

臨界事故時用個人被曝線量計の特性試験( I )  
原子炉による照射と線量当量の評価

1985年3月

動力炉・核燃料開発事業団  
東海事業所

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)  
2001

## 臨界事故時用個人被曝線量計の特性試験 (I) 原子炉による照射と線量当量の評価

小 泉 勝 三 \*  
宮 部 賢次郎 \*  
野 村 幸 広 \*  
宇 津 重 次 \*\*  
中 田 啓 \*

### 要 旨

東海事業所において、臨界事故時に個人被曝線量を測定するための臨界線量計と、定常測定に使用している TLD バッジを日本原子力研究所の原子炉 NSRR において照射し、生成した誘導放射能の測定により、中性子フルエンスと、線量当量を算出する方法について検討した。また、TLD バッジ中インジウムの誘導放射能をサーベイメータを用いてスクリーニングする方法について検討した。その結果以下のことが明らかとなった。

- (1) 臨界事故時の個人被曝線量は速中性子の寄与が大きく、 $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$  反応によって生成する  $^{32}\text{P}$  の測定が重要である。 $^{32}\text{S}$  は燃焼による前処理によって自己吸収の少ない試料とすることが出来ること、また測定器としては低バックグラウンド計数装置が適していることを確認した。
- (2) 現在用いている 300 mg の硫黄による速中性子の検出限界は約 10 rem、金による熱中性子の検出限界は  $2.9 \times 10^{-4}$  rem、金による中速中性子の検出限界は  $1.6 \times 10^{-2}$  rem であった。速中性子の検出限界を 3 rem にするためには約 1 g の硫黄が必要である。
- (3) TLD バッジ中インジウムの誘導放射能から中性子被曝者をスクリーニングする際、インジウムの放射能と線量当量を直接結びつける方法は、中性子スペクトルの違いによる評価誤差が大きい。従ってスクリーニングは中性子被曝の有無に止めることが望ましい。

---

\* 安全管理部 安全対策課

\*\* 安全管理部 環境安全課

## 目 次

1. はじめに	1
2. 実験方法	2
2.1 照射施設	2
2.2 照射試料	9
2.3 照射条件	13
2.4 測定器及び測定の方法	16
2.4.1 臨界線量計中金属箔および硫黄の誘導放射能測定	16
2.4.2 TLDバッジ中インジウムのサーベイメータによる誘導放射能測定	17
2.4.3 TLD素子による $\gamma$ 線量および中性子線量の測定	17
3. 動燃型臨界線量計およびR/E社臨界線量計の放射能測定並びに TLDバッジ中インジウムの誘導放射能測定結果	19
3.1 臨界線量計およびTLDバッジ中インジウムの誘導放射能測定	19
3.2 臨界線量計中の金属箔および $^{32}\text{P}$ の放射能測定結果	25
3.3 TLD素子による $\gamma$ 線量および中性子線量の測定結果	44
4. 中性子フルエンス計算方法および中性子線量当量の評価	47
4.1 中性子フルエンス計算式	47
4.2 中性子フルエンスおよび中性子線量当量評価結果	52
4.3 TLDバッジ中インジウムのサーベイメータによる測定結果と 中性子線量当量の関係	54
5. 結果の考察	55
5.1 臨界線量計中の金属箔と $^{32}\text{P}$ の誘導放射能経時測定	55
5.2 中性子フルエンスおよび中性子線量当量評価結果	56
5.3 臨界事故時の $\gamma$ 線量と中性子線量の比率	58
6. 今後の課題	60
7. 結 言	61
謝 辞	62
参 考 文 献	63
付 録 「臨界事故時用個人被曝線量計のNSRR炉による照射実験」 実験計画	64

## 1. はじめに

臨界事故時、作業者の中性子被曝線量を測定する目的で臨界事故時用線量計（以下「臨界線量計」という）がある。現在使用している臨界線量計は、昭和43年に安全管理部の検討委員会<sup>1)</sup>において設計され、既に十数年間使用して来ており、一部の消耗や腐食により更新の時期に来ている。この線量計は、中性子フルエンスを求める計算式や定数、検出限界などについて、明確になっていない部分があった。近年中性子フルエンスから rad あるいは rem への換算計数について、ICPR Publ. 21<sup>2)</sup>や IAEA Technical report No 211<sup>3)</sup>が公表されたので、それらの情報も参考にして、今までの中性子線量評価法を見直すこととした。同時に、更新に当り現在使用している臨界線量計と Reactor Experiment 社臨界線量計<sup>4)</sup>（以下「R/E社臨界線量計」という）およびTLDバッジを日本原子力研究所 NSRR (Nuclear Safety Research Reactor) の中性子ラジオグラフィ室にて照射し、誘導放射能測定、中性子フルエンス算出、サーベイメータによる中性子被曝のスクリーニング等について検討した。

今回実施した実験の目的は、以下の通りである。

- (1) 現在使用している臨界線量計に中性子照射し、誘導放射能測定と中性子フルエンスおよび線量当量算出法、並びに評価に用いるパラメータを明確にし、臨界事故時の個人中性子被曝線量評価手法を確立する。
- (2) 臨界線量計の金属箔および硫黄の重量の妥当性と測定検出限界を検討し、性能の確認と更新のための基礎データを得る。
- (3) TLD バッジに中性子照射し、バッジに入っているインジウムの放射能をサーベイメータを用いて測定し、照射中性子線量とサーベイメータの計数率の関係を調べ、臨界事故時の中性子被曝線量のスクリーニングについて検討する。
- (4) 現在使用している TLD バッジの  $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7$  を主成分とする TLD 素子に、大量の  $\gamma$  線と中性子線が同時照射された場合の特性を調べる。

## 2. 実験方法

### 2.1 照射施設

中性子照射は、日本原子力研究所のNSRR (Nuclear Safety Research Reactor)<sup>5)</sup>にて実施した。この原子炉は、試験燃料にパルス状の高い中性子束を与えることによって燃料破損現象を究明することを目的とする炉で、パルス運転とともに最大300 kW で定常出力運転を行うことができる。NSRRの主要諸元は、表2-1に示す通りで、燃料は濃縮ウラン-水素化ジルコニウムをステンレス鋼材で被覆したものである。炉心は、図2-1、図2-2に示すように深さ9mのプール内に設置されている。実験孔が数本設けられており、この内の1本は、中性子ラジオグラフィが行なえる設備(以下「NRG室」という)を持ち、このNRG室へは、反応度事故模擬により発生した高速中性子と $\gamma$ 線が得られるようになっている。NRG室への中性子案内孔詳細図を図2-3に、NRG室の平面図と側面図をそれぞれ図2-4と図2-5に示す。NRG室への中性子及び $\gamma$ 線の取出しは、図2-3に示す通りで、原子炉で発生する中性子及び $\gamma$ 線は、炉心側で直径60mm $\phi$ 、原子炉生体遮蔽側で200mm $\phi$ のラップ管状ボイドボックスにより生体遮蔽貫通孔へ導くようになっている。このラップ管は、通常は水を入れて遮蔽体としているが、NRG室を使用するときには、空気を入れて使用する。NRG室には、図2-2に示すように35cmの鉛シャッターがあり、開閉はNRG室入口ドア外壁より遠隔操作できるようになっている。鉛シャッターを開にすると $\gamma$ 線と中性子の照射が行え、閉にすると主に中性子の照射を行うことができる。

NRSSのパルス出力は、投入反応度が最大約4.7ドルの時の実測データでピーク出力と積分出力は、それぞれ21,100 MW, 117 MW $\cdot$ secである。なお、4.7ドルパルス時の最短炉周期は、1.13m sec およびパルス半値幅は4.4m secである。

表 2-1 Characteristics of NSRR<sup>5)</sup>

<u>Reactor Type;</u>	Modified TRIGA-ACPR (Annular Core Pulse Reactor)
<u>Reactor Vessel;</u>	3.6 <sup>m</sup> (wide) × 4.5 <sup>m</sup> (long) × 9 <sup>m</sup> (deep) open pool
<u>Fuel;</u>	
Fuel type	12 wt% U-ZrH fuel
Fuel enrichment	20 wt% U-235
Clad material	Stainless steel
Fuel diameter	3.56 cm
Clad diameter	3.76 cm O.D.
Length of fuel section	38 cm
Number of fuel rods	157
Equivalent core diameter	62 cm
<u>Control Rods;</u>	
Number	8 (including 2 safety rods)
Type	Fuel followered type
Poison material	Natural B <sub>4</sub> C
Rod drive	Rack and pinion drive
<u>Transient Rods;</u>	
Number	2 fast transient rods and 1 adjustable transient rod
Type	Air followered type
Poison material	92% enriched B <sub>4</sub> C
Rod drive	Fast : Pneumatic Adjustable: Rack and pinion & Pneumatic
<u>Core Performance;</u>	
a) Steady state operation	
Steady state power	300 kW
b) Pulse operation	
Max. peak power	21,100 MW
Max. burst energy	117 MW·sec
Max. reactivity insertion	3.43% Δk (\$4.67)
Min. period	1.13 msec
Pulse width	4.4 msec (1/2 peak power)
Neutron life time	30 μsec
<u>Experiment Tube;</u>	
Inside diameter	22 cm

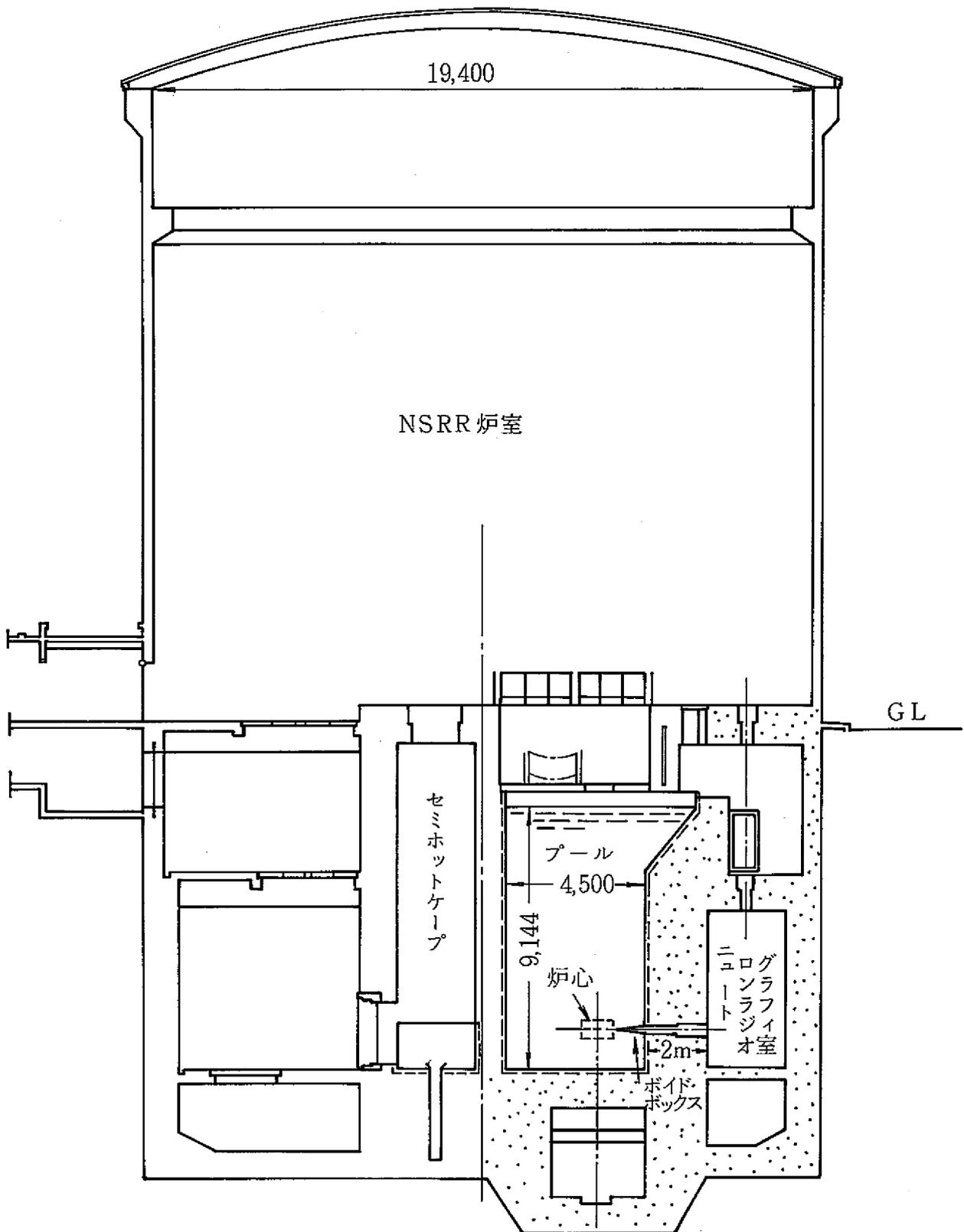


図2-1 NSRR 原子炉建屋断面<sup>5)</sup>

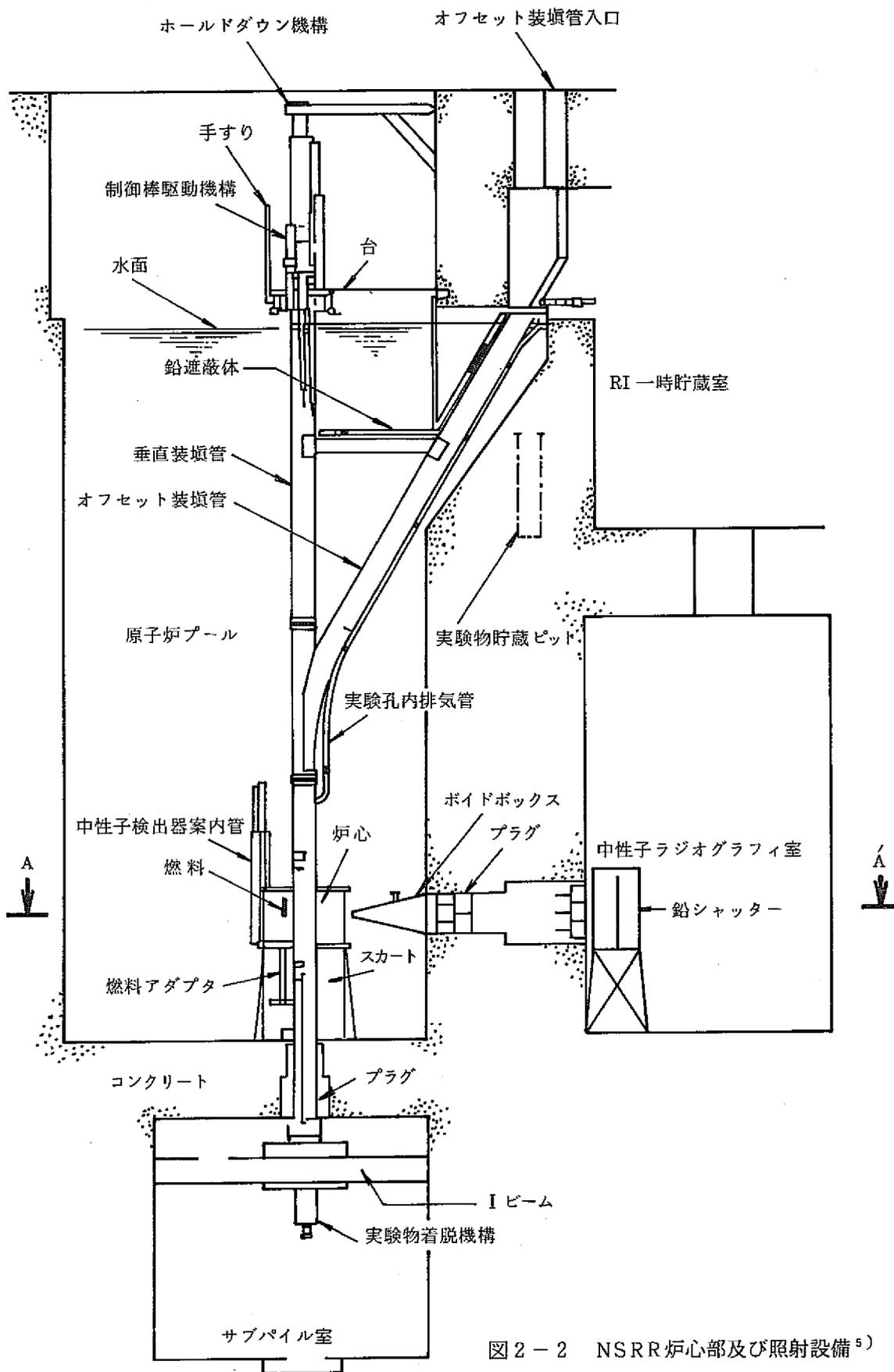


図 2-2 NSRR 炉心部及び照射設備<sup>5)</sup>

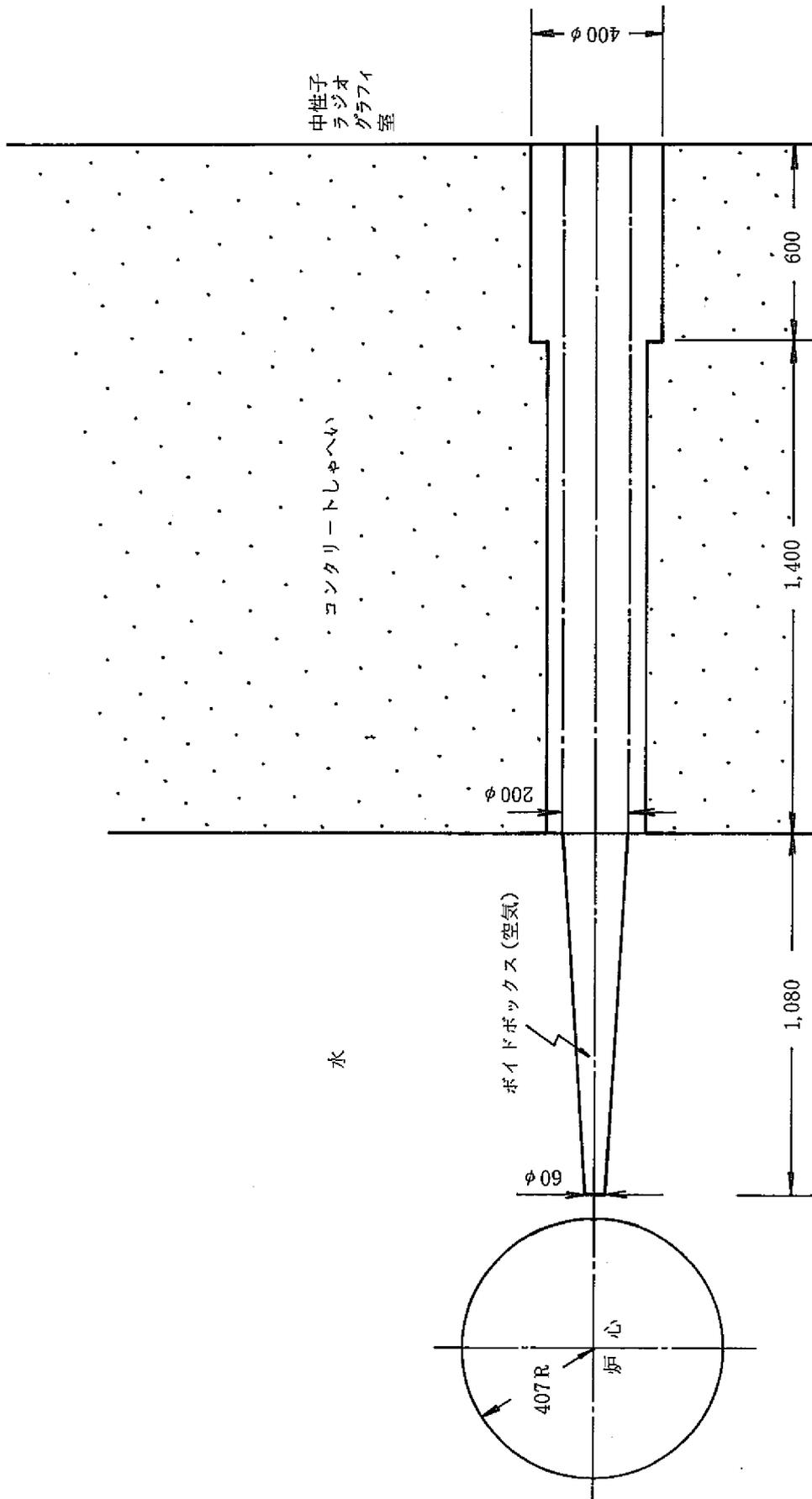


図2-3 中性子ラジオグラフィ室への中性子案内孔詳細 (図2-2のA-A'水平面s)

