

分 置

PNC I J 1600 96-005

本資料は200/年 10月 4日付で登録区分、
変更する。

社内資料

[技術情報室]

過熱液滴型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)

1996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

茨城県東茨城郡大洗町成田町4002

日本原子力研究開発機構
技術協力部
技術開発部
技術協力課

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)

社内資料
PNC-PI1600 96-005
1996年3月



過熱液滴型中性子検出器の開発研究

成田 正邦、澤村 晃子*

要 旨

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、 γ 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 γ 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 γ 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説されていない。

本研究では現場の放射線管理への適用に資するために、この過熱液滴型検出器の作動原理の理論解析を行い、基本特性を解明することを目的とする。今年度は、以下の検討を行った。

- (1) 過熱液滴型検出器の理論解析
 1. 臨界エネルギーの計算
 2. 中性子検出感度の計算
- (2) 過熱液滴型検出器試作法および試作検出器の検討
- (3) 基本特性の把握
 1. 過熱液滴型検出器の温度・圧力依存性
 2. 過熱液滴型検出器の γ 線に対する感度特性

*本報告書は成田正邦、澤村晃子が動力炉・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：070D0140

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
高野良正

*北海道大学 工学部 原子工学科

Development of Superheated Drop Neutron Detector



Masakuni Narita*
Teruko Sawamura*

Abstract

Measurements of neutrons as well as γ 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 γ 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 γ 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 confirm the basic characteristics of the detector for the practical use in the nuclear facilities. In this fiscal year, the followings are discussed ;

(1)Theoretical analysis of the basic process of the superheated drop detector,

1. Calculation of critical energies,
2. Calculation of neutron detection sensitivity,

(2)Composition and making procedure of the detectors,

(3)Study of the basic characteristics of the detectors

- 1.Temperature and pressure dependence,
- 2.Sensitivities for gamma rays.

Work performed by Masakuni Narita 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. 過熱液滴型検出器による中性子検出動作原理	3
2.1 過熱液滴型検出器による中性子検出	3
2.2 検出液体	4
2.3 ブテンの臨界半径と臨界エネルギー	5
2.4 気泡生成条件	8
〈参考文献〉	
3. 中性子とブテン構成原子核との相互作用	10
3.1 散乱断面積と微分散乱断面積	10
3.2 有効断面積 $\{\sigma_{ij}\}_{eff}$	11
3.3 弹性散乱による反跳原子核の反跳角とエネルギー	12
3.4 角度微分断面積からエネルギー微分断面積への変換	13
〈参考文献〉	
4. イオン阻止能の計算	16
4.1 化合物の阻止能の計算	16
4.2 ブテンの阻止能	17
〈参考文献〉	
5. 検出感度計算	20
5.1 中性子誘発荷電粒子による気泡生成	20
5.2 有効断面積 σ_{eff} 計算	21
5.3 検出感度の計算手順	22
5.4 計算結果	23
5.4.1 有効断面積 σ_{eff} 、気泡生成確率 f	23
5.4.2 Am-Be 線源に対する有効断面積	27
5.4.3 検出感度の圧力依存性	29
5.5 考察	29
〈参考文献〉	

6.	検出器の試作と試作検出器の照射実験.....	31
6.1	昨年度の報告の要約.....	31
6.2	試作検出器作成法の見直し.....	31
6.3	試作検出器.....	33
6.4	試作検出器の照射.....	33
6.5	結果.....	36
6.6	計算値との比較.....	39
6.7	今後の課題.....	40
	〈参考文献〉	
7.	ガンマ線に対する過熱液滴型検出器の応答.....	41
7.1	γ 線に対する液滴型検出器の応答機構.....	41
7.2	フレオン 12 とオクタフルオロプロパンの場合.....	42
7.3	電子に対する阻止能.....	42
7.4	気泡生成に寄与する電子のエネルギー領域.....	44
7.5	動燃小泉による市販液滴型検出器に関する試験と組成分析.....	47
7.5.1	γ 線用及び中性子用検出器、BD100-R、BDG の組成分析.....	47
7.5.2	γ 線用検出器の中性子感度試験.....	48
7.6	考察.....	49
	〈参考文献〉	
8.	まとめ.....	51

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、 γ 線のみならず中性子の測定が不可欠である。

ICRP1990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、100keVから2MeV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 γ 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 γ 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。

本研究では現場の放射線管理への適用に資するために、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明する。

今年度は、過熱液滴型検出器の作動原理の理論解析、基本特性の把握のため、以下の検討を行った。

- (1) 過熱液滴型検出器の理論解析
 1. 臨界エネルギーの計算
 2. 中性子検出感度の計算
- (2) 過熱液滴型検出器及びの検作及討
 1. 過熱液滴型検出器の組成と制作方法の検討
 2. 過熱液滴型検出器の試作検討
 3. 過熱液滴型検出器の試作
- (3) 基本特性の把握
 1. 過熱液滴型検出器の温度・圧力依存性
 2. 過熱液滴型検出器の γ 線に対する感度特性

本研究では検出液体として主にブテン(C_4H_8)を用いた場合について検討している。これまで検出液体としてフレオン 12(CCl_2F_2)を用いた過熱液滴型中性子検出器の研究が多数報告されている。

フレオン 12 は沸点が $\sim -30^{\circ}\text{C}$ で、常温で検出感度の高い検出体である。一方、4種のブテン異性体の沸点は $\sim -7^{\circ}\text{C}$ から $\sim +4^{\circ}\text{C}$ でありいずれもフレオン 12 に比べ高沸点で、検出感度の点からは望ましい検出体ではない。しかし、ブテンの場合は、中性子の検出に関与する原子は炭素原子のみであり、炭素以外の数種の原子が関与するフレオン 12 に比べ、実験と計算の比較が容易である。

更に4種のブテン異性体は沸点その他の熱力学的パラメータの異なっている。それら

は密度はほぼ等しいので、同一条件で放射線で照射された場合、液体中にはほぼ同一のエネルギー付与分布が形成されることになる。これらの液体による検出感度の相互比較により、検出動作に関する知見が得られるであろう。

γ 線に対する感度の有無、その他の観点から近年フレオン12以外の液体を検出体とする研究がいくつか報告されている。 γ 線に対する感度、応答等を明らかにすることは本研究の目的の一つである。本文では γ 線に対する応答を検討しているが、その部分でのみ、検出液体としてブテン以外の液体を扱っている。

本文は、第2章以降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、検出液体の検出動作に関連する物性値等を簡単に示した。2章に関する詳細は昨年度の報告書(PNC PJ1600 95-002)では2~6章に記述されている。第3章から第5章では中性子検出感度計算に必要な事項と、検出感度の計算法について述べた。第3章では中性子と検出液体構成原子核との相互作用、断面積等について、第4章では検出液体のイオン阻止能について、第5章では第2~4章までの結果を用いた使用温度および中性子エネルギー依存中性子検出感度の計算法とその結果を示した。第6章では、検出器製作方法、検出器の試作、試作検出器の基本特性の記述、第5章の計算結果との比較検討を行っている。また、計算中に含まれるパラメータの確定法についても検討した。第7章では、この型の検出器のガンマ線に対する応答について検討した。本章でのみ、検出液体はブテンではなく、フレオン12とオクタフルオロプロパンを想定している。第8章では全体のまとめと今後の方針を検討している。

2. 過熱液滴型検出器による中性子検出動作原理

本章では中性子検出動作、中性子検出感度、本研究で取り扱う検出液体、気泡生成の臨界エネルギー、気泡生成条件等について述べる。これらの詳細については既に前年度の報告に述べているが、本章では特に今年度試作した検出器液体に関する計算結果を示した。

2.1 過熱液滴型検出器による中性子検出

過熱液滴型検出器は、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時の沸点が保存時温度より低くなるように加圧しておく。使用前に加圧を除去すると、液滴は過熱状態になる。

過熱液体に放射線を照射すると、放射線の付与エネルギーにより、蒸気核がつくられる。蒸気核は、その内圧が外から加えられる力より大きい場合、自発的に成長する。

中性子が液体に照射された場合は、中性子と液体構成原子核と相互作用により誘起される荷電粒子によりエネルギーが付与され、荷電粒子通過軌跡に沿って蒸気核がつくられる。蒸気核が自発的成長条件を満たすとき、蒸気核は成長し、それは液滴全体が蒸発し終わるまで続く。このとき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し、入射中性子を評価する。

検出器の中性子検出感度 $K_f(E_n) = [\text{気泡数}] / [\text{中性子束}]$ は、以下のようになる。

$$K_f(E_n) = V \sum_{i,j} N_i \Sigma \sigma_{ij}(E_n) f_{ij}(E_n) \quad [\text{bubbles}/(\text{m}^2\text{s}^{-1})] \quad (2.1)$$

V : 検出器体積、 N_i : 検出液体を構成する i -核種密度

σ_{ij} : 中性子と i -核種との相互作用により放出される j 種-荷電粒子

(以下 ij -粒子) 放出反応断面積

$f_{ij}(E_n)$: ij -粒子の可視気泡生成確率

$f_{ij}(E_n)$ は、 ij -粒子のエネルギー分布を $\epsilon_{ij}(E_i)$ とすると、

$$f_{ij}(E_n) = \frac{\int \epsilon_{ij}(E_j) dE_j}{\int_{E_{ij,\min}}^{E_{ij,\max}} \epsilon_{ij}(E_j) dE_j} \quad (2.2)$$

ここで、 $E_{ij,\max}$ 、 $E_{ij,\min}$ は ij -粒子の最大および最小エネルギーである。分子の積分は、 E_j について行う。積分は、後に述べる気泡生成条件を満たすエネルギー範囲について行う。

有効断面積 $\{\sigma_{ij}\}_{eff}$ を定義しておく。

$$\{\sigma_{ij}\}_{eff} = \sigma_{ij}(E_n) f_{ij}(E_n) \quad (2.3)$$

$\{\sigma_{ij}\}_{eff}$ は ij -粒子一個当たりの感度である。

2.2 検出液体

表 2.1 に 4 種のブテン異性体、フレオン 12、オクタフルオロプロパン(C_3F_8)の物性値を示す。フレオン 12 は従来研究されてきた液体として本文の随所で比較に取り上げている液体であり、オクタフルオロプロパンは第 7 章の γ 線に対する応答の章で取り扱っている。

ブテンを用いる場合は(2.2)および(2.3)の i および j はそれぞれ

$i : H \quad C$

$j : H(n,p)$ の放出 p 、 $C(n,n)C$ の反跳 C イオン

である。後に示すように、ブテンの場合は p はその阻止能が小さいため通常の検出器試験条件下では気泡生成に寄与しない。それ故、基本特性の解析では C イオンのみを考慮すればよいことになる。

表 2.1 検出液体の物性値^{2.1)}

液体名と構造式		密度	沸点	蒸気圧	*	**	***
					[g/cm ³]	[°C]	[atm]
1-butene	$CH_3CH_2CH:CH_2$	C_4H_8	0.5951	-6.0	2.6		
cis-2-butene	$CH_3CH:CHCH_3$	C_4H_8	0.6213	+3.7	1.8		
trans-2-butene	$CH_3CH:CHCH_3$	C_4H_8	0.6042	+0.8	2.0		
iso-butene (=iso-butylene,2-methylpropene)	$(CH_3)_2C:CH_2$	C_4H_8	0.5942	-7.0	2.6		
Freon-12	CCl_2F_2		1.311	-29.8	5.7		
Octafluoropropane	C_3F_8		1.370	-36.7	7.7		

* at 1 atm. and at 20 °C ** at 1 atm. *** at 20°C

2.3 ブテンの臨界半径と臨界エネルギー

気泡生成条件を支配するパラメータは、検出液体に固有なパラメータと検出液体と中性子および中性子により放出された荷電粒子と物質の相互作用に関するパラメータに分けられる。検出液体に固有なパラメータは、放射線により液体中に生成される蒸気核の平衡条件により決まる、臨界半径、臨界エネルギー等である。

臨界半径・臨界エネルギーの評価式およびブテン、その他の若干の液体の臨界半径・エネルギーについては昨年度の報告書に述べた。本節には後章で述べる試作に用いた 1-butene、trans-2-butene の臨界半径 R_c ・エネルギー E_c を示しておく。

臨界半径 R_c は以下の平衡条件より求められる。

$$P_{in} = P_l + \frac{2\gamma}{R_c} \quad (2.4)$$

P_{in} : 蒸気核内の圧力、 P_l : 液体圧力、 γ : 液体の表面張力

ここで、 P_{in} 、 γ 、 R_c は温度 T の関数である。

臨界エネルギー E_c の評価には、次式を用いた。^{2.3), 2.4)}

$$E_c = \frac{4\pi}{3} R_c^3 H + 4\pi R_c^2 \left(\gamma(T) - T \frac{d\gamma}{dT} \right) + \frac{4\pi}{3} R_c^3 P_l \quad (2.5)$$

表 2.2 に臨界エネルギーの計算で入力したデータの一覧を示す。

表 2.2 入力データ ^{2.2)}

	分子量[g/mol]	密度[g/cm ³]	沸点[K]	臨界温度[K]	臨界圧力[bar]	Omega
1-butene	56.108	0.5951	266.9	419.6	40.2	0.191
trans-2-butene	56.108	0.6042	274.0	428.6	39.9	0.205

