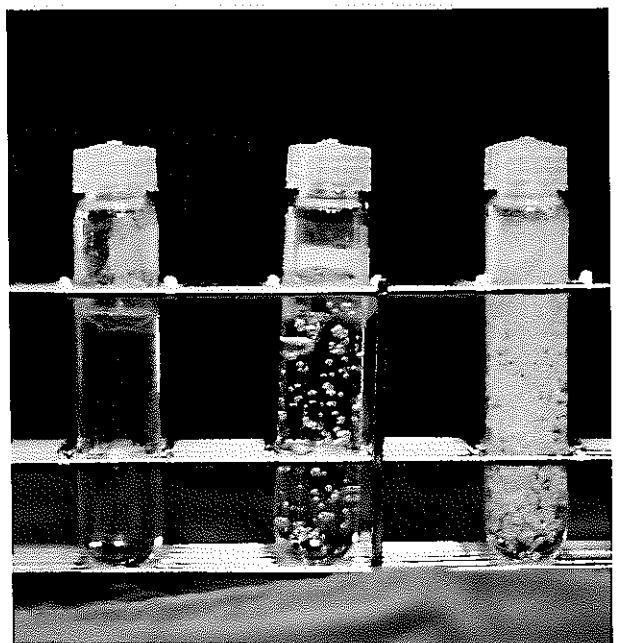


図7-12 気泡生成の様子

## (2) 気泡生成音の観測

AEセンサーにより検出された気泡生成音は、プリアンプで増幅されディジタル・ストレイジスコープに入力される。観測された波形は、その大きさや減衰時間がかなりばらついていた。ここでは観測された波形のうち、APFEL・ING両タイプの典型的な例を図7. 13～図7. 16に示した。図には参考のため、GO/NO GO判別の基準波形幅が点線で表されている。図7. 13、15は照射開始から数分が経過した時点の波形、図7. 14、16は20分以上経過した時点の波形である。

## (3) 検出感度

生成した気泡数から次のような計算により、それぞれの検出器について検出感度を求めた。

$$\text{検出感度} [\text{bubble}/\mu\text{Sv}] = \frac{\text{生成気泡数} - \text{バックグラウンド気泡数}}{\text{線量当量率DE} [\mu\text{Sv/sec}] \cdot \text{照射時間} [\text{sec}]}$$

照射実験当初、照射は室温で行っていたが、感度が低すぎて短時間照射では検出器が応答しているかどうかの判定が困難であることがわかったので、その後は室温より高め（35～40°C）に照射時の温度を設定した。加熱は前述したようにテープヒーターをホルダーに巻き付ける簡便な方法によっており、温度設定精度はあまり良くない。

試作検出器の検出感度と主な照射・試作時データを表7. 1、2と図7. 17、18とにそれぞれ示した。照射は、検出器内の温度が一様になるようにした後にバックグラウンド5分間計数、照射中10分間計数の順序で行った。但し表中のバックグラウンド気泡数は10分間に換算したものであり、検出感度は照射開始後10分間の平均感度である。またSDD No.は、以後本文及び図中に登場する呼称に対応している（例えばAPFEL-28）。検出感度はAPFELタイプで0.013～0.371[bubble/μSv]、INGタイプで0.011～0.615[bubble/μSv]の間に分布した。

## (4) 積算計数特性

APFEL、ING両タイプについて連続20～30分の中性子照射を行った。照射時間対積算気泡数の特性の典型的な例を図7. 19、20に示した。

図7. 19はAPFEL-28の計数積算値である。容器のキャップは外し、温度～40

℃で30分間照射した。照射開始後の10分間の最小二乗による近似直線を点線で示してある。図より、液滴が少なくとも9000個は存在していたことが分かり、約5000カウントまでは直線性が認められる。密閉容器ではないため、ここでは内圧の上昇はない。

図7. 20には二つのINGタイプの計数積算値を示した。どちらも再加圧をした後の2回目の照射である。照射開始後5分までを最小二乗フィットによる直線近似を点線で示した。ING-59.2では600カウントを超える辺りから直線性が失われている。始めの10分までの感度は0.106[bubble/ $\mu$ Sv]あったが、20~30分では0.013に減少した。ING-52.2の照射時間は20分であるが、150カウントを越えるとカウント数の増加は少ない。いずれも照射時に容器は密閉してあったので、内圧の上昇可能性がある。また気泡生成音が小さくなることも観測された。

#### (5) 繰り返し使用時の感度変化

繰り返し使用が可能であることがINGタイプの特徴である。試作したイソブテン検出器の再使用時の感度を測定した。INGは容器内のポリアクリルアミドの上部にグリースを詰めネジ部で検出媒体を上部から押すことにより加圧し、気泡の再液化(=再生)を行っていた。本実験ではフレオン12を再び注入し、試作したときと同様にその蒸気圧で加圧することにした。

ここでは三つのINGタイプについての再使用時の特性を図7. 21から23に示した。いずれも一回の照射は10分間とし、気泡数の計数積算値で表した。照射後は長くても1時間以内にフレオン12を注入し再加圧した。

図7. 21では2回目の照射が1回目と同じ日、およそ3時間後に行われている。気泡数、線形性共にほぼ等しく、同程度の特性が観られた。ただ、2回目の照射時の温度が2℃高いため、それによって感度が上昇し結果的に同程度となったとも考えられる。

図7. 22では1回目から2回目までに1日経過しており、生成気泡数も半分に減っている。長時間の放置により液滴が消滅したと思われる。更に3日後の3回目の照射では感度が戻っているが、これは照射温度上昇により感度が上昇しているのかもしれない。

1回目から2回目の照射まで一ヶ月の期間を置いたのが図7. 23である。計数値が半分以上に減っているのがわかる。

今回は温度設定制御精度が低いこともあり十分な比較はできていないが、時間の経過と共に感度は低下していると思われる。また図7. 22のING-37には3回目の照射後に生成した気泡の分布が全体に上昇して、ポリアクリルアミド上表面付近に偏っている様子が観られた。

#### (6) フレオン114との比較

Butene系液体を用いる場合、従来よく使われているフレオン12とかなり比重に違いのあることが、検出器作成上問題になることが懸念された。グリセリンとフレオン12は比重がほぼ等しく、液滴作成後～12時間位で液滴径の大きなものは下方へ、小さなものは上方へと、液滴重さに従った空間分布が形成され、比較的短時間内では液滴の空間分布はあまり変化しない。しかし、Buteneの場合は液滴の上昇速度が大きく、液滴は上表面に達すると合体して消滅する。このため、特にAPFELタイプの場合は、フレオン12と同様の手順で作成した検出器の寿命は大変短い。またINGタイプの場合も重合過程で液滴が遍在しやすい。液滴の形成され方も異なる可能性がある。これらを調べるためにフレオン12と同じフレオン系液体のフレオン114で検出器を試作、イソブテンと比較することにした。フレオン114の沸点は、cis-2-buteneに近く、密度はフレオン12より大きい。(表5. 1)

フレオン114を用いて全く同じ手順で作成し、10分間照射を行った。その結果をAPFELタイプは表7. 1及び図7. 17に、INGタイプは表7. 2及び図7. 18にイソブテンと併せて示した。データの数が少なく、確定的な結論を出すことはできないが、沸点がフレオン12のように低い場合は別として、フレオン系液体が特に検出器作成上有利であるという点は見いだせなかった。イソブテンとは逆に、比重はグリセリンに比べ若干大きいので、振り混ぜた後は余った分が下に溜まりがちである。