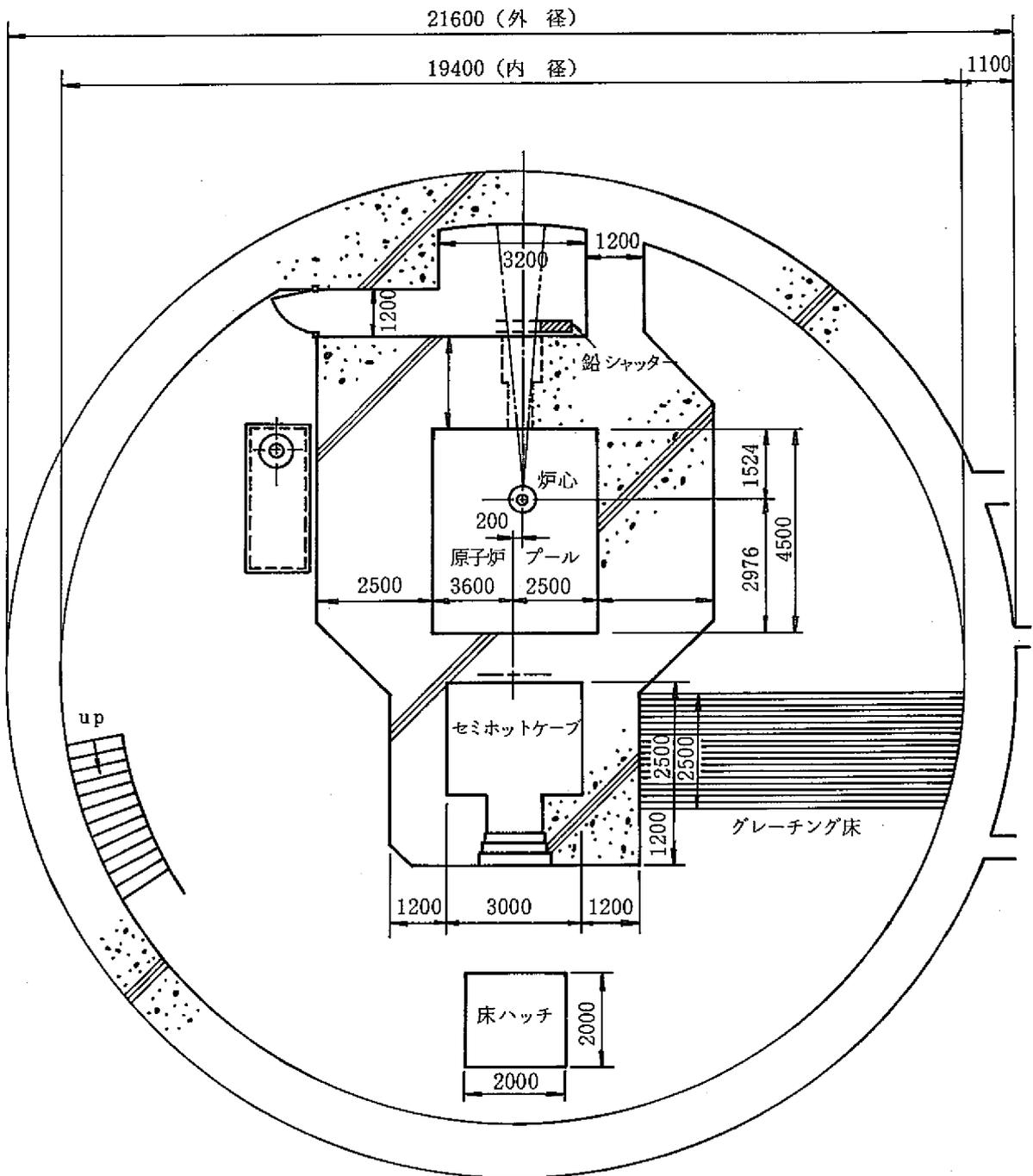


図2-4 NSRR 地下3階における実験装置の配置と測定器監視位置<sup>5)</sup>

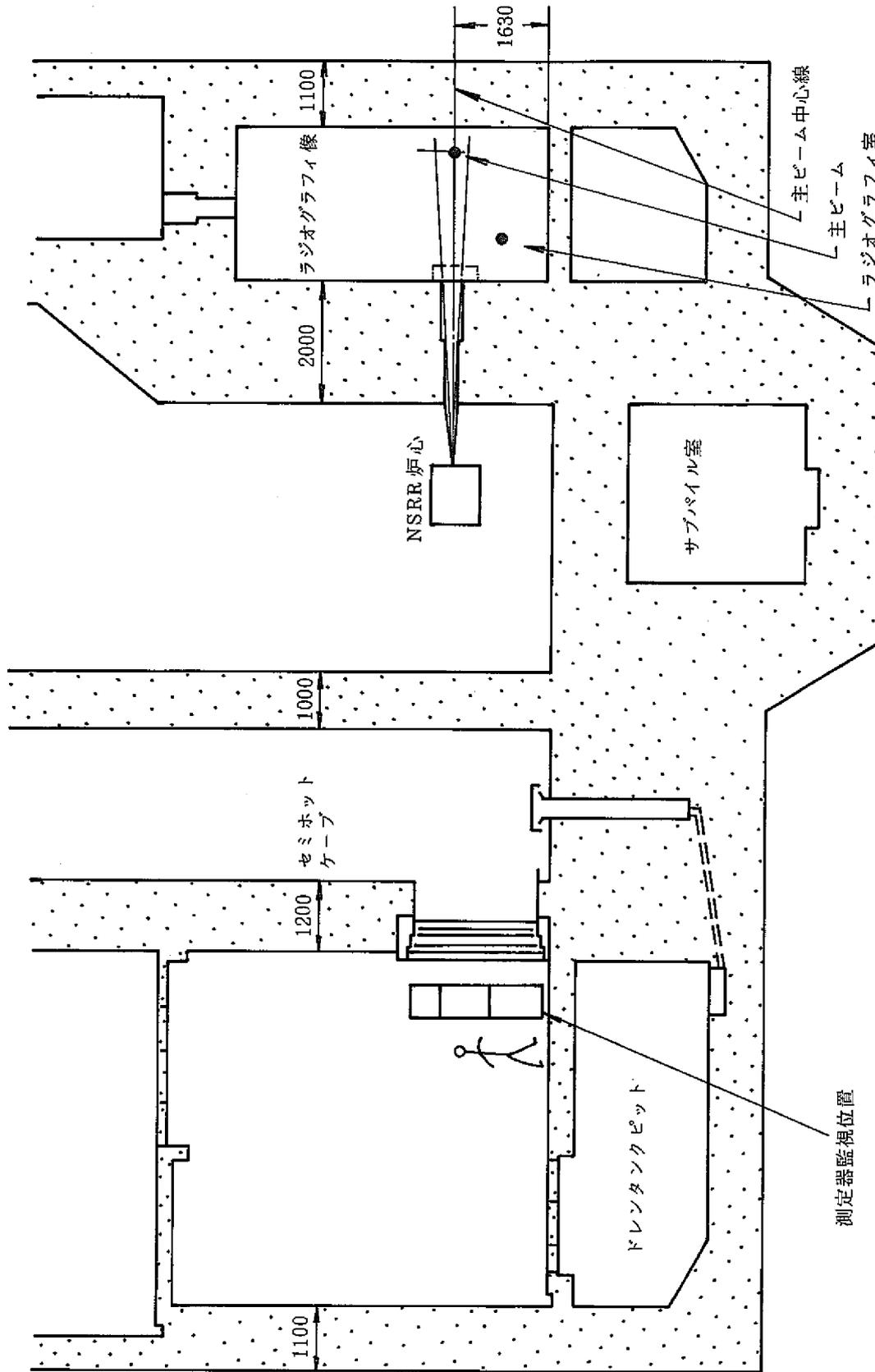


図 2-5 主ビーム及びラジオグラフィヤ室<sup>6)</sup>

## 2.2 照射試料

照射試験に使用した試料は、動燃型 TLD バッジ、動燃型臨界線量計、R/E 社臨界線量計およびペレット状の硫黄の 4 種類である。

### (1) 動燃型 TLD バッジ

動燃型 TLD バッジは、松下産業機器社製で、現在個人被曝管理用として使用しているものである。個人被曝線量計としては、 $\gamma(X) \cdot \beta$  線量計 UD-808 P ( ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu}), \text{CaSO}_4(\text{Tm})$ )、中性子線量計 UD-809 P ( ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7, {}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7$ ) から構成されている。又、このバッジの中には、臨界事故時用として約 350 mg のインジウムが入っている。バッジの外観及び形状を図 2-6 に、その素子の構成を図 2-7 に示す。

### (2) 動燃型臨界線量計

動燃型臨界線量計は、アルミニウムケースに収納されておりこれが 4 個ベルトに組込まれている。現在プルトニウム燃料部及び再処理工場の臨界事故時用線量計として約 70 個使用されている。ケースの中には、カドミウムでカバーされた金、インジウムおよび銅と裸の状態で金、インジウムおよび硫黄が収納されている。この線量計の概観図を図 2-8 に、寸法重量を表 2-2 に示す。

### (3) R/E 社臨界線量計

R/E 社臨界線量計は、動燃型臨界線量計と金属箔の種類は同じである。この線量計の概観図を図 2-9 に寸法重量を表 2-2 に示す。なお、この線量計の中には TLD も入っている。(TLD については特性が不明であり今回は除いた。)

### (4) 硫 黄

硫黄の重量と誘導放射能との関係を調べるため、(2)、(3)の硫黄の他に原研から入手した硫黄ペレット 2 個、4 個、6 個を別々にビニールで囲み、これを試料とした。その寸法重量を表 2-2 に示す。

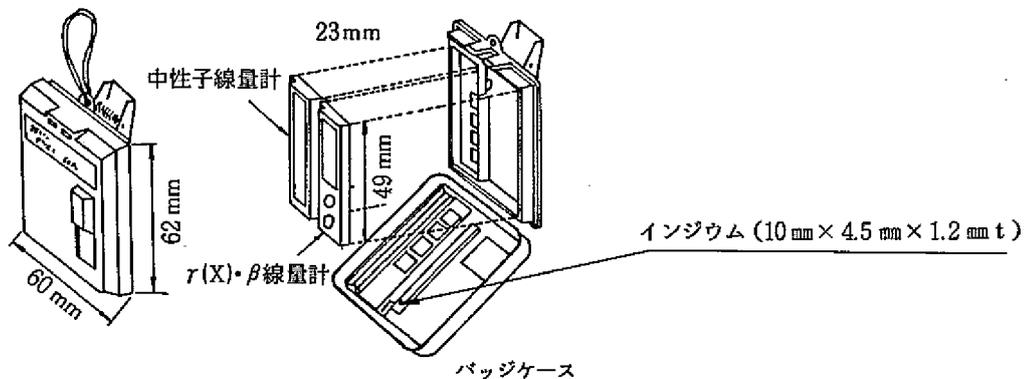
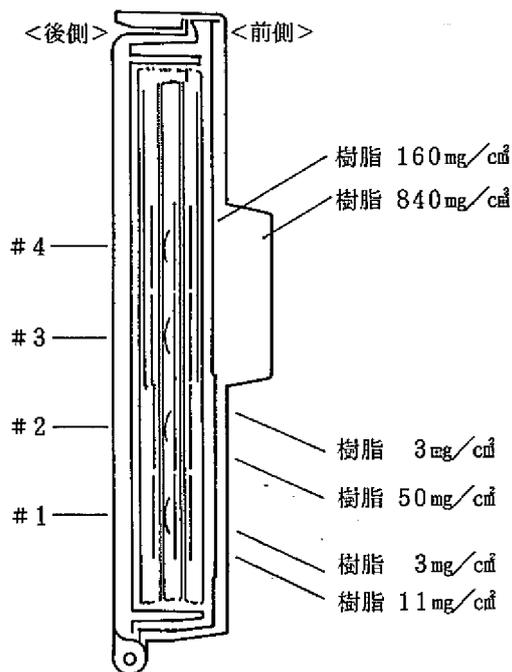


図 2-6 TLD バッジの外観及び形状図

エレメントNo	蛍光体	シールド
# 4	$\text{CaSO}_4$ (Tm)	樹脂 1000 mg/cm <sup>2</sup>
# 3	${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7$ (Cu)	樹脂 1000 mg/cm <sup>2</sup>
# 2	${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7$ (Cu)	樹脂 63 mg/cm <sup>2</sup>
# 1	${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7$ (Cu)	樹脂 17 mg/cm <sup>2</sup>

(a) 外観図およびエレメント構成

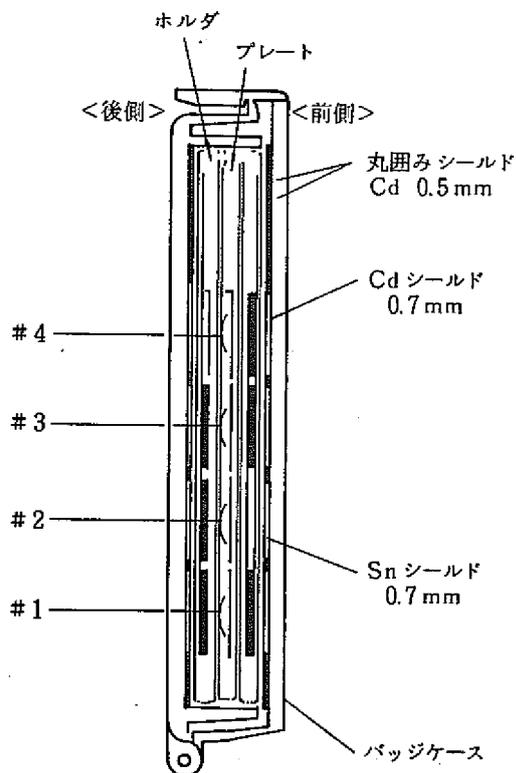


(b) ケースを含めた断面図

(a)  $r(X) \cdot \beta$  線用線量計

エレメントNo	シールド(後) / 蛍光体 / シールド(前)
4	$\text{Sn} / {}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7$ (Cu) / Cd
3	$\text{Cd} / {}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7$ (Cu) / Cd
2	$\text{Cd} / {}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7$ (Cu) / Sn
1	$\text{Cd} / {}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7$ (Cu) / Cd

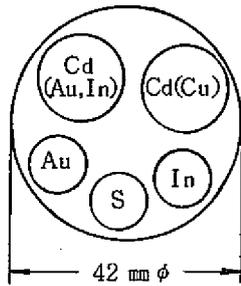
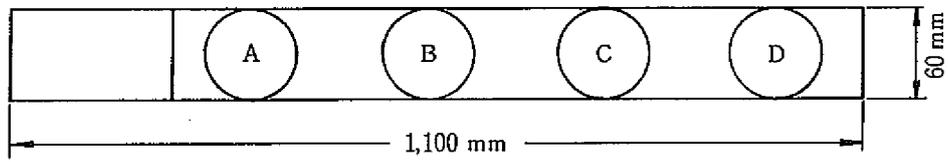
(a) 外観図とエレメント構成



(b) ケースを含めた断面図

(b) 中性子用線量計

図 2-7 TLD バッジ中の素子の構成



Cd (Au, In) : カドミウムの1 m/m 皿で  
カバーした金, インジウム  
○印の刻印付。

Cd (Cu) : カドミウム皿でカバーした銅,  
○印の刻印付

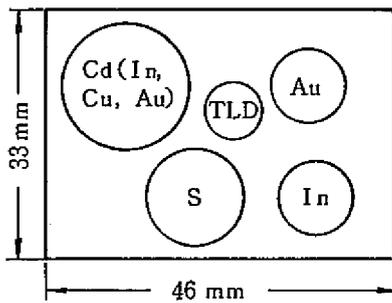
Au : 金

S : 硫黄

In : インジウム

ケースの厚さ: 6 mm

図2-8 動燃型臨界線量計概観図



Cd (In, Cu, Au) : カドミウムの0.5 m/m  
皿でカバーしたインジ  
ウム銅, 金

Au : 金

S : 硫黄

In : インジウム

TLD : 熱蛍光線量計

ケースの厚さ: 2.5 mm

図2-9 R/E社臨界線量計概観図

表2-2 検出器重量寸法一覧

線量計の種類 (実験目的)	検出器の種類	重量(mg)	寸法		照射日 (出力)
			直径(mm)	厚さ(mm)	
動燃型臨界 線量計 (誘導放射能測 定)	インジウム	79.1	10.0	0.15	11/20 (3.06\$)
	インジウム(カドミウム)	77.8	10.0	0.15	
	金	201.3	10.0	0.15	
	金(カドミウム)	203.4	10.0	0.15	
	銅(カドミウム)	97.8	10.0	0.15	
	硫黄	329.0	10.0	3.0	
動燃型臨界 線量計 (線量当量算出)	インジウム	78.5	10.0	0.15	11/21 (3.06\$)
	インジウム(カドミウム)	82.2	10.0	0.15	
	金	202.0	10.0	0.15	
	金(カドミウム)	196.0	10.0	0.15	
	銅(カドミウム)	97.1	10.0	0.15	
	硫黄	332.2	10.0	3.0	
硫黄 (硫黄測定法検 討)	硫黄-1	1028.3	9.1	5.0	11/21 (3.06\$)
	硫黄-2	2044.4	9.1	5.0	
	硫黄-3	3058.6	9.1	5.0	
R/E社臨界 線量計 (誘導放射能測 定)	インジウム	30.3	6.1	0.03	11/20 (3.06\$)
	インジウム(カドミウム)	30.2	6.1	0.03	
	金	4.1	3.5	0.01	
	金(カドミウム)	3.9	3.5	0.01	
	銅(カドミウム)	146.1	13.0	0.15	
	硫黄	447.5	13.2	2.0	
R/E社臨界 線量計 (線量当量算出)	インジウム	28.7	6.1	0.03	11/21 (3.06\$)
	インジウム(カドミウム)	31.1	6.1	0.03	
	金	4.4	3.1	0.01	
	金(カドミウム)	4.5	3.1	0.01	
	銅(カドミウム)	146.5	13.0	0.15	
	硫黄	460.5	13.2	2.0	

## 2.3 照射条件

照射は、2.2項に述べた試料を図2-4に示すNSRRのNRG室において行った。照射の条件は、表2-3に示す通りである。又、試料の詳細配置図を図2-10、図2-11に、照射位置の写真を写真1、写真2に示す。

表2-3 照射条件

照射日/時刻	昭和59年 11月20日 16時05分	昭和59年 11月21日 10時50分
パルスNo. 反応度	パルスNo.1467 3.06 \$	パルスNo.1468 3.06 \$
照射位置	中性子ラジオグラフィ室 床上 1.36 m 生体遮蔽壁から 68 cm	同 左
鉛シャッター	開	同 左
照射試料	動燃型TLDバッジ 動燃型臨界線量計 R/E社臨界線量計	動燃型TLDバッジ 動燃型臨界線量計 R/E社臨界線量計 硫 黄
主な目的	誘導放射能の追跡	中性子フルエンスの評価

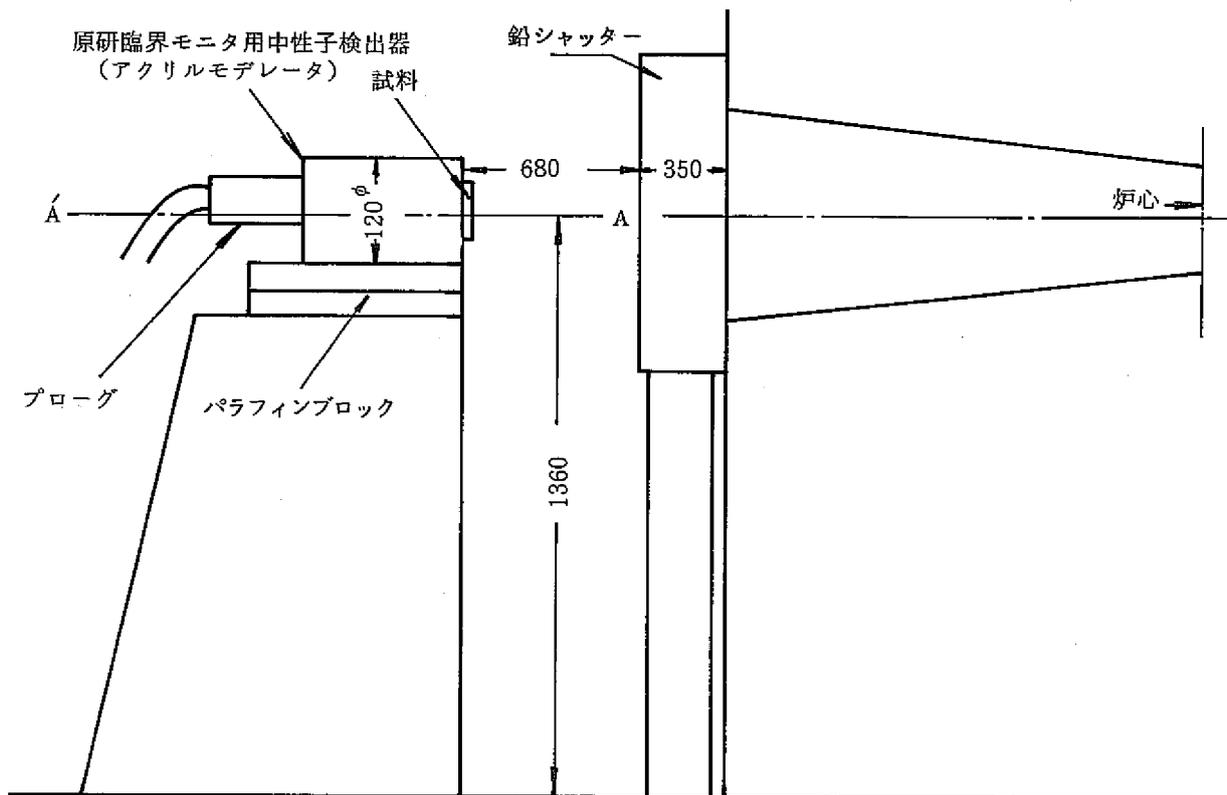
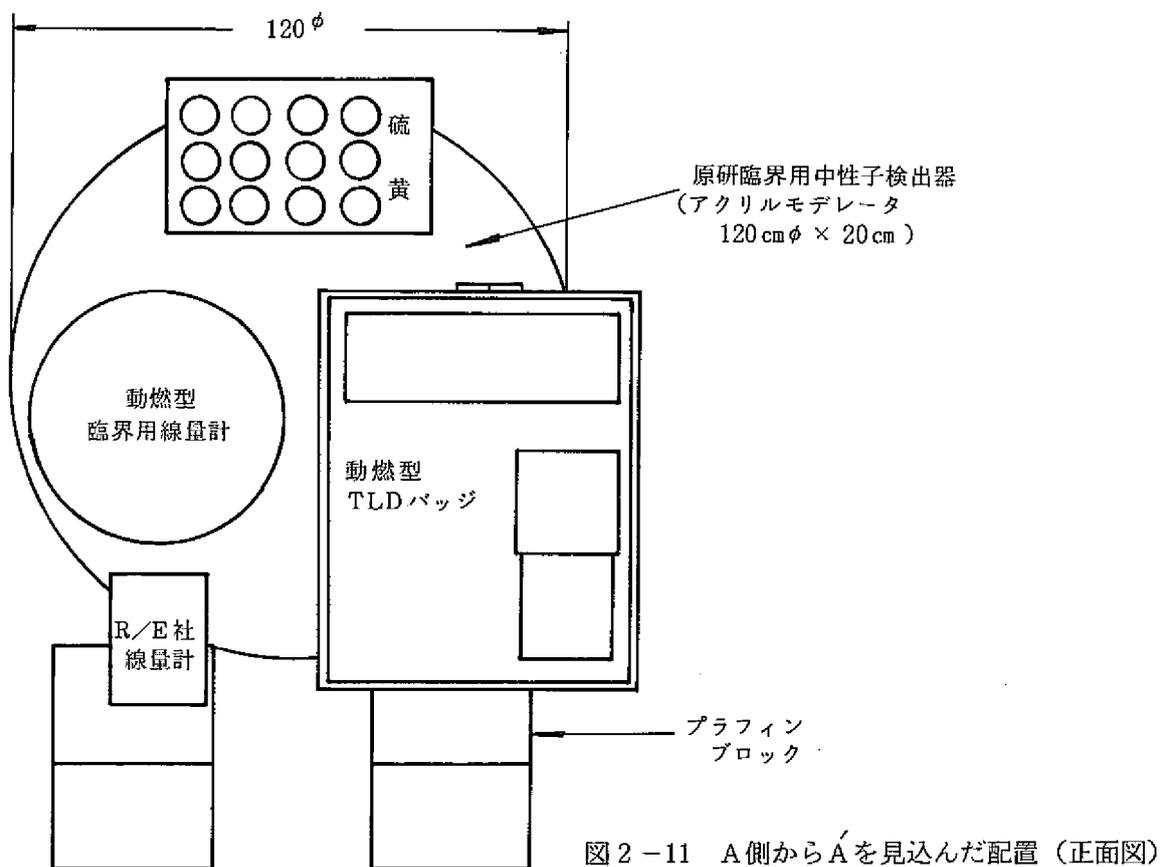
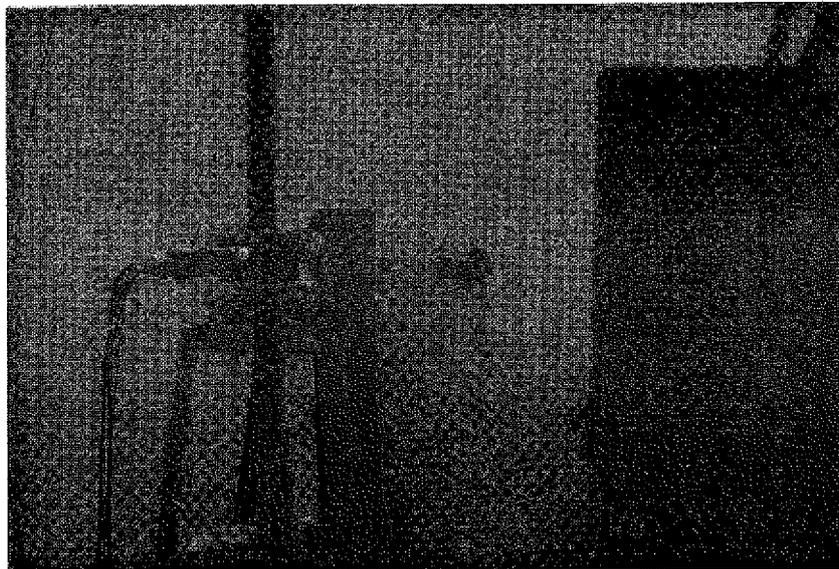


図 2-10 試料の配置 (側面図)





( 写 真 1 )



( 写 真 2 )

## 2.4 測定器及び測定の方法

### 2.4.1 臨界線量計中金属箔および硫黄の誘導放射能測定

#### (1) $^{198}\text{Au}$ と $^{116\text{m}}\text{In}$ の測定

臨界線量計中金属箔の放射能の測定は、 $^{198}\text{Au}$ 、 $^{116\text{m}}\text{In}$  については、誘導放射能の  $\gamma$  線を Ge (Li) 半導体検出器を用いて測定した。測定器の校正は、金、インジウムと同じ直径 (10mm $\phi$ ) のろ紙に日本アイソトープ協会から購入した既知量の  $^{60}\text{Co}$ 、 $^{144}\text{Ce}$ 、 $^{54}\text{Mn}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  溶液をそれぞれ滴下しこれを乾燥させビニールに封入したものをを用いて効率曲線を求め、この曲線の内挿から  $^{198}\text{Au}$  及び  $^{116\text{m}}\text{In}$  の効率を求める方法をとった。測定器は、環境安全課の 2 台の Ge (Li) 半導体検出器を使用した。1 台 (No.1) は相対効率 11%、2 台目 (No.2) は相対効率 25% である。