*Pitzer's acentric factor

臨界エネルギー E_c 、臨界半径 R_c 、蒸気密度 ρ_g 、および ρ_g/ρ_l を温度の関数として図 2.1、2.2、2.3、2.4 に示す。

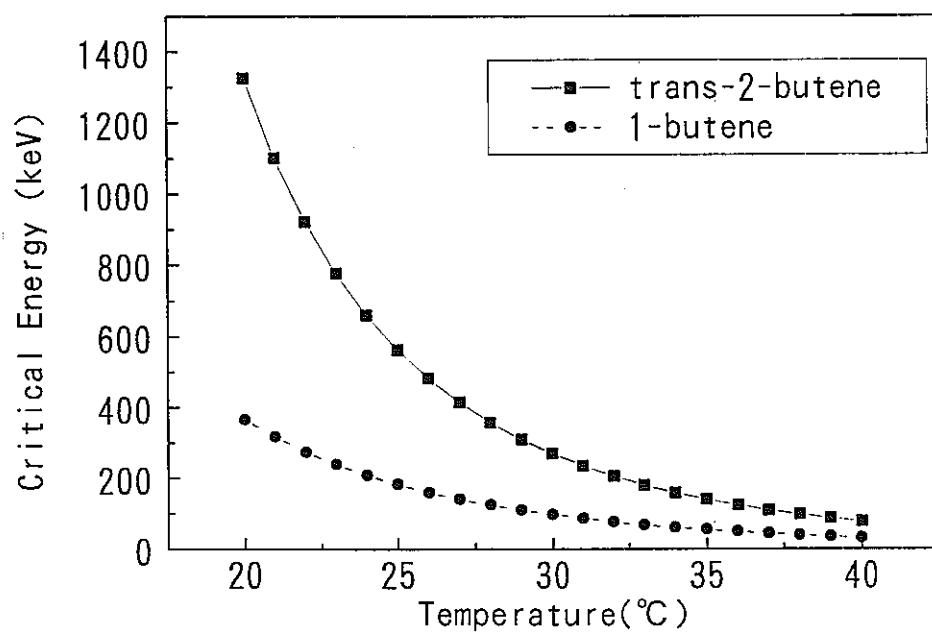


図2.1 臨界エネルギーと温度の関係

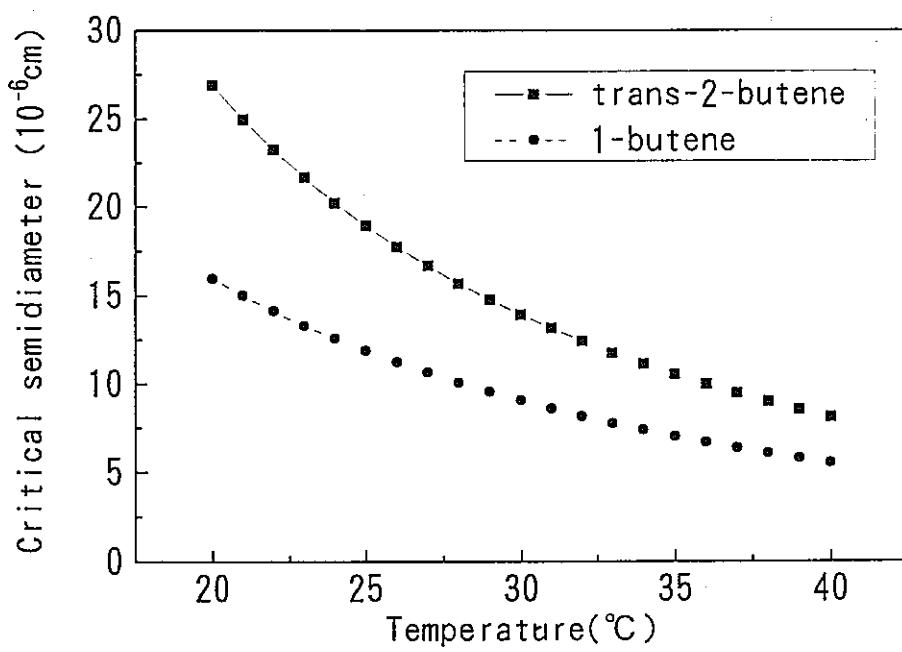


図2.2 臨界半径と温度の関係

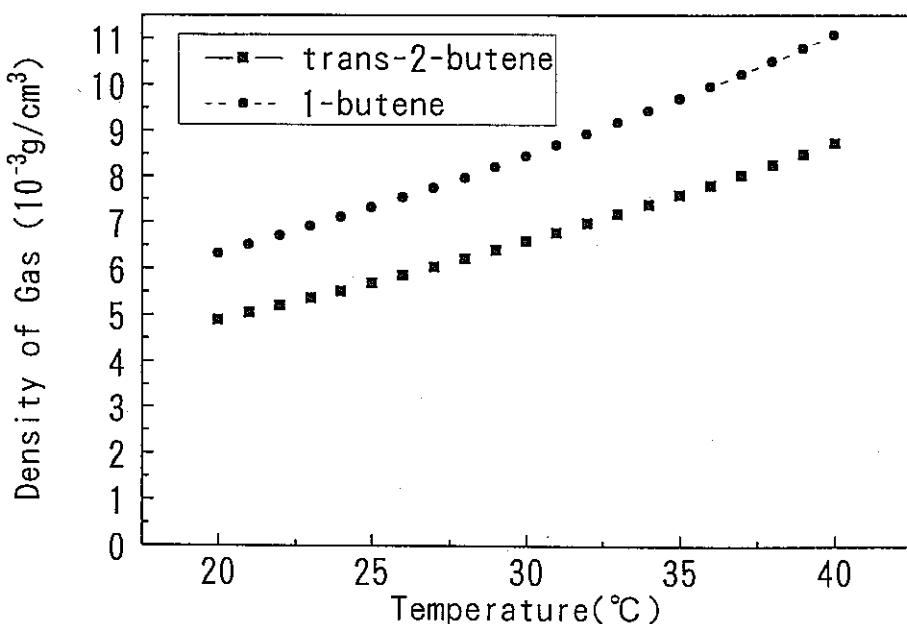


図2.3 蒸気密度と温度の関係

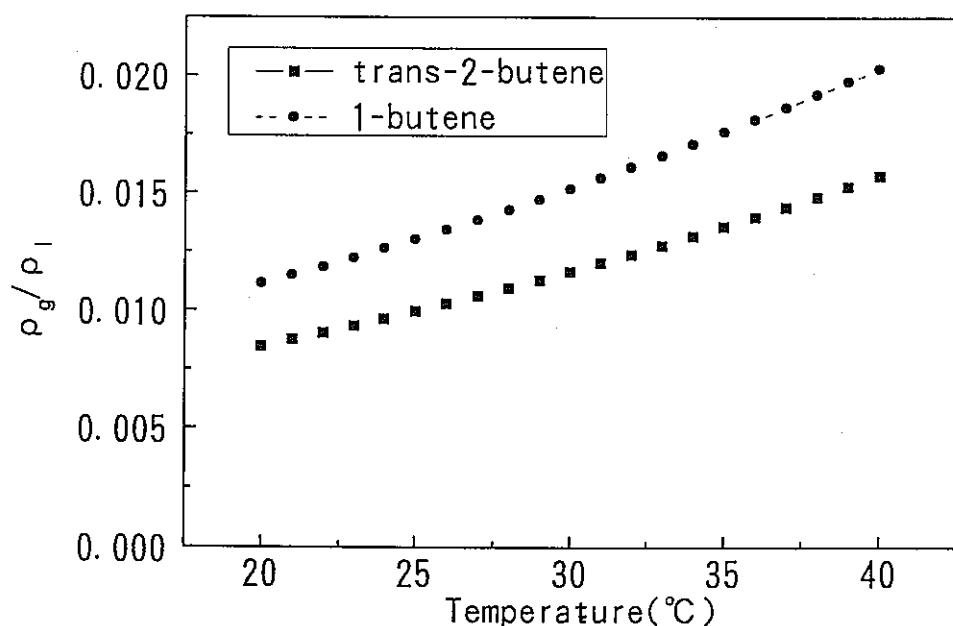


図2.4 気体と液体の密度比と温度の関係

2.3 気泡生成条件

荷電粒子飛跡に沿ってつくられる微小気泡が計数可能な気泡へと成長するためには、以下の 2 条件を満たすことが必要である。第 1 はイオンのエネルギー E が臨界エネルギーを越えること、第 2 はそのエネルギーが気泡生成に寄与する範囲内に付与されることである。

簡単のために、エネルギーは荷電粒子飛跡に沿って半径 d の円柱状に付与されるものとする。更に長さ ι の円柱中の付与エネルギー（即ち体積 = $\pi d^2 \iota$ 中のエネルギー）が 1 個の蒸気核生成に寄与するものとする。 ι を有効エネルギー付与領域と呼ぶことにする。飛跡を中心とし、中心からの距離 d 内に飛跡に沿って単位長さ当たり付与されるエネルギーを $(dE/dx)_d$ すると、 $(dE/dx)_d \cdot \iota$ が E_c を越えることである。

ここで有効エネルギー付与領域を表すパラメータとして b を導入する。 ι を、臨界蒸気核の元となる液体球の半径を単位として $\iota = bR_{c,L}$ と表す。 $(dE/dx)_d \sim (dE/dx)$ と近似しすると気泡生成条件は以下のように表される。

1. 炭素イオンのエネルギー

$$E > E_c \quad (2.6)$$

2. 炭素イオンのエネルギー付与率

$$\left(\frac{dE}{dx} \right)_{ion \quad in \quad Liquid} > \frac{E_c}{b\rho_\iota R_{c,L}} \quad (2.7)$$

$R_{c,L}$ と R_c の関係は ρ_g 、 ρ_ι をそれぞれ蒸気、液体の密度とすると、

$$\frac{4\pi}{3} R_{c,L}^3 \rho_\iota = \frac{4\pi}{3} R_c^3 \rho_g \quad \text{より、}$$

$$R_{c,L} = \left(\frac{\rho_g}{\rho_\iota} \right)^{\frac{1}{3}} R_c \quad (2.8)$$

である。

$b=10$ のときの条件 2、(2.7)式の右辺、下限阻止能値の計算結果を、温度の関数として図 2.5 に表す。

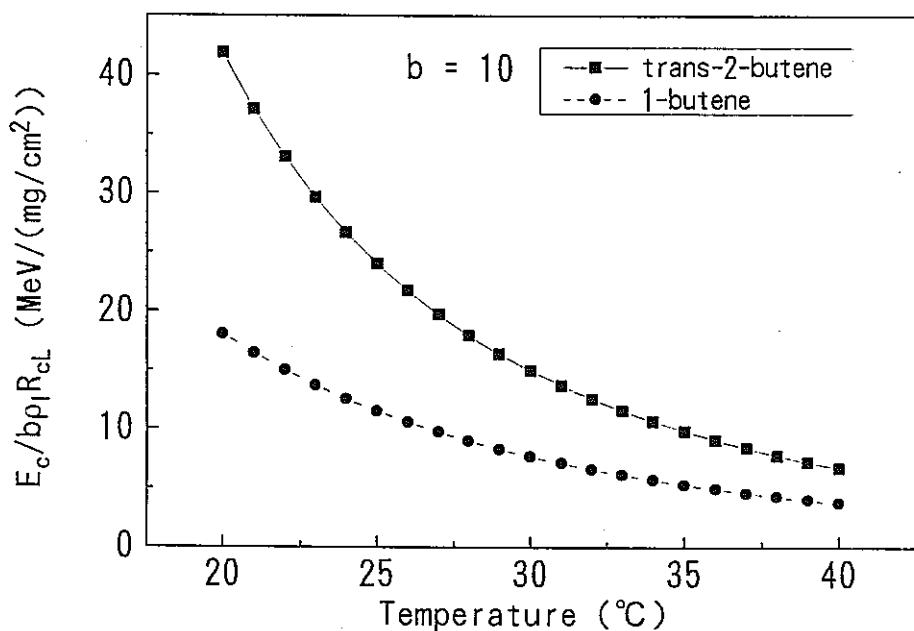


図2.5 炭素イオンの下限阻止能値と温度の関係

<参考文献>

- 2.1) Weast R. : CRC Handbook of Chemistry & Physics, 57th ed.(CRC press).(1976)
- 2.2) Robert C.Reid, John M. Prausnith and Bruce E. Poling, The Properties of Gases & Liquids : 4th ed., McGraw-Hill, INC.
- 2.3) Bugg D. V. : Prog.Nucl.Phys.edit. by O.R Frish(Pergamon Press,1958), Vol7, chap.1
- 2.4) M.J.Herper&M.E.Nelson : Rad.Prot.Dos, 47,535(1993)

3. 中性子とブテン構成原子核との相互作用

本研究の目的である原子力施設での被曝管理の立場からは、対象とする中性子のエネルギー領域は 0~10MeV 程度である。この領域での中性子とブテン構成原子 C, H との相互作用は主に弾性散乱である。弾性散乱により、C 或いは H は反跳エネルギーを得て液体にそのエネルギーを付与する。

本章では、反跳角と反跳エネルギー、角度微分弾性散乱断面積からエネルギー微分断面積への変換等について述べる。

本研究では断面積データとして専ら BNL400^{3,1)}を用いた。

3.1 散乱断面積と微分散乱断面積

¹²C の弾性散乱断面積は BNL400 の角度微分散乱断面積 $\sigma_c(\theta, E_n)$ を積分して求めた。即ち、 σ_{ij} の $ij \rightarrow c$ に置き換えて、

$$\sigma_c(E_n) = \int \sigma_c(\theta, E_n) d\theta$$

である。弾性散乱の場合は次節で示すように、中性子散乱角と反跳エネルギーには対応関係があるので、その関係を用いて角度微分断面積 $\sigma_c(\theta, E_n)$ を C の反跳エネルギー微分断面積 $\sigma_c(E, E_n)$ に変換することができる。これを用いると

$$\sigma_c(E_n) = \int \sigma_c(E, E_n) dE$$

であり、誘発荷電粒子スペクトルは、 $\varepsilon_c(E)$ は以下で与えられる。

$$\varepsilon_c(E) = \sigma_c(E, E_n) / \sigma_c(E_n) \quad (3.1)$$

BNL400 には中性子エネルギー 0.55~7.58MeV の角度断面積が示されている。積分結果を図 3.1 に示す。

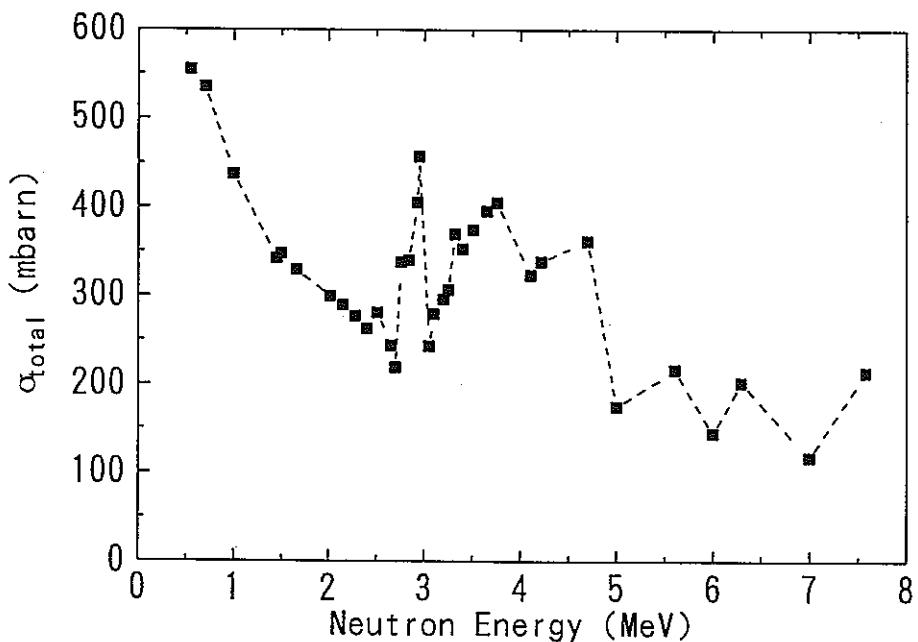


図3.1 Cの全弾性散乱断面積

3.2 有効断面積 $\{\sigma_{ij}\}_{eff}$

2.1節で有効断面積を以下のように定義した。

$$\{\sigma_{ij}\}_{eff} = \sigma_{ij}(E_n) f_{ij}(E_n) \quad (2.3)$$

前節と同様に $ij \rightarrow c$ の置き換えを行い、可視気泡生成確率 $f_c(E_n) = \frac{\int \varepsilon_c(E_j) dE_j}{\int_{E_{ij,min}}^{E_{ij,max}} \varepsilon_c(E_j) dE_j}$

と

$\varepsilon_c(E) = \sigma_c(E, E_n) / \sigma_c(E_n)$ を用いると（有効断面積については添え字 c を省略）

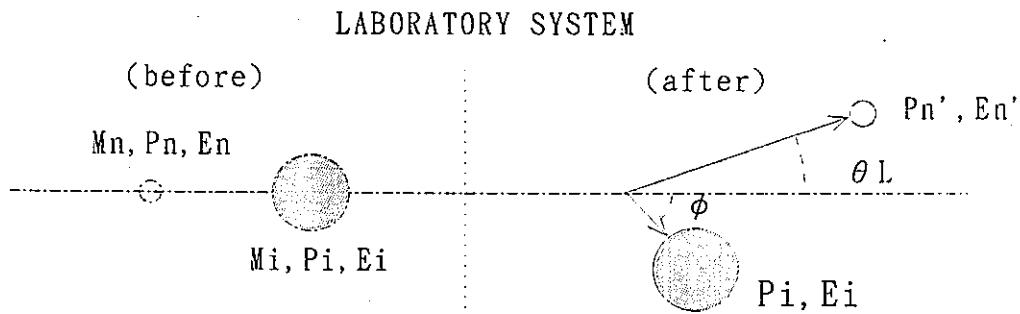
$$\sigma_{eff}(E_n) = \int_{E_{th,L}}^{E_{th,H}, E_{max}} \sigma_c(E, E_n) dE \quad (3.2)$$

となる。積分の上下限値については第5章に詳述する。

3.3 弹性散乱による反跳原子核の反跳角とエネルギー

中性子と原子核との弹性衝突の運動学について示す。

下図に実験室系での運動を示す。質量 M ・速度 V ・運動量 P ・エネルギー E とする。中性子には n 、炭素の原子核には i の添え字を付けて、また、衝突後の速度・運動量・エネルギーには、' を付けて区別することにする。 ϕ_L は実験室系での炭素の反跳角を、 θ_L は中性子の散乱角を表している。



炭素の原子核の衝突前の速度は 0 とする。

エネルギー保存の法則より、

$$E_n = E_i + E_n' \quad (3.3)$$

運動量保存の法則より、

$$\begin{cases} P_n = P_n' \cos \theta_L + P_i \cos \phi_L \\ 0 = P_n' \sin \theta_L - P_i \sin \phi_L \end{cases} \quad (3.4)$$

エネルギーと運動量の関係は

$$E_n = \frac{P_n^2}{2M_n}, E_i = \frac{P_i^2}{2M_i}, E_n' = \frac{P_n'^2}{2M_n}$$

$\sin^2 \phi + \cos^2 \phi = 1$ の関係式を用いて、

$$\begin{aligned} P_i^2 \sin^2 \theta_L + (P_n^2 + P_i \cos^2 \phi_L - 2P_n P_i \cos \phi_L)^2 &= P_n'^2 \\ P_n^2 + P_i^2 - 2P_n P_i \cos \phi_L &= P_n'^2 \end{aligned} \quad (\because (3.3))$$

$$\therefore E_i = \frac{4M_n M_i}{(M_n + M_i)^2} E_n \cos^2 \phi_L \quad (3.5)$$

炭素原子の最大および最小エネルギーは以下のようになる。

最小エネルギー $E_{min} = 0$

$$\text{最大エネルギー } E_{max} = \frac{4M_n M_i}{(M_n + M_i)^2} E_n$$

$M_n = 1$ (中性子)、 $M_i = 12$ (炭素)の時は

$$E_i = 0.284 \times E_n \cos^2 \phi_L$$

となる。

3.4 角度微分断面積からエネルギー微分断面積への変換

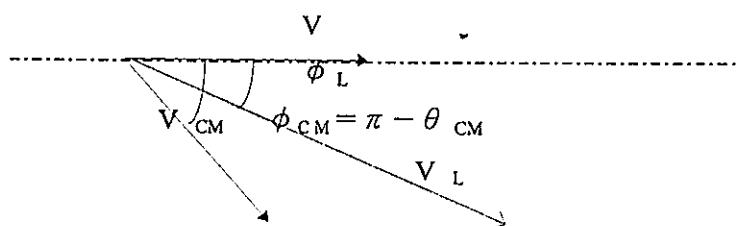
微分断面積データは重心系の中性子の散乱角度の関数として与えられていることが多い。後章での中性子検出感度計算ではエネルギー微分断面積が必要である。ここで、角度微分断面積をエネルギー微分断面積に変換する過程を示す。

(3.3)式より、

$$A = \frac{4M_n M_i}{(M_n + M_i)^2} \quad \text{とおくと、} \quad E_i = AE_n \cos^2 \phi_L$$

また、反跳原子核は、はじめ止まっていること、重心系での速度は重心の速度と同じであることから、 $|V| = |V_{CM}|$ 。よって、下の図より、 $\phi_{CM} = 2\phi_L$ となり、この関係を用いると、重心系の中性子散乱角と実験室系の反跳核のエネルギーの関係が得られる。

$$\phi_{CM} + \theta_{CM} = \pi, \therefore \phi_L = \frac{\pi - \theta_{CM}}{2}$$



$$\begin{aligned}
 \text{よって、 } E_i &= AE_n \cos^2\left(\frac{\pi}{2} - \frac{\theta_{CM}}{2}\right) \\
 &= AE_n \sin^2\left(\frac{\theta_{CM}}{2}\right) \\
 &= AE_n \left(\frac{1 - \cos\theta_{CM}}{2}\right)
 \end{aligned}$$

一方、

$$\begin{aligned}
 \sigma(\cos\theta_{CM}) * d(\cos\theta_{CM}) &= \sigma(E_i) * dE_i \\
 \sigma(E_i) &= \sigma(\cos\theta_{CM}) * \left| \frac{d(\cos\theta_{CM})}{dE_i} \right| \\
 &= \sigma(\cos\theta_{CM}) * \frac{2}{AE_n} \quad \left(\because \frac{dE_i}{d(\cos\theta_{CM})} = -\frac{1}{2}AE_n \right)
 \end{aligned}$$

図3.2は、BNL400から引用した中性子エネルギー $E_n=3.65\text{MeV}$ の炭素の微分散乱断面積である。横軸の θ_{CM} は重心系での中性子の散乱角であり縦軸は、立体角あたりの微分散乱断面積である。

重心系で等方的な場合、 $\sigma(\cos\theta_{CM}), \sigma(E_i)$ は一定となる。

またその場合は、イオンの運動エネルギーの平均値は、 $\bar{E}_i = \frac{2M_n M_i}{(M_n + M_i)^2} E_n = \text{const.}$ となる。

図3.2から散乱は等方的ではなく、角度分布があることがわかる。データ点と共に、データに対するフィット曲線を示した。フィット曲線は、データ点の多項式関数による最小自乗フィット曲線である。