#### (7) 検出器の冷凍保管

INGタイプは作成後もフレオン12で加圧しておく間はその感度が落ちにくい。それに対しAPFELタイプは、振り混ぜた後時間の経つにつれて液滴が消滅し感度が低下してしまう。そこで振り混ぜた後すぐに冷凍することを試みた。

全く同様の手順で作成した二つのAPFELタイプの検出器を一晩冷凍した。翌日に解凍して、水平距離を $r = 5[\text{cm}]$ として14.5°Cで10分間の照射を行った。一方

は106の気泡が生成し感度は $0.011[\text{bubble}/\mu\text{Sv}]$ 、もう一方は33の気泡が生成し感度は $0.003[\text{bubble}/\mu\text{Sv}]$ であった。14.5°Cで0.011の感度は悪い値ではないので、この方法は今後検討する価値がある。

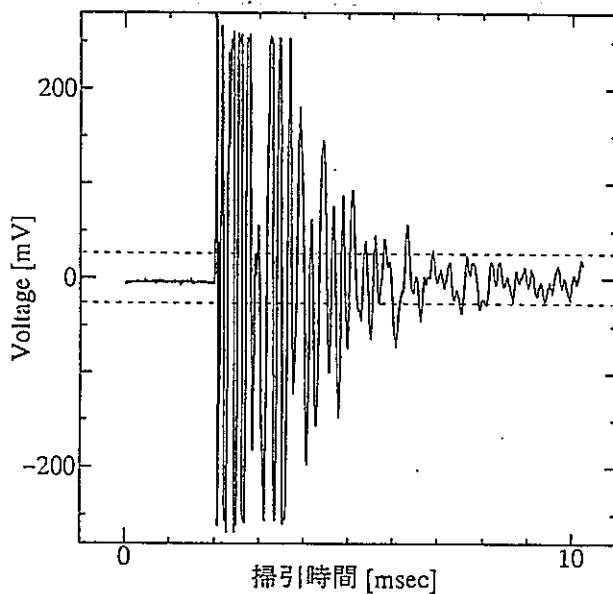


図7. 13 照射前半の気泡生成波形  
(APFEL type)

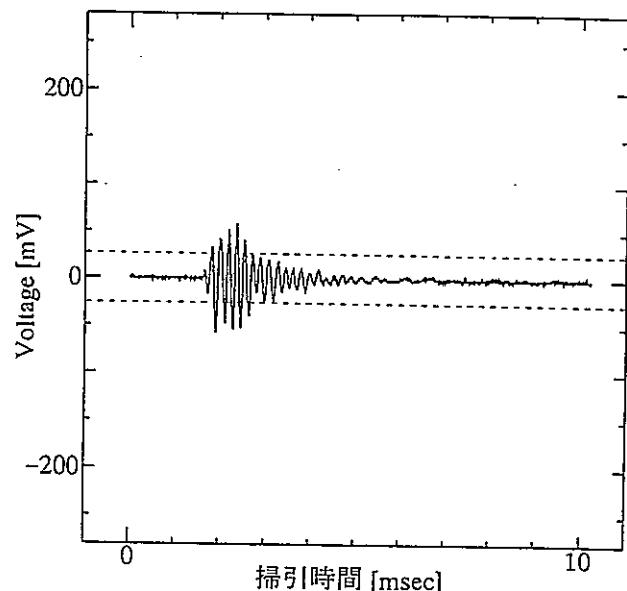


図7. 14 照射後半の気泡生成波形  
(APFEL type)

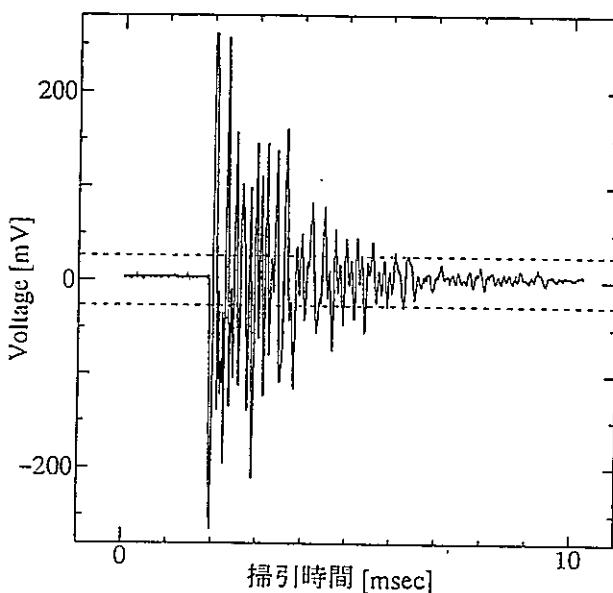


図7. 15 照射前半の気泡生成波形  
(ING type)

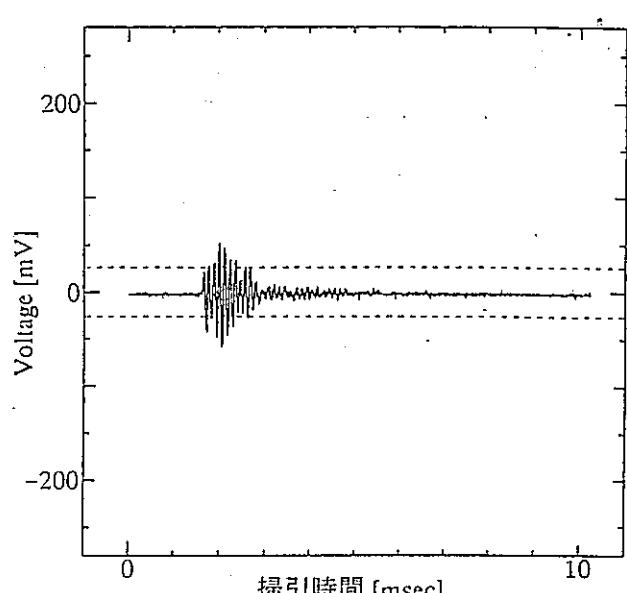


図7. 16 照射後半の気泡生成波形  
(ING type)

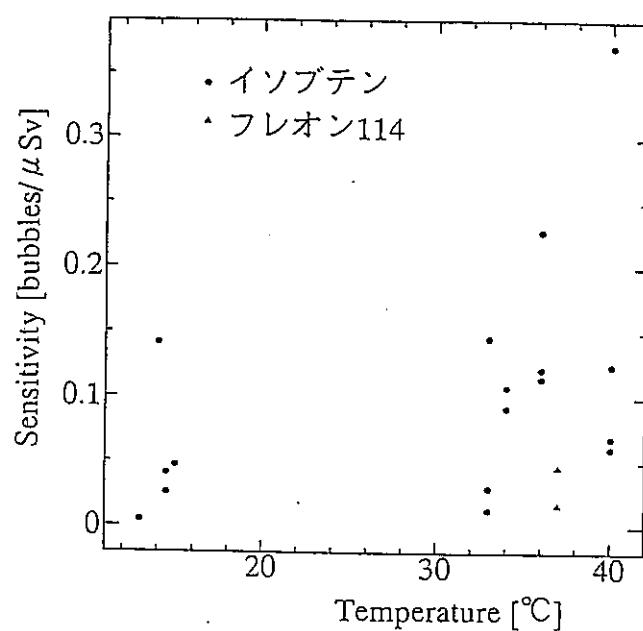


図7.17 検出感度の温度依存性(APFEL)