今回用いた Ge (Li) 検出器の  $^{198}\text{Au}$  及び  $^{116\text{m}}\text{In}$  に対する検出限界は、3000 秒測定においてそれぞれ  $1.3 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{サンプル}$ 、 $3.5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}/\text{サンプル}$  である。

放射化した金箔とインジウム箔は、臨界線量計からピンセットを用いて取り出した後、ビニールに封じ、Ge (Li) 検出器に直接のせて測定した。

#### (2) $^{64}\text{Cu}$ の測定

$^{64}\text{Cu}$  は、当初 Ge (Li) 半導体検出器を用いて  $\gamma$  線を測定する予定であったが、誘導放射能が弱いため低バックグラウンドガスフロー式カウンタ (キャンベラ社製 2404 型、バックグラウンド 1 cpm ( $\beta$  線) 以下、窓厚 100  $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ 、50mm $\phi$ 、 $^{90}\text{Sr} - ^{90}\text{Y}$   $\beta$  線に対する効率 42%) を用いて  $\beta$  線を測定することとした。銅の金属箔は  $\beta$  線の自己吸収が大きいため、以下の手順で銅を酸で溶かし蒸発乾固試料とした。

- (イ) 100 cc ビーカーに水 10 cc と 14N の硝酸 2 cc を入れる。
- (ロ) 銅の金属箔を (1) の中に入れ、ホットプレート上で加熱し水を蒸発させる。
- (ハ) 再び硝酸を少量加えた後この溶液を 50mm $\phi$  の試料皿に入れ、水を蒸発させる。

#### (3) 硫黄の測定

硫黄の測定は、銅と同じく誘導放射能が弱いため低バックグラウンドガスフロー式カウンタを用いて測定した。測定試料は、 $^{32}\text{S} (n, p) ^{32}\text{P}$  で生成した  $^{32}\text{P}$  を自己吸収の少ない条件にて測定するため、以下に示す硫黄を燃焼させる方法を用いた。文献によれば<sup>5)6)</sup>、この操作で 96% の  $^{32}\text{P}$  は残るとされている。

- (イ) ステンレスの試料皿 (50mm $\phi$ ) の中央に照射した硫黄ペレットを入れ、ホットプレート上でダークアンバー色になるまで加熱する。
- (ロ) 燃焼残渣が一様になる様に、又、溶けた硫黄が皿の端に移動しない様に皿を動かす。
- (ハ) ヒュームに点火して硫黄を燃焼させる。

(2) の銅の測定及び (3) の硫黄の測定については、全  $\beta$  線を測定しているため、不純核種のないことをそれぞれの放射能の半減期を測定することにより確認する。

#### 2.4.2 TLDバッジ中インジウムのサーベイメータによる誘導放射能測定

TLDバッジ、動燃型臨界線量計およびR/E社臨界線量計について、照射直後からその誘導放射能をサーベイメータにて、適当な時間間隔を置いて測定した。測定に用いたサーベイメータは、(1)側窓型GMサーベイメータ（富士電機製造（株）製 NSM-101型）と(2)端窓型GMサーベイメータ（アロカ社製 TGS-113型）を使用し、側窓型については、窓を開いた状態（ $\beta$ 線+ $r$ 線）と窓を閉じた状態（ $r$ 線）の両方について測定した。測定のジオメトリは、サーベイメータと試料を密着して行なった。

また、Ge(Li)検出器による測定に先立ってGM管式計数装置（遮蔽体及び試料棚付）を用いて放射能測定を行い、インジウムの放射能がGe(Li)検出器で測定するのに都合が良い強度まで減衰しているかどうかの確認を行った。

サーベイメータによるTLDバッジの誘導放射能測定風景を写真3と写真4に示す。

#### 2.4.3 TLD素子による $r$ 線量および中性子線量の測定

TLD素子は、昭和59年11月20日照射分、11月21日照射分共初期フェーディングの影響を除くため照射24時間後に松下産業機器（株）製UD-710P自動読取装置を用いて発光量を測定し、 $r$ 線および中性子線量を求めた。

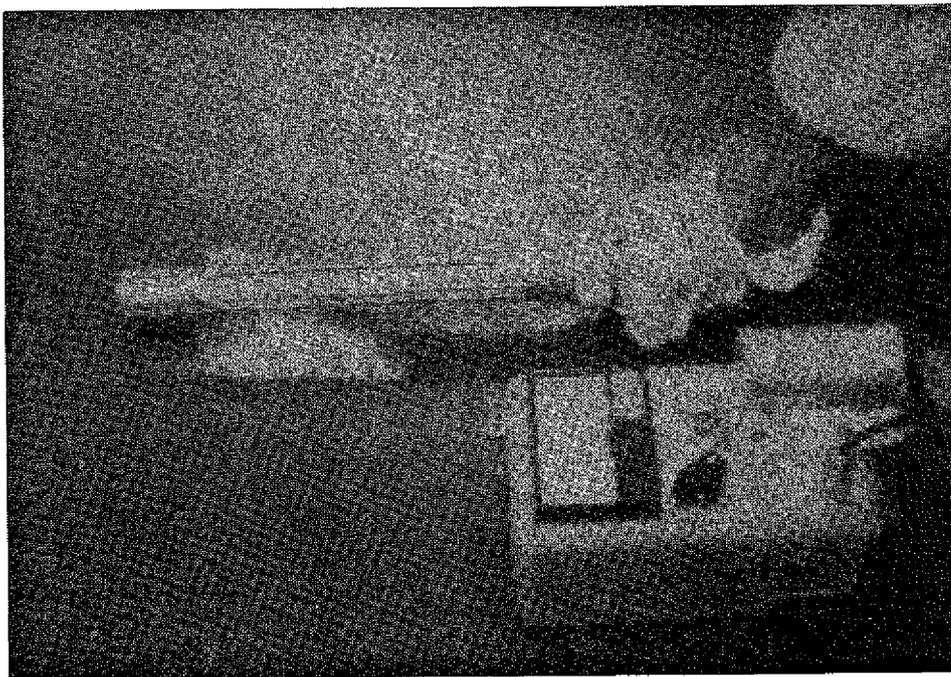


写真3 側窓型GMサーベイメータによるTLDバッジの誘導放射能測定

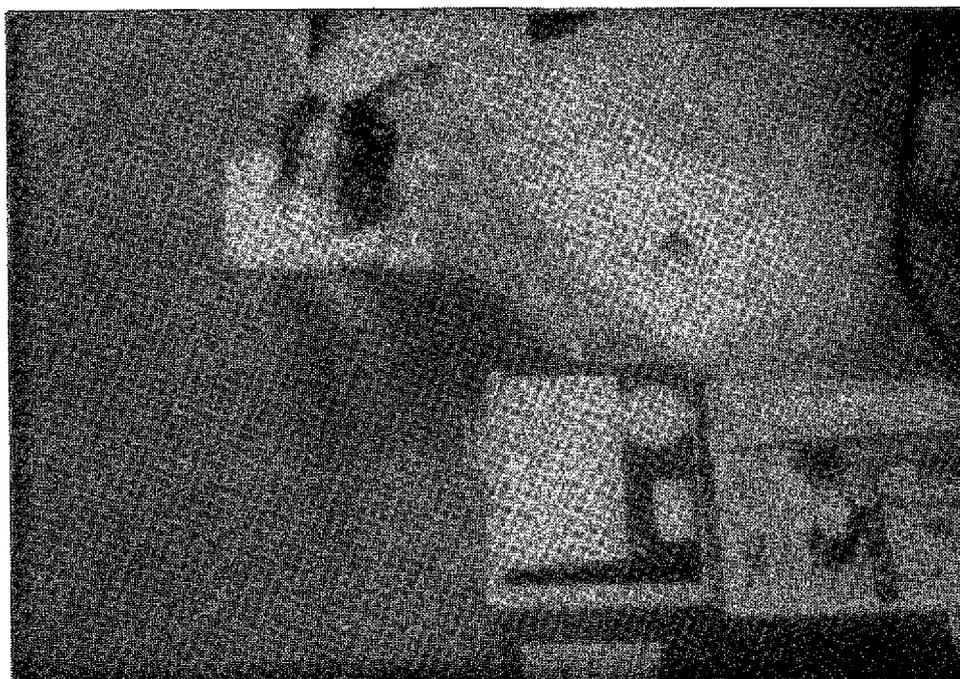


写真4 端窓型GMサーベイメータによるTLDバッジの誘導放射能測定

### 3. 動燃型臨界線量計および R/E 社臨界線量計の放射能測定 並びに TLD バッジ中インジウムの誘導放射能測定結果

#### 3.1 臨界線量計および TLD バッジ中インジウムの誘導放射能測定

11月20日に照射した TLD バッジ，動燃型臨界線量計及び R/E 社臨界線量計のサーベイメータによる測定結果を表 3-1 に示す。11月21日に照射した試料の測定結果を表 3-2 に示す。また，インジウムを TLD バッジケースに入れた状態で測定した誘導放射能追跡結果を図 3-1 に，動燃型臨界線量計の誘導放射能追跡結果を図 3-2 に，R/E 社臨界線量計の測定結果を図 3-3 に示す。いずれの測定結果も減衰の速度は， $^{116m}\text{In}$  の半減期（54 分）に良く一致している。従ってサーベイメータによって測定している放射能の大部分は， $^{116m}\text{In}$  によるもので，TLD バッジが最も強く，照射10分後で表面線量率は， $1.7\text{ mR/hr}$ （ $\beta$ 線+ $\gamma$ 線）である。動燃型臨界線量計は，照射30分後で  $0.75\text{ mR/hr}$ （ $\beta$ 線+ $\gamma$ 線），R/E 社製臨界線量計は，照射35分後で  $0.75\text{ mR/hr}$ （ $\beta$ 線+ $\gamma$ 線）である。R/E 社の臨界線量計中インジウムの質量は，動燃型臨界線量計中インジウムの約 2.7 分の 1 にもかかわらず線量率が高い値を示した。これは，動燃型臨界線量計のケースがアルミニウム製で， $^{116m}\text{In}$  の  $\beta$  線が遮蔽されているのに対し，R/E 社の臨界線量計のケースは，薄いプラスチックシートからなっていることによるものと思われる。

側窓型 GM サーベイメータによる測定で窓を開いた状態と窓を閉じた状態の線量率の差が，動燃型のものより R/E 社のものが大きかったのも同じ理由によるものと考えられる。

今回得られた TLD バッジの照射後のサーベイメータによる測定値は，臨界線量計から求めた中性子照射線量と関係付けることによって，中性子被曝のスクリーニングに用いることが出来るが，これについては，4 章で詳しく述べる。

表 3-1 臨界線量計GM管式サーベイメータおよびGM管式計数装置による測定結果

照射年月日 昭和59年11月20日  
 パルス No 1467  
 出力 3.06 \$  
 照射時刻 16:05分

時刻	TLD バッジ (インジウムを含むケースごと)		動燃型臨界線量計 (ケースごと全体)			R/E社臨界線量計 (ケースごと全体)		
	側窓型 GM 管式 サーベイメータ		端窓型 GM 管式サー ベイメータ	側窓型 GM 管式 サーベイメータ		端窓型 GM 管式サー ベイメータ	側窓型 GM 管式 サーベイメータ	
時刻	窓開	窓閉		窓開	窓閉		窓開	窓閉
16:15	1.7 mR/hr	1.4 mR/hr						
16:20			16 kcpm					
16:35				0.75mR/hr	0.45mR/hr	8.5kcpm		
16:40						0.75mR/hr	0.2 mR/hr	9.5kcpm
16:45	1.2 mR/hr	0.9 mR/hr	12 kcpm					
17:15	0.75mR/hr	0.7 mR/hr						
17:20			6.5kcpm					
17:35				0.32mR/hr	0.25mR/hr	4.0kcpm		
17:40						0.3 mR/hr	0.1 mR/hr	3.5kcpm
17:45	0.46mR/hr	0.42mR/hr	5.0kcpm					
18:05	0.40mR/hr	0.33mR/hr		0.18mR/hr	0.13mR/hr	3.0kcpm		
18:10	0.30mR/hr	0.26mR/hr	3.5kcpm			0.18mR/hr	0.06mR/hr	3.0kcpm

時刻	動燃型臨界線量計中 のインジウム		動燃型臨界線量計中の金				動燃型臨界線量計中の銅	
	カドミウム無	カドミウム有	カドミウム無	カドミウム有	カドミウム無	カドミウム有	カドミウム無	カドミウム有
測定器	GM管式 計数装置 (上段)		端窓型 GM 管式 サーベイメータ		GM管式 計数装置 (上段)		端窓型 GM 管式 サーベイメータ	
18:25	21kcpm							
18:26		1.5kcpm						
18:31			800cpm					
18:33				B G			B G	B G
18:40					608cpm	72cpm		
18:55								

表3-2 臨界線量計のGM管式サーベイメータおよびGM管式計数装置による測定結果

照射年月日 昭和59年11月21日  
 パルス No 1468  
 出力 3.06 \$  
 照射時刻 10:50分

試料	動燃金		TLDバッジ(インジウムを含むケースごと)		R/E社臨界線量計(全体)	R/E社インジウム		
	カドミウム無	カドミウム有				カドミウム無	カドミウム有	
測定器	GM管式計数装置(上段)		側窓型GM管式サーベイメータ		端窓型GM管式サーベイメータ	端窓型GM管式サーベイメータ	GM管式計数装置(下段)	
時刻			窓開	窓閉				
11:48	472 cpm	75 cpm	0.13 mR/hr	0.11 mR/hr	1.2 K cpm	400 cpm	522 cpm	69 cpm
11:51								
14:10								
14:11								
14:12								
14:15								
14:19								
14:23								

試料	R/E社金		R/E社インジウム		R/E社金	動燃インジウム	
	カドミウム無	カドミウム有	カドミウム無	カドミウム有	カドミウム無	カドミウム無	カドミウム有
測定器	GM管式計数装置(上段)		端窓型GM管式サーベイメータ		端窓型GM管式サーベイメータ	GM管式計数装置(下段)	
時刻							
14:26	30 cpm	52 cpm	1.5 K cpm	200 cpm	B G	1,038 cpm	92 cpm
14:31							
14:34							
14:35							
14:36							
15:20							
15:24							

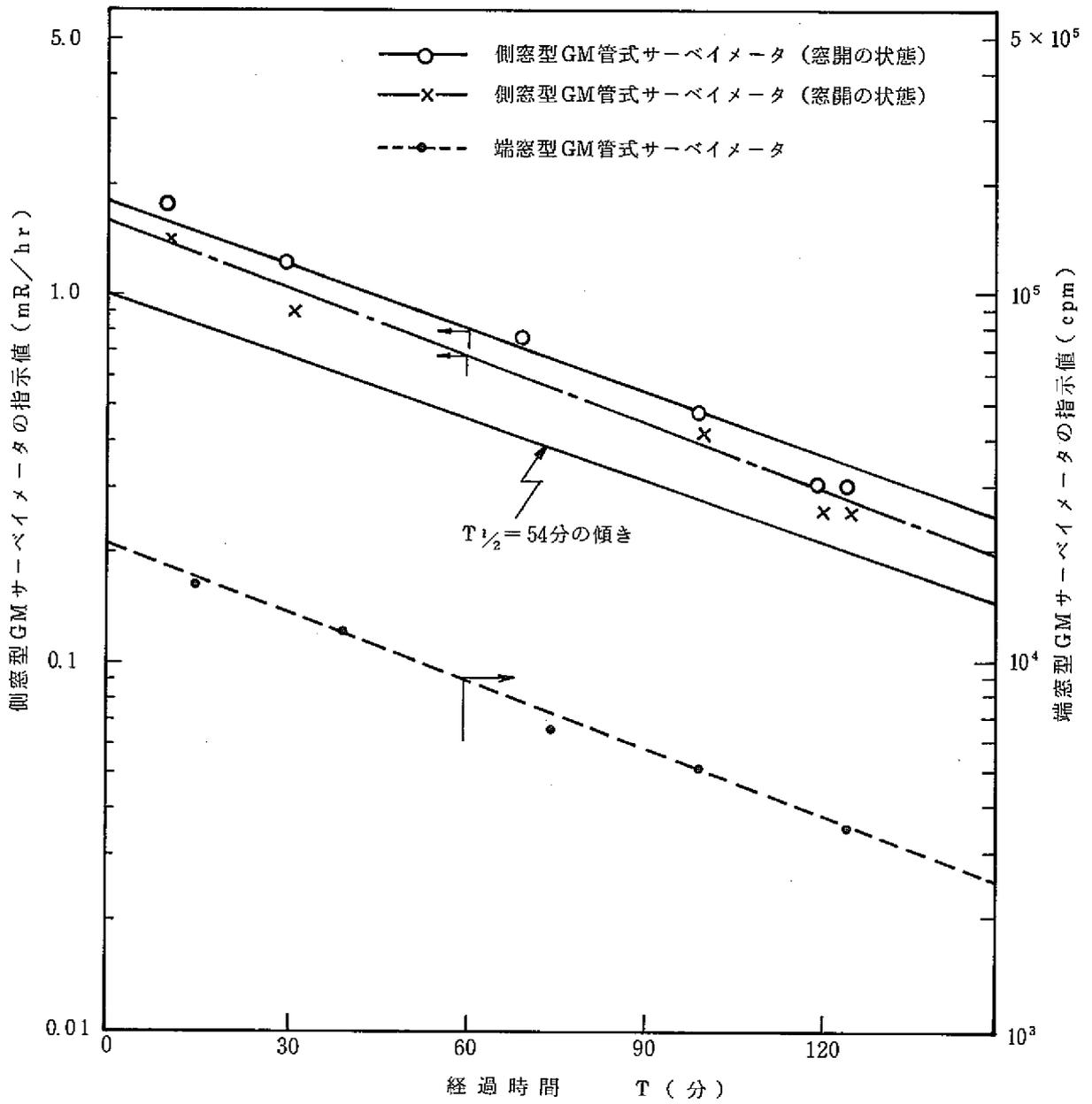


図3-1 TLDバッジ(インジウムを含むケースごと)の誘導放射能追跡結果

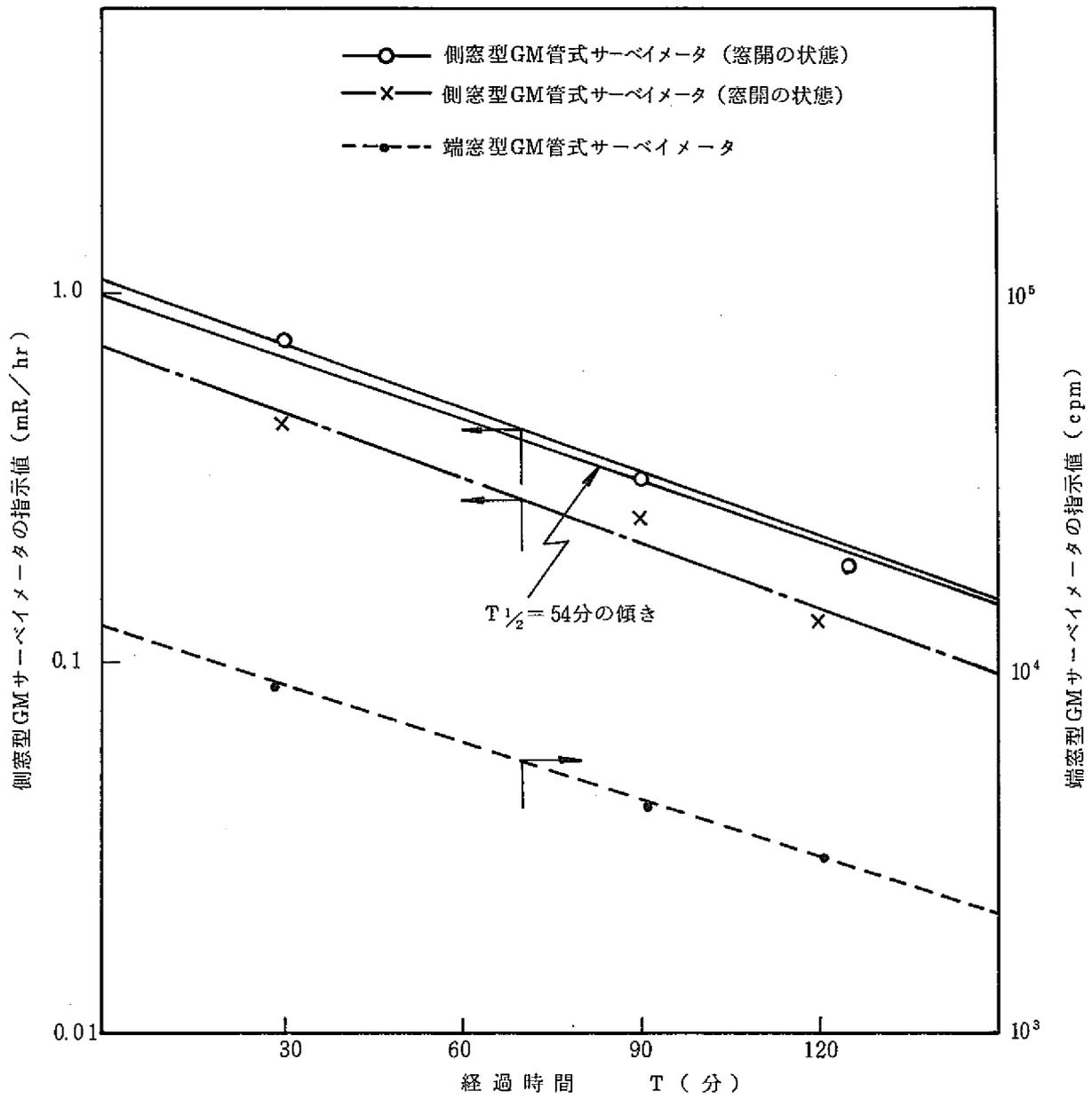


図 3-2 動燃型臨界線量計の誘導放射能減衰  
(昭和 59 年 11 月 20 日照射)