横軸を炭素の反跳核のエネルギーに変換したグラフを図3.3に示す。縦軸の単位は、1MeVあたりの微分散乱断面積である。同じく、データ点と共にフィット曲線を示してある。この場合のフィット曲線は次式で表される。

$$\sigma_s(E) = 1054.3665 - 4432.1216E + 6408.2066E^2 - 4110.7165E^3 + 2053.0247E^4$$

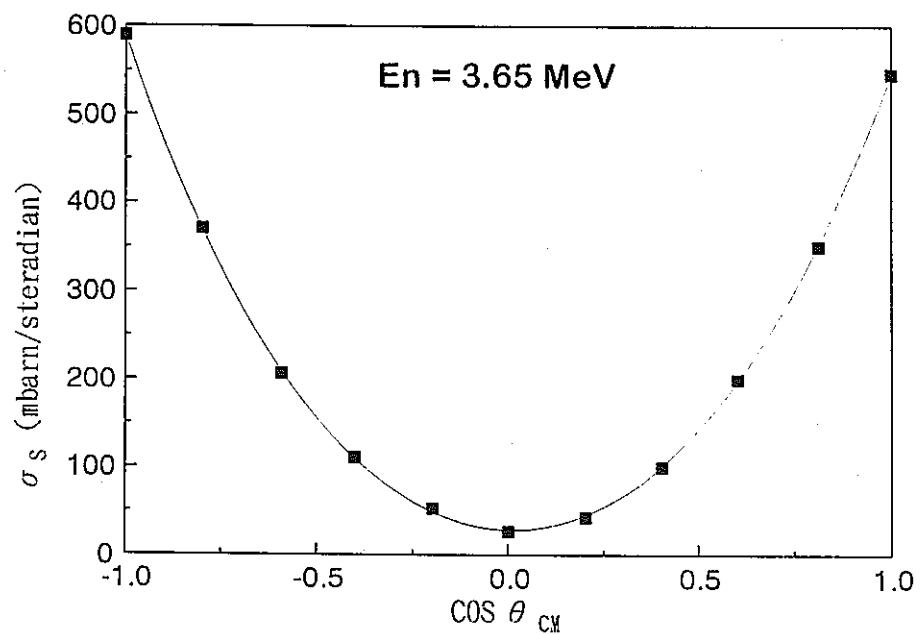


図 3.2 炭素の微分散乱断面積

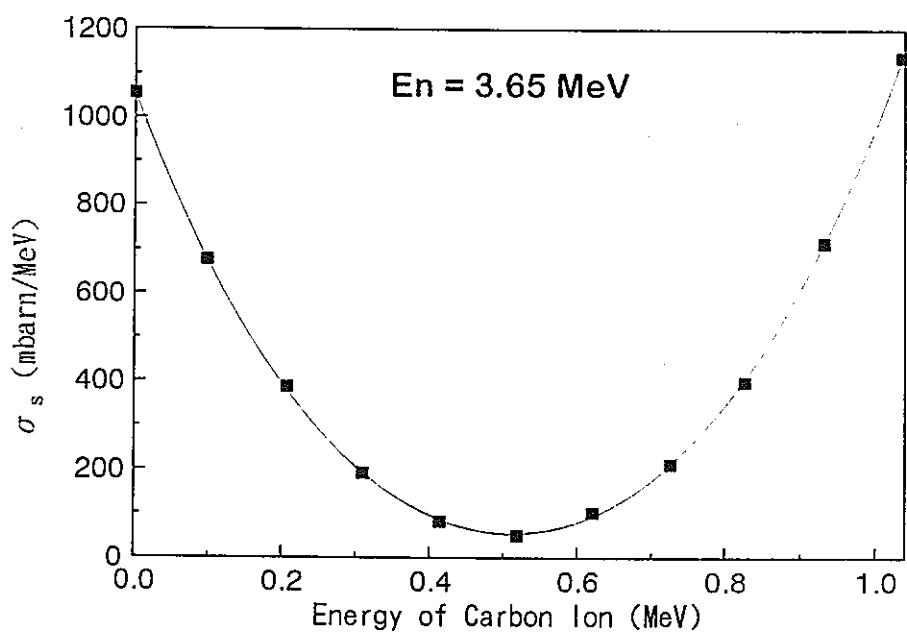


図 3.3 炭素の微分散乱断面積

<参考文献>

- 3.1) Murray Y .D.Goldberg,Victoria M .May, and John R.Stehn,Angular distributions in Neutron-induced reactions : Second edition Volume1,Cleaninghouse (1962)

4. イオン阻止能の計算

第2章で示したように、気泡生成条件を決定するもう一方のパラメータは、放射線あるいは放射線によって誘発される荷電粒子の液体へのエネルギー付与の空間密度である。

前章で、中性子がブテンに入射したときの反跳原子のエネルギーを計算した。本章では反跳原子 C、H のブテン中の阻止能を計算する。

4.1 化合物の阻止能の計算

化合物液体のイオン阻止能計算を行うために、TRIM コード(Transport of Ions in Matter)を用いた^{4,1)}。TRIM は、J.F.Ziegler と J.M.Manoyan が開発した計算コードである。

一般にイオンエネルギーが Bragg peak 近傍にある場合には化合物中のイオン阻止能にたいし Bragg's Rule が成立しないことが知られている。イオン阻止能は化合物を構成する各原子(殻 core)および原子間の結合(bond)による阻止能に分解されると考え、全阻止能は分解された阻止能の線形結合によって評価する。この方法を CAB 法(cores and bonds approach)と呼ぶ。CAB 法は Kohn の提案による方法で、実験データをもとに殻および結合の阻止能を評価した。そして、多くの炭化水素化合物中の Li イオン(25keV/amu)の阻止能の推定にかなりの精度で成功することができた

以下詳細に、TRIM で用いられている方法を Ziegler らの論文に基き、阻止能計算手順に従って述べる。

- (1) 各種炭化水素化合物の Powers による He イオン(500kev)に対する阻止能実験値と、Kohn による Li(175kev)実験値同じ速度の陽子に対する等価データに換算する。更にこれらの換算値および陽子に対する実験値を陽子(125kev)の等価阻止能へと変換する。
- (2) (1)の等価阻止能群より各種化合物中での様々な殻と結合の阻止能係数を導出する。すなわち、それぞれの殻および結合はそれらが存在する化合物において、独立な阻止能を持つという仮定に基づいて、114 種の化合物中での陽子の阻止能から殻と結合当たりの阻止能(阻止能係数)を求めた。結果を表 4.1 に示す。
- (3) 計算値と実験値を比較するために(1)、(2)の手順を逆にして結果の精度を調べた。それぞれの殻と結合の阻止能を線形に足しあわせて、様々な化合物の阻止能を算出した。また得た値を He、Li イオンあるいは実験データのあるイオンの値に換算した。これを実験値と比較する。計算精度は、平均 1% であった。

- (4) 最後に、化合物中でのあらゆるイオンの阻止能のエネルギー依存性を表現するための補正を行い、エネルギー依存阻止能を算出する。

本手法による計算では、4種のブテン異性体は同一の殻と結合で構成されているので同一阻止能を有することになる。

表 4.1 殻と結合の 125keV の陽子に対する阻止能

core の阻止能 Target Atom	bond の阻止能		(eV/ 10^{15} atoms/cm 2)		その他の結合	
	水素結合	炭素結合				
H	0.000	H-H	9.590	C-C	3.938	N≡N 20.380
C	6.145	H-C	7.224	C=C	9.790	N-O 15.796
N	5.859	H-N	8.244	C≡C	15.022	O=O 21.290
O	5.446	H-O	8.758	C-N	5.080	S-H 4.844
F	5.431			C-O	6.168	S-C 1.617
S	32.735			C=O	15.926	
Cl	28.795			C-F	10.998	
				C-Cl	3.713	

4.2 ブテンの阻止能

TRIM を用いた炭素原子及び水素原子のブテン中の飛程、及び阻止能を図 4.1、図 4.2 に示す。TRIM の入力データを表 4.2 に示す。

参考のために、フレオン 12 のイオン阻止能を図 4.3 に示しておく。図中のイオンはフレオン 12 中に中性子により誘発されるイオンである。

表 4.2 入力データ

	密度 (g/cm 3)	結合の数
1-butene	0.5951	(C=C) 1
trans-2-butene	0.6042	(C-C) 2
		(C-H) 8

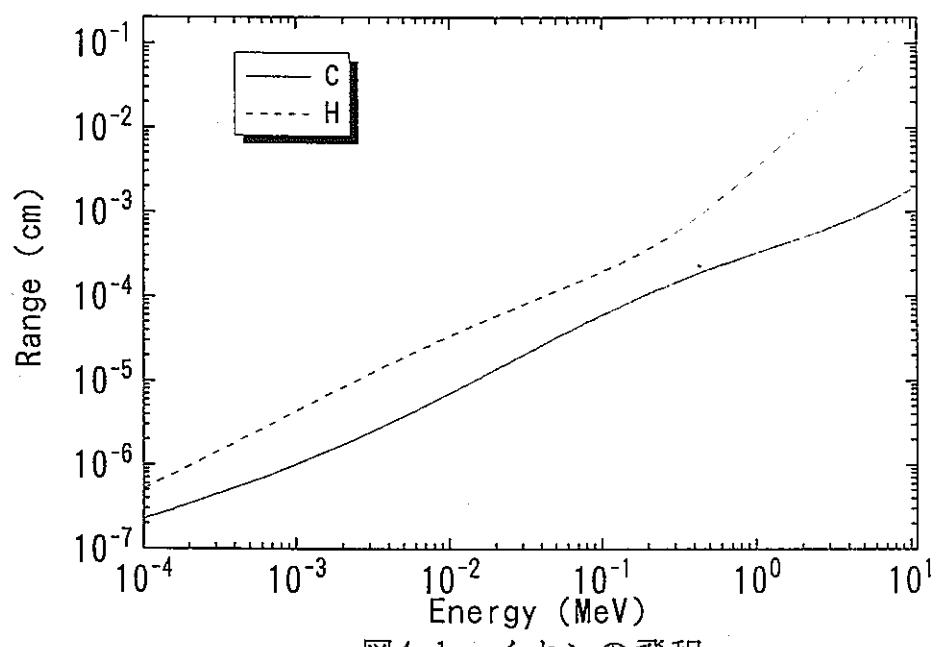


図4.1 イオンの飛程

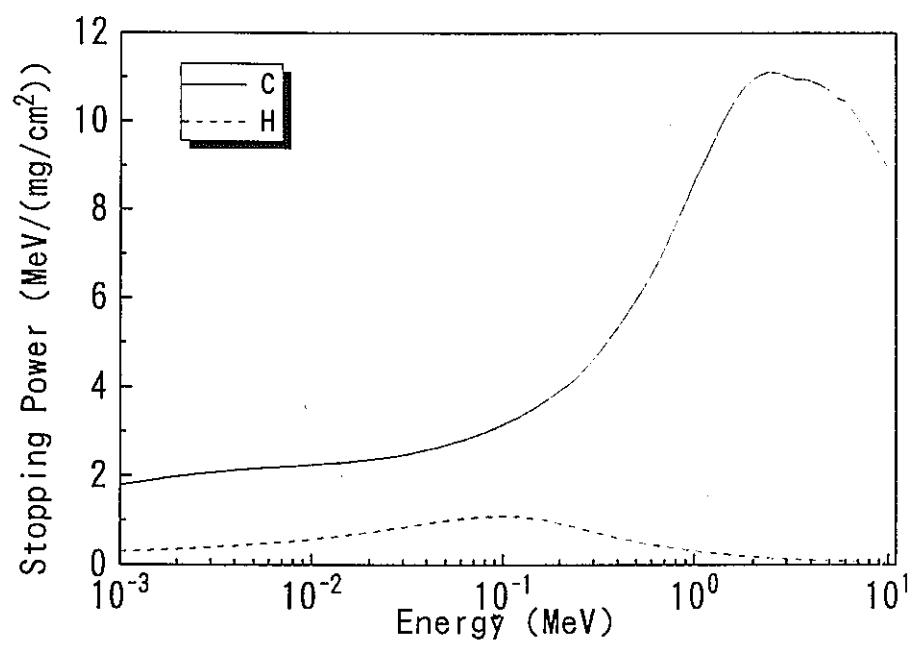


図4.2 イオンの阻止能

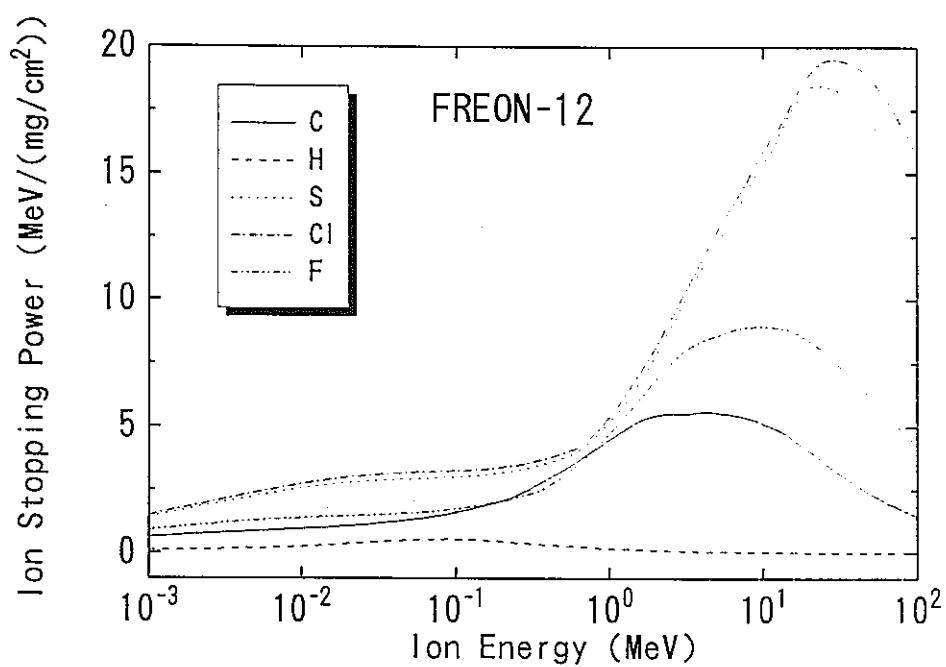


図4.3 イオンの阻止能(Freon-12)

<参考文献>

4.1) J.F.Ziegler & J.M.Manoyan : Nucl.Inst.Meth.in Phys.Res.,B35,215, (1988)

5. 検出感度計算

中性子検出感度は、 $K_f(E_n)$ は (2.1) で与えられる。有効断面積 $\{\sigma_{ij}\}_{eff}$ を用いて示すと

$$K_f(E_n) = V \sum_{i,j} N_i \{\sigma_{ij}\}_{eff}$$

或いは、単位線量当量当たりの感度 $K_D(E_n) = [\text{気泡数}] / [\text{線量当量}]$ で表すと

$$\begin{aligned} K_D(E_n) &= V \sum_{i,j} N_i \{\sigma_{ij}\}_{eff} \phi / D = V \sum_{i,j} N_i \{\sigma_{ij}\}_{eff} / h(E_n) \\ &= K_f(E_n) / h(E_n) \quad [\text{bubbles/Sv}] \end{aligned}$$

$h(E_n)$: 線量変換係数 [Sv, $/(cm^2/sec)$]

となる。中性子との相互作用によって発生するイオンのエネルギー分布、エネルギー微分断面積、イオン阻止能等を前章で述べたので、本章では発生イオンが気泡生成条件を満たすかどうかを判定し、 $\{\sigma_{ij}\}_{eff}$ の計算に必要なイオンエネルギーに関する積分の範囲を決定し $\{\sigma_{ij}\}_{eff}$ の計算を行う。

iso-butene 及び trans-2-butene を用いた過熱液滴型中性子検出器の $\{\sigma_{ij}\}_{eff}$ の計算結果を示した。

5.1 中性子誘発荷電粒子による気泡生成

計数可能な気泡生成条件を満たすイオンのエネルギー範囲は 2.4 で示した 2 条件により定められる。例を用いてエネルギー範囲決定の手順を示す。

例は、検出液体 1-butene

検出器使用温度 30 °C

有効エネルギー付与領域パラメータ b 10

の場合である。この場合、図 2.1、2.5 を参照すると、

条件 1 炭素反跳エネルギー $E > 0.095$ MeV

条件 2 炭素イオンに対する阻止能 > 7.67 MeV · cm²/mg

となる。これらを、阻止能曲線に図示して図 5.1 に示す。

阻止能曲線と条件 2 の交点が計数可能気泡を生成する炭素イオンの下限エネルギー $E_{TH,L}$ であり、この場合は

$$E_{TH,L} \sim 0.8 \text{ MeV}$$

になる。

また、図からこの条件下では反跳 H は計数可能気泡を生成しないことは明らかである。条件 2 による下限阻止能値がもう少し大きい場合、あるいはイオンエネルギーが 10MeV を越えて拡がっている場合は、条件 2 により生成条件を満たすイオンの上限エネルギーも現れることになる。

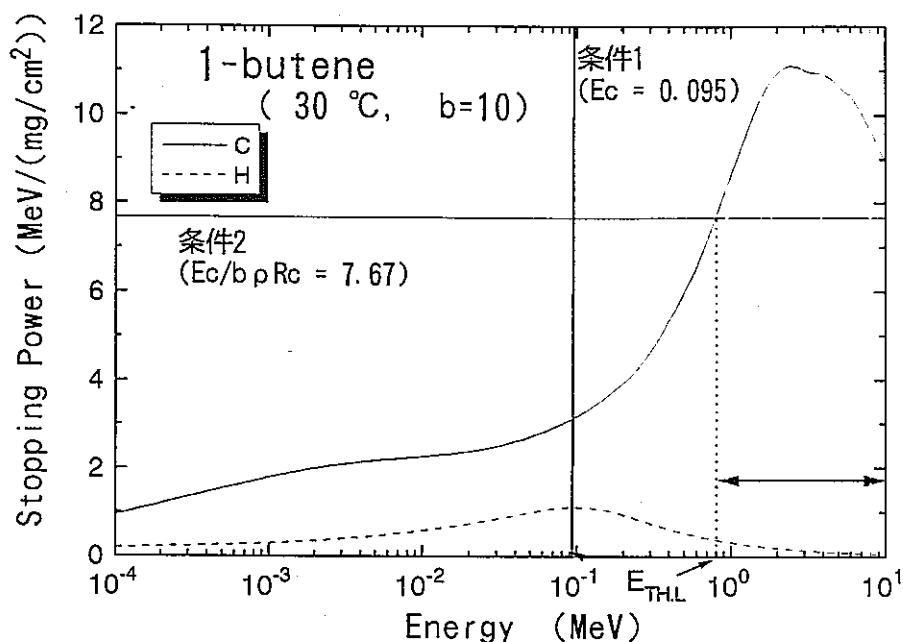


図 5.1 気泡生成可能なイオンのエネルギー範囲

5.2 有効断面積 σ_{eff} 計算

5.1 に示した手順によって(2.2)および(3.2)式の分子の積分範囲が決定した。H は計数可能気泡の生成に寄与しないのでこれまで述べてきたように C についてのみ考えればよい。