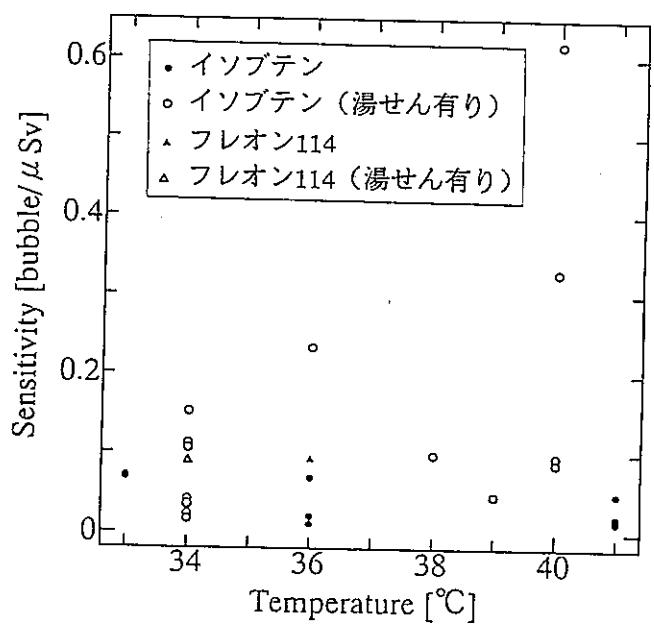


図7.18 検出感度の温度依存性(ING)

SDD No.	水平距離 [mm]	照射時温度 [°C]	計数気泡数 [bubbles]	バックグラウンド 気泡数	検出感度 [bubble/ $\mu$ Sv]
1	160	14	151	20	0.142
3	160	15	45	2	0.047
17	50	14.5	567	318	0.026
18	50	14.5	383	0	0.041
31	50	13	72	28	0.005
22	50	40	699	48	0.069
27	50	40	593	20	0.061
28	50	40	3549	38	0.371
33	50	40	1179	0	0.125
39	160	33	163	28	0.146
42	160	33	28	0	0.030
43	50	33	125	0	0.013
46	50	34	869	0	0.092
47	50	34	1018	0	0.108
52	50	36	2182	26	0.228
53	50	36	1085	0	0.115
54	50	36	1153	0	0.122
44(F)	50	37	158	0	0.017
45(F)	50	37	438	0	0.046

※ SDD No. のゴシック体は図 7. 19 に引用されていることを示す。

※ SDD No. の(F)は検出体にフレオン114を用いていることを示す→(6)。

表 7. 1 APFELタイプの検出感度と諸データ

SDD No.	湯せんの有無	水平距離 [mm]	照射時温度 [°C]	計数気泡数 [bubbles]	バックグラウンド 気泡数	検出感度 [bubble/ $\mu$ Sv]
37		50	33	649	4	0.069
37.2		50	34	337	0	0.036
37.3		50	36	648	0	0.069
38		50	33	668	0	0.071
38.2		50	34	160	0	0.017
38.3		50	36	199	0	0.021
39		50	41	139	0	0.015
55		50	41	221	10	0.022
56		50	41	472	0	0.050
57		50	41	196	14	0.019
58		50	36	104	0	0.011
59	○	50	36	2235	36	0.233
59.2	○	50	34	1043	40	0.106
51	○	50	34	397	0	0.042
52	○	50	34	1067	4	0.112
61	○	50	34	326	0	0.034
63	○	50	34	221	0	0.023
66	○	50	34	1450	12	0.152
67	○	50	34	341	0	0.036
68	○	50	34	158	0	0.017
74	○	90	40	1806	12	0.615
71	○	90	38	286	0	0.098
71.2	○	90	40	279	0	0.096
75	○	90	39	138	0	0.047
52.2	○	90	40	256	0	0.088
59.3	○	90	40.5	969	24	0.323
54(F)	○	50	34	847	12	0.088
60(F)		50	36	867	0	0.092

\* SDD No. のゴシック体は図7. 20~23に引用されていることを示す。

\* SDD No. の(F)は検出体にフレオン114を用いていることを示す→(6)。

\* 湯せん有は検出体+グリセリン混合時に加熱したことを示す→7. 5. (1)。

表7. 2 INGタイプの検出感度と諸データ

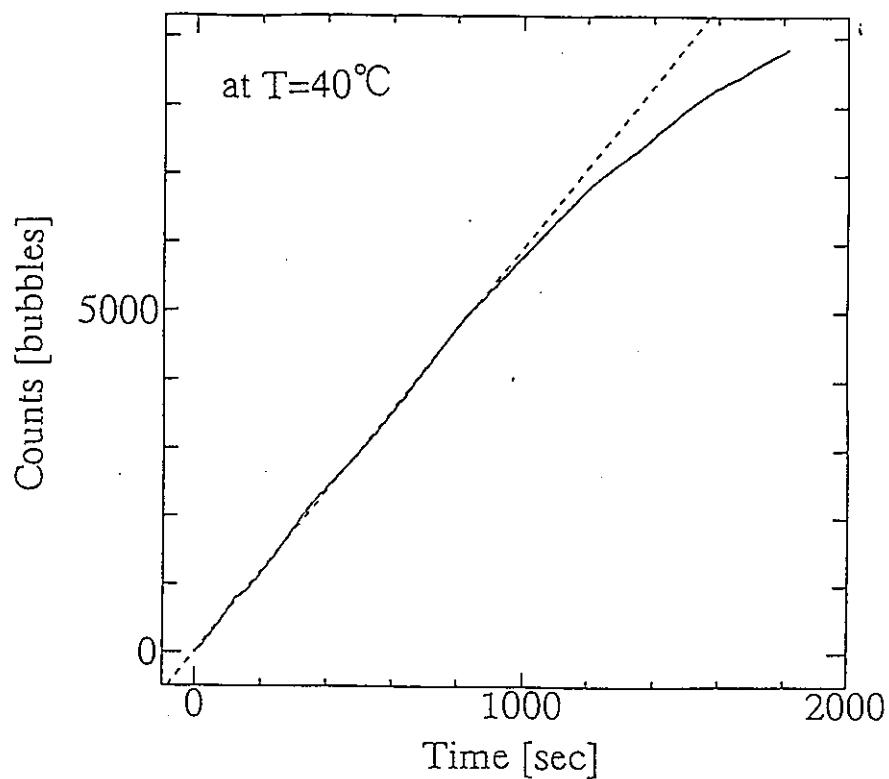


図7. 19 計数積算値 (APFEL-28)