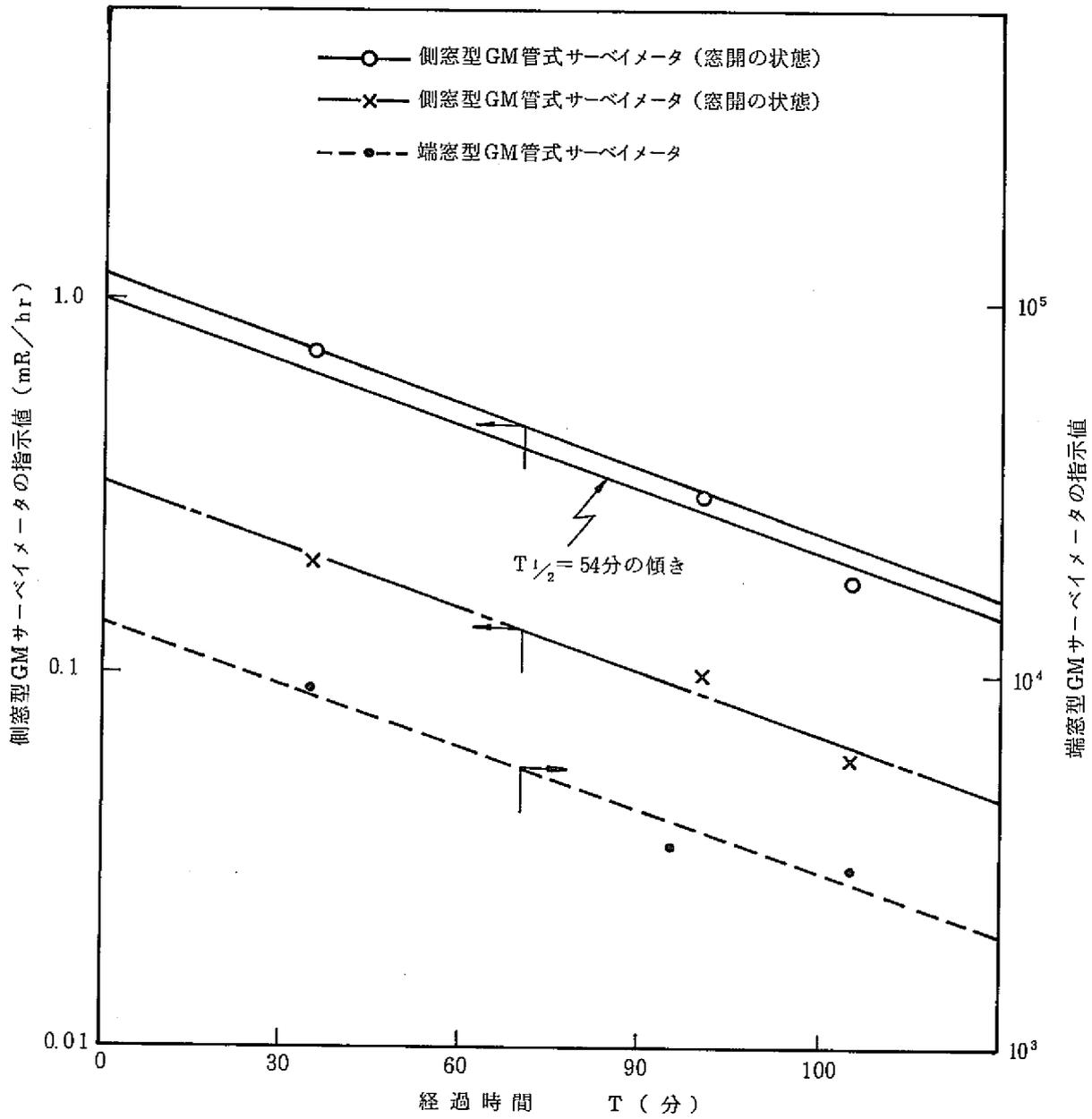


図3-3 R/E社臨界線量計の誘導放射能減衰  
(昭和59年11月20日照射)

### 3.2 臨界線量計中の金属箔および $^{32}\text{P}$ の放射能測定結果

動燃型臨界線量計およびR/E社臨界線量計内の金属箔のうち、金、金(カドミウム)、インジウム、インジウム(カドミウム)各試料計8個はGe(Li)半導体検出器を用いて $\gamma$ 線測定を行い、 $^{64}\text{Cu}$ および $^{32}\text{S}(n,p)^{32}\text{P}$ 反応で生成する $^{32}\text{P}$ については低バックグラウンドガスフローカウンタを用いて測定をした。その結果を表3-3に示す。Ge(Li)半導体検出器を用いて測定した $\gamma$ 線スペクトルを図3-4から図3-13に示す。

使用したGe(Li)半導体検出器の効率曲線を図3-14と図3-15に示す。

また、両臨界線量計のうち半減期の長い $^{64}\text{Cu}$ および $^{32}\text{P}$ については生成した放射能の減衰を2週間にわたり測定した。その結果を表3-4と図3-16から図3-18に示す。この結果、 $^{64}\text{Cu}$ 、 $^{32}\text{P}$ の各半減期と一致した結果が得られた。この結果から銅は $^{64}\text{Cu}$ が、硫黄は $^{32}\text{P}$ が大部分で、他の核種は含まれていないものと思われる。

尚、 $^{32}\text{P}$ については動燃型臨界線量計に収納されている300mgのもの他に3種類重量を変えた硫黄ペレット試料を照射し、重量と生成放射能の関係を測定した。その結果を図3-19に示す。図3-19から明らかなように重量と測定値には良い直線性があること、また現在動燃型線量計内に収納されている質量300mgの硫黄でも低バックグラウンドガスフローカウンタを用いれば十分測定可能な $^{32}\text{P}$ の放射能が生成することがわかった。

表 3-3 臨界線量計中の金属箔及び硫黄の誘導放射能測定結果

使用測定器 低バックグラウンド  
 ガスフローカウンタ (銅, 硫黄)  
 Ge 半導体検出器 (金, インジウム)

線量計の種類	試料名	重量(mg)	測定時刻	照射から測定までの経過時間	測定値 (測定時間)	測定中の減衰・ 補正後の放射能	照射直後の 放射能強度
R / E 社 臨界線量計	金	4.4	11月21日 PM 4:30	330分	$6.4 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	————	$6.8 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$
	金 (カドミウム)	4.5	11月21日 PM 4:30	330分	$1.0 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	————	$1.1 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$
	インジウム	28.7	11月21日 PM 2:40	220分	$3.8 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	$5.1 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$	$8.6 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}$
	インジウム (カドミウム)	31.1	11月21日 PM 2:40	220分	$3.2 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	$4.3 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	$7.2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$
	銅 (カドミウム)	146.5	11月21日 PM 7:07	547分	$3.9 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$ (3600 sec)	$4.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	$5.8 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$
	硫黄	460.5	11月27日 PM 2:25	147.4時間	$2.7 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$ (3600 sec)	————	$3.6 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$
動燃型 臨界線量計	金	202.0	11月21日 PM 1:15	135分	$3.7 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	————	$3.8 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$
	金 (カドミウム)	196.0	11月21日 PM 1:15	135分	$3.4 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	————	$3.5 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$
	インジウム	78.5	11月21日 PM 3:45	285分	$\text{In}^{115\text{m}} 3.4 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ $\text{In}^{116\text{m}} 8.9 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	$4.6 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ $1.2 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	$1.8 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ $4.7 \times 10^{-1} \mu\text{Ci}$
	インジウム (カドミウム)	82.2	11月21日 PM 3:45	285分	$\text{In}^{115\text{m}} 3.1 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ $\text{In}^{116\text{m}} 7.4 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	$4.2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ $10.0 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	$1.6 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$ $3.92 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}$
	銅 (カドミウム)	97.1	11月21日 PM 6:06	426分	$4.6 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$ (3600 sec)	$4.7 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	$6.4 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$
	硫黄	332.2	11月24日 PM 11:56	72.1時間	$4.2 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$ (3000 sec)	————	$4.9 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$
硫黄	硫黄-1	1,028.3	11月21日 PM 2:57	337時間	$8.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$ (600 sec)	————	$1.58 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$
	硫黄-2	2,073.9	11月21日 PM 3:07	338時間	$1.5 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ (600 sec)	————	$3.0 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$
	硫黄-3	3,085.5	11月21日 PM 4:02	339時間	$2.4 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$ (600 sec)	————	$4.8 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$

表3-4 銅および硫黄の誘導放射能減衰測定結果

試料名	重量 (mg)	測定時刻 測定値 ①	②	③	④	⑤
動燃型臨界 線量計 銅(カドミウム)	97.1	11月21日 PM 6:06 $4.6 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	11月21日 PM 9:10 $3.1 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	11月22日 AM 0:14 $3.3 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	11月22日 AM 3:18 $2.9 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	11月22日 AM 6:22 $3.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$
R/E社臨界 線量計 銅(カドミウム)	146.5	11月21日 PM 19:07 $3.9 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	11月21日 PM 10:10 $3.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	11月22日 AM 1:14 $2.6 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	11月22日 AM 4:18 $1.9 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	11月22日 AM 7:22 $2.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$
硫黄 - 1	1,028.3	11月21日 PM 2:57 $1.2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月21日 PM 3:41 $1.2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月21日 PM 4:36 $1.2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月27日 AM 11:23 $1.1 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	12月5日 AM 12:00 $8.0 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$
硫黄 - 2	2,073.9	11月21日 PM 3:07 $2.8 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月21日 PM 3:52 $2.5 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月21日 PM 4:36 $2.9 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月27日 AM 12:24 $2.1 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	12月5日 AM 12:50 $1.5 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$
硫黄 - 3	3,085.5	11月21日 PM 3:17 $5.5 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月21日 PM 4:02 $4.7 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月21日 PM 4:46 $5.0 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	11月27日 PM 1:24 $3.6 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	12月5日 PM 1:41 $2.4 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$

銅の測定時間は3600 sec

硫黄の測定時間は①, ②, ③は600 sec, ④, ⑤は3600 secである。

11: 19 27 NOV 84  
 UNIT# 1 DT= 0%  
 TAG NO.=PNC Au 2  
 4095 CH#  
 CANBERRA

CRT=(01-16)

VFS=LOG (2↑20)

TIME (L) = 3000  
 PSET (L) = 3000

0 CH#

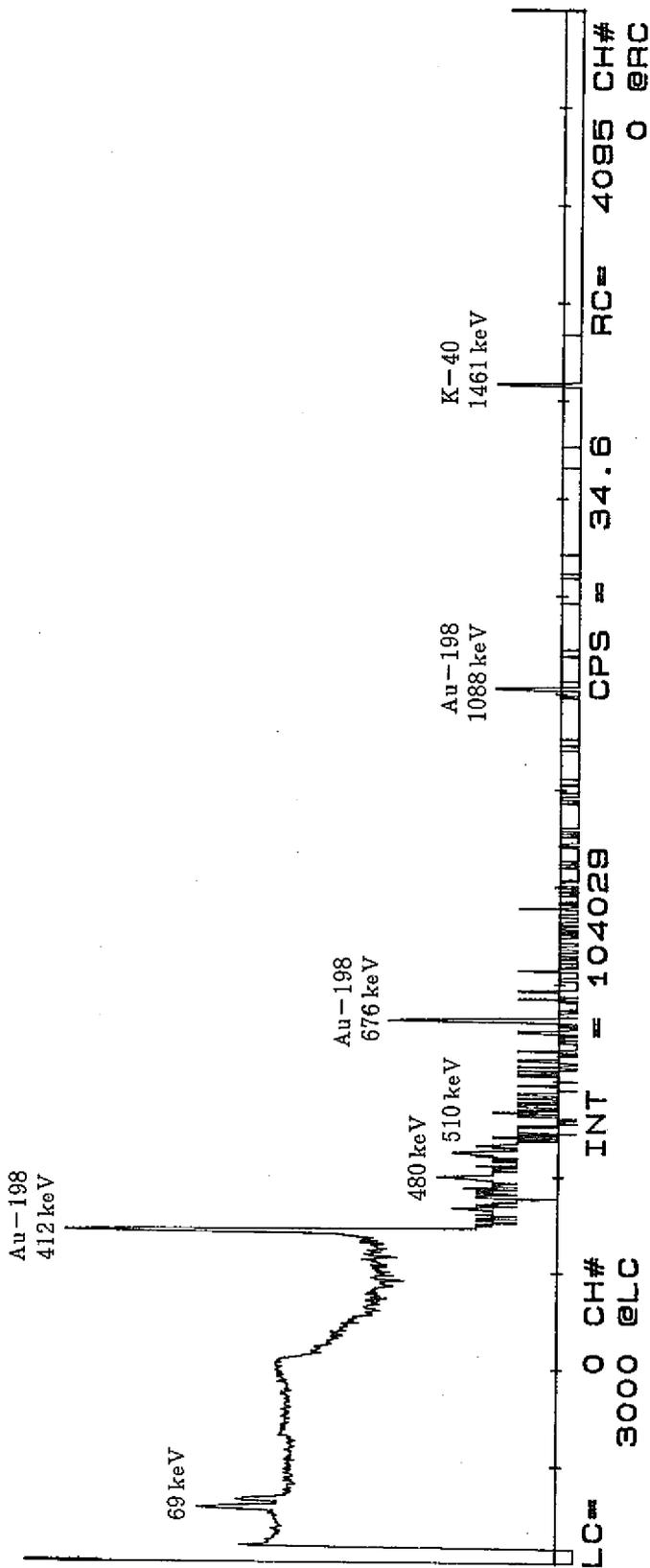


図 3 - 4 動燃型臨界線量計中金の放射化生成物  $\gamma$  線スペクトル

11: 40 27 NOV 84  
UNIT# 2 DT= 0%  
TAG NO. = PNC Au(Cd)1  
4095 CH#  
CANBERRA

CRT = (17-32)

TIME (L) = 3000  
PSET (L) = 3000

0 CH# VFS=LOG (2↑20)

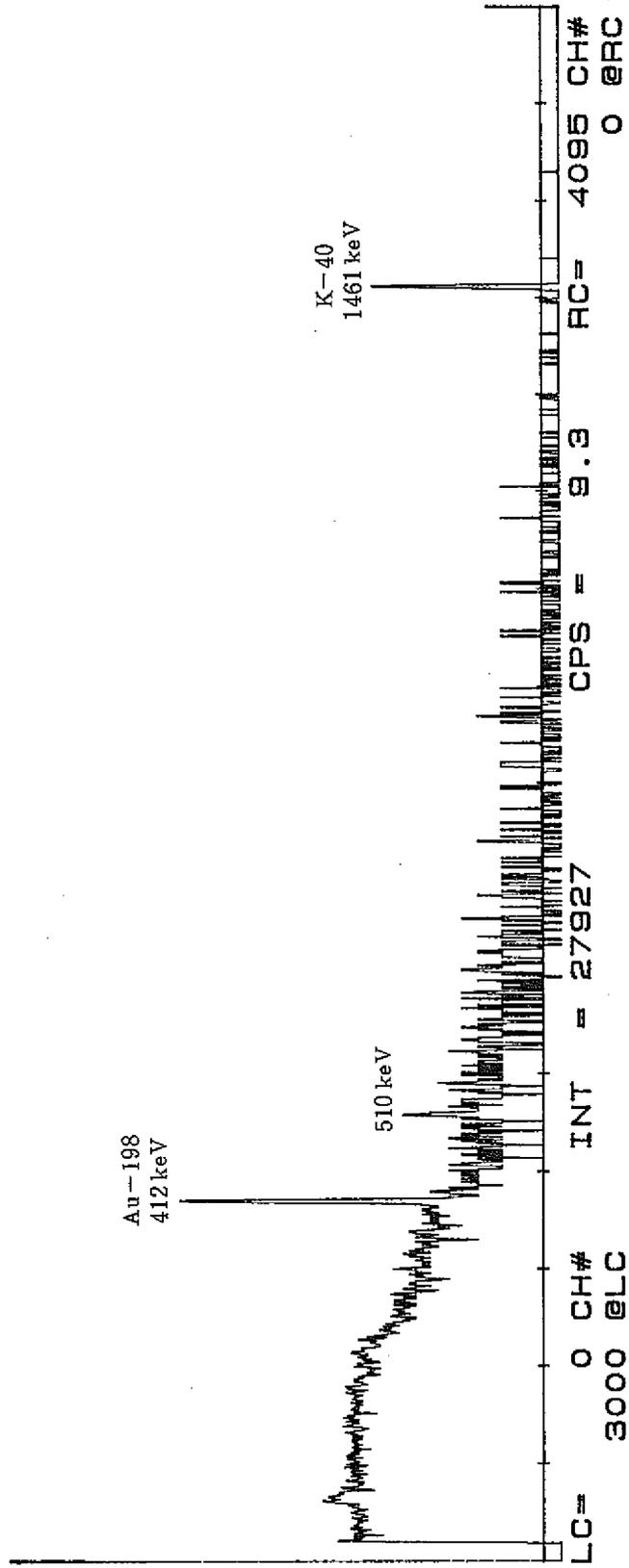


図3-5 動燃型臨界線量計中金(カドミウム)の放射化生成物γ線スペクトル

11: 29 27 NOV 84  
UNIT# 1 DT= 0%  
TAG NO.=PNC In 5  
4095 CH#  
CANBERRA

CRT=(01-16)

TIME (L) = 3000  
PSET (L) = 3000

0 CH# VFS=LOG (2↑20)

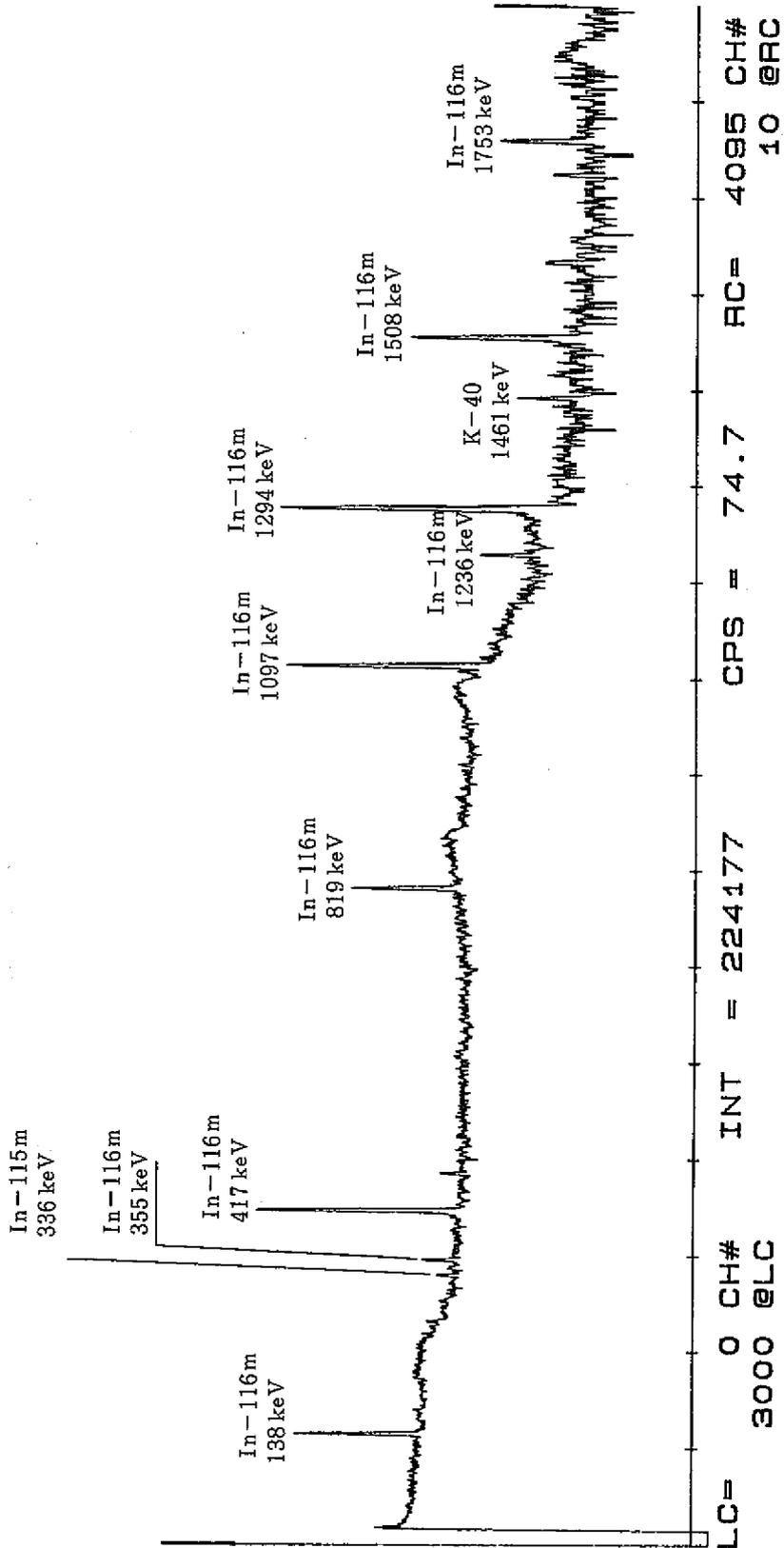


図 3-6 動燃型臨界線量計中インジウムの放射化生成物  $\gamma$  線スペクトル

11:51 27 NOV 84  
 UNIT# 2 DT= 0%  
 TAG NO. = PNC In(Cd)6  
 4095 CH#  
 CANBERRA

CRT=(17-32)

TIME (L) = 3000  
 PSET (L) = 3000

0 CH# VFS=LOG (2↑20)

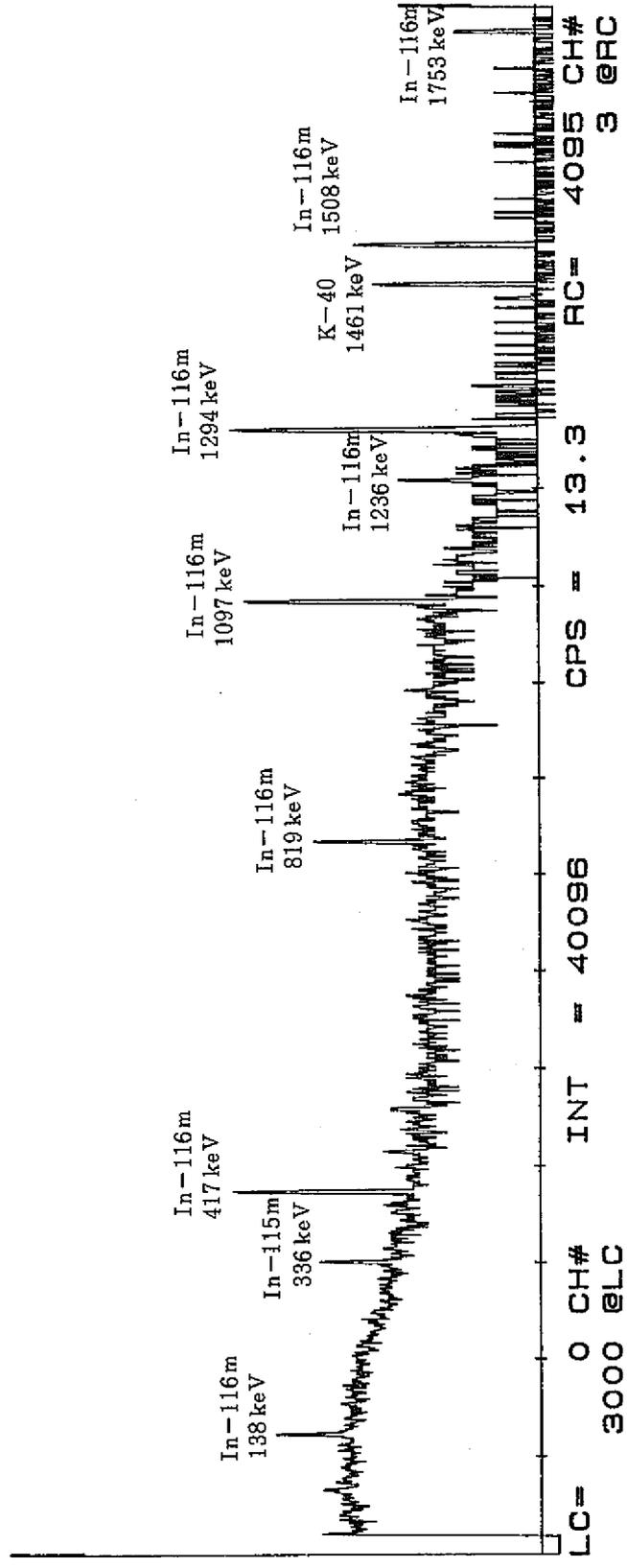


図 3-7 動燃型臨界線量計中インジウム (カドミウム) の放射化生成物  $\gamma$  線スペクトル

16:06 27 NOV 84  
UNIT# 1 DT= 0%  
TAG NO. = PNC Cu 9  
4095 CH#  
CANBERRA

CRT= (01-16)