本節では前節の例に示したパラメーターに加えて、検出器入射中性子エネルギー

$$E_n = 3.65 \text{ MeV}$$

の場合について考えていくことにする。

このときのエネルギー微分断面積は図 3.3 に示した。またイオンエネルギー範囲は 0.8MeV～イオン最大エネルギーまでである。この様子を図 5.2 に示す。図中の斜線を施した領域の面積がブテンの過熱液滴が気泡を生成するのに有効な断面積 σ_{eff} であることを示している。

温度が高くなると、図 2.5 が示すように、 $E/b \rho, R_{cL}$ の値が小さくなり、下限エネルギー値は低くなる。これに従い図 5.2 中の斜線部面積は大きくなる、即ち、炭素原子一個当たりの感度 σ_{eff} は増加する。

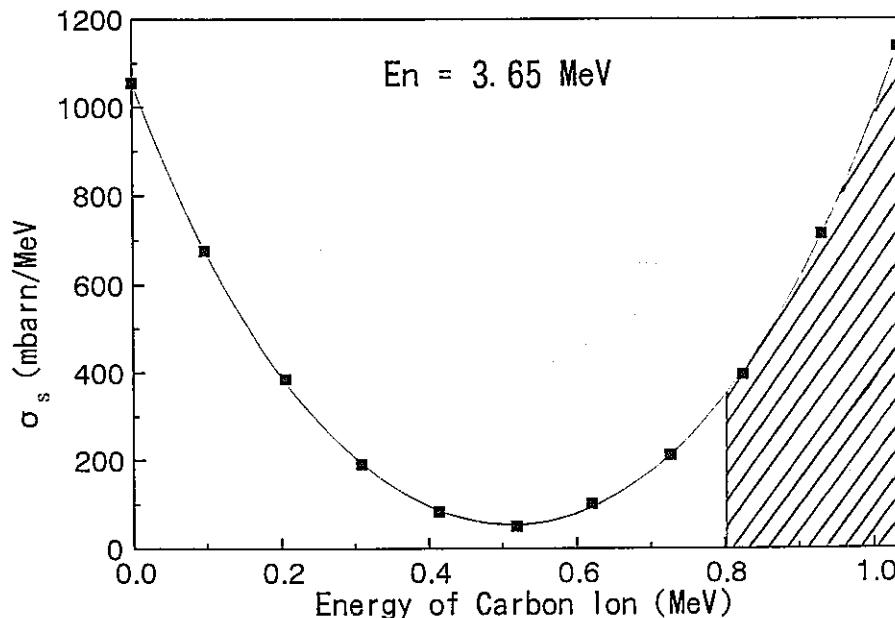


図 5.2 炭素イオンの有効断面積

5.3 検出感度の計算手順

以下の手順により計算を行った。計算の流れを図 5.3 に示す。

- [1] 炭素の反跳エネルギーを、入射中性子のエネルギー E_n の関数として計算する。
BNL400 による角度微分散乱断面積を炭素の反跳エネルギー微分断面積に変換する。
(図 3.3)
- [2] 臨界半径および臨界エネルギーを検出器温度 T の関数として計算する。
- [3] TRIM により炭素および水素原子の阻止能を計算する。(図 4.2)
- [4] (臨界エネルギー／エネルギー付与領域) の値と阻止能とを比較し、気泡生成可能なエネルギー範囲を求める。(図 5.1)
- [5] 炭素の反跳エネルギー微分断面積(図 3.3) と[4]により、有効断面積を計算する。
(図 5.2)
- [6] T あるいは E_n の関数として全断面積、有効断面積、気泡生成確率を得る。(図 5.4 ~5.9)。
- [7] Am-Be 線源に対する有効断面積を得る。(図 5.11、5.12)

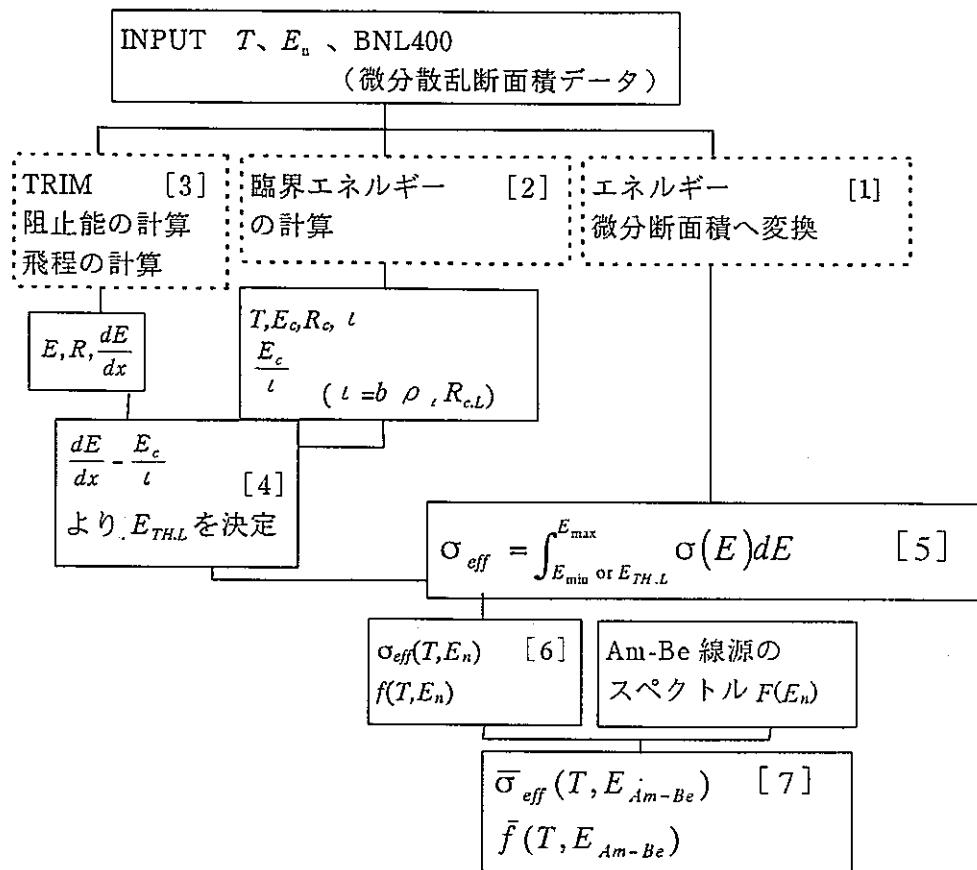


図 5.3 計算のフローチャート

5.4 計算結果

以上の手順に従って求めた結果を順に示す。

5.4.1 有効断面積 σ_{eff} 、気泡生成確率 f

有効断面積の積分はフィット曲線の解析的な積分により計算している。フィット曲線は、3.3 節の例を示したように E^4 までの多項式とし、各中性子エネルギーについて多項式の係数を決定している。

1-butene と trans-2-butene の有効断面積ならびに気泡生成効率を示す。 σ_{eff} を入射中性子の関数として、図 5.4、5.5 に示す。図 5.4 は、温度を 30°C 、 $b=10$ 及び $b=14$ としたときの、1-butene の有効断面積を示し、図 5.5 は温度を 38°C 、 $b=10$ 及び $b=14$ としたときの trans-2-butene の有効断面積を表す。

また、気泡生成確率 $f = \frac{\sigma_{eff}}{\sigma_{total}}$ を入射中性子エネルギーの関数として図 5.6、5.7 に示す。

図 5.8、5.9 には入射中性子のエネルギーをパラメータとして 1-butene 及び trans-2-butene の有効断面積を温度の関数として示した。

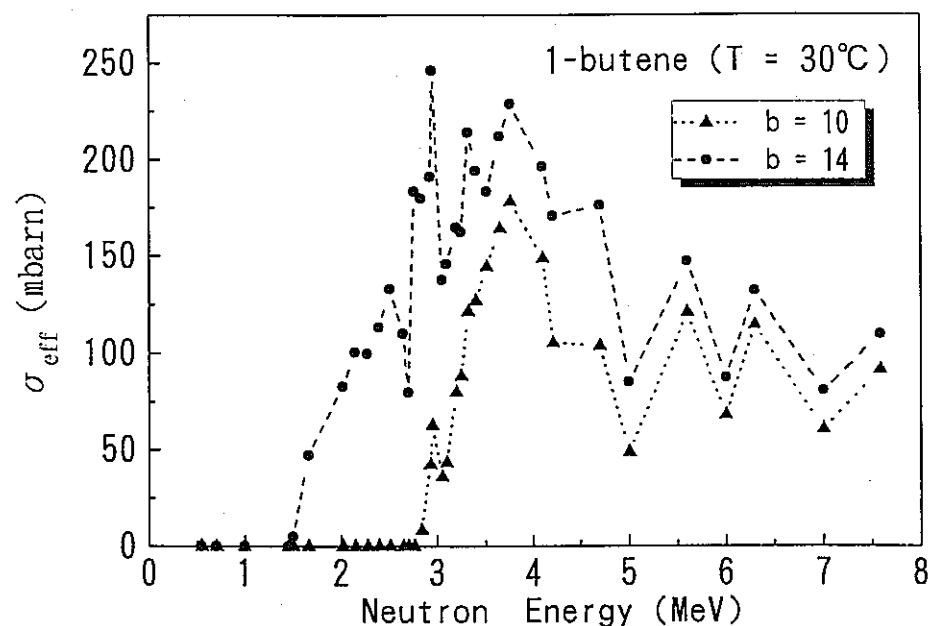


図 5.4 有効断面積

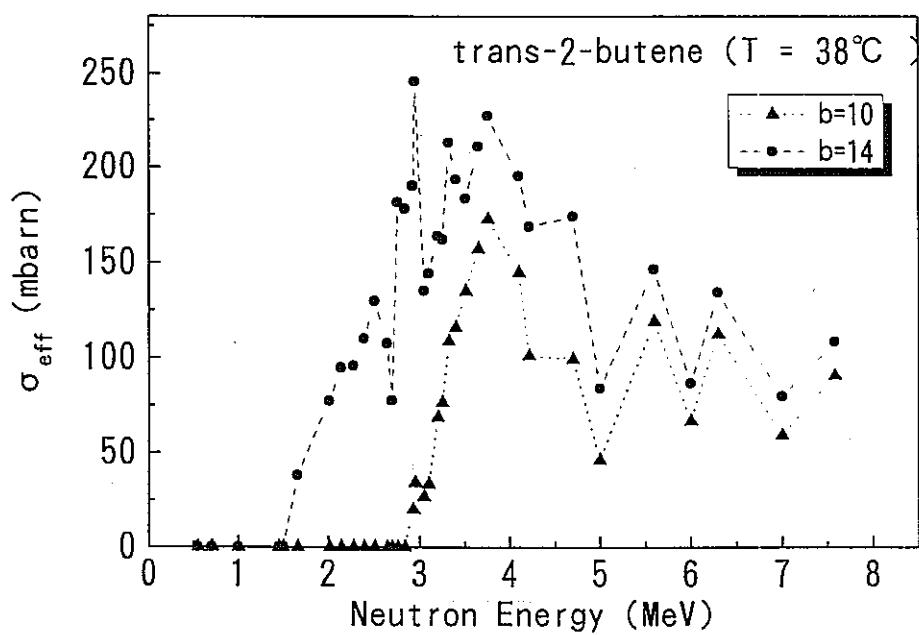


図5.5 有効断面積

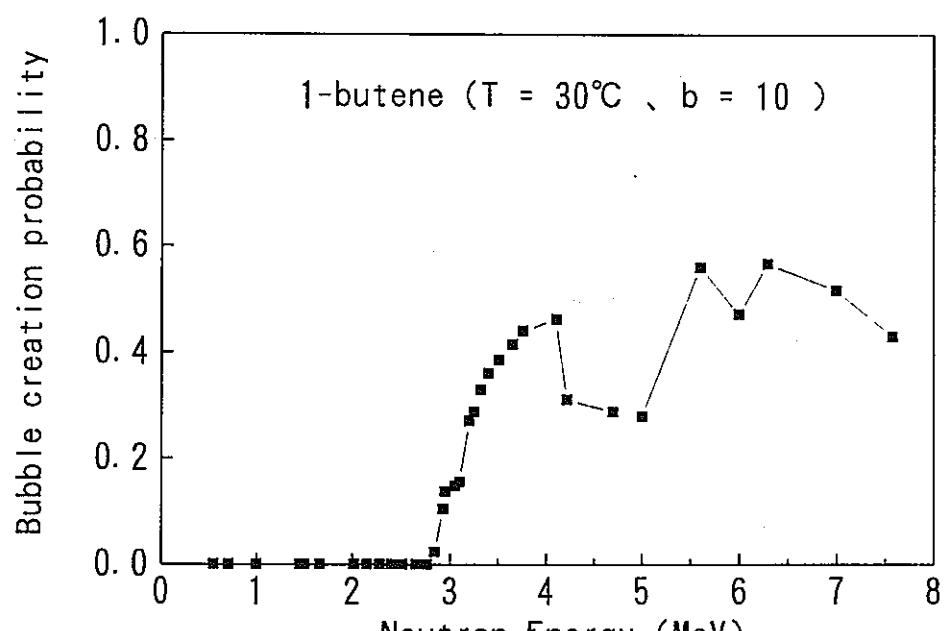


図5.6 気泡生成確率

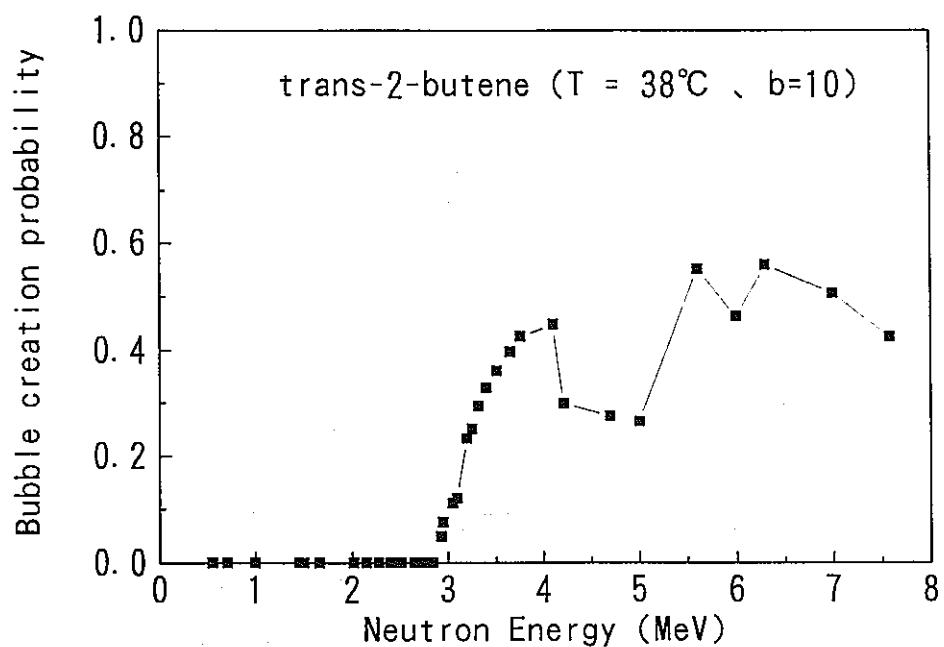


図5.7 気泡生成確率

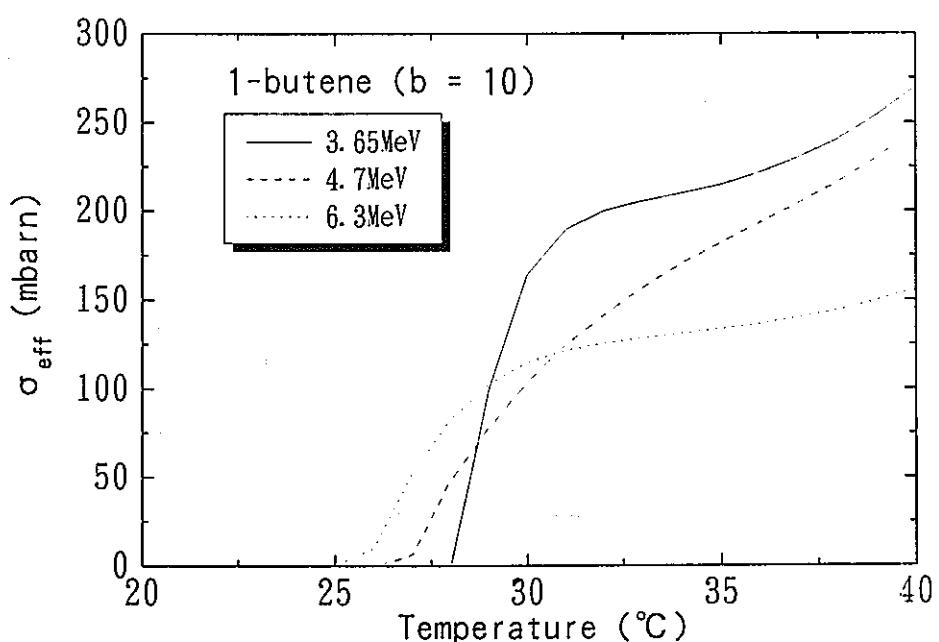


図5.8 有効断面積と温度の関係

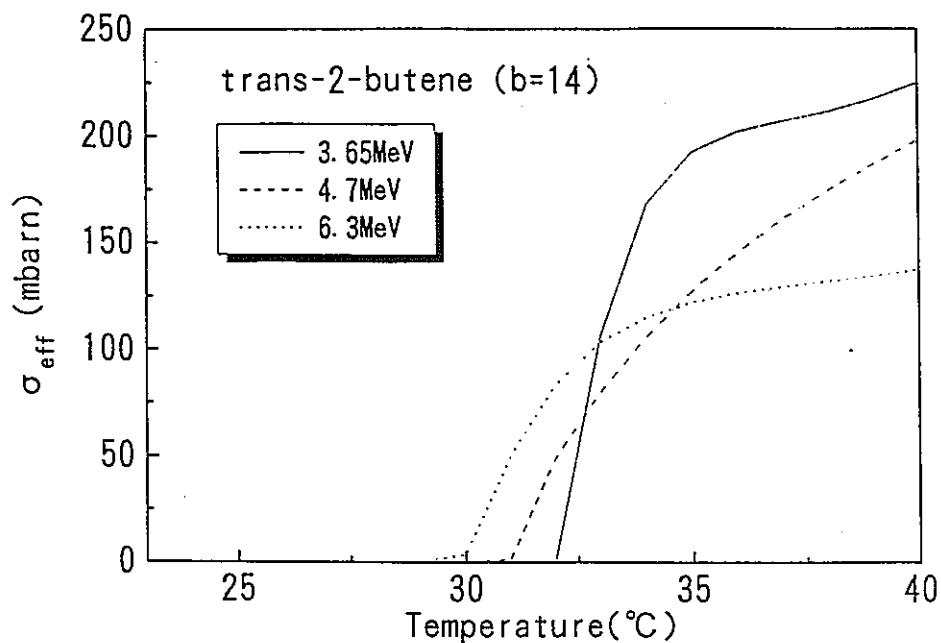


図 5.9 有効断面積と温度の関係

5.4.2 Am-Be 線源に対する有効断面積

第 6 章で述べる試作検出器照射実験は Am-Be 線源によって行っているので、ここに Am-Be 線源に対する有効断面積を示しておく。

図 5.10 に Am-Be 線源およびその他の中性子源の中性子スペクトルを示す^{5.1)}。このスペクトルに基づき有効断面積を計算した。結果を温度の関数として図 5.11、5.12 に示す。