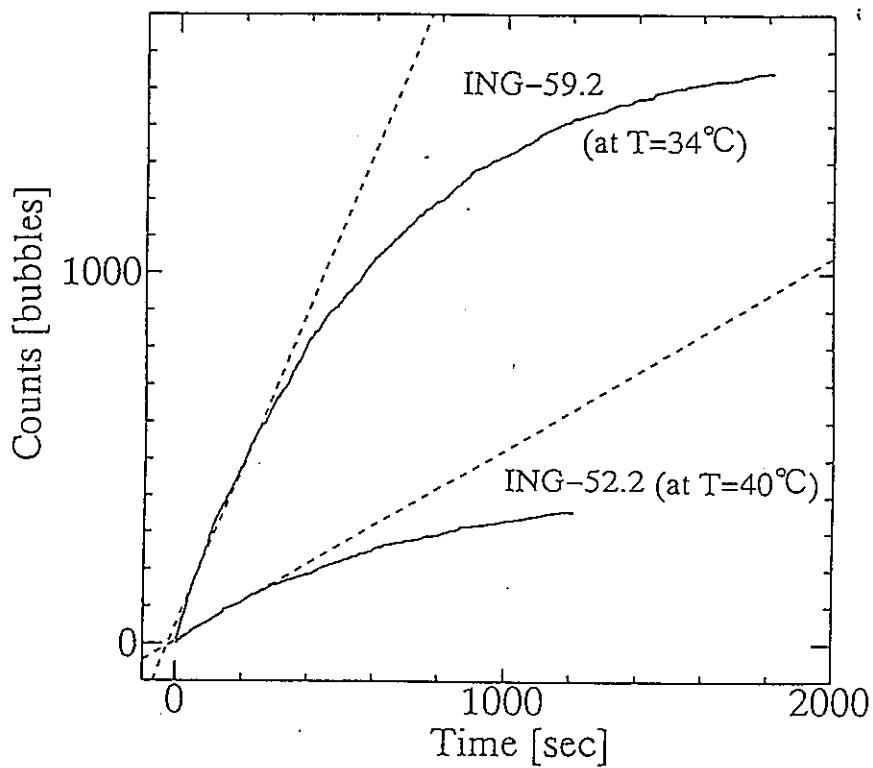


図7. 20 計数積算値  
(ING-59.2 & ING-52.2)

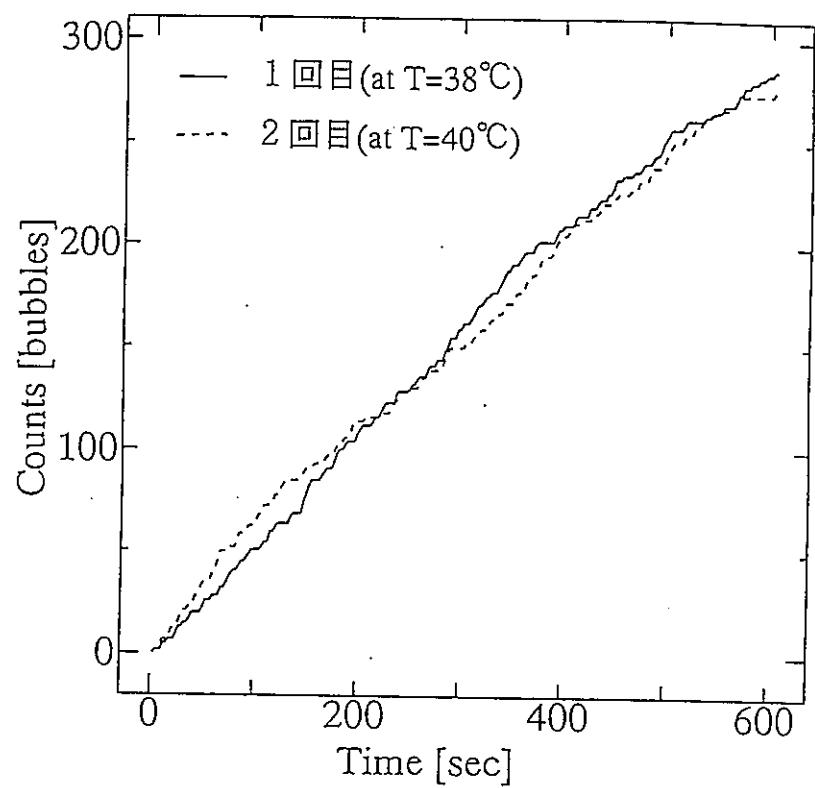


図7. 21 再使用時の感度変化(ING-71)

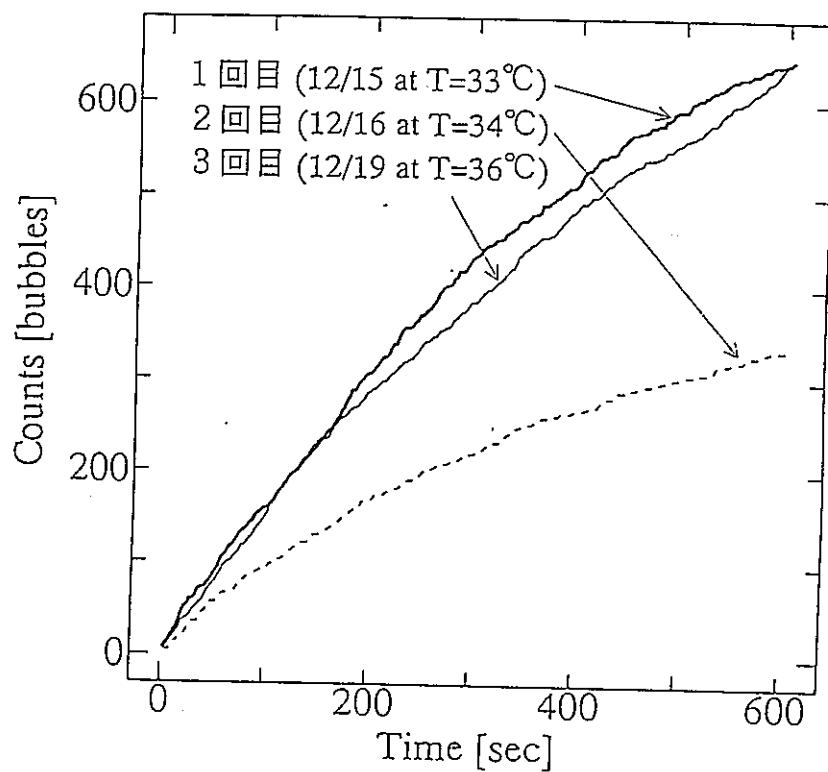


図7. 22 再使用時の感度変化(ING-37)