0 CH# VFS=LOG (2↑20)

Cu-64

TIME (L) = 5000  
PSET (L) = 3000

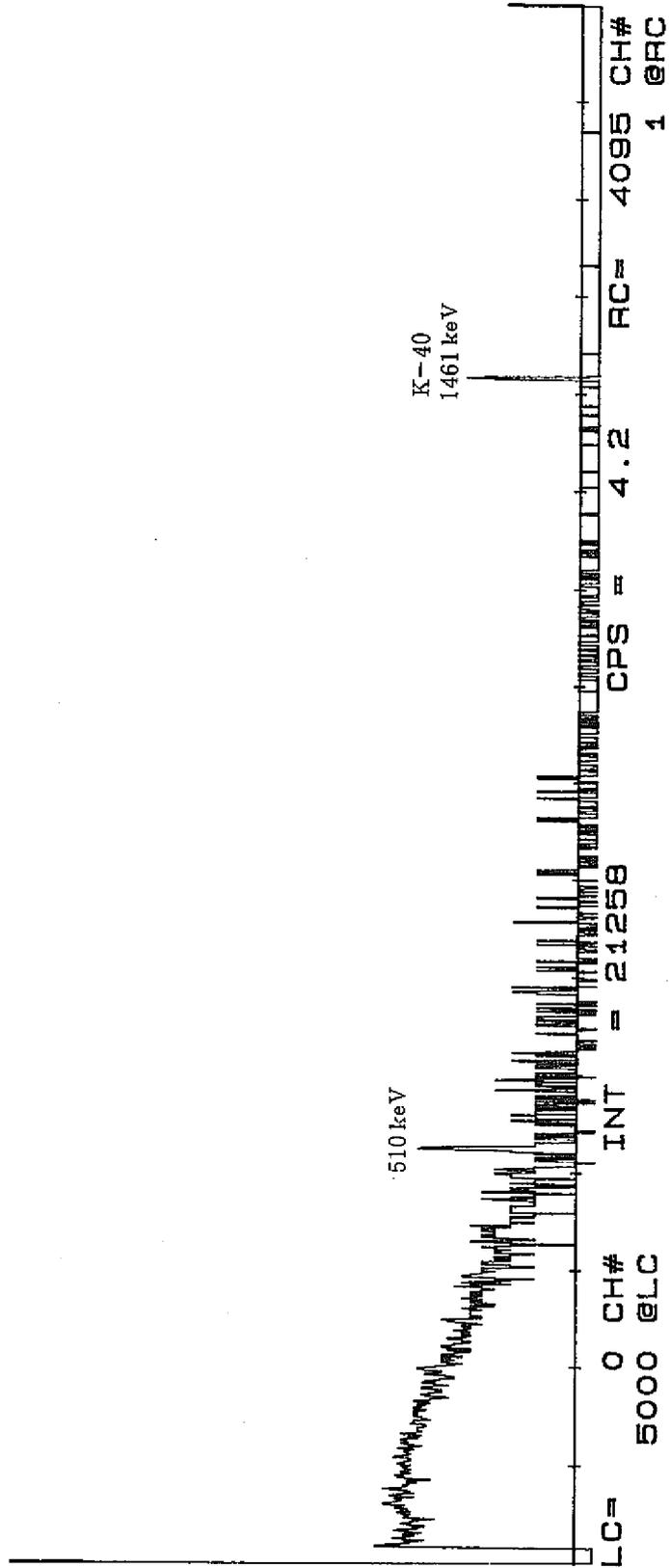


図 3-8 動燃型臨界線量計中銅 (カドミウム) の放射化生成物  $\gamma$  線スペクトル

11:35 27 NOV 84  
UNIT# 1 DT= 0%  
TAG NO. = REC Au 8  
4095 CH#  
CANBERRA

CAT = (01-16)

TIME (L) = 3000  
PSET (L) = 3000

0 CH# VFS=LOG (2↑20)

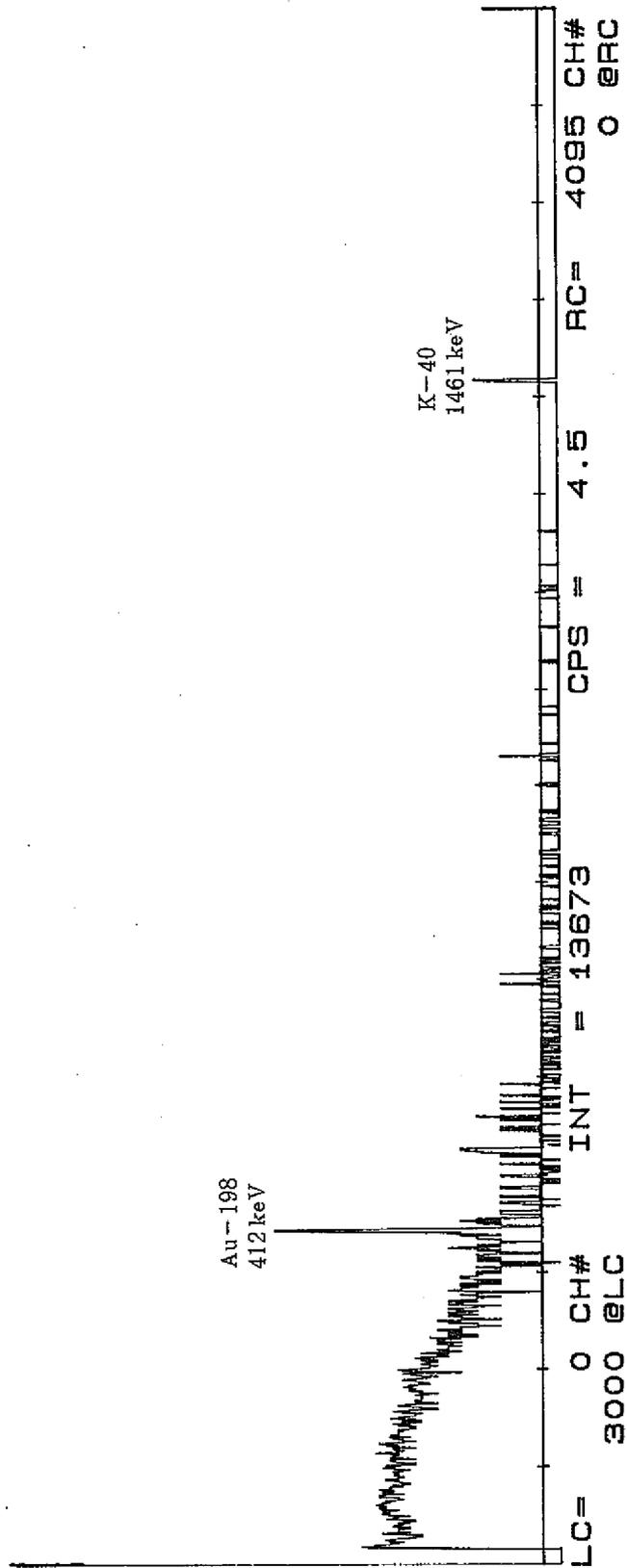


図3-9 R/E社臨界線量計中金の放射化生成物γ線スペクトル

11:57 27 NOV 84  
UNIT# 2 DT= 0%  
TAG NO. = REC Au (Cd)7  
4095 CH#  
CANBERRA

CRT= (17-32)

TIME (L) = 3000  
PSET (L) = 3000

0 CH# VFS=LOG (2↑20)

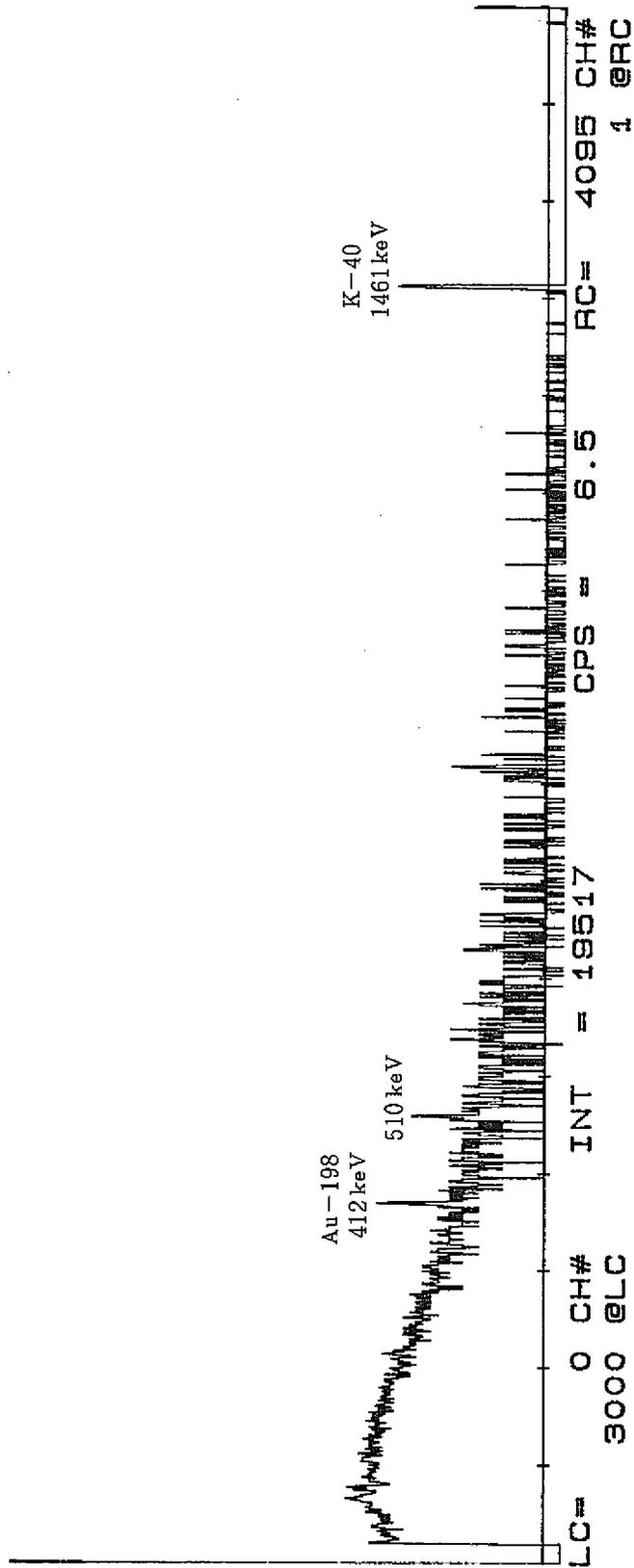


図3-10 R/E社臨界線量計中金(カドミウム)の放射化生成物γ線スペクトル

11: 46 27 NOV 84  
 UNIT# 2 DT= 0%  
 TAG NO.=REC In 4  
 4095 CH#  
 CANBERRA

CRT=(17-32)

TIME (L) = 3000  
 PSET (L) = 3000

0 CH# VFS=LOG (2↑20)

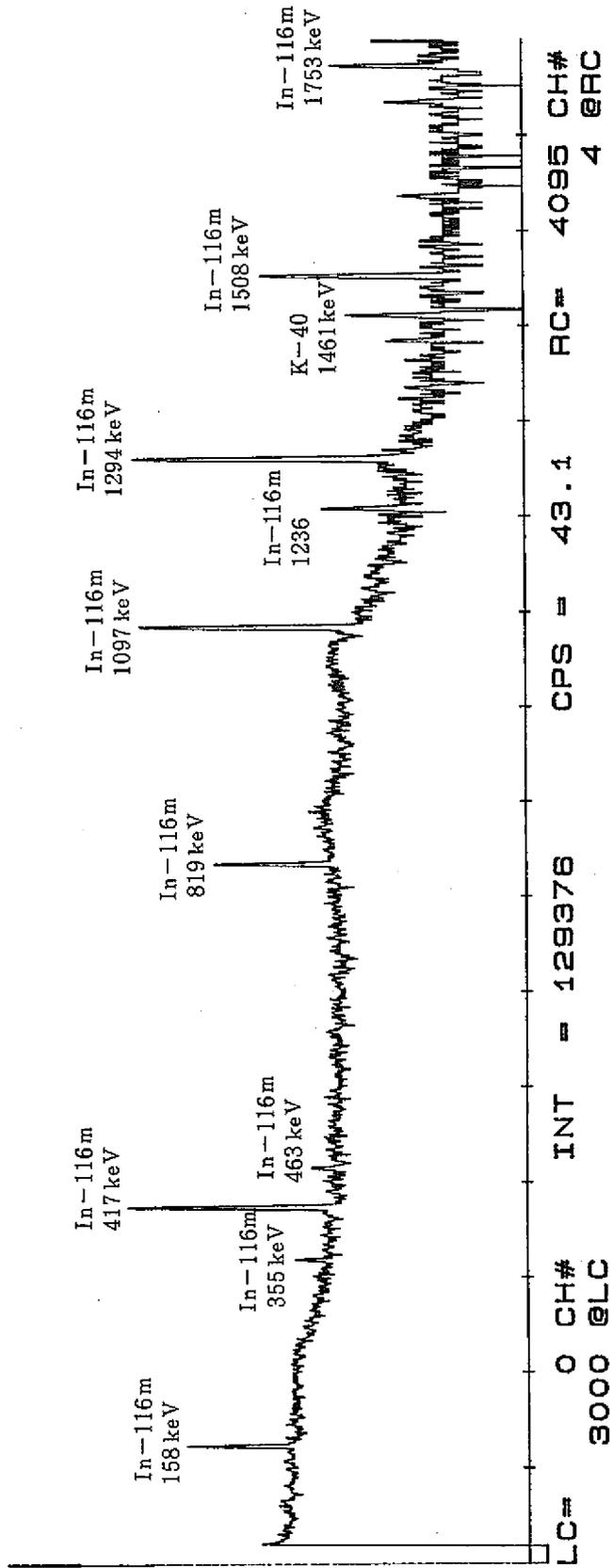


図3-11 R/E社臨界線量計中インジウム放射性生成物の放射線スペクトル

11: 23 27 NOV 84  
 UNIT# 1 DT= 0%  
 TAG NO. = REC In(Cd)3  
 4095 CH#  
 CANBERRA

CRT=(01-16)

TIME(L) = 3000  
 PSET(L) = 3000

0 CH# VFS=LOG(2↑20)

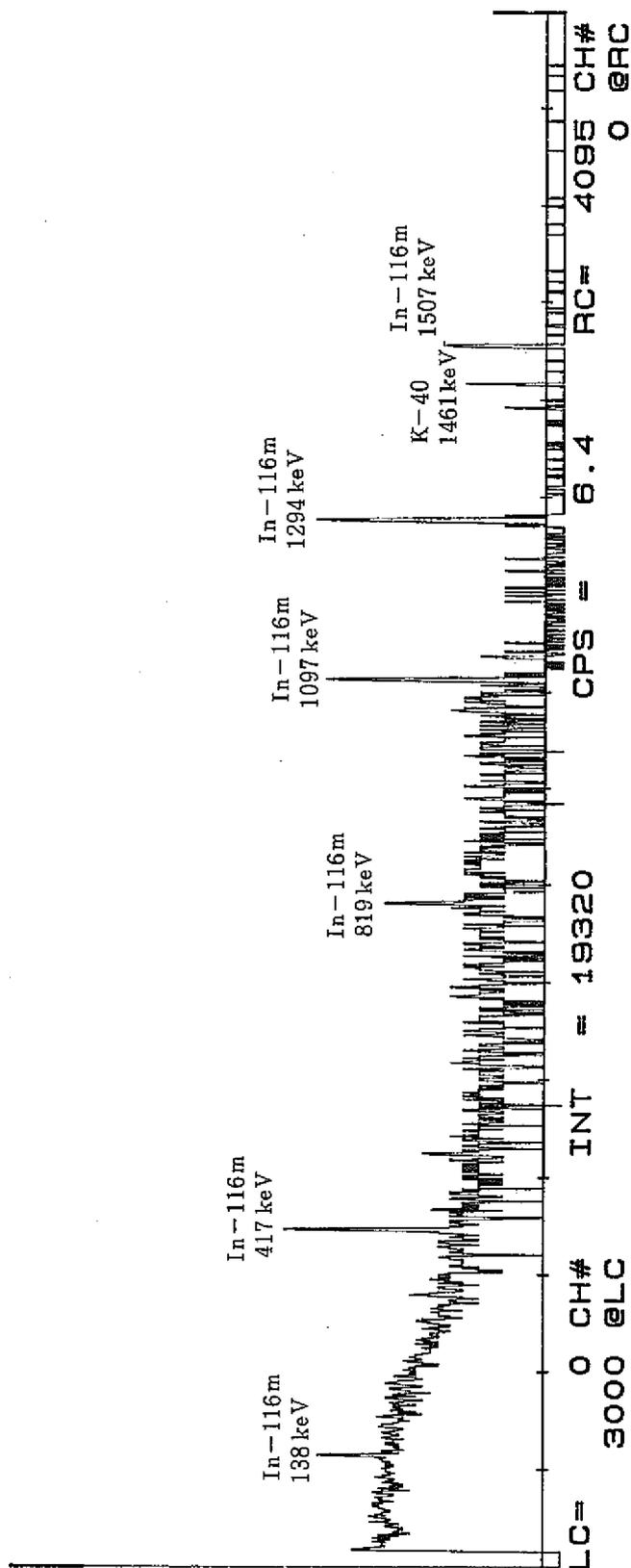


図3-12 R/E社臨界線量計中インジウム(カドミウム)の放射化生成物 $\gamma$ 線スペクトル

15:51 28 NOV 84  
UNIT# 1 DT= 0%  
TAG NO.= 0  
4095 CH#  
CANBERRA

TIME (L) = 5000  
PSET (L) = 5000

CAT = (01-16)