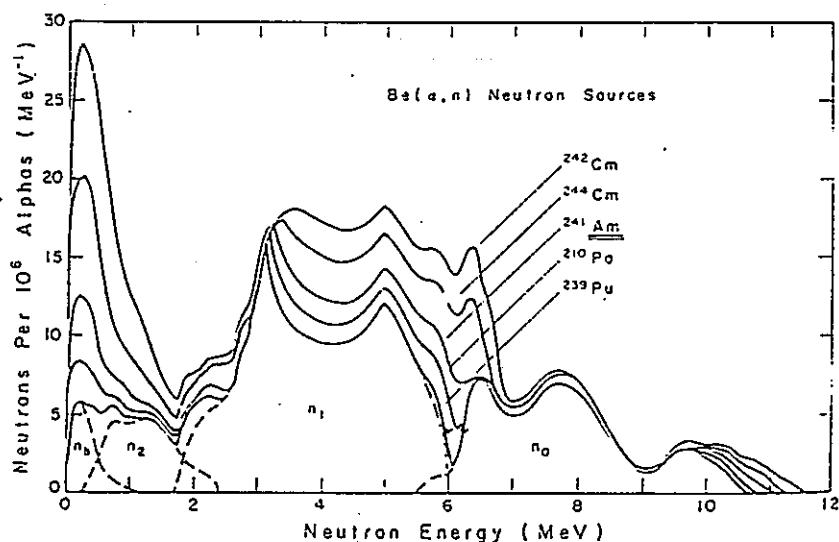


図 5.10 Am-Be 線源の中性子スペクトル

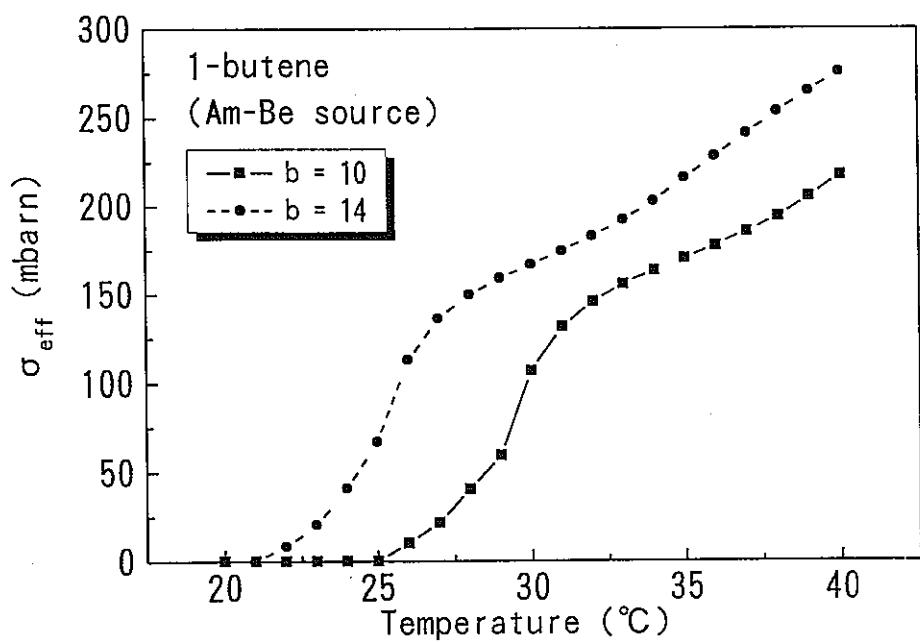


図5.11 Am-Be中性子に対する有効断面積

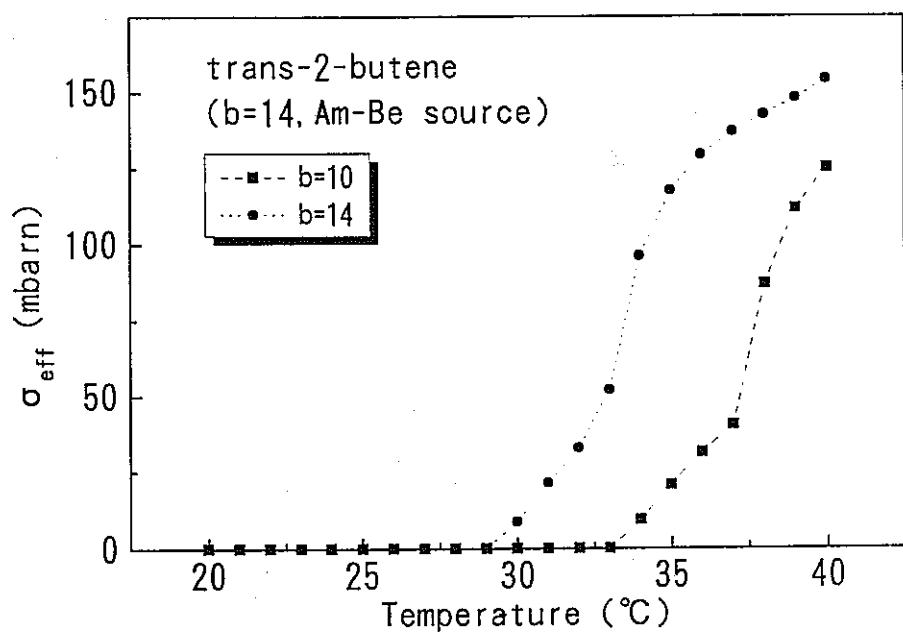


図5.12 Am-Be中性子に対する有効断面積

5.4.3 検出感度の圧力依存性

図 5.13 に温度 30 °C のときのエネルギー依存中性子検出感度を圧力をパラメータとして示す。計算は $b=10$ として行った。通常の検出器使用環境は 1 気圧であるので、圧力依存性についてはあまり議論されない。しかし、図は検出器動作の解明には圧力も有効なパラメータであることを示している。

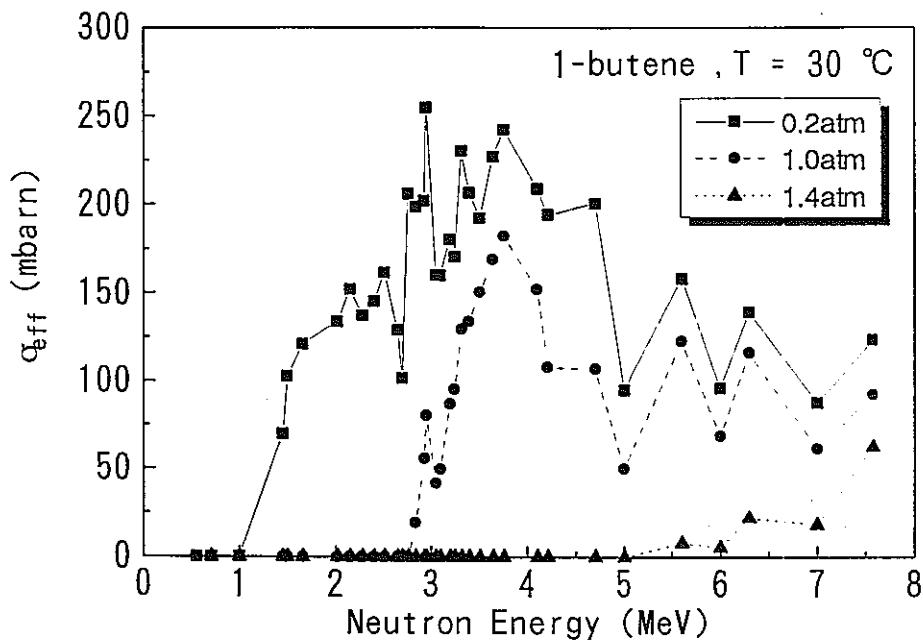


図 5.13 有効断面積と入射中性子の関係

5.5 考察

以上の計算により中性子の検出感度を計算することができた。検出器のエネルギー依存性を示す図 5.4、5.5 より検出可能な中性子の下限エネルギーは $b=14$ のとき～1.5 MeV、 $b=10$ のとき～3 MeV である。図には 3～4 MeV にピークがみられる。高エネルギー領域で有効断面積が小さくなるが、図 5.6、5.7 の気泡生成確率をみると、高エネルギー領域で高くなっていること、有効断面積の高エネルギー側での低下が、C の散乱断面積の低下に由来していることがわかる。散乱が重心系で等方的な場合は、気泡生成効率は中性子エネルギーの単調な増加関数になるはずである。しかし計算結果は中性子エネルギー 4～5 MeV で気泡生成効率の低下があることを示している。これは散乱の非等方性によってもたらされた。

温度依存性についてみると、検出器が有感になる、即ち、有効断面積 > 0 になる最低温度（しきい温度と呼ぶことにする）が存在することがわかる。しきい温度は中性子エネルギー

ーが高いほど、低くなる。しきい温度を越えた高温領域では必ずしもエネルギーが大きいほど有効断面積は大きいとは限らない。このことはエネルギー依存性に示されたとおりである。

圧力依存性についても温度依存性と同様な結果が得られた。即ち、圧力が低くなると検出可能な中性子下限エネルギーが低下する。圧力依存性についてはこれまで議論されていないが、検出器動作の基本的理解という観点からは興味深い。

Am-Be 線源に対する有効断面積は、BNL400 に記載されていた離散的な中性子エネルギー(0.55~7MeV 程度)の有効断面積にそれぞれ重みをつけて足しあわせて求めた。実際の中性子スペクトルは~10MeV にまでの広がりを持っているが、断面積データの欠如のため 8MeV 以上のエネルギーの中性子は考慮されていない。これが考慮されるならば、温度領域における感度が高くなり、しきい温度ももっと低くなると予想される。

1-butene と trans-2-butene のしきい温度に 10°C 程度の違いがある。これは、沸点が 7.0°C 程度 1-ブテンの方が低いことを反映している。

さて、ここまでエネルギー付与領域を示すパラメータ “ b ” については何も言及してこなかった。ここで b について検討する。先に述べたように、検出液体中の荷電粒子軌跡にとって、長さ $\ell = bR_{c,L}$ 内に付与されたエネルギーが蒸気核の生成に消費されると考えてパラメータ b を導入した。臨界蒸気核半径 R_c を用いて ℓ を表すと、

$$\ell = a R_c = b R_{c,L} \quad a = b R_{c,L} / R_c = b \left(\frac{\rho_g}{\rho_\ell} \right)^{\frac{1}{3}}$$

図 2.4 よりブテンの場合、 $\left(\frac{\rho_g}{\rho_\ell} \right)^{\frac{1}{3}} \sim 0.01$ であるから、 $a \sim 0.2b$ である。ここまで議論では a あるいは b の値を決定する要素は全くない。しかしながら、 a 、 b の値が $R_{c,L}$ と R_c の値と全くかけはなれているとは考えにくい。以下のように考えると、

- (1) ℓ を蒸気核の元となる液体球の直径程度と考えると、 $b \sim 2$
- (2) 蒸気核の直径程度と考えると、 $a \sim 2 \rightarrow b \sim 10$

となる。本研究では、 a 、 b を、実験との比較により決定されるべき未知パラメータとしている。本章の計算において、 $b=10$ としているのは(2)により、 $b=14$ としているのは、実は次章以下の実験結果による推定値である。

<参考文献>

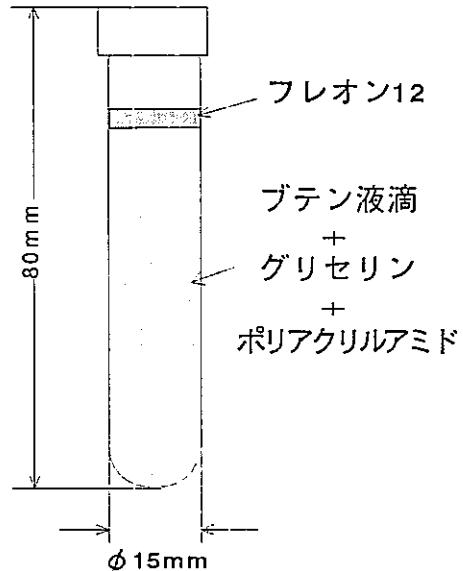
- 5.1) K.W.Geiger and L.Van Der Zwan : Nucl.Inst.Meth.,131,318(1975)

6. 検出器の試作と試作検出器の照射実験

6.1 昨年度の報告の要約

昨年度は、検出液体にブテンを用いた試作検出器が中性子に対して応答があることを報告した。APFEL型とING型といった異なるタイプのSDDをiso-buteneを用いて作成し、²⁴¹Am-Be中性子線源で照射を行い、検出感度を測定した。しかし、その両タイプにおいて広範囲な感度のばらつきがみられた。また繰り返し使用可能なING型では、その使用回数や経過日数によって検出感度が著しく低下した。

照射時の温度による検出感度の変化も観測したが、データ不十分な上に温度設定制御精度が低かったため、その特性を議論するに至らなかった。



6.2 試作検出器作成法の見直し

図6.1 ING型試作検出器

目視計数や再使用の可能なING型が、本研究の目的には好都合である。従って検出器の試作はING型を中心に進めることにした。図6.1に我々の試作モデルを簡単に表した。10ccのプラスチック製バイアルに、グリセリン+ポリアクリルアミドを支持媒質（マトリックス）としてブテン液滴を分散させた。上部にフレオン12を入れてあるのは、未使用時にその蒸気圧で容器内を加圧しておくためである。

前節に述べた問題点を考慮して、作成方法を見直した。変更を加えた作成手順を従来のものと比較して下に示す。尚、今回報告する実験結果は、その殆どがこの手順によって作成された検出器によるものである。

従 来	変更後
グリセリン・ブテン混合 (マルチ・ミキサーat 40°C)	グリセリン・A液・B液混合 (手振り 常温)
↓	↓
常温 or 冷蔵放置 (30~45分)	ブテン混合 (手振り 常温)
↓	↓
A、B液混合	冷蔵放置 (10~45分)
↓	↓
C液混合・重合	C液混合・重合
↓	↓
フレオン12を注入し加圧	フレオン12を注入し加圧

〈重合剤〉

A 液：アクリルアミド・メチレンビス 30%溶液	2.5cc	(25%増)
B 液：テトラメチルエチレンジアミン (TEMED)	40μl	(33%減)
C 液：APS (過硫酸アンモニウム 10%溶液)	40μl	(33%減)

この新作成法のポイントをまとめる。

(1) グリセリンと A 液、B 液をあらかじめ混合する。

→できたブテン液滴の消滅する機会が減る。

(2) (1)によってグリセリンが希釈され、粘度が低下する。

→ブテン液滴の分散は、常温で手で振り混ぜるだけで十分となる。

→グリセリンとブテンには比重差があるため、粘度が低いと放置の間に液滴の消滅が予想される。しかし希釈によって比重差は縮まり、十分な液滴数が残る。

(3) C 液を同時に入れないのである。

→C 液によりポリアクリルアミドの重合反応が開始され、発熱が起こる。液滴の分散が困難なことに加え、発生した熱によって液滴が過熱状態を保つことができない。

(4) 再使用時の感度低下への対策

→対策としては次の二つが考えられた。

- マトリックスの硬度を上げる。
- グリセリン+ポリアクリルアミドに代わる、ブテンに比重の近いマトリックスの探索。

ここでは前者を行った。先に記したように重合剤の割合を変える (A 液の割合を増加する) ことで、ポリアクリルアミドの構造が“密”になる。あとで詳しく述べるが、これは実際に感度低下を抑えたと思われる。

新しい作成法による検出器では、平均感度や再使用時の感度再現性が向上したため、その温度依存性についても考察することができた。

このほかにも一様な感度を持った検出器を作成するべく、次のような試みを行った。

【検出液滴の分散過程を大容量で行い分割する】

少なくともそのとき同時にできた検出器に関しては、一様な感度を持つことが期待された。しかし液滴分散後各容器に分割する際に液滴の消滅が生じたり、その後の重合過程で液滴の残り具合が異なるため、期待した効果は得られなかった。

【IKA 社ホモジナイザーT25 の利用】

検出液滴の分散は、これまでマルチ・ミキサー、最近は手振りによって行われていた。新たな方法としてホモジナイザーの使用を試みた。これにより見込まれる利点は、非常に微細な液滴が確実に得られるということである。その結果や問題点について現時点での報告をする。