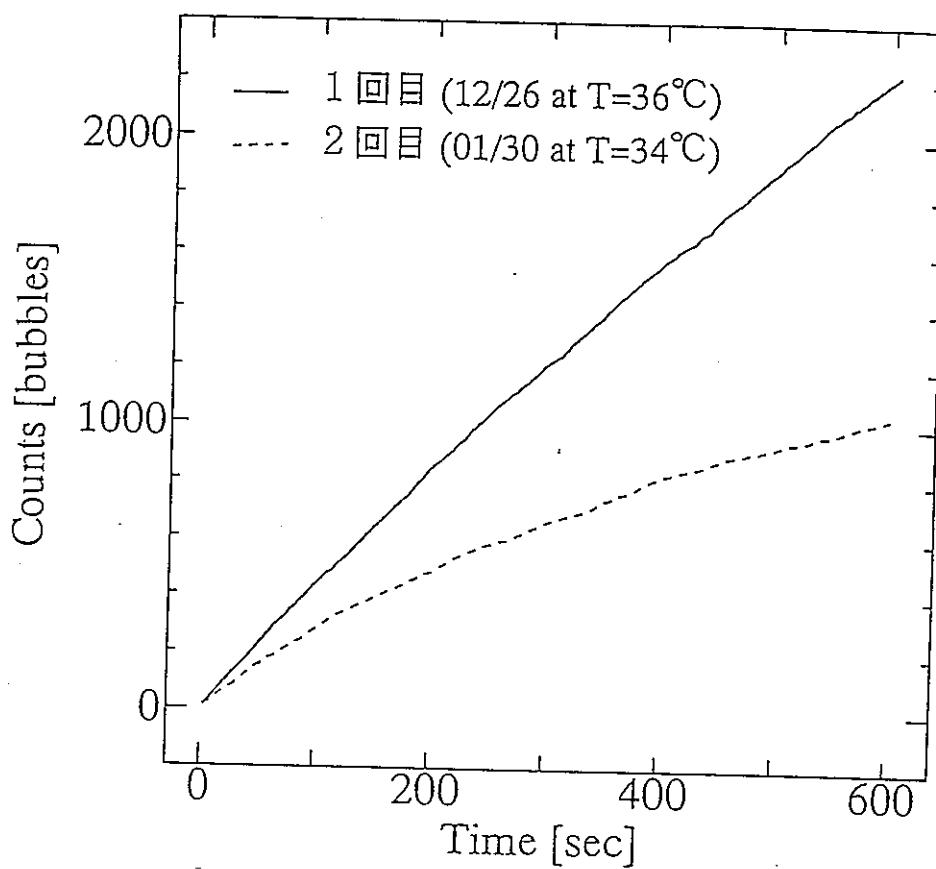


図7.23 再使用時の感度変化(ING-59)

## 7. 5. 試作結果の検討

本研究では、Butene系液体中最も沸点の低いイソブテンを用いた過熱液滴型中性子検出器の試作を行った。照射時の気泡数は気泡生成時の発生音の計数によった。以下で計数と呼ぶのは、この計数のことである。

### (1) 検出感度

試作検出器照射結果、最も重要な課題は感度のばらつきが大きいことである。作成過程が十分制御されていないため、以下のような感度に影響を及ぼす要因が作成過程に含まれていると思われる。

- (1)液滴数、液滴径が一定しない。
- (2)液滴が検出器中に遍在する。
- (3)液滴内及び液滴壁近傍のグリセリン中の不純物の存在。
- (4)重合中の液滴の蒸発。

等である。

(1)に関しては検出液体をグリセリン中に液滴状に分散させる過程での加熱、温度制御が効果的であると考えられる。加熱はグリセリンの粘度を下げ、検出液体を分散し易くし、液滴密度を増加するようである。また、ミキサーで混合する際、温度制御をしなければ液体温度が上昇してしまう。表7. 2 中湯せん有としたのは、この過程で、液体を温湯で加熱したものである。今後はこの過程の温度制御を行う必要がある。

(2)はButene+グリセリンの場合、深刻な問題である。APFELタイプは、本実験では、液滴が有効に作られているか、検出液体の中性子検出感度の有無等を簡便に知るために便利であったが、詳細な測定には使えないことがわかった。今後はINGタイプのみを検討したい。INGタイプの場合、重合中に液滴+グリセリン容器を絶えず動かすことによりこの遍在は避けられるとの見通しを得た。

(4)は、現在の手順の場合、重合を検出器密閉で行なうことにより、有る程度の液滴蒸発後は、その蒸気圧により蒸発は停止することがわかった。また、重合中にできた蒸気泡は1昼夜位加圧（本研究ではフレオン12の蒸気圧で加圧）することにより消失する。

(3)については、未検討である。

## (2) 照射時の積分計数特性

液滴径が一定の場合は、積分計数値は総液滴数より十分小さい間は照射時間に対し直線的になる。しかし、液滴径が揃っていない場合は、液滴が中性子と相互作用する確率は液滴中の原子数に比例するので、液滴径の大きいものから気泡化し、感度の照射時間依存性を導入する。感度は照射時間経過と共に低下することになる。積分計数特性にこの効果が現れているかどうかは、積分計数特性から推定できるはずであるが、本文で示した実験では、長時間照射実験を行っていないので、これは今後の課題である。

## (3) 繰り返し使用について

作成過程の制御が十分でなく、個々の検出器の感度が一定しなくとも、一本の検出器の繰り返し使用が可能であるならば、検出器温度依存性、圧力依存性等の測定により、検出器の動作原理の把握を行うことができる。

この場合も、Buteneの比重の小さいことが、INGタイプでの貯蔵時間経過後の液滴遍在を引き起こすようであった。液滴は支持媒質中で上昇し、これが再使用時の感度低下をもたらしていると推察される。ポリアクリルアミドの重合速度、架橋剤の割合等について検討することが必要と思われる。

## (4) 放出音波波形について

放出音波と気泡数が対応することは確かめられているが、気泡音の特性については殆ど研究されていない。検出器内圧が高くなると気泡拡大速度が低下し、音波波形は小さくなる<sup>15)</sup>放出音を気泡計数に利用すると共に、音波波形と核生成→気泡成長過程との関連について検討することにより、基礎的な過程についての知見が得られることが期待される。

## (5) 動作温度、圧力依存性について

今年度の実験では、照射時の温度制御を行っておらず、検出器特性、特に繰り返し使用やフレオン114との比較等について確定的なデータを得ることができなかった。照射時の検出器温度制御を行うと共に、圧力依存性を測定できるような照射装置が必要である。

## 8. 臨界エネルギーの測定法に関する検討

第3章において、放射線による核生成は非均質核生成であるが、均質核生成に関する理論および実験、実験法は本研究にも資するところが多いことを指摘しておいた。本章では、均質核生成で行われている実験法の、本研究における臨界エネルギー測定への応用可能性について検討する。即ち、均質核生成測定系の過熱限界（=沸騰の開始）を観測する場所に放射線を一様に照射し、非照射時と比較することが出来るならば、放射線誘起核生成の $W_k$ （=E<sub>c</sub>）が決定できるであろう。このことを念頭に置いてこれまで報告されている測定法を以下に簡単に紹介する。

### 8. 1. 均質核生成に関する測定

#### (1) Wakesima & Takata<sup>16)</sup>

図8. 1に測定装置を示す。Glass tubeには試料液体よりも重く且つ試料液体が溶けない溶液が封入され加熱される。（硫酸、グリセリン、エチレングリコールを使用）tube内に上方で高温である温度分布が形成される。試料液体はglass tube下部から液滴状に注入される。液滴はtube中を上昇しながら加熱される。過熱の限界に対応する温度に達すると、その位置で液滴は爆発的に蒸気泡になる。位置はcathetometerで測定する。

試験液体は、n-pentane, n-hexane, n-heptane, isopentane, cyclopentane, methylcyclopentane, cyclohexane, ethyl ether（沸点27.8~98.4°C 実験温度<216°C）

#### (2) Apfel<sup>4)</sup>

図8. 2に装置を示す。Central systemは Wakesima の装置+音響場生成システム。tubeに封入された加熱液体、下方から試料液滴注入を用いる点はWakesimaと同じ。上方でtubeを太くし、そこに音響定在波を形成。音響定在波は液滴を捕獲し、定位置に留めておくことが知られている<sup>17, 18)</sup>。加熱と音圧とで決まる加熱限界に達すると液滴は爆発。cathetometerでその位置を測定する。加熱液体（グリセリン）及び液滴（ether）を濾過し、純度を確保している。

(3) Nishigaki & Saji<sup>19)</sup>

図8. 3に装置を示す。試料液体は液体He-4である。glass capillary中に試料液体が封入されている。温度を可変とし、過熱限界は圧力の急激な変化で検知している。

(4) Semenova & Ermakov<sup>5)</sup>

図8. 4に装置を示す。試料液体は液体He-4である。glass vessel中に試料液体が封入されている。温度・圧力を可変とし、過熱限界は圧力の急激な変化で検知している。