0 CH# VFS=LOG (2↑20)

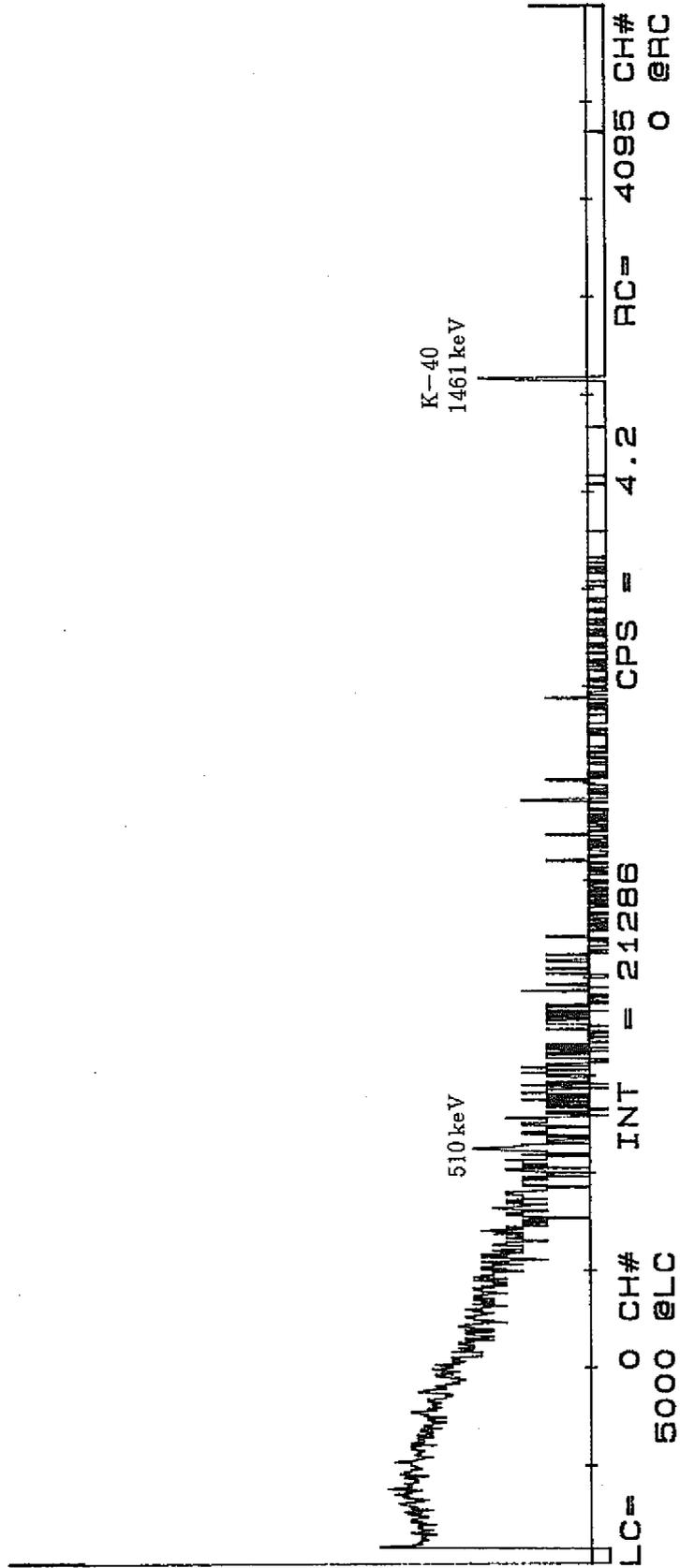


図 3-13 Ge (Li) 半導体検出器のバックグラウンド線スペクトル

Efficiency curve of detector no. 1 geometry no. 5

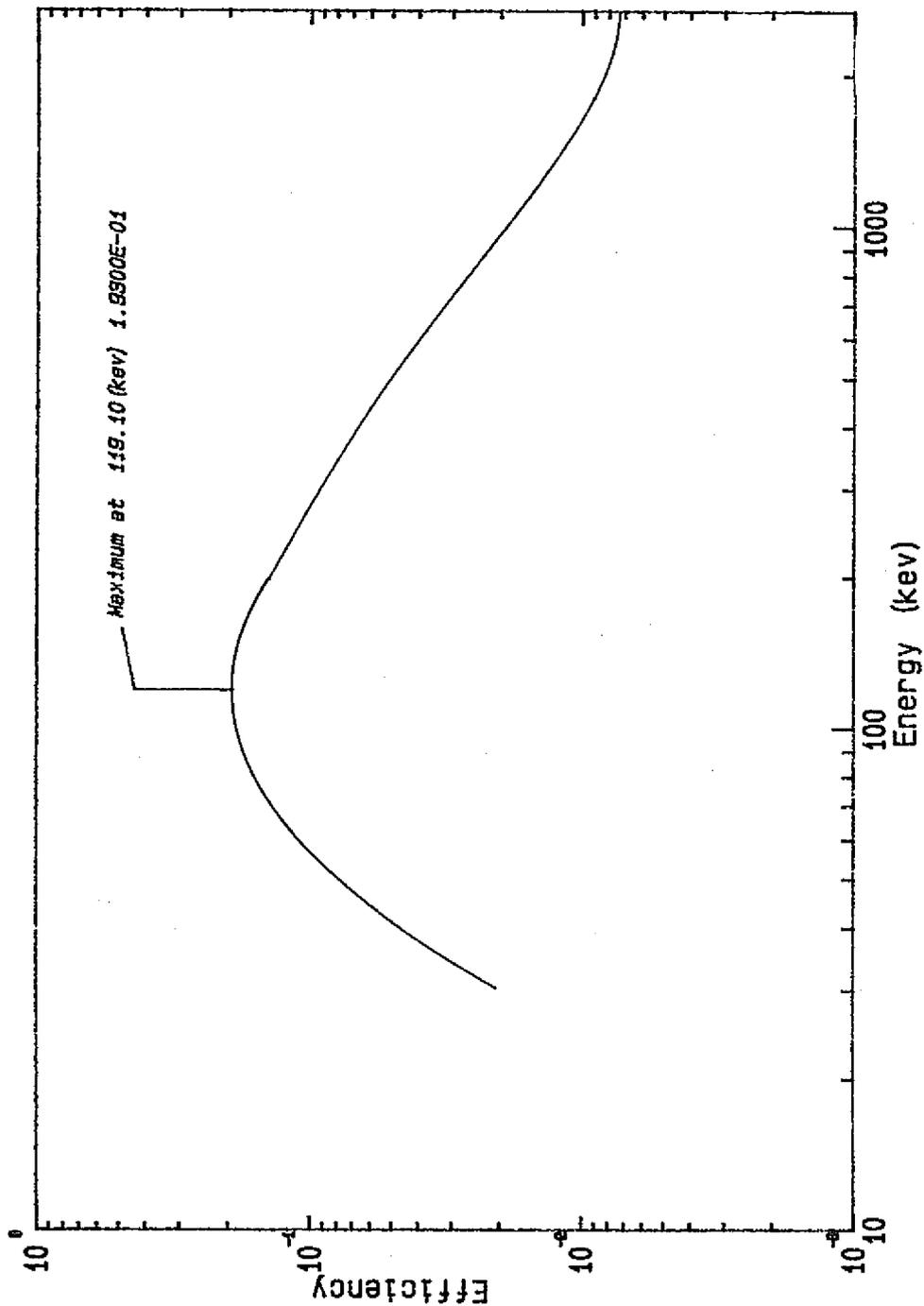


図3-14 Ge(Li) 半導体検出器 (No.1) の効率曲線

Efficiency curve of detector no. 2 geometry no. 5

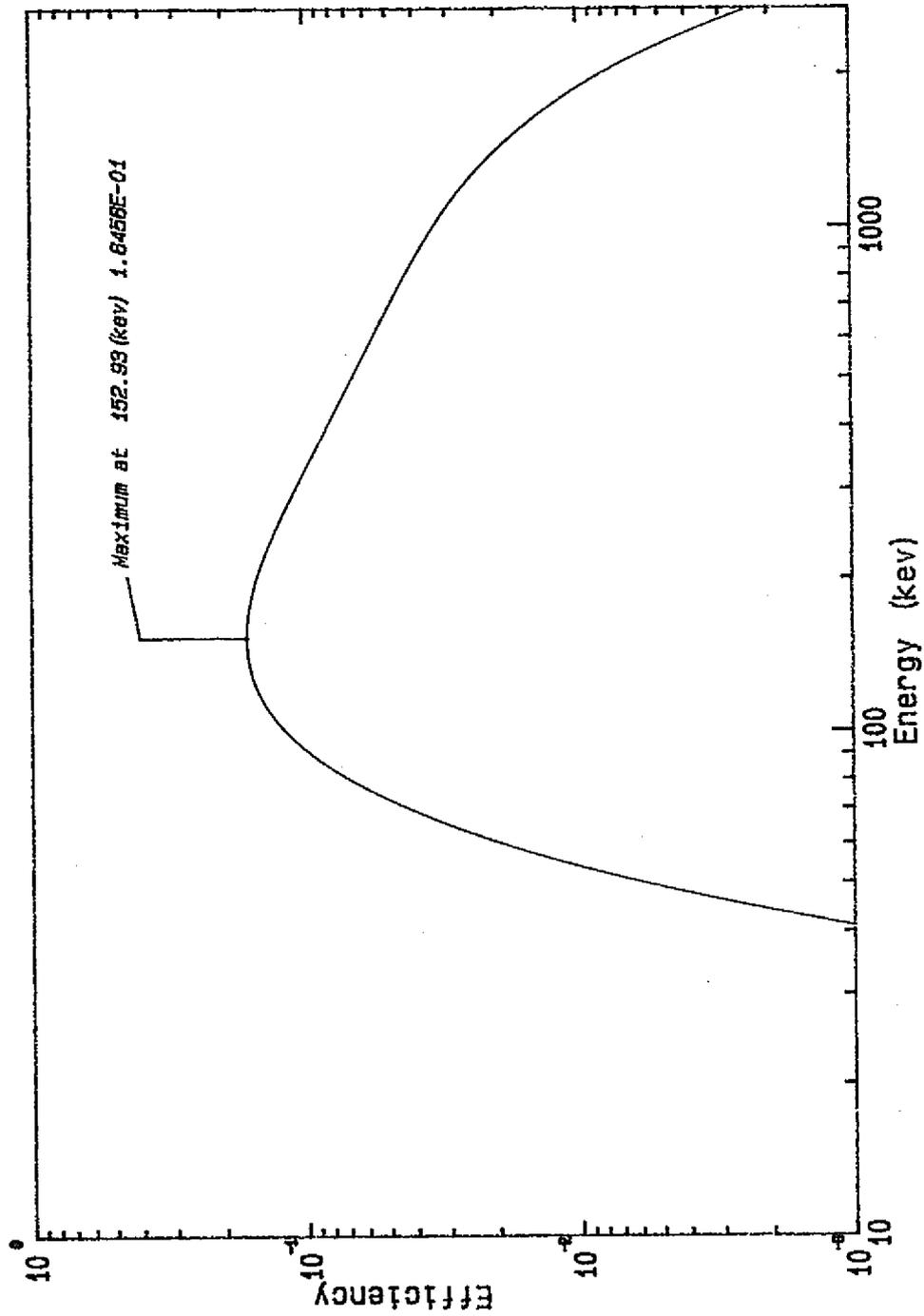


図 3-15 Ge(Li) 半導体検出器 (No.2) の効率曲線

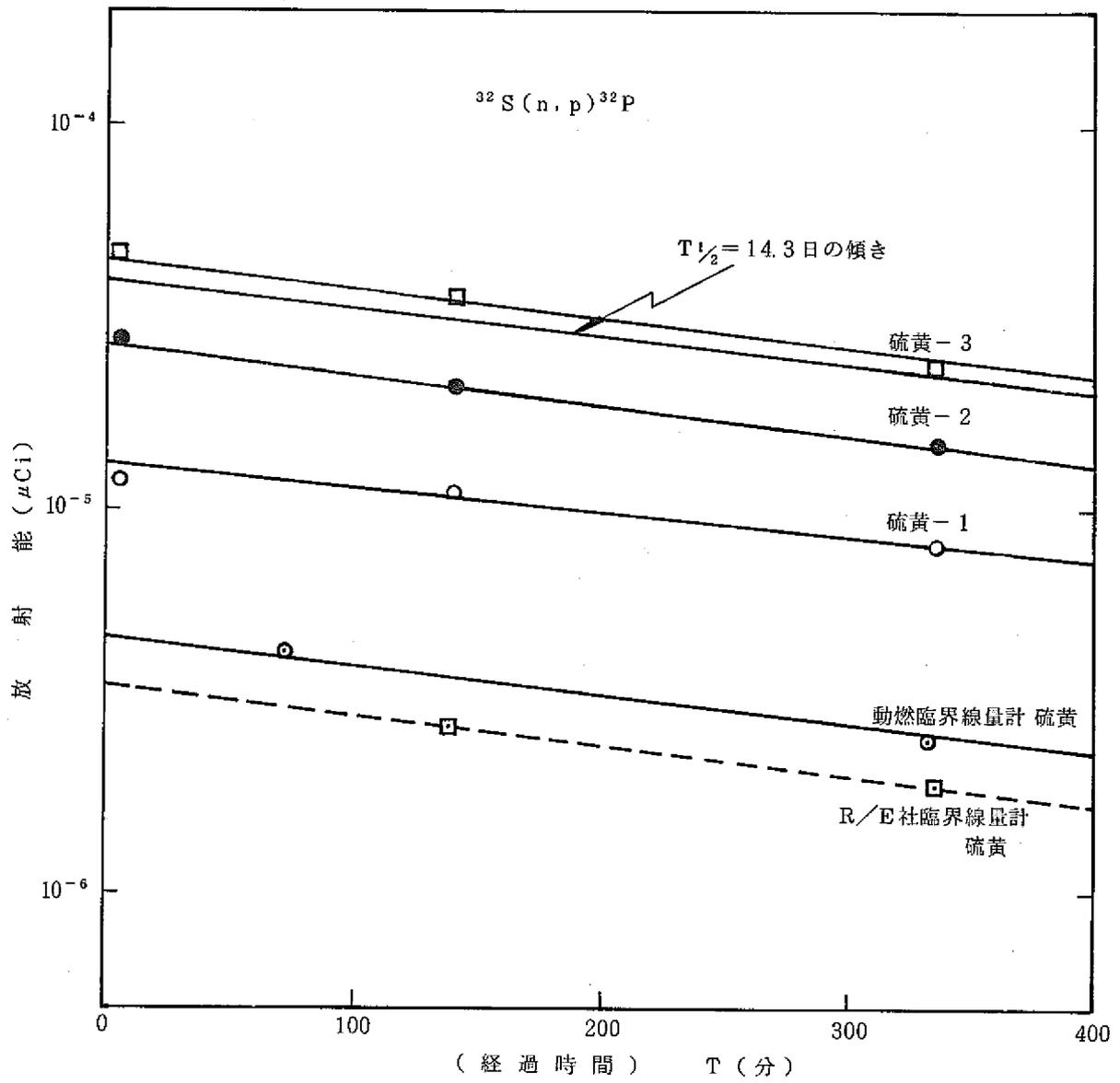


図3-16 硫黄放射化生成物の放射能減衰

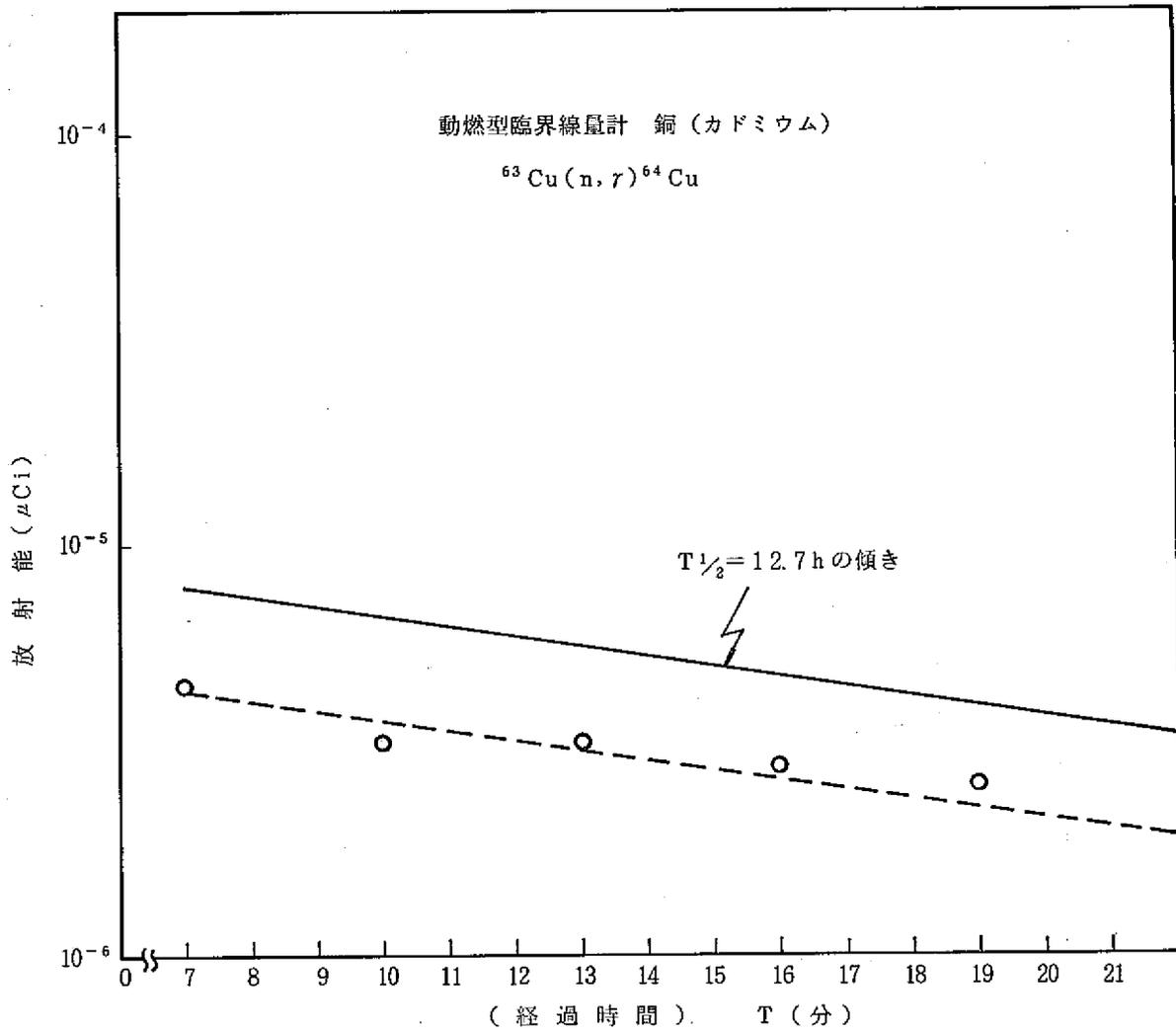


図3-17 銅放射化生成物の放射能減衰

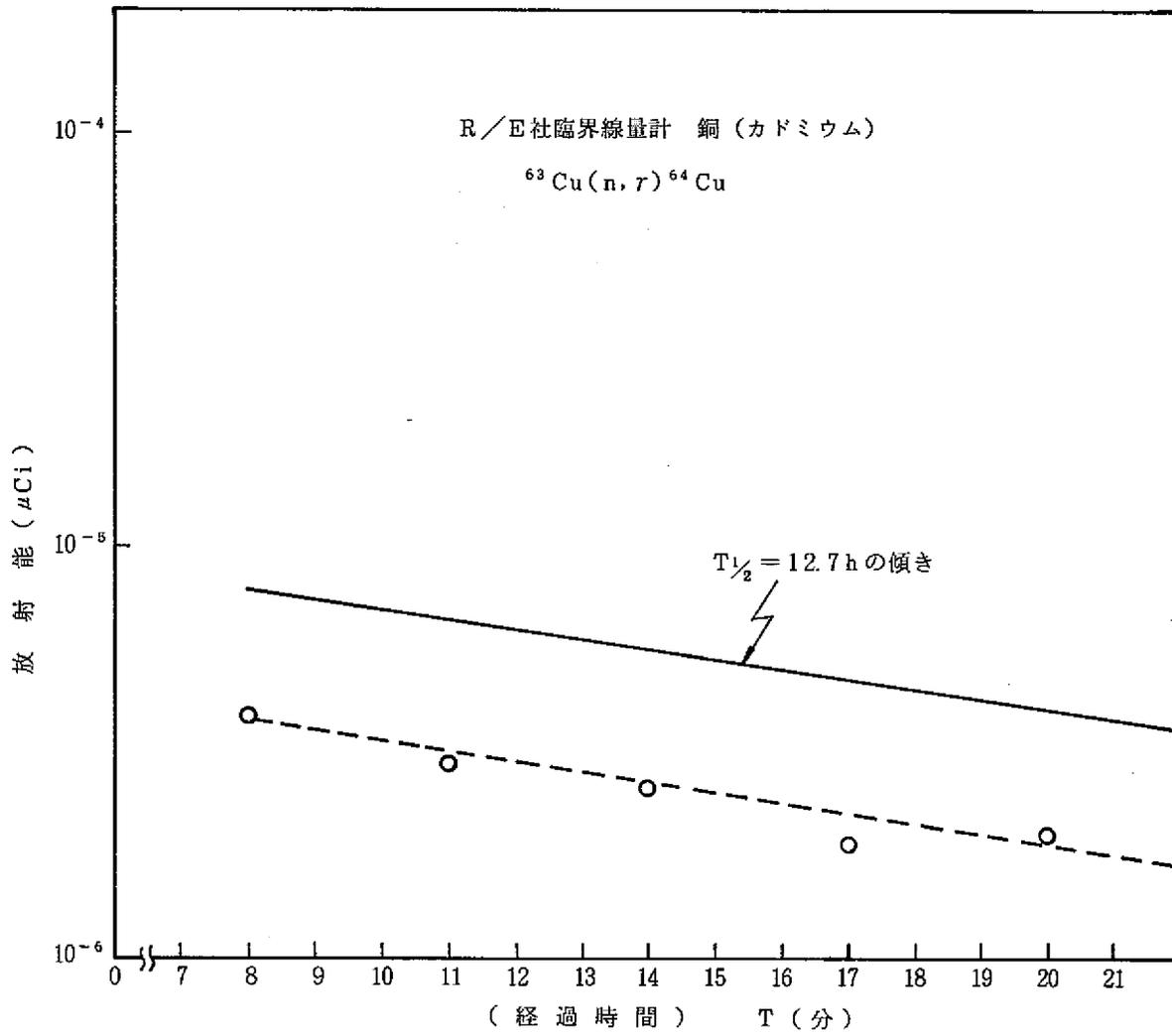


図3-18 銅放射化生成物の放射能減衰

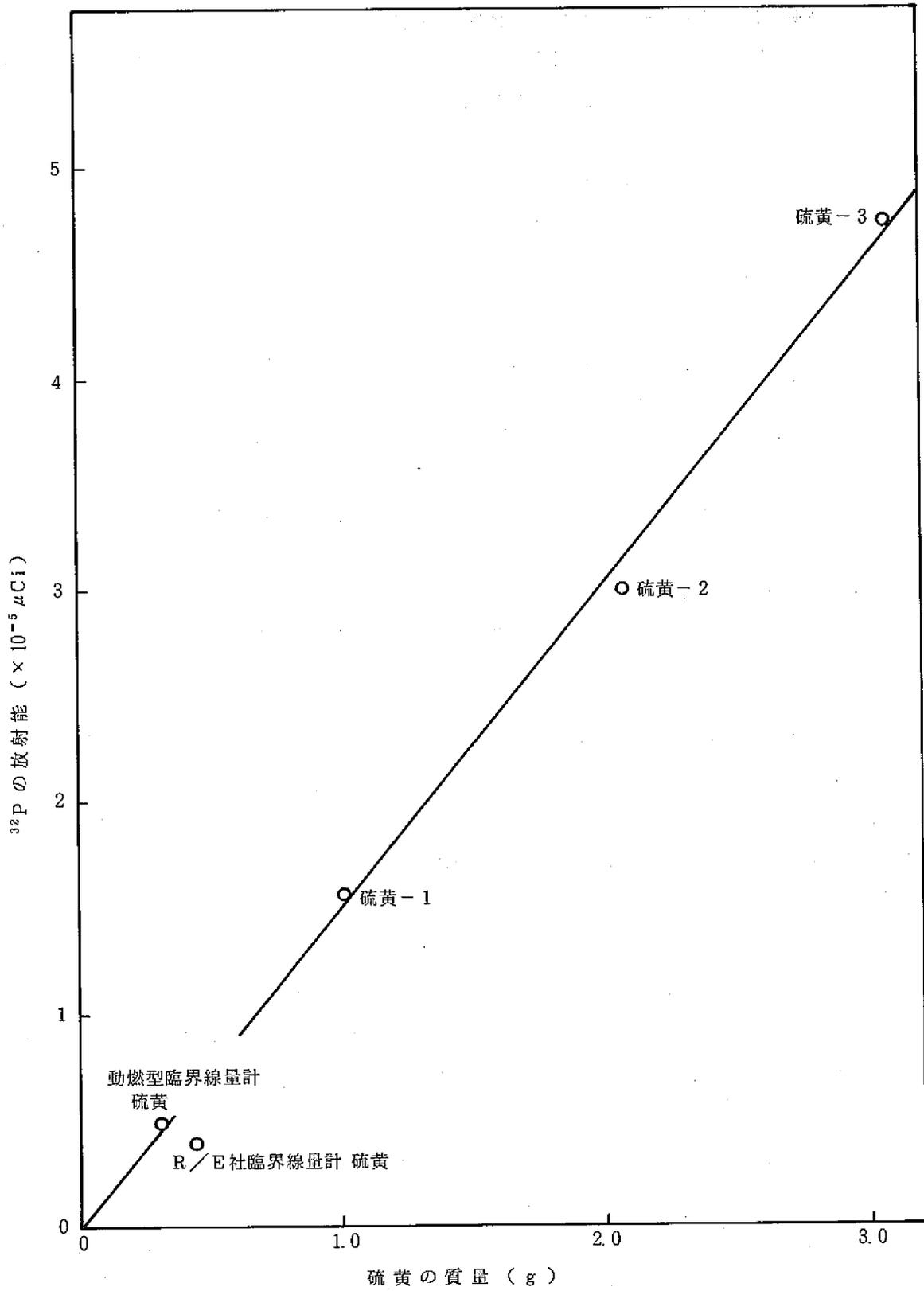


図3-19 硫黄の質量と生成放射能の関係

### 3.3 TLD素子による $\gamma$ 線量および中性子線量の測定結果

NSRRにて照射したTLDバッジをTLD自動リーダ（松下製UD-710P）にて測定し、 $\gamma(X) \cdot \beta$ 線量計と中性子線量計のTLD素子発光量を求めた。その結果を表3-20に示す。

表3-20 TLDバッジに於るTLD素子の測定結果

RUN	条 件	T L D		TLD発光量(mR $\cdot$ eg $\cdot$ r)				評価線量	
		種 類	No	T <sub>1</sub>	T <sub>2</sub>	T <sub>3</sub>	T <sub>4</sub>		
1	照射日 11月20日 NSRR出力 3.06 \$ 測定日 11月21日	$\gamma \cdot \beta$ 線用 (UD-808 P)	8823115	16.2	18.0	44.9	24.1	$\gamma$	-
		中性子線用 (UD-809 P)	9823115	57.6	179	35.9	93.0	n <sub>th</sub>	3.9 rem
2	照射日 11月21日 NSRR出力 3.06 \$ 測定日 11月22日	$\gamma \cdot \beta$ 線用 (UD-808 P)	8821579	13.6	15.8	32.7	20.6	$\gamma$	-
		中性子線用 (UD-809 P)	9821579	23.4	143	28.6	73.7	n <sub>th</sub>	3.1 rem

まず、 $\gamma$ 線については、通常TLDバッジの $\gamma(X) \cdot \beta$ 線量計（UD-808p）の第4素子を利用して線量評価を行う。

しかし、臨界事故時のように大線量の照射で、且つ、 $\gamma$ 線と中性子線が混在する場合には、 ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子から $\gamma(X)$ 線量の評価を行う際に、

- ① 大線量照射に対するTLD素子の応答特性
- ②  ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子に対する中性子の寄与

などが線量評価上問題となる。このうち、大線量照射に対するTLD素子の応答特性としては、 $\gamma$ 線源を用いた照射試験の結果、 ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子では10mR～約100Rの領域で良好な線量直線性が確認されており、今回は、数10R程度の線量である。

一方 ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子に対する中性子の影響は、

- ①  ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子の中には不純物として多少の ${}^6\text{Li}$ と ${}^{10}\text{B}$ が含まれている。

TLD素子におけるLiとBの濃縮率を表3-21に示す。 ${}^{10}\text{B}$ と ${}^6\text{Li}$ が熱中性子との(n,  $\alpha$ )反応により ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子はわずかながら中性子に対しても感度を有している。尚、中性子の ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子に対する寄与は、TLDに組込まれているフィルター中での中性子の減速の程度によっても変化するため、 $\gamma(X) \cdot \beta$ 線量計の ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子1, 2, 4, (#1, #2, #4)に対して必ずしも同一ではない。

表3-21 TLD素子における ${}^6\text{Li}$ ,  ${}^7\text{Li}$ と ${}^{10}\text{B}$ ,  ${}^{11}\text{B}$ の濃縮率

TLD素子	濃 縮 度 ( % )			
	Li		B	
	${}^6\text{Li}$	${}^7\text{Li}$	${}^{10}\text{B}$	${}^{11}\text{B}$
${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$	0.054 %	99.946 %	0.631 %	99.369 %
${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$	95.56 %	4.44 %	95.14 %	4.86 %

② 中性子線量計のCdフィルターあるいはバッジケース内側に貼られているCdシールド(熱中性子のまわり込み防止用)と熱中性子の反応によって生じる捕獲 $\gamma$ 線の ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子への寄与。

などが考えられる。例えば、今回の照射における $\gamma$ 線量は第1回目の照射(11/20)の場合では $\gamma(X)$ 線量評価用の1000 mg/cm<sup>2</sup>樹脂フィルター下の ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子( $\gamma$ ・ $\beta$ 線量計の第4素子: #4)による評価では約24Rであった。

この24Rの中には、樹脂フィルター中での減速した中性子の寄与も含まれるため、 $\beta$ 線量評価用の ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子(第1素子#1, 第2素子#2)により $\gamma$ 線量を求めることがより適当でありこれから求めた $\gamma$ 線量は各々15R及び18Rであった。

また、原研において同一照射場にて、BeO TLD素子(UD-170A)を用いて求めた $\gamma$ 線量は16.4Rであり、これと比較した結果から考えても、大線量の中性子が混在する場合の $\gamma(X)$ 線量の評価は、 $\beta$ 線量評価用の ${}^7\text{Li}_2{}^{11}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 素子を利用(但し、 $\beta$ 線の被曝が無い場合)することが適切である。