- 確かによく混ざり、できる液滴もきめ細かく、中性子に対する感度も確認できた
- 大きめの容器を用いるため、混合した後に検出器用の容器に移し替えなくてはならない
- 回転部ではかなりの発熱があるので、何らかの方法で冷やす必要がある
- ブテンの蒸気圧による内部の圧力に耐える容器フタの固定について検討が必要である

今後もこれらの問題点を検討し、ホモジナイザーを用いた検出器の作成を続けていく予定である。

6.3 試作検出器

1-butene、iso-butene、trans-2-butene を検出液体とする検出器を試作した。これらの液体の沸点はそれぞれ、-6.0、-7.0、+0.8 °C である。昨年度の報告に示したように 1-butene、iso-butene の物性値はよく似ており、検出器特性にもあまり違いがないと思われる。ブテン中では過沸点が低い方なので、比較的高感度が期待できる。trans-2-butene はこれらに比べると沸点が高いので、感度特性に前章に示したような差異が観測できるものと予想される。しかし、今年度の実験では trans-2-butene についてのデータ取得は不十分に終わったので、以下では、1-butene、iso-butene についての実験結果について示す。

6.4 試作検出器の照射

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。照射測定体系を図 6.2 に示す。基本的に昨年度と同様であるが、今回は温度制御システムを改良した。

a) 中性子線源

照射線源には昨年度に引き続き $^{241}\text{Am-Be}$ を用いた。諸データを下に示す。

放射能（線源検定時）	1.25×10^7 [n/sec]
平均中性子エネルギー	4.5 [MeV]
半減期	458 [year]

測定では検出器と線源との距離 r は 35~70[cm]とした。この場合の線量当量率 DE を計算すると

$$r = 35 \text{ のとき} \quad DE = 3.22 \times 10^{-1} [\mu\text{Sv/sec}]$$

$$r = 70 \text{ のとき} \quad DE = 8.04 \times 10^{-2} [\mu\text{Sv/sec}]$$

計算には $^{241}\text{Am-Be}$ の平均中性子エネルギー ($E_n = 4.5\text{MeV}$) の線量当量換算係数 $C(E_n) = 4.13 \times 10^4 [\mu\text{Sv} \cdot \text{cm}^2]$ を用いた^{6,1)}。この計算結果が、市販過熱液滴型検出器 BD-100R-PND による測定値と誤差内で一致することも確認した。

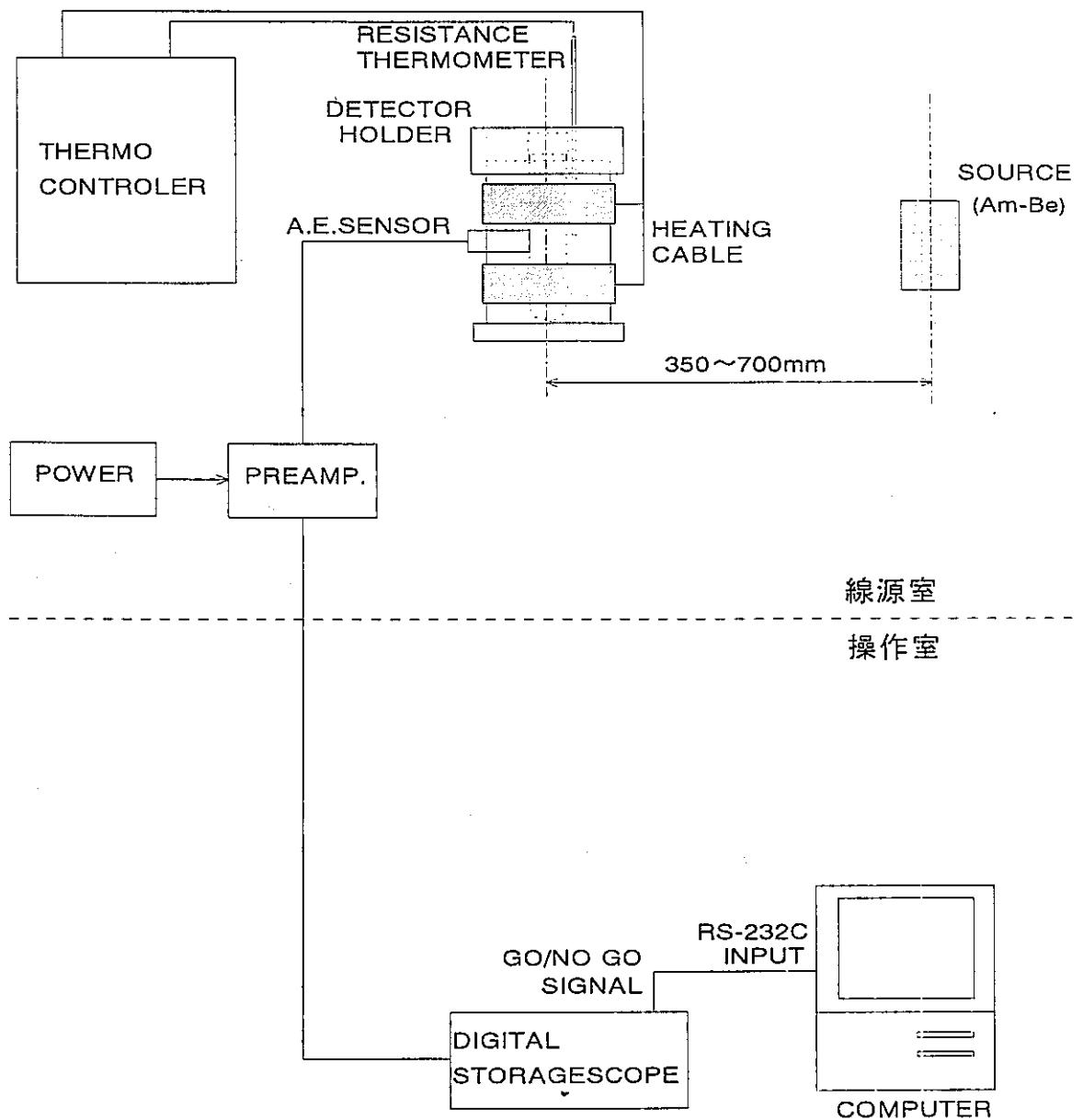


図6.2 照射体系

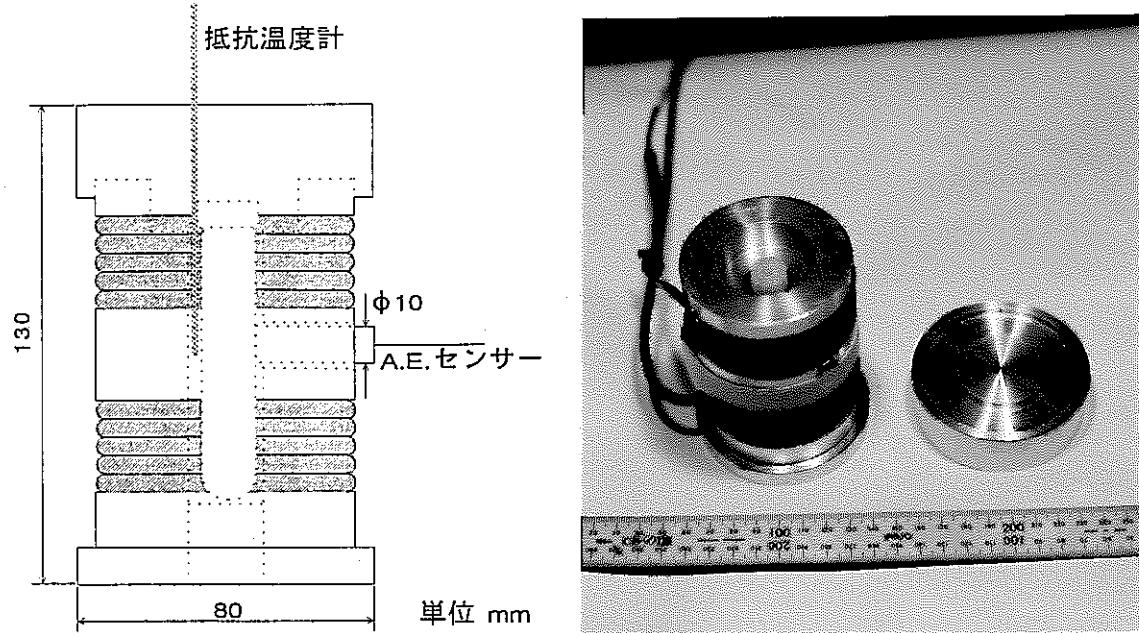


図 6.3 検出器ホルダー

b) 温度制御システム

検出感度の温度依存性を考えると、昨年度の測定における温度制御方法では制御精度が不十分であった。そこで今回の測定では温度制御装置 SA90（コスモパックライン）を使用し、制御精度を向上させた。

検出器は、新たに作成したアルミニウム・ホルダーに固定されている（図 6.3）。ホルダーの外側には加熱用のヒーティング・ケーブルが巻き付けてある。ホルダー内部の温度は上部に差し込んだ抵抗温度計によって常時モニターされた。このシステムによる制御精度誤差は±0.3 [°C]以下である。

側面中央部に取り付けてあるのは気泡計数に使用する A.E. センサーである。

c) 計数システム

発生気泡の計数は、従来通り気泡発生音を検出する方法（Apfelによれば electronic counting 法）を用いた。A.E. センサーで検出された発生音をプリアンプで増幅し、デジタル・ストレージスコープに入力する。気泡発生音と雑音を弁別するためにストレージスコープの“GO/NO GO 判別”機能を利用し、判別された出力をコンピューターで一定時間計数した。詳細は昨年度の報告参照。

6.5 結果

(1) 生成気泡の観測

今回作成した検出器は含まれる検出液滴の増加に成功している。それは 6.3(2)でも触れたように、低粘度な支持媒質中で液滴の分散を行ったためと考えられる。液滴径は非常に小さく、液滴密度もかなり増加した。従来の試作器が透き通っていたのと比べると、白く濁った印象を与えるほどである。また、作成時の放置時間を延ばすことにより、二液体間の比重差のために液滴密度は低下する。

問題点としては、次の二つが挙げられる。

- ▲ 液滴のように見えるそれら微粒子の中には、空気泡が紛れていることも考えられる。
実際、バイアル壁と支持媒質との間には間隙ができやすく、フレオン 12 による再加圧を困難にしている。さらにそのような間隙近傍で液滴の気化が起きた場合、その発生音は計数されても気泡として目視することはできない。当然それを再液滴化することも不可能である。
- ▲ また液滴間の距離が近すぎたために、ある液滴の気泡化が他の液滴の気化を促してしまうケースがあり得る。照射測定でも何度か連鎖的と思われる計数をすることがあり、照射後の検出器内には異常に大きい気泡が現れることがあった。それは連鎖的に発生した気泡の合体したものであると推測できる。

(2) 検出感度

図 6.4 は試作検出器の計数積算値の例である。このように線量に対する気泡数に直線性がみられる間は、検出器の感度が一定に保たれているといえる。この直線の傾きが検出感度である。測定結果からは次の計算で求めた。

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

従って計算された検出感度は、照射時間の平均感度である。

(3) 繰り返し使用における検出感度の再現性

図 6.5 は iso-butene を用いて試作した二つの検出器について、その使用回数による感度の再現性を見たものである。厳密に見なければ、ほぼ一定又はやや低下の傾向がある。経過時間を見ると、6 回目の測定時には既に一ヶ月以上が経っている。この感度低下の抑

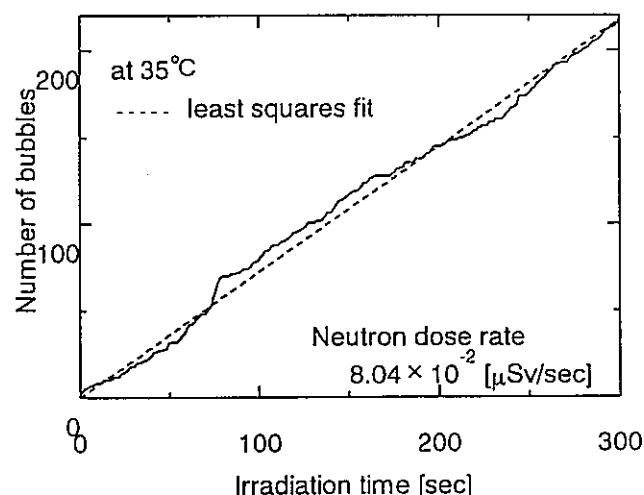


図 6.4 試作検出器(iso-butene)の計数積算値

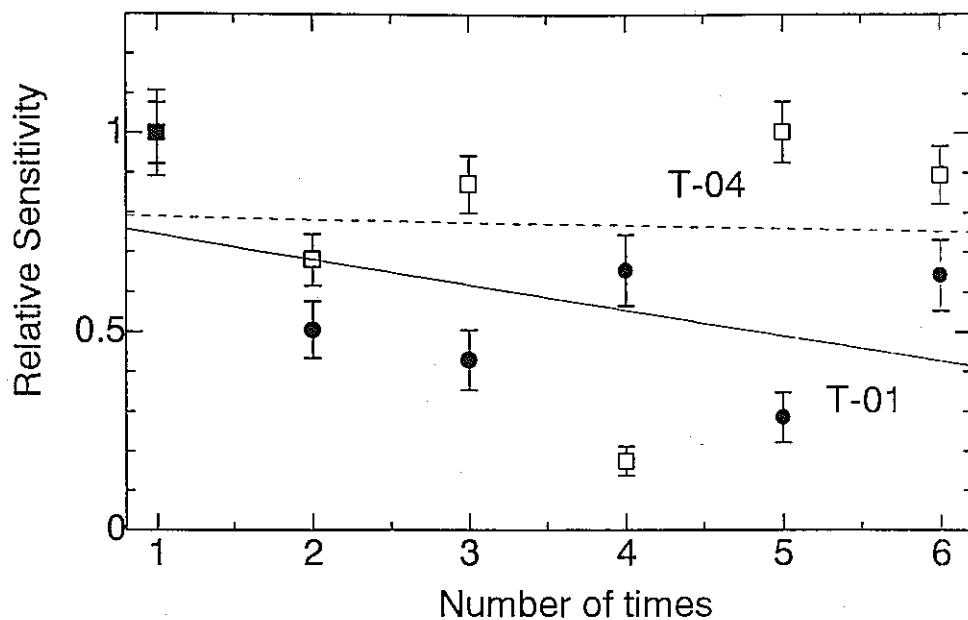


図6.4 検出感度の再現性 (保存時:5°C以下 測定時:35°C)

- T-01 : 検出感度 0.099 ± 0.041 [bubbles/ μ Sv]
- T-04 : 検出感度 0.242 ± 0.099 [bubbles/ μ Sv]

度低下の抑制は、検出器の作成法を変え、さらにマトリックスを硬化させたことによると思われる。長期間にわたっての再現性が得られたことにより、温度依存性をはじめとする実験データを充実させることができた。

しかし T-04 (試作検出器の整理 No.) にみられるように、毎回一定の安定した感度を示す訳ではなく、再現性は未だ十分であるとはいえない。その原因には測定体系に関連するエラーも考えられる。例えば次のようなことがある。

- A.E.センサーの検出ミス
- 温度制御系の誤差

(4) 検出感度の温度依存性

過熱液滴型検出器は 2 章でも述べたような検出感度の温度依存性がある。図 6.5 は iso-butene を用いて作成した検出器について、異なる温度で照射したときの計数積算値の比較の例である。高い温度になるほどその傾きが増加し、感度が増加しているのがわかる。

図 6.6 は比較的良好な再現性の認められる二つの試作検出器の、照射時の温度による検出感度の変化を相対的に比較したものである。縦軸はそれぞれ 30°C の値で規格化した相対感度で示した。検出液体は iso-butene と 1-butene と異なっているが、その特性に大きな違いは観られない。曲線は両方のプロットから求めた 3 次の最小二乗フィットである。これは市販検出器の温度依存傾向と似通ったものとなっている。