(5) Shih & Wang<sup>20)</sup>

図8. 5に装置を示す。試料液体はFreon-11。液滴が管壁に接触しないように工夫された簡便な手法である。試料支持液体は水。

## 8. 2. 放射線誘起核生成の測定

ここでは、これまでに行われている放射線誘起核生成の臨界エネルギーを測定実験を紹介する。(1)(2)は中性子検出器として作成されたものについての測定である。(3)は、放射線を核生成に用いた音響場中の非均質核生成に関する研究である。

(1) Apfel<sup>21)</sup>

図8. 6に装置を示す。一定温度を保ち、1 MeV中性子(d-d reaction)を照射しながら圧力を0.05atmづつ2分間隔で変化、可視蒸気泡をCCTVで観測。試験液体はFreon-11, isobutane。

(2) Lo & Apfel<sup>23)</sup>、Harper<sup>10)</sup>

試験液体はFreon-12, isobutane, Freon-142B, Freon-114。気泡検出器にacoustic signal detection 法を組み合わせて測定。[Lo & Apfel<sup>23)</sup>]

試験液体はFreon-12。測定対称の状態、測定法の詳細はわからない。[Harper<sup>10)</sup>]

(3) Greenspan & Tschiegg<sup>22)</sup>

Radiation-induced acoustic cavitation. pressure vessel中に試験液体を封入。音響定常場をvessel中に形成。放射線照射しながら温度を変化し、気泡生成開始圧を測定。（装置は参考文献を見よ）

### 8. 3. 過熱液滴型気泡検出器の臨界エネルギー測定法の検討

すでに報告されている方法で気泡検出器を作成し検出器を温度・圧力調整可能な試験装置中に設置してAE測定により計数する方法は、実際の検出器条件での臨界エネルギーを測定することになり、実用上の価値もある方法と考えられる。同時に、有効な検出器の開発をも兼ねることにもなると思われる。しかし、6. で述べたように、この方法は臨界エネルギーを直接測定するものではない。

もう一つの方法は、均質核生成測定装置に放射線照射して、蒸気泡生成を観測することである。この方法では、検出器作成過程に関わる問題が入ってこない。

8. 2. (2) に示された方法の中で、過熱液体中に液滴を注入する方法は、Apfelが述べているように、

- ①過熱液体容器壁の効果から免れる
- ②試験液体が少量なので不純物の混入確率が低い

ことが、均質核生成測定の成功をもたらした。更にApfelらの、音響定在波による液滴捕獲法を加えるならば、液滴捕獲位置が（Apfelの実験で）～1cm程度に局在すること、液滴が熱平衡に達する時間を確保・確認できること等の利点がある。

液滴位置が～1cmであると、その範囲の放射線場を一様になるよう照射することにより、放射線誘起核生成の観測を行うことができる。この点から、8. 2. (2) のApfelの方法では、Butene-系液体の臨界エネルギーの測定に有効であろうと考えられる。