一方、中性子線の評価については、現在使用しているTLDバッジでは人体中で減速・散乱した中性子を ${}^6\text{Li}_2{}^{10}\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ で検出する方法(アルベド法)を採用しており、TLDバッジが人体あるいはそれを模擬したファントムに固定されていないと速・熱外中性子線量の評価を行うことは出来ない。さらに速中性子線に対してはそのエネルギーによりTLDバッジの感度は変化する。今回の照射においてはファントムの大きさとして不充分と考えられること、また中性子線のエネルギーが正確に評価されていないため、TLD素子の発光量から速及び熱外中性子線量を算出することは出来ない。

このため表3-20においては中性子線量計の各TLD素子の発光量だけを参考として示した。熱中性子線については、次の線量当量評価式から線量を求めた。

$$D_{Tn} = 0.033 \{ T_2 - T_3 \}$$

$T_2, T_3$  : TLD素子の発光量

この結果、熱中性子線量は第1回目(11/20)と第2回目(11/21)の照射に対してそれぞれ

3.9 rem と 3.1 rem であった。

第2回目(11/21)のデータについて、金から求めた熱中性子は0.85 remであり、TLDは約3.6倍オーバーレスポンスしている。この原因はTLDが $\gamma$ 線にも高い感度を持っているため熱中性子とCdの反応による捕獲 $\gamma$ 線の影響が素子毎で異なること、バッジ構成元素の誘導放射能の $\gamma$ 線の影響を受けていること、混在する中速中性子と速中性子の影響を受けていることなどが考えられる。今後TLDに $\gamma$ 線と中性子を個別に照射する、あるいは熱中性子のみを照射することによりカドミウムの捕獲 $\gamma$ 線の影響を詳しく調べこの差の原因追求が必要である。

## 4. 中性子フルエンス計算方法および中性子線量当量の評価

### 4.1 中性子フルエンス計算式

臨界事故において、中性子のエネルギースペクトルと核反応断面積が既知ならば、放射化した物質の放射能を測定して、中性子フルエンス  $N$  (n/cm) を知ることができる。しかし、一般に臨界事故時の中性子エネルギースペクトルは未知である。ここでは、中性子のエネルギースペクトルは、次の3つのエネルギースペクトルに分割することができるものと仮定する。

(1) 熱中性子成分 …… マックスウェル分布 (0.0253 eV)

$$\frac{2}{\sqrt{\pi k^3 T^2}} \sqrt{E} e^{-\frac{E}{kT}} \dots\dots\dots (4.1)$$

ここに、 $k$  : ボルツマン定数  
 $T$  : 絶対温度  
 $E$  : 熱中性子エネルギー

(2) 中速中性子成分 (0.4 eV ~ 0.2 MeV) + 共鳴ピーク

$$1 / E \dots\dots\dots (4.2)$$

(3) 速中性子成分 ……  $^{235}\text{U}$  核分裂スペクトル (0.2 MeV以上)

$$0.453 e^{-\frac{E}{0.965}} \cdot \sinh \sqrt{2.29 E} \dots\dots\dots (4.3)$$

スペクトルは、これら3つの成分の一次結合で与えられ

$$\phi(E) = \alpha \cdot \frac{1}{\sqrt{\pi k^3 T^2}} \sqrt{E} e^{-\frac{E}{kT}} + \frac{1}{E} + 0.453 e^{-\frac{E}{0.965}} \cdot \sinh \sqrt{2.29 E} \dots\dots\dots (4.4)$$

で表わされる。

一方、放射化検出器の計数率を求める一般式は、次式で与えられる。

$$C_c = 6.02 \times 10^{23} (m/A) \cdot P \cdot \epsilon \cdot \lambda \int \sigma(E) \phi(E) dE = k \int \sigma(E) \phi(E) dE \dots\dots\dots (4.5)$$

ここに、 $m$  : 箔検出器の質量 (g)  
 $A$  : 箔検出器の原子質量数 ( $\text{g} \cdot \text{mol}^{-1}$ )  
 $P$  : 箔検出器元素中の着目同位元素の存在比  
 $\epsilon$  : 測定器の検出効率

- $\lambda$  : 生成核種の崩壊定数
- $\sigma(E)$  : 着目している反応のエネルギーの関数としての放射化断面積
- $\phi(E)$  : エネルギー区分当りのフルエンス

生成核種の放射能を単位重量当りの比放射能( $\mu\text{Ci/g}$ )で表わすと(4.5)式は,

$$S = C_c / (m \cdot P \cdot \epsilon) = 6.02 \times 10^{23} (\lambda/A) \int \sigma(E) \phi(E) dE \dots\dots\dots (4.6)$$

となる。

生成放射能の半減期が測定時間に比べて短い場合には、測定中の崩壊に対する補正を次式により行う。

$$C_c = C \left[ \frac{\lambda t_i}{1 - e^{-\lambda t_i}} \cdot \frac{\lambda t_c}{1 - e^{-\lambda t_c}} \right] e^{\lambda t_a} \dots\dots\dots (4.7)$$

- ここに、  $t_a$  : 測定までの時間
- $t_c$  : 測定時間
- $t_i$  : 照射時間 (今回は、パルス照射で照射時間は、10 msec と短いため  
( $\lambda t_i / (1 - e^{-\lambda t_i})$ ) の項は無視できる。

中速中性子領域においては、共鳴放射化積分断面積(RI)が必要であるが、RIは、

$$RI = \int_{0.4 \text{ eV}}^{\infty} \frac{\sigma(E)}{E} dE \dots\dots\dots (4.8)$$

で示される。

また、共鳴領域においては、金属箔の自己吸収に対する補正が必要で、今回用いた金箔、インジウム箔、銅箔に対しては、図4-1のデータを用いて表4-1に示す補正係数を求め、自己吸収の補正を行った。

中速中性子領域の全フルエンスは、

$$\phi_{int} = \phi_{epi} \int_{E_1}^{E_2} \frac{dE}{E} = \phi_{epi} \ln(E_2/E_1) \dots\dots\dots (4.9)$$

で示される。 $E_1$ は0.4 eV $\approx E_{ca}$ を用いることが一般的であるが $E_2$ は文献により種々の値が用いられており、今回は $E_2 = 0.2 \text{ MeV}$ を用いて計算した。カドミウム(0.076 cm)でカバーした無限厚さの金と裸の無限厚さの金を照射した時、裸の金の照射直後の放射能 $A_{金}$ は、

$$A_{金} = \lambda N \left\{ \phi_{th} \frac{\sigma_0}{1.13} + \phi_{epi} \int_{E_1}^{E_{ca}} \frac{\sigma(E)}{E} dE + \phi_{epi} \cdot RI \right\} \dots\dots\dots (4.10)$$

カドミウムカバーの金の持つ放射能 $A_{カドミウム}$ は、

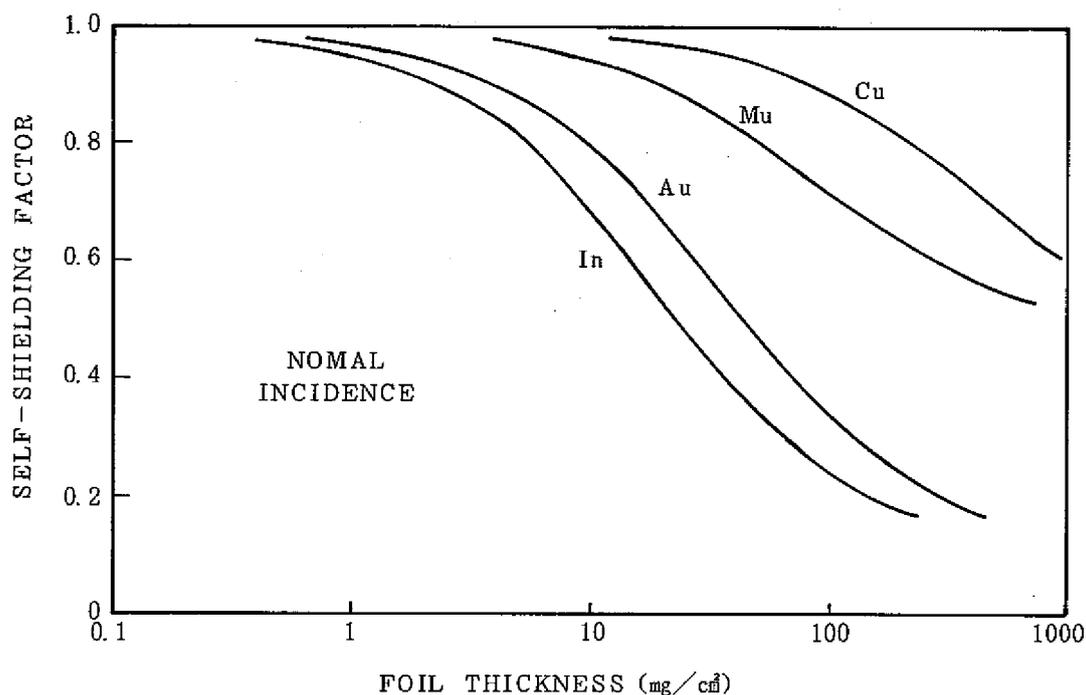


図4-1 金属箔の厚さと自己吸収の関係<sup>3)</sup>

Calculated correction factors for self-shielding of normally incident neutrons in resonance detectors. The effective resonance integral (including the  $1/v$  part) is given by multiplying the 'infinitely dilute' resonance integral by the factor shown.

表4-1 放射化金属箔の厚さと共鳴吸収係数<sup>3)</sup>

	元 素	厚 さ (mg/cm <sup>2</sup> )	自己吸収係数
動 燃 型 臨 界 線 量 計	Au	250	0.21
	In	104	0.24
	Cu	124	0.86
R / E 社 臨 界 線 量 計	Au	47	0.49
	In	107	0.24
	Cu	110	0.88

$$A_{\text{カドミウム}} = \lambda N \phi_{\text{epi}} \cdot R I \quad \dots\dots\dots (4.11)$$

で示される。

- ここに、 $\lambda$  :  $^{198}\text{Au}$ の崩壊定数  
 $N$  :  $\text{Au}$ の原子数 (Atoms/g)  
 $\sigma_0$  : 2,200 m/s の中性子に対する  $\text{Au}$ の反応断面積 (cm<sup>2</sup>)  
 $R I$  :  $E_{\text{Cd}}$  から  $E_2$  までの共鳴放射化積分断面積 (cm<sup>2</sup>)  
 $E_{\text{Cd}}$  : Cd カットオフエネルギー

ここで、 $E_1 = 0.4 \text{ eV} \approx E_{\text{Cd}}$  とすると (4.10) 式の積分項は、無視でき、

$$\phi_{\text{th}} = \frac{1.13^*}{\lambda N \sigma_0} \{ A_{\text{Au}} - A_{\text{Cd}} \} \quad \dots\dots\dots (4.12)$$

$$\phi_{\text{epi}} = \frac{A_{\text{Cd}}}{\lambda N R I} \quad \dots\dots\dots (4.13)$$

となる。

(4.12) 式 (4.13) 式から熱中性子フルエンスと中速中性子フルエンスをそれぞれ求めることができる。

$\phi_{\text{th}}$  と  $\phi_{\text{epi}}$  の計算に用いた存在比、半減期、反応断面積を表 4-2 に示す。

高速中性子の測定には、 $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$  反応を利用した。核分裂スペクトルに対して平均化した平均反応断面積  $\bar{\sigma}_s$  を用いると、高速中性子フルエンス  $\phi_f$  は、

$$\phi_f = \frac{A_s}{\bar{\sigma}_s \lambda N} \quad \dots\dots\dots (4.14)$$

で示される。

- ここに、 $A_s$  :  $^{32}\text{P}$ の生成比放射能 (Bq/g)  
 $\bar{\sigma}_s$  : 標準核分裂スペクトルに対し平均化した平均反応断面積  
 $\bar{\sigma}_s = 0.0654$  (barn)  
 $\lambda$  :  $^{32}\text{P}$ の崩壊定数 ( $\lambda = 5.613 \times 10^{-7} \text{ S}^{-1}$ )  
 $N$  :  $^{32}\text{P}$ の原子数 ( $N = 1.785 \times 10^{22} \text{ atoms/g}$ )

$^{198}\text{Au}$ ,  $^{116\text{m}}\text{In}$ ,  $^{64}\text{Cu}$  についてカドミウムカバーの誘導放射能のそれぞれについて、表 4-1 の補正係数を用いて補正した放射能を表 4-2 に示す。硫黄については、燃焼処理による  $^{32}\text{P}$  の損失を 4% として計算した。また、中性子フルエンスの計算に用いた半減期、存在比、反応断面積の値をまとめて表 4-3 に示す。

---

\* 測定で求まる conventional fluence から thermal neutron fluence への変換定数  $2/\sqrt{\pi}$

表4-2 中性子フルエンスの計算に用いるデータ

試料	核反応	質量 (mg)	反応断面積 (barn)	半減期 (sec)	照射直後の 放射能( $\mu\text{Ci}$ )	共鳴自己 吸収係数	自己吸収補正後 の放射能( $\mu\text{Ci}$ )
動燃： 金	$^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$	202.0	98.7	2.696 d ( $2.329 \times 10^5$ sec)	$3.8 \times 10^{-3}$	1	$3.8 \times 10^{-3}$
R/E社： 金	"	4.4	"	"	$6.8 \times 10^{-5}$	1	$6.8 \times 10^{-5}$
動燃： (カドミウム)	"	196.0	1,560	"	$3.5 \times 10^{-4}$	0.21	$1.6 \times 10^{-3}$
R/E社： (カドミウム)	"	4.5	"	"	$1.1 \times 10^{-5}$	0.49	$2.0 \times 10^{-5}$
動燃： インジウム	$^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116m}\text{In}$	78.5	161	54.15 min ( $3.249 \times 10^3$ sec)	$4.7 \times 10^{-1}$	1	$4.7 \times 10^{-1}$
R/E社： インジウム	"	28.7	"	"	$8.6 \times 10^{-2}$	1	$8.6 \times 10^{-2}$
動燃： インジウム (カドミウム)	"	82.2	2,600	"	$3.9 \times 10^{-2}$	0.24	$1.63 \times 10^{-1}$
R/E社： インジウム (カドミウム)	"	31.1	"	"	$7.2 \times 10^{-3}$	0.24	$3.0 \times 10^{-2}$
動燃： 硫黄	$^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$	332.2	0.065	14.26 d ( $1.232 \times 10^6$ sec)	$4.9 \times 10^{-6}$	0.96*	$5.1 \times 10^{-6}$
R/E社： 硫黄	"	460.5	"	"	$3.6 \times 10^{-6}$	0.96*	$3.76 \times 10^{-6}$
動燃： 銅 (カドミウム)	$^{63}\text{Cu}(n, \gamma)^{64}\text{Cu}$	97.1	4.9	12.701 hr ( $4.572 \times 10^4$ sec)	$6.4 \times 10^{-6}$	0.86	$7.44 \times 10^{-6}$
R/E社： 銅 (カドミウム)	"	146.5	"	"	$5.8 \times 10^{-6}$	0.88	$6.59 \times 10^{-6}$

\* 硫黄の燃焼による $^{32}\text{P}$ の損失(4%)の補正<sup>(6),7)</sup>

表4-3 金, インジウム, 銅および硫黄の核反応に関する値<sup>3)</sup>

元 素	金	インジウム	銅	硫 黄	
密 度	19.3	7.31	8.96	2.07	
同位元素	<sup>197</sup> Au	<sup>115</sup> In	<sup>63</sup> Cu	<sup>32</sup> P	
Atom (%)	100	95.7	69.2	95.02	
核 反 応	<sup>197</sup> Au(n, γ) <sup>198</sup> Au	<sup>115</sup> In(n, γ) <sup>116m</sup> In	<sup>63</sup> Cu(n, γ) <sup>64</sup> Cu	<sup>32</sup> S(n, p) <sup>32</sup> P	
半 減 期	2.696 ± 0.002d. (2.329 × 10 <sup>5</sup> sec)	54.15 ± 0.06min. (3.249 × 10 <sup>3</sup> sec)	12.701 ± 0.002hr. (4.572 × 10 <sup>4</sup> sec)	14.26 ± 0.03d. (1.232 × 10 <sup>6</sup> sec)	
* 反 応 断 面 積	熱中性子	98.7 ± 0.01	161 ± 5	4.5 ± 0.1	—
	共鳴積分	1560 ± 40	2600 ± 100	4.9 ± 0.4	—
	速中性子	—	—	—	—

\* barn

#### 4.2 中性子フルエンスおよび中性子線量当量評価結果

4.1項に述べた計算式に表4-2の誘導放射能と表4-3のパラメータを代入して計算した熱中性子, 中速中性子及び速中性子のそれぞれのフルエンス, 並びに中性子線量当量 (rem) を表4-4に示す。中性子フルエンスから rad 及び rem への換算係数は, ICRP Publ. 21<sup>2)</sup>のデータと IAEA Technical report No 211<sup>3)</sup>より熱中性子に対しては  $2.1 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{rad}$ ,  $9.36 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{rem}$ , 中速中性子に対しては  $1.65 \times 10^9 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{rad}$ ,  $8.3 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{rem}$  及び高速中性子に対しては  $2.0 \times 10^8 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{rad}$ ,  $2.5 \times 10^7 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{rem}$  を用いた。

また, 比較のため表4-4の右欄に動燃型臨界線量計とR/E社臨界線量計の比を, また( )内に原研が独自に行った測定結果 (測定用検出器は, インジウム, インジウム (カドミウム) および硫黄で照射位置は写真1のロープにはった封筒の中に入っている。) を参考値として示した。

以上の結果を基にした金, 金 (カドミウム), インジウム, インジウム (カドミウム) および硫黄の単位重量当りの照射直後の放射能から, 熱中性子, 中速中性子及び速中性子の線量当量を求める計算式を表4-5に示す。

表4-4 中性子フルエンスおよび中性子線量当量計算結果

試料	核反応	中性子フルエンス	$\phi \rightarrow \text{rem}$ 換算係数	rem	動燃型 R/E社比
動燃：金	$^{197}\text{Au} (n, \gamma)$	$7.96 \times 10^8$	$9.36 \times 10^8$	$8.5 \times 10^{-1}$	1.31
R/E社：金	"	$6.05 \times 10^8$	"	$6.46 \times 10^{-1}$	
動燃：(カドミウム)	"	$2.79 \times 10^8$	$8.28 \times 10^8$	$3.37 \times 10^{-1}$	1.68
R/E社：(カドミウム)	"	$1.66 \times 10^8$	"	$2.0 \times 10^{-1}$	
動燃：インジウム	$^{115}\text{In} (n, \gamma)$	$1.18 \times 10^9$	$9.36 \times 10^8$	$1.26$ ( $8.0 \times 10^{-1}$ )	2.0
R/E社：インジウム	"	$5.9 \times 10^8$	"	$6.3 \times 10^{-1}$ ( $3.9 \times 10^{-1}$ )	
動燃：インジウム (カドミウム)	"	$3.45 \times 10^8$	$8.28 \times 10^8$	$4.17 \times 10^{-1}$	2.05
R/E社：インジウム (カドミウム)	"	$1.68 \times 10^7$	"	$2.05 \times 10^{-1}$	
動燃：硫黄	$^{32}\text{S} (n, p)$	$8.69 \times 10^8$	$2.5 \times 10^7$	$3.48 \times 10^1$ ( $4.0 \times 10^1$ )	1.89
R/E社：硫黄	"	$4.61 \times 10^8$	"	$18.4 \times 10^1$	
動燃：銅 (カドミウム)	$^{63}\text{Cu} (n, \gamma)$	$5.77 \times 10^6$	—	—	1.70
R/E社：銅 (カドミウム)	"	$3.39 \times 10^6$	—	—	

( )内は原研のデータ

表 4-5 誘導放射能と線量当量の関係

中性子群	核種	照射直後の単位重量当りの放射能 A ( $\mu\text{Ci/g}$ ) と線量当量 D (rem) の関係式
熱中性子	$^{198}\text{Au}$	$D = 45.2 \times A$
	$^{116\text{m}}\text{In}$	$D = 2.01 \times 10^{-1} \times A$
中速中性子	$^{198}\text{Au}$	$D = 41.3 \times A$
	$^{116\text{m}}\text{In}$	$D = 2.10 \times 10^{-1} \times A$
速中性子	$^{32}\text{P}$	$D = 2.27 \times 10^6 \times A$

4.3 TLDバッジ中インジウムのサーベイメータによる測定結果と中性子線量当量の関係

3.1項に示したTLDバッジ中のInの誘導放射能の測定結果と4.1項に示した中性子線量当量の関係を求めると、次式で表わされる。

熱+中速中性子に対して、側窓GM管式サーベイメータの窓が開の場合

$$D_{(\text{rem})}^{(n_{\text{th}}+n_{\text{int}})} = 4.87 \times 10^{-1} \times R \quad \text{..... (4.1)}$$

[mR/hr]

熱+中速中性子に対して、側窓GM (窓閉) の場合

$$D_{(\text{rem})}^{(n_{\text{th}}+n_{\text{int}})} = 5.65 \times 10^{-1} \times R \quad \text{..... (4.2)}$$

[mR/hr]

熱+中速中性子に対して、端窓GM管式サーベイメータの場合

$$D_{(\text{rem})}^{(n_{\text{th}}+n_{\text{int}})} = 4.17 \times 10^{-5} \times R \quad \text{..... (4.3)}$$

[cpm]

速中性子に対して、側窓GM管式サーベイメータの窓が開の場合

$$D_{(\text{rem})}^{(n_{\text{f}})} = 1.93 \times 10^1 \times R \quad \text{..... (4.4)}$$

[mR/hr]

速中性子に対して、側窓GM管式サーベイメータの窓が開の場合

$$D_{(\text{rem})}^{(n_{\text{f}})} = 2.25 \times 10^1 \times R \quad \text{..... (4.5)}$$

[mR/hr]

速中性子に対して、端窓GM管式サーベイメータの場合

$$D_{(\text{rem})}^{(n_{\text{f}})} = 1.66 \times 10^{-3} \times R \quad \text{..... (4.6)}$$

[cpm]

尚、式(4.1)から式(4.6)は

今回の照射条件(中性子スペクトル)にのみ適用できるものであり、またRには、サーベイメータの読取値を照射直後に換算した値を代入する。

## 5. 結果の考察

### 5.1 臨界線量計中の金属箔と $^{32}\text{P}$ の誘導放射能経時測定

#### (1) 臨界線量計および TLD バッジ中インジウムの誘導放射能減衰測定結果について

3.1項の図3-1から図3-3に示す通り、TLD バッジ、動燃型臨界線量計、R/E社臨界線量計とも照射直後から約2時間誘導放射能を追跡した結果は、 $^{115}\text{In}(n, \gamma)^{116\text{m}}\text{In}$  反応で生成する  $^{116\text{m}}\text{In}$  の半減期(54.15分)に一致し、照射直後(約10分後)最も放射能が強いもので1.7 mR/hr であった。

側窓型サーベイメータの検出限界は約100  $\mu\text{R}$  であり、照射直後に TLD バッジ中インジウムの測定からスクリーニングできる熱中性子による線量当量を求めると、 $4.7 \times 10^{-2}$  rem (47 mrem) となる。この値は、スクリーニングすべき値としては十分な値といえる。