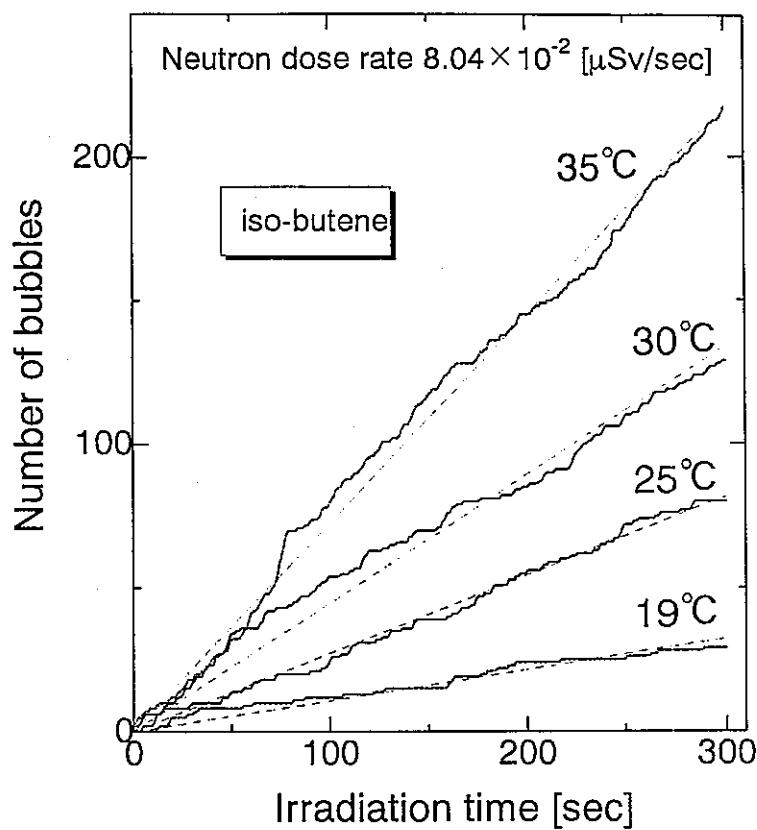


図6.5 溫度による計数増加率の変化

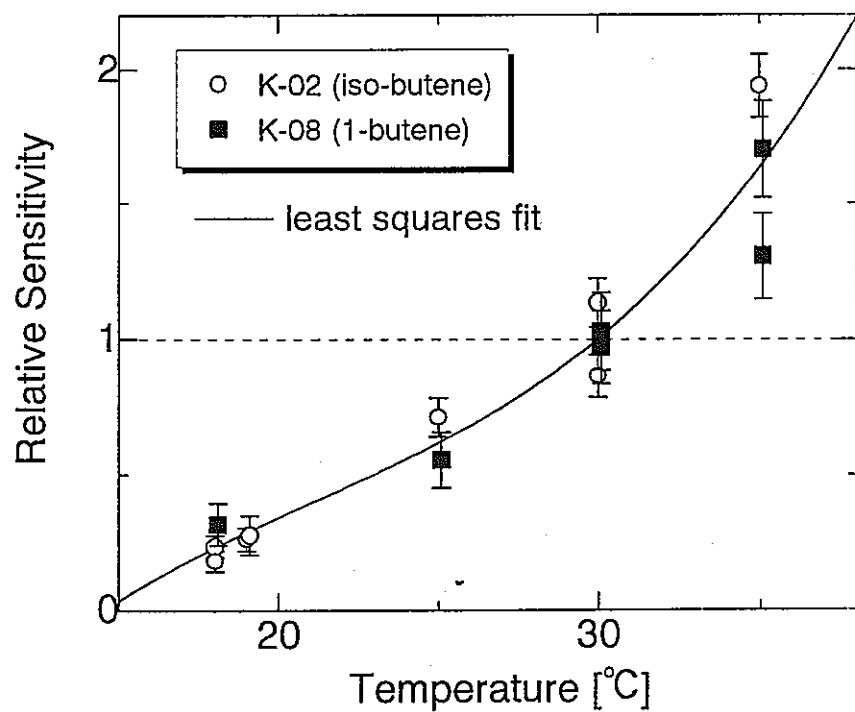


図6.6 検出感度の温度依存性

6.6 計算値との比較

中性子検出感度の温度依存性について、実験値と計算値の比較を行った。実験値は図 6.6 の K-08 の検出感度、計算値は 5 章で求めた ^{241}Am -Be 中性子に対する温度依存有効断面積（図 5.11）である。有効エネルギー付与領域を表すパラメータ $b=10$ と $b=14$ についての計算値と比較する。計算値、実験値共に 30°C の値でそれぞれ規格化した相対値で示してある。

$b=14$ とした計算値は $b=10$ に比べ低温領域にまで検出器が有感であることを示しており、この特性は実験値に近い。しかし実験値は更に低い温度領域にも感度があることを示している。5.5 節で述べたように計算値には 8MeV 以上のエネルギーを持った中性子が考慮されていないので、低温側の感度を過小評価している。低温領域で実験値が計算値よりも大きくなるのはそのことに起因している可能性がある。

M. J. Harper は ^{252}Cf を中性子線源としフレオン 12 を検出液体に用いた実験を行っている。この実験と計算との比較から、 $b \sim 4.3$ を報告している⁶²⁾。我々の実験と Harper とは検出液体、中性子エネルギーが違っている。即ち、気泡生成するイオン種、イオンエネルギー、液体の熱力学的物性値が異なる。エネルギー付与領域パラメータが、これらに依存することも考えられる。

trans-2-butene による実験は、このパラメータが液体の熱力学的物性値に依存するかどうかに関する知見をあたえるものと思われる。また今回は実験までに至らなかったが、圧力依存性もまた、エネルギー付与領域パラメータを推定するてがかりになるはずである。

このような検討を行うためには、気泡生成に寄与するイオン種が 1 種であるブテンを検出液体に用いるのが有利である。フレオン 12 の場合は、実験では各イオンの感度特性の重ね合わせた感度が観測されることになるの、このような検討には不利である。

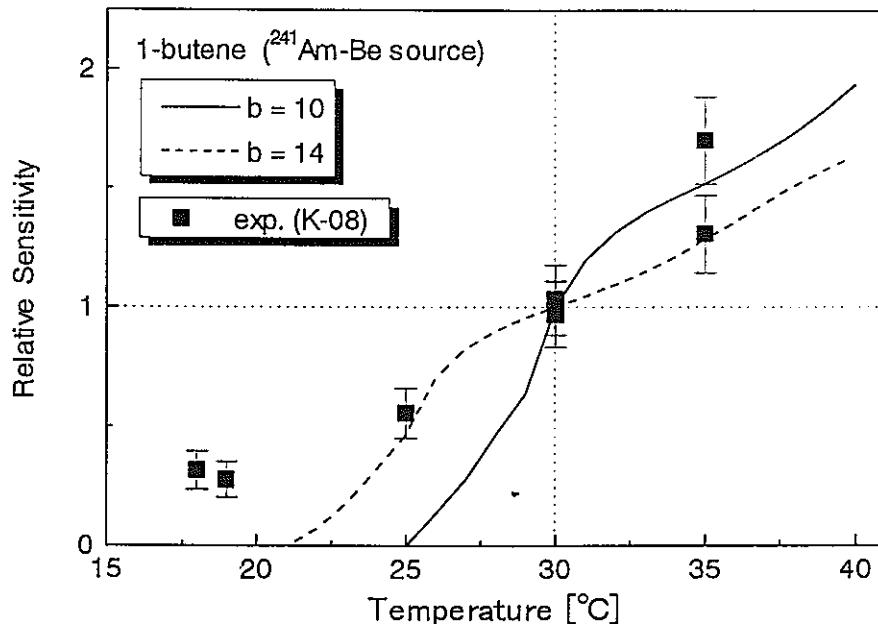


図6.7 計算値と実験値の比較

6.7 今後の課題

今回試作した昨年度に比べ感度が高い検出器が得られ、再現性も優れていたので、検出感度の温度依存性などのデータを得ることができた。しかし依然として試作検出器間の感度にはばらつきがあり、感度の再現性に関しても十分ではなかった。一様な感度を持ち、且つ何度も繰り返し使用できるような耐久性のある検出器を作成することが今後の課題である。そのほかに差し当たり次のような検討事項があり、一部は実験中である。

- ^{252}Cf 線源を用いた検出感度のエネルギー依存性
- 検出感度の圧力依存性
- trans-2-butene など他のブテンを検出液体とした検出器の試作
- フレオン 12との比較

<参考文献>

- 6.1) Tsoulfanidis N.:放射線計測の理論と演習（下巻）,557(1986)
- 6.2) Harper M. J.:Nucl. Sci. Eng.,114,118(1993)

7. ガンマ線に対する過熱液滴型検出器の応答

現在実用に供されている過熱液滴型中性子検出器は γ 線に感度がないとされている。このことはしばしば γ 線と中性子が混在する作業環境である原子炉施設、核燃料取扱施設における中性子線量率や放射線従事者の中性子被曝測定に有利な検出器である。一方、最近、 γ 線用過熱液滴型検出器が市販されるようになった。また、この型の検出器が中性子と共に γ 線にも有感であるとの報告もみられる。このことは本研究の目的である中性子線量評価の観点から看過できないばかりでなく、検出器の基本特性の把握、使用範囲の拡大の可能性の点からも重要である。本章では γ 線に対する応答について検討する。

7.1 γ 線に対する液滴型検出器の応答機構

γ 線用検出器では、 γ 線によって誘起される電子が気泡を生成すると考えられる。

BTI社 γ 線用気泡検出器 normal production は、入射ガンマ線エネルギー～100 keV に感度のピークを有し、これは検出器液滴支持媒体に比重調整用に付加された重い元素によると指摘されている^{7.1)}。重い元素を加えない special production は、30 keV～ 3 MeV まで平坦な感度特性を有している。これらより、 γ 線検出器では光電効果、コンプトン散乱による電子が気泡を生成していると考えられる。また、これらの電子は飛程が長いので、支持媒体中で発生した電子の液滴中でのエネルギー付与が気泡生成に寄与していると考えられる。このため、検出器体積中で大きな割合を占める支持媒体の原子組成により感度が支配されることも考えられる。

M. J. Harper 等は、HFP (C_3F_6 オクタフルオロプロパン boiling point=-29.4 °C) も γ 線に有感であることを示している。^{7.2)}

以上は検出器応答には、低 LET の陽子や γ 線の考慮が必要であることを示している。また、積極的に低 LET 放射線に感度のある検出器の可能性や、その検出器の高 LET 放射線との弁別性の検討も重要と思われる。次節では中性子に行ったと同様な手順によって、これまで検出液体として最もよく用いられてきたフレオン 12(CCl_2F_2)と、さらに沸点の低いオクタフルオロプロパン(C_3F_8 、Octafluoropropane、OFP と記す)について検討する。

7.2 フレオン 12 とオクタフルオロプロパンの場合

フレオン 12(CCl_2F_2)と、さらに沸点の低いオクタフルオロプロパン(C_3F_8 、Octafluoropropane、以下 OFP と記す)の気泡生成限界について検討する。表 7.1 に両液体の物性値を示しておく。

表 7.1 液体の物性値

液体	沸点 [°C]*	分子量	密度** [g/cm ³]
CCl_2F_2	-29.8	120.9	1.326
C_3F_8	-36.7	188.02	1.370

* 1 気圧 ** 1 気圧、20°C

7.3 電子に対する阻止能

γ 線の場合は、光電効果、コンプトン効果、対生成等により発生する電子が気泡生成に寄与すると考えられる。気泡生成条件は第 2 章、条件 1、2 を用いればよい。

電子のエネルギーは(電子静止質量を $m_e c^2$ と表す)

$$\text{光電電子の場合} \quad E \sim E_{\gamma}$$

$$\text{コンプトン電子の場合は} \quad E \leq E_{\gamma} \cdot (2 \alpha / (1 + 2 \alpha)), \quad \alpha = E_{\gamma} / m_e c^2$$

$$\text{対生成電子の場合は} \quad E \sim m_e c^2$$

である。

電子阻止能のは ITS3.0 の断面積データと Holt^{7,3)}より得た。ここでは低エネルギーを扱うので ITS3.0 の P コードを用いるのがよいのであるが、まだ P コードの計算は行っていない。それで Holt の H₂O の計算値と比較してみた。

図 7.1 は、両者による電子阻止能である。 $\sim 2\text{keV}$ 以下で ITS による計算値が小さい。結局電子阻止能は、 2keV 以下は、Holt の $(dE/dx)_{\text{for water}}$ に密度補正のため $1/\rho$ をかけて求め、 2keV 以上は ITS で計算して得た。結果を図 7.2 に示す。

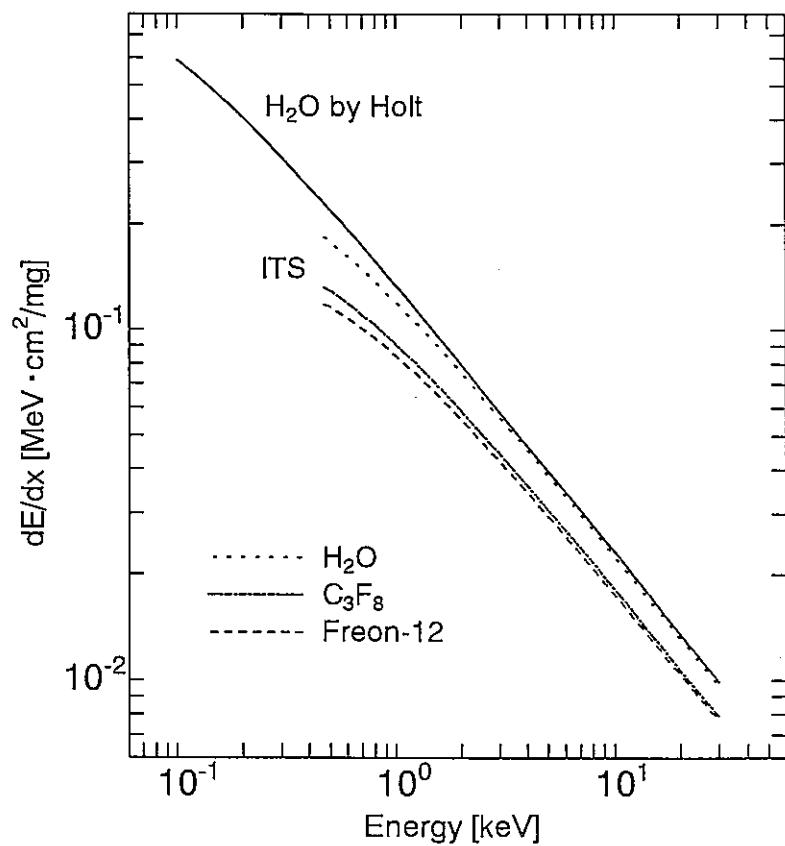


図7.1 電子阻止能

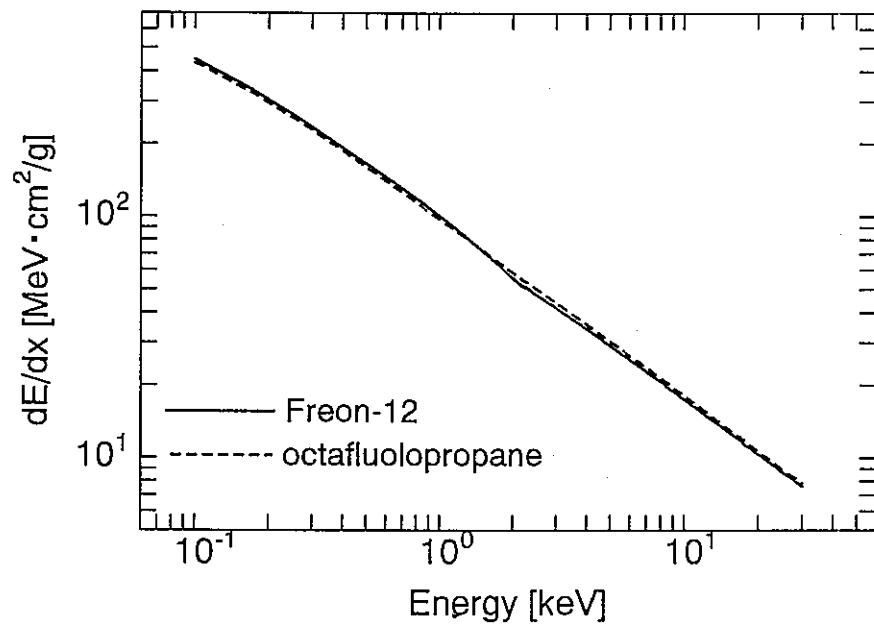


図7.2 電子阻止能

7.4 気泡生成に寄与する電子のエネルギー領域

検出液体と動作温度が決まれば、阻止能上下限値が決まる。その手順を示す。

フレオン 12 の 20 °C における R_c 、 E_c を(2.4)、(2.5)式を用いて計算すると次の値を得る。

$$E_c = 13.3 \text{ keV} \quad R_c = 3.87 \times 10^{-6} \text{ cm}$$

となる。表 7.2 にこれらと、計算に必要な物性値をまとめて示しておく^{7.4)}。

表 7.2 フレオン 12 の 20 °C における物性値

蒸気密度	32.0	[kg/m ³]
液体密度	1326	[kg/m ³]
蒸気圧力	5.72	[bar]
表面張力	9.11×10^{-3}	[N/m]
蒸発熱	19800	[J/mol]
臨界半径	3.87×10^{-6}	[cm]
臨界エネルギー	13.3	[keV]

中性子の場合と同様に、臨界エネルギー E_c と（臨界エネルギー／有効付与領域）比 $E_c / (bR_{Lc})$ を温度の関数として求め、阻止能曲線上に重ねてしめすことにより、液体中の電子について気泡生成に寄与するかどうかを判定することができる。図 7.3、7.4 にフレオン 12 と OFP の臨界半径、臨界エネルギーを温度の関数として示す。沸点の低いOFP の臨界半径がフレオン 12 の～1/3、臨界エネルギーは 1/10 以下であることがわかる。

可視気泡生成条件 1、2、（第 2 章）を満たす領域は点 $(E_c, E_c / (bR_{Lc}))$ より示すことができる。この点と阻止能 vs. エネルギー曲線とから、気泡生成に寄与する荷電粒子のエネルギー領域を評価することができる。

図 7.5 は b をパラメータとした $E_c / (bR_{Lc})$ vs. E_c 曲線である。曲線上の●および○は左側から、40、35、30、…、5 °C における値を示している。フレオン 12 と OFP のカバーする $E_c / (bR_{Lc})$ と E_c の範囲がそれらの沸点に対応してずれていっていることがわかる。

図 7.6 には、阻止能曲線と $E_c / (bR_{Lc})$ vs. E_c とを重ねて示している。図は $b=1 \sim 10, 40$ °C 以下ではフレオン 12 内電子は気泡を生成しないことを示している。一方 OFP の場合は $b=1$ の場合は温度 30 °C 以上で、 $b=10$ の場合は温度 15 °C 以上でそれぞれ電子の検出が可能であることを示している。 $b=10$ で、20 °C の場合は、気泡生成可能な電子のエネルギー領域はおよそ 1 ~ 3 keV になる。また、エネルギーの下限値は臨界エネルギーで、上限値は阻止能値で決まることがわかる。