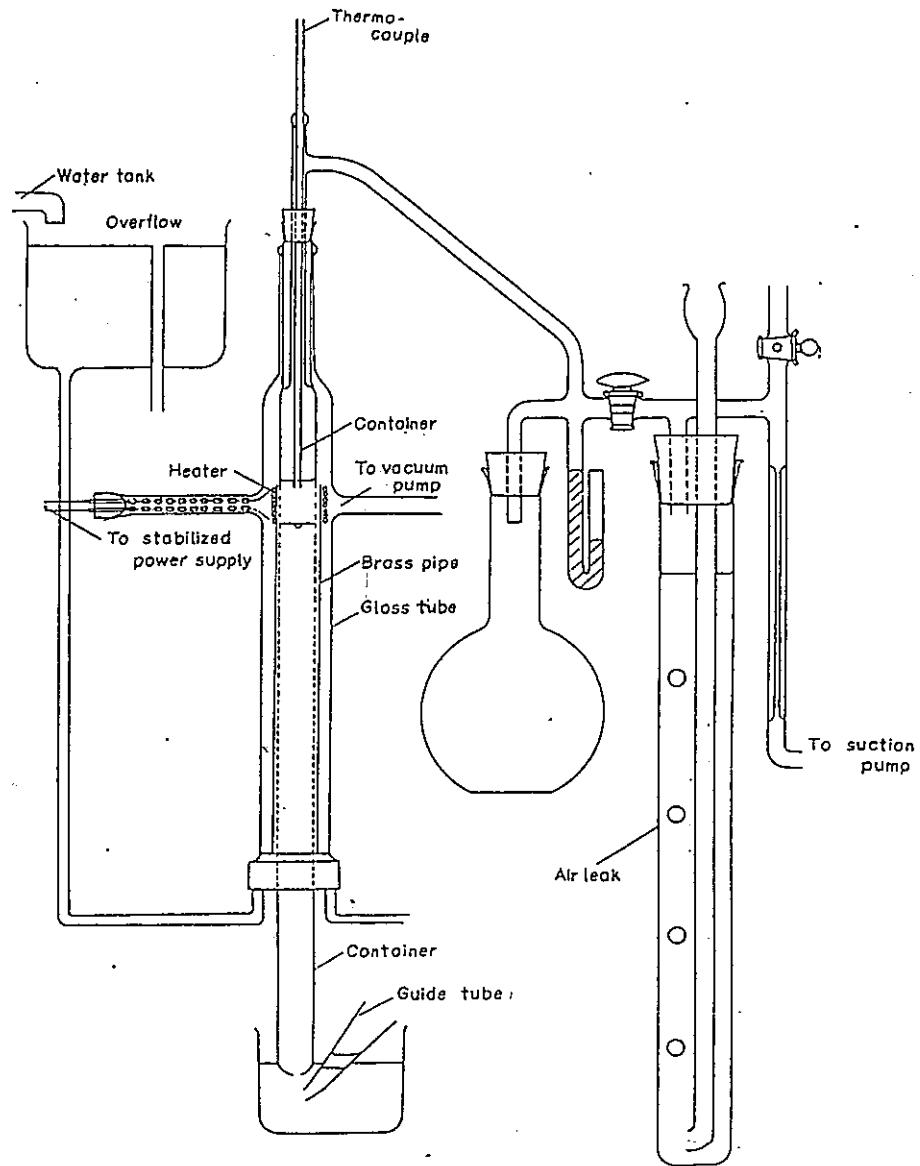


図8. 1 Wakesima & Takata測定装置<sup>16)</sup>

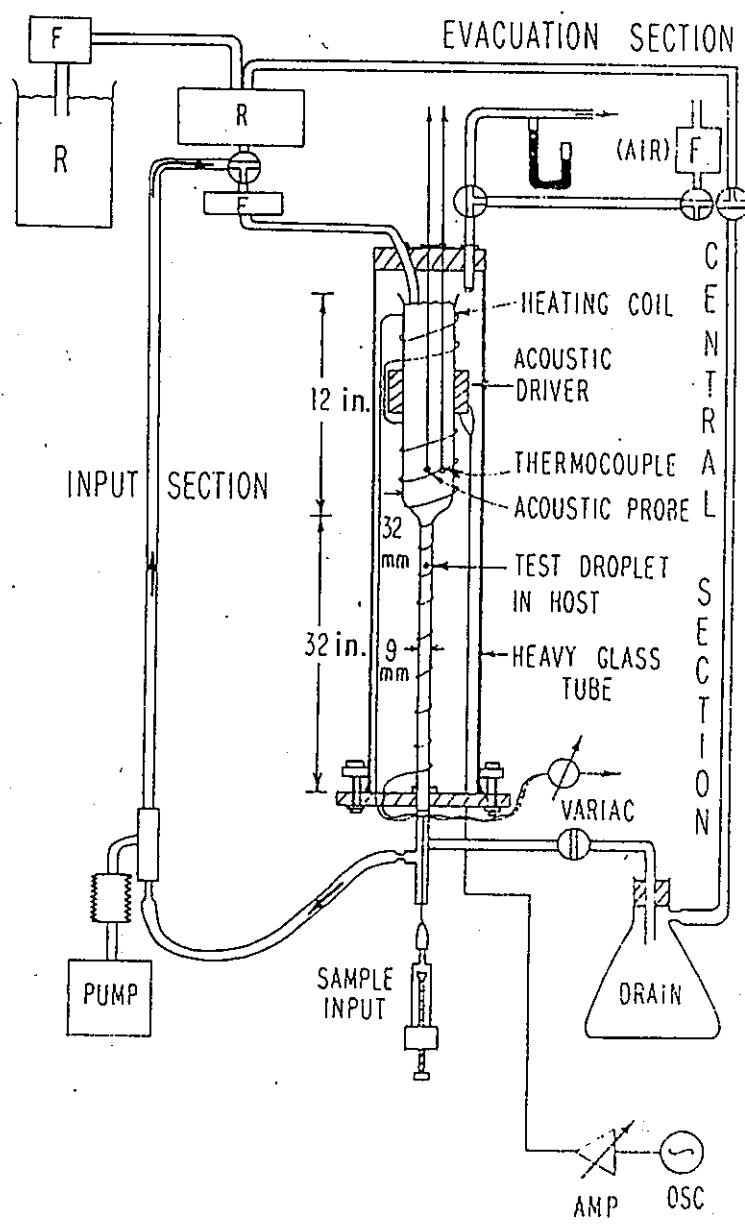


図8. 2 Apfelの装置<sup>4)</sup>

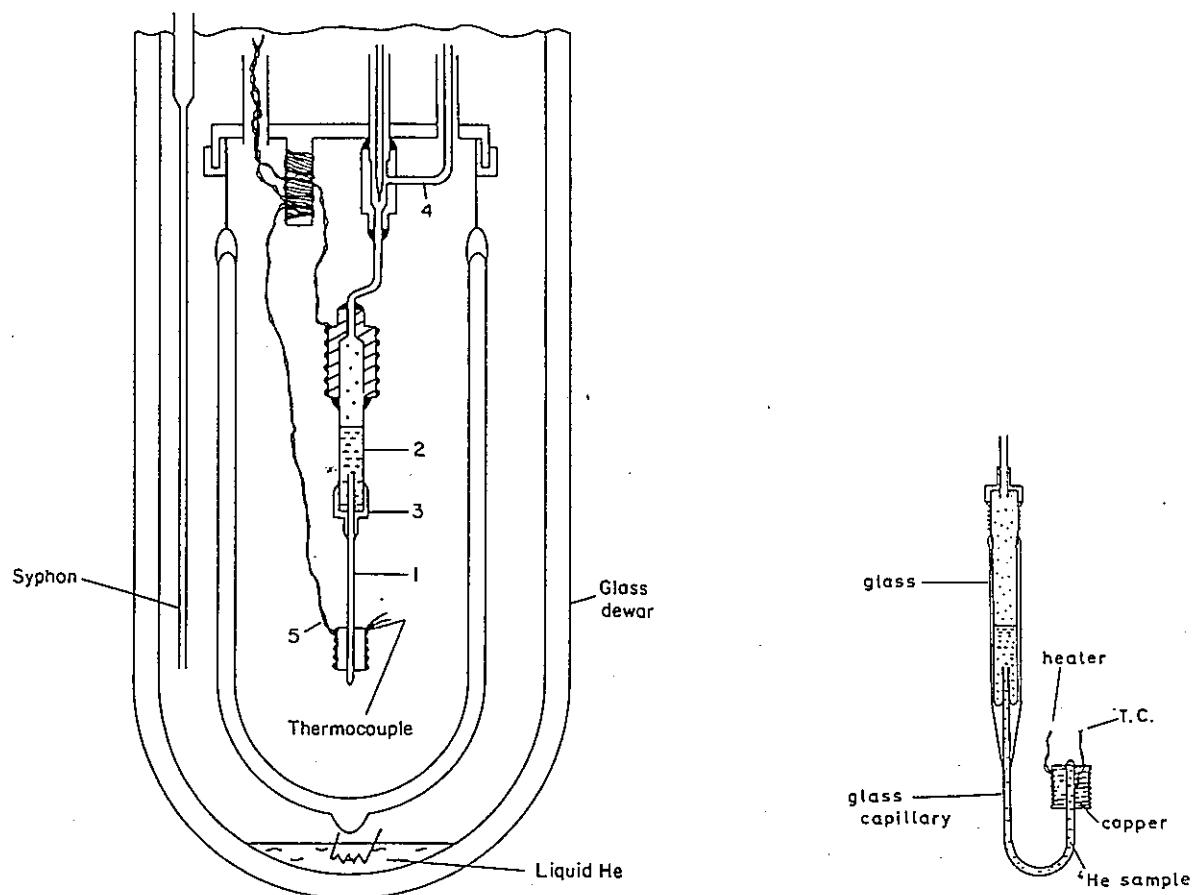


図8.3 Nishigaki & Sajiの装置。右は改良型<sup>19)</sup>

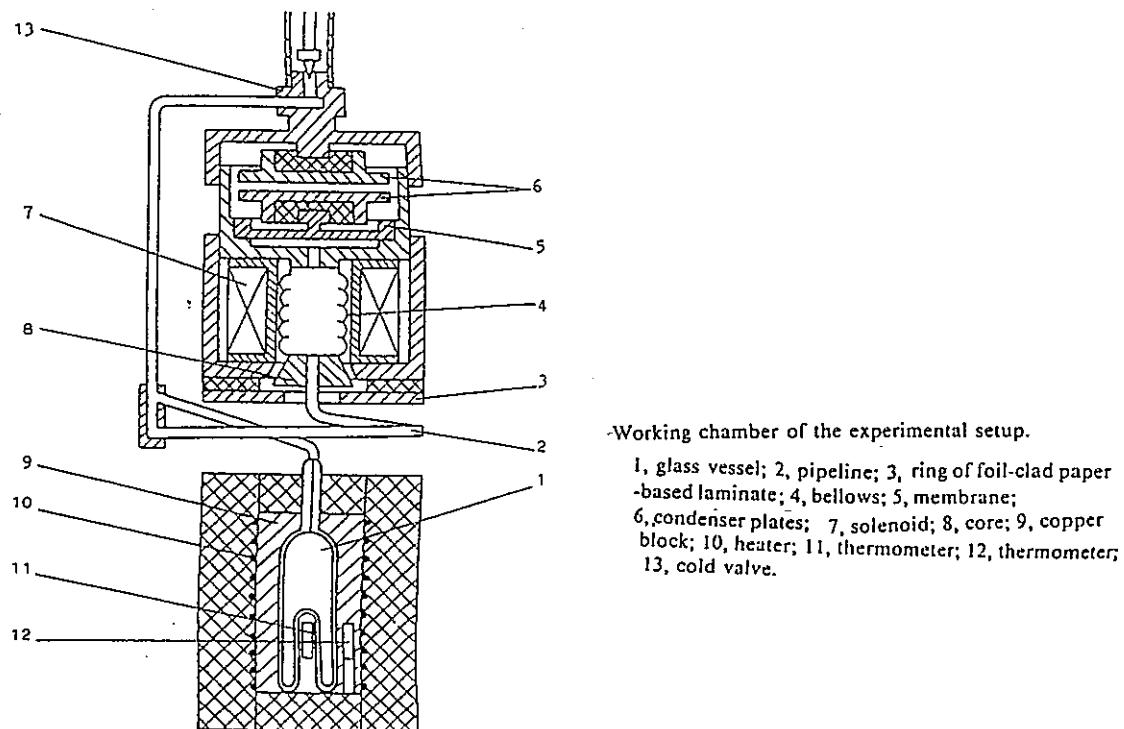


図8.4 Semenova & Ermakovの装置<sup>5)</sup>

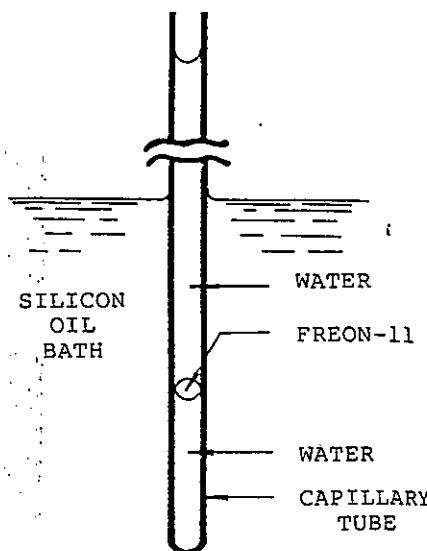


図8.5 Shih & Wangの装置<sup>20)</sup>

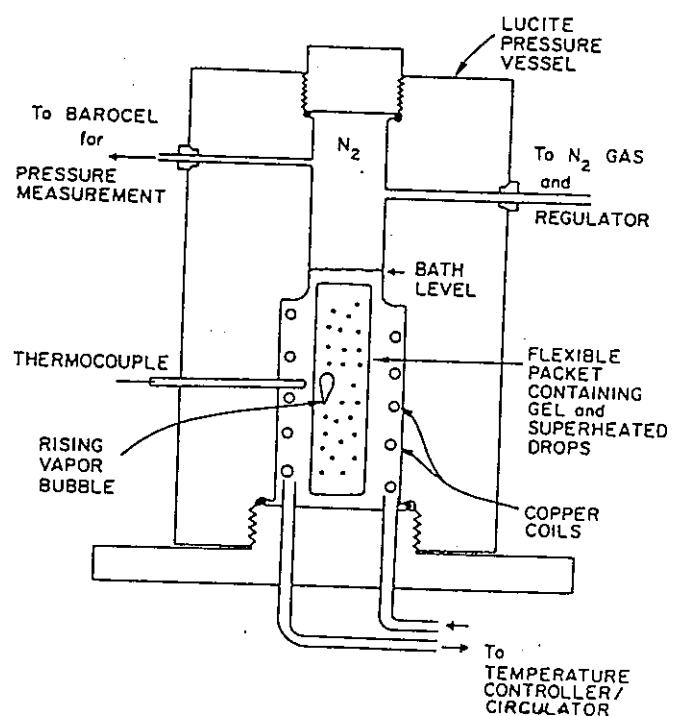


図8.6 Apfelの装置<sup>21)</sup>

## 9. まとめ

中性子検出器としての過熱液滴型検出器の動作を把握するために、Buteneを検出体として選択し、検出器の基本的パラメータである臨界エネルギーについて議論した。しかし、本文中で述べたように、中性子検出感度、検出下限中性子エネルギー等を導出するためには、もう一方のパラメータである中性子誘起荷電粒子を、Buteneの場合は反跳C原子核の検出液体へのエネルギー付与を評価しなければならない。本年度は、これに関しては全く取り扱わなかった。検出感度の温度依存性、圧力依存性等の解析のために、次年度以降ではこの問題を取り扱う必要がある。

検出器の試作ではいくつかの問題点とその解決の糸口が明らかになった。イソブテン以外の沸点の異なるButene液体による試作も並行すること、温度・圧力制御可能な照射装置の準備等を実施する必要がある。

過熱液滴型検出器を中性子検出に用いる上で、有利な点は検出感度が高いこと、中性子測定用については $\gamma$ 線に感度がないことである。感度を支配しているのは、主に過熱液体の気泡核生成臨界エネルギーである。臨界エネルギーだけに着目するならば、第8章で示したような諸方法を検討することが有用であると思われる。

## 10. 参考文献

- 1)Seitz F. : Phys. Fluids, 1, 2(1958).
- 2)Weast R. : CRC Handbook of Chemistry & Physics, 57th ed. (CRC press) (1976).
- 3)Döring W: Z. Phys. Chem., B36, 371(1973).
- 4)Apfel R.E. : J. Acoust. Soc. Amer., 49, 145(1971).
- 5)Seminova N.M. & Ermakov G.V. J. Low Temp. Phys., 74, 119(1989).
- 6)Harper M.J. & Nelson M.E. :Rad. Prot. Dos., 47, 535(1993).