但し、速中性子に換算するとこの値は1.9 rem となる。

#### (2) 臨界線量計中の金属箔および硫黄の測定結果について

硫黄の誘導放射能を測定する場合、硫黄ペレットをそのままの状態で測定すると  $^{32}\text{P}$  の放射線が硫黄の自己吸収を受け、測定に誤差が生じやすくなるので硫黄ペレットを試料皿上に薄く広げるようにする。この方法は燃焼による損失が当初懸念されたが、損失は文献調査の結果4%程度であることがわかり、3.2項の図3-19に示すように、同じ位置において照射した約1g, 2g, 3gの硫黄と  $^{32}\text{P}$  の生成放射能の関係は良い直線性を示し、硫黄ペレットの燃焼法に問題のないことがわかった。また、硫黄の重量が300 mg程度で速中性子のフルエンスが  $8 \times 10^8 \text{ n/cm}^2$  (35 rem) の照射によって約  $5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$  の  $^{32}\text{P}$  の生成することがわかった。 $^{32}\text{P}$  を測定する低バックグラウンドガスフローカウンタの検出限界は  $1.5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$  であり、この値は速中性子の硫黄300 mgの場合  $2.4 \times 10^8 \text{ n/cm}^2$  (10.5 rem) に相当する。従って、速中性子の検出限界を3 rem\*まで向上させるとすれば、約1g(動燃型臨界線量計に使用している量の約3倍)の硫黄が必要である。金とインジウムについては、現在用いている重量で十分な誘導放射能を持つが4.1項で述べたように、金とインジウムは共鳴領域において大きな自己吸収を示すため、現在の1/2程度の厚さのものにすることが好ましい。この場合でも、Ge(Li) 検出器の  $^{198}\text{Au}$  の検出限界  $1.3 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$ 、 $^{116\text{m}}\text{In}$  の  $3.5 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$  に比べて  $^{198}\text{Au}$  の生成放射能は、 $6.8 \times 10^{-5} \mu\text{Ci} \sim 3.8 \times 10^{-5}$ 、 $^{116\text{m}}\text{In}$  の生成放射能は、 $4 \times 10^{-2} \mu\text{Ci}$  であり十分な余裕がある。

照射直後における  $^{198}\text{Au}$  による熱中性子の検出限界は、 $2.9 \times 10^{-4}$  rem、 $^{198}\text{Au}$  による中速中性子の検出限界は、 $1.6 \times 10^{-2}$  remと評価された。

---

脚注\* 現行の従事者の3カ月の許容被曝線量3レムを基準とした。

### (3) TLDバッジの測定時の注意

測定結果 3.3 に述べたように、 $\beta$ 線評価用素子から評価した $r$ 線量は14Rで、1cm樹脂の下にある素子から評価した $r$ 線量は25Rであり、1cm樹脂下の素子による評価はオーバーレスポンスしているため今後この影響を定量的に調べることが必要である。

## 5.2 中性子フルエンスおよび中性子線量当量評価結果

動燃型臨界線量計から求めた中性子フルエンスは、熱中性子が $8 \times 10^8$  n/cm<sup>2</sup>, 中速中性子が $2.8 \times 10^8$  n/cm<sup>2</sup>, 速中性子が $8.7 \times 10^8$  n/cm<sup>2</sup>であった。これを中性子線量当量に換算すると熱中性子が0.85 rem, 中速中性子が0.26 rem, 速中性子が35 remとなる。またR/E社臨界線量計から求めた中性子フルエンスは熱中性子が $6.1 \times 10^8$  n/cm<sup>2</sup>, 中速中性子が $1.7 \times 10^8$  n/cm<sup>2</sup>, 速中性子が $4.6 \times 10^8$  n/cm<sup>2</sup>であった。これを中性子線量当量に換算すると、熱中性子が0.65 rem, 中速中性子が0.2 rem, 速中性子が18 remとなる。動燃型臨界線量計とR/E社臨界線量計から求めたそれぞれの中性子フルエンスの比率は、熱中性子が1.31倍, 中速中性子が1.68倍, 速中性子が1.89倍でいずれも動燃型線量計が高い値を示した。この差は、2.3項の写真1, 写真2に示すように動燃型線量計は、照射野の中心に置いたのに対し、R/E社臨界線量計は中心よりやや下で、主としてこの照射位置の違いによるものと考えられる。また、速中性子より、熱中性子の両者の比率が小さいのは、熱中性子は、背後に置いたアクリル円筒や、パラフィンブロックの影響により比較的分布が速中性子より平坦になっていることによるものと推測される。今回の照射において、臨界事故に近い中性子スペクトルを示すNSRRのNRG室の照射位置においては熱中性子、中速中性子に比べ、圧倒的に速中性子の線量当量が高く、熱中性子と中速中性子の合計線量当量の約33倍が速中性子の線量当量となっている。また同時に照射した原研の金、インジウムおよび硫黄の測定結果は、熱中性子が0.8 rem, 中速中性子が0.39レム, 速中性子が40 remであり、速中性子の線量当量が、熱中性子と中速中性子の合計の線量当量34倍となっている。従って、核分裂スペクトルの場合では、金やインジウムによる熱中性子および中速中性子の測定よりも、硫黄による速中性子の測定が非常に重要であるといえる。

原子炉から3mの距離におけるいくつかの炉のタイプと、その時の熱中性子と中速中性子及び速中性子(>0.75 MeV)のフルエンスの例を表5-1に示す。表5-1から炉心をとるまく状況(裸か、H<sub>2</sub>Oがあるか、Cuや金属があるかどうかなど)により、熱中性子と中速中性子と速中性子の比率は大きく異なっていることがわかる。いずれのタイプの炉でも線量当量は速中性子が最も大きく、裸の炉の場合では、熱中性子と中速中性子の合計の線量当量に比べ、速中性子の線量当量は4.7倍大きな値を示している。一方銅を反射体として用いているVIRER炉の場合は両者の比は1.2倍と小さい。この様に、熱中性子と中速中性子合計の線量当量と、速中性子の線量当量は炉の型、すなわち中性子スペクトルによって大きく異なることから、特にTLDバッジ中インジウムの誘導放射能のみから、全被曝線量当量を推定(スクリーニング)する4.3項に述

表 5 - 1 種々の原子炉から放出される熱中性子, 中速中性子および速中性子の割合<sup>3)</sup>

NEUTRONS ESCAPING/FISSION FROM VARIOUS REACTORS

Fluences are normalized to  $10^{17}$  fissions and to a distance of 3 m from the reactor. 'Measured' numbers of neutrons escaping/fission are based on the assumption of isotropic emission and inverse square law distance dependence

Reactor	Type	Thermal	Fluence ( $10^{16}$ n·cm <sup>-2</sup> ) Intermediate	>0.75 MeV	Neutrons escaping per fission	
					Measured	Calculated
CRAC	<sup>235</sup> U in H <sub>2</sub> O	4.2	9.3	7.2	2.33	1.26
HPRR	Bare <sup>235</sup> U-Mo	1.1	7.0	11.3	2.19	1.34
RB	2% <sup>235</sup> U+D <sub>2</sub> O (D <sub>2</sub> O reflected)	4.7	3.4	0.4	0.96	0.88
VIPER	37% <sup>235</sup> U+Cu+steel (Cu reflected)	1.9	9.5	0.4	1.33	1.08

べた方法は、中性子スペクトル情報がない場合、非常に大きな評価誤差を伴うことになる。従ってTLD バッジ中インジウムによるスクリーニングの方法は、中性子被曝の有無の確認にとどめることが適切であるといえる。（Inの誘導放射能のみから線量当量を推定した場合、 $\pm 40 \sim 50$  倍の誤差を覚悟しなければならない。）線量当量を精度良く評価するためには、速中性子領域を評価できる硫黄を回収した後に行うことが適切である。今回の照射実験から5.1項(2)に述べたように硫黄の量が300 mgの時の速中性子に対する検出限界は約10 remであり、3 rem を測定できるようにするためには臨界線量計の中に約1 gの硫黄を入れておくことが必要であるといえる。

### 5.3 臨界事故時の $\gamma$ 線量と中性子線量の比率

今回の照射実験の結果得た中性子線量当量（熱中性子、中速中性子および速中性子線量当量のそれぞれの合計）は36 remであるのに対し、 $\gamma$ 線量は14 remで中性子線量当量が約2.6倍高い値となっている。臨界事故時の $\gamma/n$ 比は臨界が乾式系で発生したか溶液系で発生したか、被曝が真近か、コンクリート壁を通してか等の条件によって異なる。種々の反応系におけるカーマで表わした $\gamma/n$ 比を表5-2に示す。表5-2から $\gamma/n$ 比は0.12から2.6の間にあり、金属燃料を用いている反応系の場合中性子が $\gamma$ 線より2.6倍から8倍高く、逆に水減速系や水素含有物質を通過してきた場合は $\gamma$ 線が中性子より1.0～2.6倍高い値となっている。従って臨界事故時に $\gamma/n$ 比を一率仮定して、 $\gamma$ 線と中性子のいずれか一方から他方を推定する方法は、約1桁の誤差を伴うことになる。 $\gamma$ 線量についてもTLDなどを回収して、直接測定した値をもとに線量当量を評価することが適切であり、この点からもTLDバッジ中インジウムの情報スクリーニングのみから線量当量（rem）の評価（オーダ評価としても）するに当たっては慎重でなければならない。

表 5-2  $\gamma$ 線量と中性子線量の比率<sup>3)</sup>

{ RATIOS OF TISSUE KERMA FROM GAMMA RAYS AND  
NEUTRONS, MEASURED IN AIR }

Critical system	$k_{\gamma}/k_n$
<b>Metal</b>	
GODIVA 55 kg $^{235}\text{U}$ , bare	0.13
JEZEBEL 17 kg $^{239}\text{Pu}$ , bare	0.10
FLATTOP $^{235}\text{U}$ : through 18 cm $^{238}\text{U}$	0.16 <sup>a</sup>
HPRR 117 kg $^{235}\text{U}$ -Mo, bare	0.15
HPRR through 13 cm steel	0.12
HPRR through 20 cm concrete	0.38
VIPER	0.34 <sup>b</sup>
<b>Hydrogen-moderated</b>	
CRACR= 15 cm. Solution: H/ $^{235}\text{U}$ = 315	1.3
CRAC through 20 cm concrete	1.4
Y-12 <sup>c</sup> R = 27 cm. Solution H/ $^{235}\text{U}$ = 1000	2.6
HYDRO: water-reflected $^{235}\text{U}$ + exponential pile	0.8 (6m)
HPRR through 12 cm Lucite	1.0
HPRR through 25 cm Polythene	1.9
<b>Other moderators</b>	
RB (heterogeneous, D <sub>2</sub> O-moderated and reflected)	2.0
PARKA (C-moderated; Be-reflected)	1.7

<sup>a</sup> At 1.1 m distance the value is 0.05.

<sup>b</sup> Value measured by UKAEA staff before Intercomparison.

<sup>c</sup> Mock-up experiment.

## 6. 今後の課題

今後の課題として以下の点が挙げられる。

- (1) 今回は臨界モニタ用検出器の減速材であるのアクリル円筒（12cmφ×20cm）をファントム代りとして照射したため、ファントム効果として充分でない点があると考えられる。このため、人体ファントムを用いて照射を行い、ファントム効果を確認する必要がある。
- (2) TLDバッジによる $\gamma$ 線量評価においてTLDバッジ構成物質と中性子との反応、特に熱中性子とケース内のカドミウムによる捕獲 $\gamma$ 線の影響を確認する。
- (3) 銅についての核データを調査し、銅による中性子フルエンス評価法を明らかにする。
- (4) 今回の照射から得られた結果を基に、臨界事故時スクリーニングマニュアルおよび臨界線量計評価マニュアルを作成する。また、臨界線量計の着用基準を再検討する。

## 7. 結 言

東海事業所において使用している臨界線量計，R/E社の臨界線量計およびTLDバッジを，日本原子力研究所の原子炉「NSRR」中性子ラジオグラフィ室において照射し，臨界線量計中の金，インジウム，銅および硫黄の誘導放射能並びにTLDから中性子線量当量と $\gamma$ 線線量当量を求める評価法について実験並びに検討を行なった。

得られた結論は以下の通りである。

- (1) 臨界線量計中の金，インジウム，銅および硫黄の放射化によって生成する $^{198}\text{Au}$ ， $^{64}\text{Cu}$ および $^{32}\text{P}$ の前処理法と測定法について明らかにした。特に $^{32}\text{S}(n, p)^{32}\text{P}$ 反応によって生成する $^{32}\text{P}$ は燃焼法による前処理によって，自己吸収のない試料とすることができること，また，測定器としては低バックグラウンド計数装置が適しているを確認した。
- (2) 臨界事故による被曝の場合，速中性子の線量当量が，熱中性子，中速中性子の線量当量よりもはるかに大きいケースが多く，従って硫黄を用いた速中性子の測定が重要である。
- (3) (2)との関連において，現在用いている300 mgの硫黄による速中性子線量当量測定の検出限界は約10 remであり，これを3 remに下げするためには，イオウの重量として約1 gが必要である。
- (4) 現在用いている金，インジウムは，特に共鳴領域において自己吸収が大きいため，厚さを現在の1/2程度に薄くする必要がある。
- (5) 熱中性子の金による測定の検出限界は， $2.9 \times 10^{-4}$  rem 中速中性子の金による測定の検出限界は， $1.6 \times 10^{-2}$  remである。

- (6)  $^{198}\text{Au}$ ， $^{116\text{m}}\text{In}$ ，および $^{32}\text{P}$ の誘導放射能から熱中性子，中速中性子および速中性子の線量当量を求める評価式は，熱中性子に対し，Aを各金属箔の単位重量当りの放射能とすると，

$$D_n(\text{th}) (\text{rem}) = 4.52 \times A (\mu\text{Ci/g}) \quad (^{198}\text{Au} \text{ の場合})$$

$$D_n(\text{th}) (\text{rem}) = 2.01 \times 10^{-1} \times A (\mu\text{Ci/g}) \quad (^{116\text{m}}\text{In} \text{ の場合})$$

中速中性子に対し

$$D_n(\text{int.}) (\text{rem}) = 4.13 \times A (\mu\text{Ci/g}) \quad (^{198}\text{Au} \text{ (カドミウム) の場合})$$

$$D_n(\text{int.}) (\text{rem}) = 2.10 \times 10^{-1} \times A (\mu\text{Ci/g}) \quad (^{116\text{m}}\text{In} \text{ (カドミウム) の場合})$$

速中性子に対し

$$D_n(\text{f}) (\text{rem}) = 2.27 \times 10^5 \times A (\mu\text{Ci/g}) \quad (^{32}\text{P} \text{ の場合})$$

を得た。但し，中速中性子については金属箱の厚さによる自己吸収補正後の放射能を，また， $^{32}\text{P}$ については燃焼損失（4%）補正後の放射能を代入する。

- (7) TLDバッジ中インジウムの誘導放射能のみからスクリーニング時に臨界事故時の線量当量を推定する方法は，中性子スペクトルの異いにより速中性子の線量当量が大きく変ること，また，臨界事故時の $r/n$ 比は反応系の違いやコンクリート壁の通過により0.12～2.6まで変化するため適当でなく，中性子線被曝の有難程度のスクリーニングに止めておくべきである。

謝 辞

本照射実験を実施するに当り、日本原子力研究所、東海研究所保健物理部線量計測課、南賢太郎課長の御協力を頂きました。僅んで謝意を表します。

参 考 文 献

- (1) 本山茂二, 五十嵐孝行, 木下睦, 石黒秀治他, 臨界事故時線量評価計画,,  
PNC SN841-71-33, 1971
- (2) ICRP Publication 21, 体外線源からの電離放射線に対する防護のためのデータ, 1971
- (3) IAEA, Technical report series No.211, Dosimetry for Criticality  
Accidents (A Manual), 1982
- (4) New low cost criticality dosimeters, Reactor Experience, Inc.  
(Catalog Nos.710 and 710 W)
- (5) 南賢太郎他, 臨界警報装置の動特性調査 JAERI-memo 9229, 1980
- (6) REINHARDT, P.W., DAVIS, F.J., Improvements in the threshold  
detector method of fast neutron dosimetry, Health Physics.  
1169,(1958)
- (7) CROSS, W.G., Technique for determining fast neutron dose from  
activation of sulphur tablets, Rep. AECL-1811 (1963)



付録 表 1 臨界事故時用個人被曝線量計「NSRRR炉」照射及び測定スケジュール

試料	担当者	時間							備考		
		11/20	11:00	12:00	13:00	14:00	15:00	16:00		17:00	11/21
TLDパッケージ	野村 磯	In	照射	GMサマール測定	GMサマール測定	GMサマール測定	GMサマール測定	GMサマール測定	GMサマール測定	GMサマール測定	線計係で測定 「NSRR」の都合で 11/20は <sup>110m</sup> Inのdecay 追跡, 11/21はGe 測定を行うことに変 更した。
		UD-808		UD-710測定							
		UD-809		UD-710測定							
硫黄	小泉 野村 環境安全 課 1名	300mg	照射	GM測定	前処理	Gas flow測定(環)	Gas flow測定				• GM検出器 (線計係) • Gas flow検出器 (環境管理係) • 前処理は線計にて行 う。
		1g		"	"	"	"				
		2g		"	"	"	"				
		3g		"	"	"	"				
動燃型 臨界線量計	小泉 野村 環境安全 課 1名	In	照射	GM測定	GM測定	Ge測定	Ge測定				• GM検出器 (線計係) • Ge検出器 (放出管理係)
		In(Cd)		GM	GM	Ge	Ge				
		Au		GM	GM	Ge	Ge				
		Au(Cd)		GM	GM	Ge	Ge				
		Cu(Cd)		GM	GM	Ge	Ge				
R/E社 臨界線量計	同上	In	照射	GM	GM	Ge	Ge				• GM検出器 (線計係) • Ge検出器 (放出管理係)
		In(Cd)		GM	GM	Ge	Ge				
		Au		GM	GM	Ge	Ge				
		Au(Cd)		GM	GM	Ge	Ge				
		Cu(Cd)		GM	GM	Ge	Ge				
検出器校正用 標準線源作成	小泉 野村			AM 9:00 ~ 12:00		(11/19)				放出管理係フールド	

安全対策課  
線量計測係

付録表2 NSRRR 照射試験一覽表

照射線量計	重量	n・エネルギー	生成放射性物質	測定器	生成放射能 (照射直後)	備考
硫黄	300 mg	>2.9 MeV	$^{32}\text{S} (n, p) ^{32}\text{P}$	Low Back gas flow (環安)	$4.6 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	• $2 \times 10^{-3} \mu\text{Ci/g}$ 以内 非RI
	1 g				$1.5 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	
	2 g				$3.0 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	
	3 g				$4.6 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	
動燃型 臨界線量計	In 80 mg	0.025 ~ 2 eV	$^{115}\text{In} (n, \gamma) ^{116m}\text{In}$	Ge 検出器 (環安)	0.5 $\mu\text{Ci}$	} $0.34 \mu\text{R/hr at 1 m}$ $0.034 \text{mR/hr at 10 cm}$ 密封 $100 \mu\text{Ci}$ 以下
	In (Cd) 80 mg	0.3 ~ 2 eV		GM " (線計)	<0.05 $\mu\text{Ci}$	
	Au 200 mg	0.025 ~ 10 eV	$^{197}\text{Au} (n, \gamma) ^{198}\text{Au}$	"	$7 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}$	
	Au (Cd) 200 mg	0.3 ~ 10 eV		"	$7 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	
	Cu (Cd) 95 mg	0.3 ~ 1 MeV	$^{68}\text{Cu} (n, \gamma) ^{64}\text{Cu}$	"	$1.2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	
	In (Cd) 80 mg	>1 MeV	$^{115}\text{In} (n, \gamma) ^{115m}\text{In}$	"	<<<	
	In 31.7 mg	0.025 eV ~ 2 eV			0.2 $\mu\text{Ci}$	
	In (Cd) "	0.3 eV ~ 2 eV			<0.02 $\mu\text{Ci}$	
	Au 5.1 mg	0.025 eV ~ 10 eV			$1.8 \times 10^{-4} \mu\text{Ci}$	
	Au (Cd) "	0.3 eV ~ 10 eV			< $1.8 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}$	
R/E社 臨界線量計	Cu (Cd) 147 mg	0.3 eV ~ 1 MeV	同上	同上	$19 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	密封 $100 \mu\text{Ci}$ 以下
	In (Cd)	>1 MeV				
	S 419.6 mg	>2.9 MeV			$2.2 \times 10^{-6} \mu\text{Ci}$	
	In 350 mg	0.025 ~ 2 eV	$^{115}\text{In} (n, \gamma) ^{116m}\text{In}$	端容 GM サーマイメータ Ge 検出器 (環安)	2.2 $\mu\text{Ci}$	
	UD-808 UD-809	-	-	TLD リーダ (線計)	-	

## $^{32}\text{S}(\text{n},\text{p})^{32}\text{P}$ 反応で生成する $^{32}\text{P}$ の測定について

中性子照射後の試料は、以下の方法により測定する。

### 1. 試料の燃焼処理

- ① アルミニウムの試料皿に硫黄ペレットを入れ、ホットプレート上にてダークアンバー色になるまで加熱する。
- ② 熱焼残滓が一様になる様に皿を動かす。
- ③ ヒュームに点火して硫黄を燃焼させる。
- ④ この操作で $^{32}\text{P}$ の約96%が皿に残る。

### 2. 放射能測定

- ① 処理後の試料は確認のため、GM計数装置及びGe(Li)検出器にて不純核種のないことを確認する。
- ② 測定は、低バックグランドガスフローカウンターを用いて測定する。  
試料の放射能は、約(1 dps)である。

### 3. コールドランテスト

コールドの硫黄を用いて1の燃焼処理手順の確認を11/16にフードにて実習する。

### 4. 生成放射能の予測

#### ① 硫 黄

重量        300 mg, 1 g, 2 g, 3 g

半減期       14.3 日

○ 300 mg

$$\begin{aligned}
 A_c &= \frac{\phi'}{\frac{M}{A \cdot W_a \cdot \sigma_a} \cdot \frac{e^{-\lambda T}}{\eta}} \\
 &= \frac{4.5 \times 10^8 \times 0.4 \times 0.95}{32} \cdot \frac{e^{-(0.693/1.24 \times 10^6) \times 0}}{0.693/1.24 \times 10^6} \\
 &= \frac{4.5 \times 10^8 \times 0.4 \times 0.036}{32 \times 0.95 \times 1.24 \times 10^6} \\
 &= 0.17 \text{ dps} \quad \doteq \quad 4.6 \text{ pCi}
 \end{aligned}$$

- 1 g の時 : 0.57 dps  $\doteq$  15 pCi
- 2 g の時 : 1.13 dps  $\doteq$  30 pCi
- 3 g の時 : 1.7 dps  $\doteq$  46 pCi

② インジウム

重量 80mg  
半減期 54min

$$\begin{aligned}
 A_c &= \frac{\phi'}{M} \cdot \frac{e^{\lambda T^w}}{A \cdot W_a \cdot \sigma_a \cdot \lambda} \\
 &= \frac{\phi \cdot A \cdot W_a \cdot \lambda}{M \cdot e^{\lambda T^w}} \\
 &= \frac{1.5 \times 10^9 \times 0.96 \times (6.023 \times 10^{23}) \times 0.08 \times 155 \times 10^{-24} \times (0.693 / 3.24 \times 10^3)}{115 \times e^{(0.693 / 3.24 \times 10^3 \times 0)}} \\
 &= \frac{1.5 \times 10^9 \times 0.96 \times 1.60 \times 10^{-3}}{115} \\
 &= 2.0 \times 10^4 \text{ dps} \doteq 0.5 \mu\text{Ci}
 \end{aligned}$$

③ 金

重量 200mg  
半減期 2.7 day

$$\begin{aligned}
 A &= \frac{(1.5 \times 10^9) \times (6.023 \times 10^{23}) \times 0.2 \times 96 \times 10^{-24} \times (0.693 / 2.33 \times 10^5)}{197 \times e^{(0.693 / 2.33 \times 10^5 \times 0)}} \\
 &= \frac{(1.5 \times 10^9) \times (3.44 \times 10^{-5})}{197} \\
 &= 262 \text{ dps} \doteq 7 \times 10^{-3} \mu\text{Ci}
 \end{aligned}$$

④ 銅

重量 95mg  
半減期 12.9hr

$$\begin{aligned}
 A_c &= \frac{(1.5 \times 10^8) \times 0.69 \times (6.023 \times 10^{23}) \times 0.095 \times 0.3 \times 10^{-24} \times (0.693 / 4.6 \times 10^4)}{64 \times 0.69} \\
 &= \frac{(1.5 \times 10^8) \times 0.69 \times (2.59 \times 10^{-7})}{63} \\
 &= 0.43 \text{ dps} \doteq 12 \text{ pCi} \\
 &\quad \doteq 1.2 \times 10^{-5} \mu\text{Ci}
 \end{aligned}$$