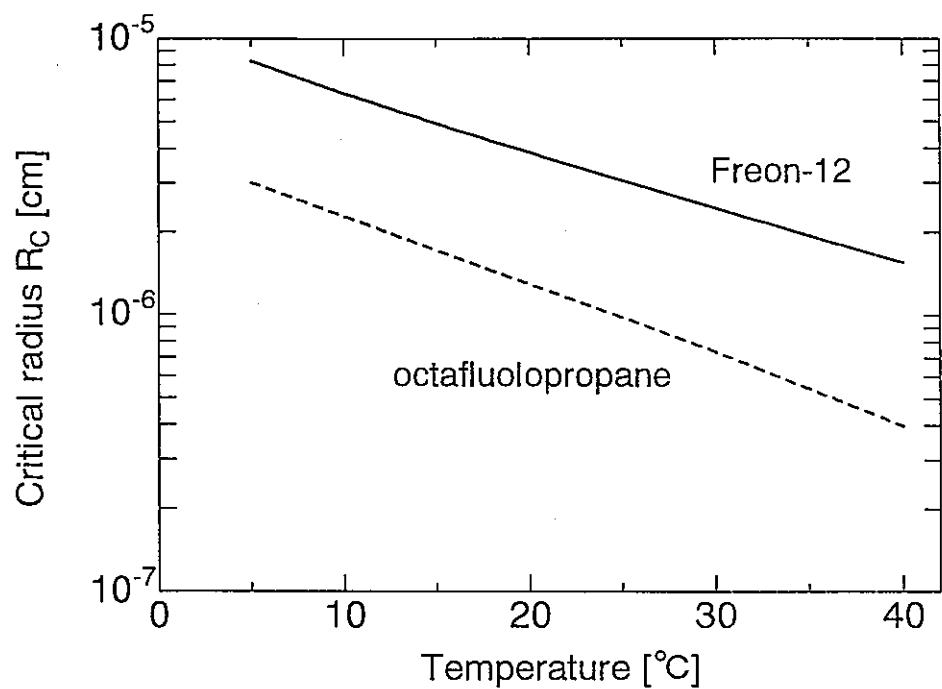


図7.3 臨界半径

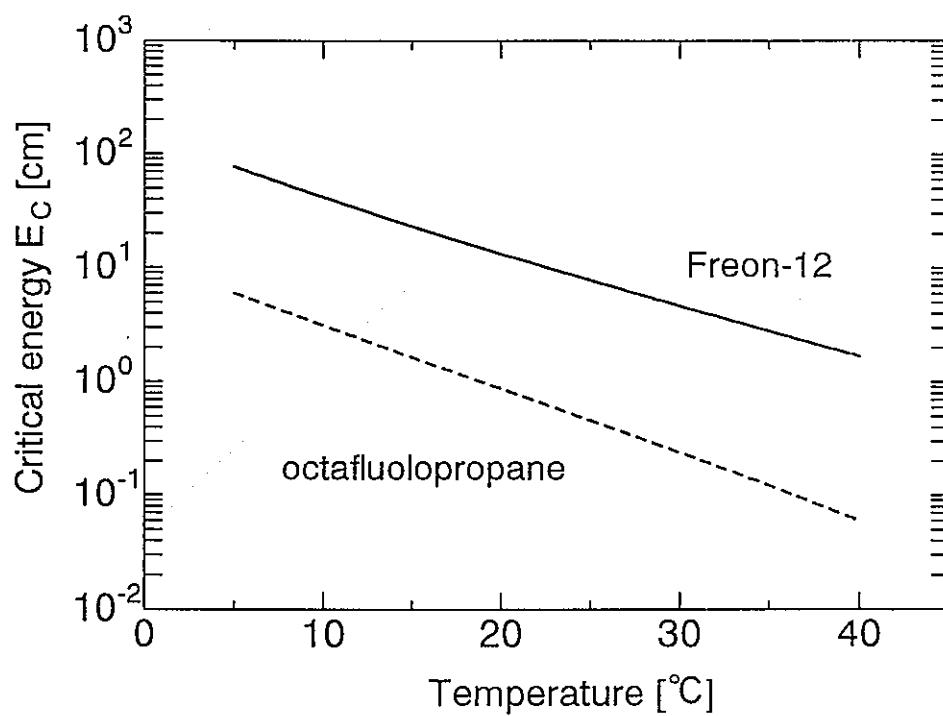


図7.4 臨界エネルギー

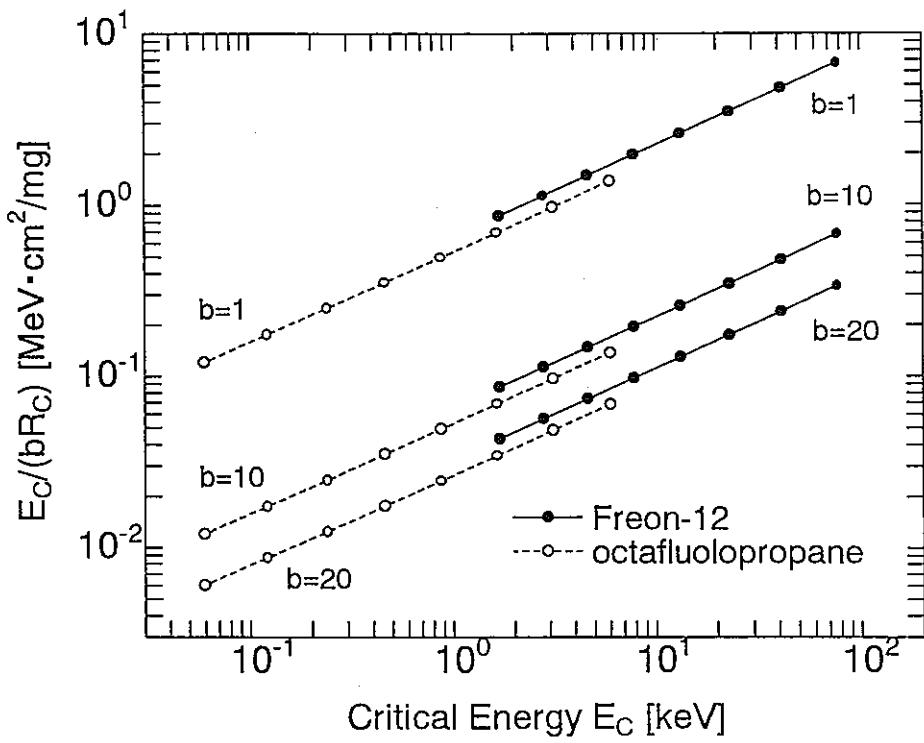


図7.5 $E_C/(bR_C)$ vs E_C

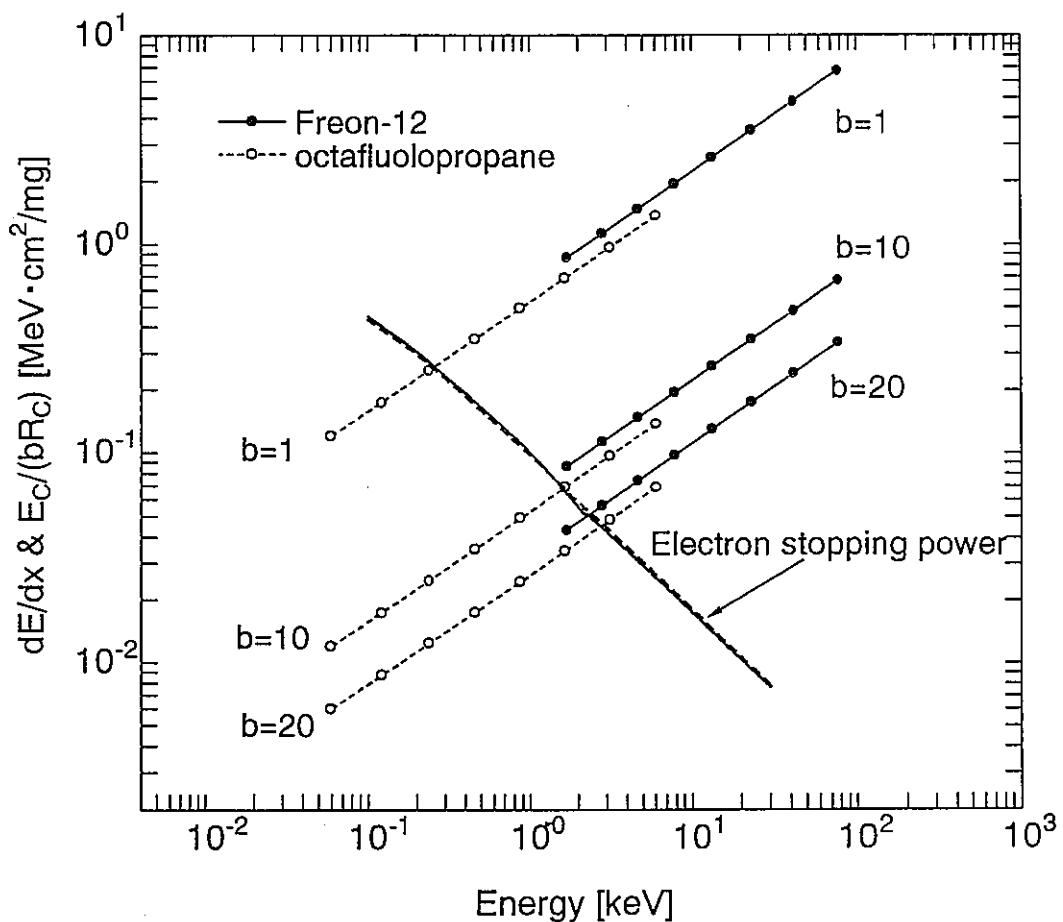


図7.6 $E_C/(bR_C)$ vs E_C と電子阻止能

7.5 動燃小泉による市販液滴型検出器に関する試験と組成分析

7.5.1 γ 線用及び中性子用検出器、BD100-R、BDG の組成分析

市販検出器の検出液体は何であるかは公開されていない。動燃小泉による気泡検出器の組成分析結果報告（報告 No.91-PH06, 平成3年7月）^{7.5)}について検討する。分析目的は気泡検出器ゲル状物質に混合されている液滴中のガス成分及びゲル中の含有無機元素成分の定性分析である。GC 及び GC-MS による定性分析は以下の結果を示している。

表 7.3 (報告書中での表 4.5、4.6) に予想される物質とその物性値が示されている。

表 7.3 GC-MS によるガス主成分定性分析結果と主成分の物性値

存在が予想される物質	分子量	沸点 [°C]	BD-100R(n)	BDG(γ)
Tetradecafluorohexane (Perfluorohexane) C ₆ F ₁₄	338	59-60	○	○
1,1,1,2,2,3,3,4,5,5,5- undecafluoro-4-trifluoro methylpentane C ₆ F ₁₄	338	57-60	△	—
Trifluoro(trifluoromethyl) oxirane C ₃ F ₆ O	166	-27	△	△
1,1,1,2,2,3,3,4,5,5,6,6,6 Tridecafluorohexane C ₆ HF ₁₃	320	70	△	△
			上記成分の 2 種 類が存在	上記成分の 1 種 類が存在
Decafluoropentane C ₅ F ₁₂	288	29.5	—	—

着目すべき点は、BD-100R（中性子用）には 2 種類、BDG（ γ 用）には 1 種類の Perfluoro 化合物が含まれていると指摘されている点である。このことから、以下のような推定が可能である。

- ① BDG の検出液体は電子に有感な低沸点 Perfluoro 化合物 A
- ② BD-100R の検出液体は(A)+(A より高沸点の Perfluoro 化合物 B) の混合液体

②の場合、A、B のモル分率を X_1 、温度 T の時の蒸気圧を P_1 、 P_2 とする。A、B とも理想溶液とすると、A+B の蒸気圧は、

$$P = P_1 X_1 + P_2 (1 - X_1)$$

となり、P=1 気圧の時の沸点は $T_{b1} > T_b > T_{b2}$

となり、 γ 線に不感になるように C を設定することができる。

前節までの議論から、液体 A はフレオン 12 ($T_b \sim -29.8^\circ\text{C}$) より低沸点液体でなければならない。

手元にあるデータブック並びに MS データからは、A として、前節で臨界エネルギーを計算した C_3F_8 ($T_b = 36.7^\circ\text{C}$) が考えられる。更につけ加えるならば、 C_3F_8 は、密度 = 1.357 g/cm^3 で、検出器に検出液滴媒体として用いられるグリセリンの密度 = 1.26 g/cm^3 に比較的近く、検出器作成上も有利である。

存在が予想されている $\text{C}_3\text{F}_6\text{O}$ (密度 1.32 g/cm^3 、 $T_b \sim -27.8^\circ\text{C}$) の沸点はフレオン 12 に近く、フレオン 12 に近い特性を有すると考えられ、中性子検出が可能である。

②は A との混合により、沸点はフレオン 12 より低くなっていると推測され、得られる沸点によっては γ 線検出の可能性もある。

7.5.2 γ 線用検出器の中性子感度試験

BDG の中性子感度試験の結果を報告以下に示す。^{7.6)}

(照射条件)

線源 ^{252}Cf $727.17 \mu\text{Sv/h}$

(γ) $53.01 \mu\text{Sv/h}$

総線量 中性子 $40 \mu\text{Sv}$ (γ 線 $3.1 \mu\text{Sv/h}$)

(応答)

$n + \gamma$ $40 \text{ bubbles}/0.5\text{cm-hight}$

n $30 \text{ bubbles}/0.5\text{cm-hight}$

$\rightarrow \gamma : 3.2 \text{ bubbles}/\mu\text{Sv}$ $n : 0.75 \text{ bubbles}/\mu\text{Sv}$

(結論)

中性子に対し γ 線の約 $1/4$ の感度を有する。

これまでの議論より、 γ 線に有感な検出器は、陽子、その他の中性子誘起荷電粒子にも有感であるはずであり、小泉の報告はこのことを裏付けている。但し、 γ 線と中性子に対する感度比が $1/4$ を説明できるかどうかは、 γ 線、中性子と液体構成原子との相互作用率、放出電子のエネルギー減衰スペクトル等を詳細に検討しなければ分からぬ。また、BDG は、special production (重い物質 (前節で引用した組成分析からは、Cs、Cl) を含まない) の場合は、感度は $30\text{keV} \sim 3 \text{ MeV}$ まで一定であることも説明できなければならない。

7.6 考察

気泡生成に寄与する電子は、検出液体（或いは、液体支持媒体も含む）中の減速電子中の気泡生成条件を満たす電子、 $b=10, 20 \text{ }^{\circ}\text{C}$ の場合はエネルギー $1\sim3 \text{ keV}$ の電子である。単位線量当量当たりの感度は、中性子の場合と同様に $K_D(E_{\gamma}) = [\text{気泡数}] / [\text{線量当量}]$ で表すと

$$K_D(E_{\gamma}) = V \sum_{i,j} N \left\{ \sigma_{ij} \right\}_{\text{eff}} (\phi / D_{\gamma}) = V \sum_{i,j} N \left\{ \sigma_{ij} \right\}_{\text{eff}} / h_{\gamma}(E_{\gamma}) \\ = K_f(E_{\gamma}) / h_{\gamma}(E_{\gamma}) \quad [\text{bubbles/Sv}]$$

ここで、 $h_{\gamma}(E_{\gamma})$ は線量当量変換係数 $[(\text{Sv/s})/(\text{photons/m}^2 \cdot \text{s})]$ で、

$$h_{\gamma}(E_{\gamma}) = [\text{線量当量}] / [\text{ガンマ線束}] = D_{\gamma} / \phi$$

即ち、光子 1 個当たりの線量当量である。

である。 $\left\{ \sigma_{ij} \right\}_{\text{eff}}$ を電子のエネルギースペクトル $\epsilon(E)$ で表す（以下 i, j 省略）。

エネルギー E_{γ} のガンマ線による 1 次電子スペクトルを $f(T, E_{\gamma})$ 、温度 T の電子のエネルギースペクトルを $g(E, T)$ とすると、

$$\epsilon(E)dE = dE \int g(E, T)f(T, E_{\gamma})dT \\ \int g(E, T)dE = 1 \quad \int f(T, E_{\gamma})dT = 1 \\ \int \epsilon(E)dE = \iint g(E, T)f(T, E_{\gamma})dTdE = 1$$

$$\left\{ \sigma_{ij} \right\}_{\text{eff}} = \sigma_{ij}(E_{\gamma}) \int_{E_1}^{E_2} g(E, T)f(T, E_{\gamma})dT$$

Bruce 等^{7,7)} はガンマ線によってつくられる水中の単位吸収線量当たりの低エネルギー電子数は入射ガンマ線エネルギーに依存しないことを示している。彼らによる表を表 7.4 に引用しておく。この結果を気泡生成可能な電子エネルギー領域 $E_1 < E < E_2$ に適用するならば、

$$\left\{ \sigma_{ij} \right\}_{\text{eff}} / h_{\gamma}(E_{\gamma}) = \sigma_{ij}(E_{\gamma}) \int_{E_1}^{E_2} dE \int g(E, T)f(T, E_{\gamma})dT / h_{\gamma}(E_{\gamma}) \\ = \int_{E_1}^{E_2} dE \int \left\{ \sigma_{ij}(E_{\gamma}) g(E, T) f(T, E) / h_{\gamma}(E_{\gamma}) \right\} dT \\ \approx \int_{E_1}^{E_2} dE G_0(E)$$

$$\int dT \left\{ \sigma_{ij}(E_{\gamma}) f(T, E_{\gamma}) / h_{\gamma}(E_{\gamma}) \right\} \approx G_0(E)$$

となり、 $\{\sigma_{ij}\}_{eff}/h_\gamma(E_\gamma)$ の E_γ 依存性、 $K_D(E_\gamma)$ の E_γ 依存性はないことになる。

しかし、ガンマ線エネルギーが低くなると、検出器容器による減衰、検出器内的一次電子の空間分布等の効果を詳細に考慮しなければならない。市販検出器の normal production で重い物質を含む場合は、~100keV の感度のピークは、低エネルギーでの光電効果断面積の増加と、検出器内でのガンマ線の減衰とが関与していると推定されるが、詳細は検出器内の電子のエネルギーおよび空間分布の解析にまたなければならないであろう。

表 7.4 γ 線照射水中の低エネルギー電子数^{7.7)}
(単位吸収線量当たり、単位 keV・単位 cm²当たりの電子数)

	低エネルギー電子の中心エネルギー [keV]		
γ 線源	0.11	0.45	1.0
¹³⁷ Cs	30.5×10^4	6.0×10^4	3.46×10^4
⁶⁰ Co	29.6×10^4	5.8×10^4	3.59×10^4

<参考文献>

- 7.1) Poll0ck R.W.:Nucl. Tracks Rad. Meas.,15,483(1988)
- 7.2) Harper M.J., Baker B.W. & Nelson M.E.:Health Phys., 68,670(1995)
- 7.3) Holt P.D.:p.42-48 in Charged Particle Tracks in Solids and Liquids (Proc. 2nd L. H.Gray Conf., 1969, Published by The Institute of Physics and The Physical Society Conference Series No.8)
- 7.4) 澤村、山崎：北海道大学工学部研究報告、173、31(1995)
- 7.5) 小泉 勝三：気泡検出器の組成分析結果報告書（No.91-PH06、平成3年7月）
- 7.6) 小泉 勝三：私信(1995)
- 7.7) Bruce W. R., Pearson M.L. and Freehoff H.S. : Rad.Reseach 19,606 (1993)