- 7)Apfel R.E., Roy S.C. & Lo Y.C. :Phys. Rev., A31, 3194(1985).
- 8)Bugg D.V. :"The bubble Chamber" in Prog. Nucl. Phys. vol. 7 edited by O.E. Frish, 2-52(1959), Pergamon Press.
- 9)Reid C., Prausnitz J.M. & Poling B.E. :The properties of Gases & Liquids, 4th ed., (1987), McGraw-Hill, Inc..
- 10)Harper M.J. :Nucl. Sci. Eng., 114, 118(1993).
- 11)Bell C.R., Oberle N.P. Rohsenow W. Todreas N. & Tso C. :Nucl. Sci. Eng., 53, 458(1974).
- 12)Deitrich L.W. & Connolly T.D. :Nucl. Sci. Eng., 50, 273(1973).
- 13)Apfel R.E. :Nucl. Instrum Meth., 162, 603(1979).
- 14)ニコラス・ツルファニティス（阪井英次訳）：放射線計測の理論と演習（下巻），p557 (1986)現代工学社。
- 15)松本 博也：平成6年度卒業論文。
- 16)Wakesima H. & Takata K. : J. Phys. Soc. Jap. 13, 1398(1958).
- 17)Eller A. : J. Acoust. Soc. Amer. 43, 170, (1968).
- 18) Gould R. : J. Acoust. Soc. Amer. 43, 1185, (1968).
- 19)Nishigaki K. & Saji Y. : J. Phys. Soc. Jap. 52, 2293(1983), Cryogenics, 23, 473(1983).
- 20)Shin C. & Wang C.Y. :Superheat-limit Explosion of Freon-11, 355.
- 21)Apfel R.E. :Nucl. Instrum. Methods, 162. 603(1979), Apfel R.E., Roy S.C. & Lo Y.C. : Phys. Rev., A31, 3194(1985).
- 22)Greenspan M. & Tschiegg C.E. :J. Acoustical Soc. Am., 72, 1327(1982), NB SIR 79-1753(1979) J. Research N.B.S. of Sounds-C. Engineering and Instru

mentation, 71C, 299(1967).

23)Lo Y.C. & Apfel R.E. : Phys. Rev., A38, 5260(1988).