

固体飛跡検出器による中性子線量測定法の開発(Ⅰ)

(速中性子個人被曝モニタリングへ利用するための調査及び特性確認試験結果)

1986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

固体飛跡検出器による中性子線量測定法の開発(I)

(速中性子個人被曝モニタリングへ利用するための調査及び特性確認試験結果)

実施責任者*	大和 愛司	
報告者*	小泉 勝三	宮部賢次郎
	井上 誠	野村幸広

要 旨

固体飛跡検出器による中性子被曝線量測定について、特にプルトニウム燃料製造施設における速中性子個人モニタリングへ利用する観点から調査ならびに実験を行った。文献調査の結果では、固体飛跡検出器は中性子エネルギーが500 KeV～2 MeVの範囲でエネルギー依存性は約30%と平坦で、潜像退行特性、検出限界などについて優れた性能をもっていることがわかった。

そこで、固体飛跡検出器の化学エッチングおよびエッチピットの自動計数に必要な設備・装置の仕様を検討するとともに、国産の検出器を用いて、その特性試験を行った。その結果、以下の点が明らかとなった。

- (1) プルトニウムが放出する速中性子について、中性子線量とエッチピット密度の校正定数を明らかにした。
- (2) 潜像退行特性は常温において70日間で全く認められなかった。
- (3) 固体飛跡検出器の方向依存性を明らかにした。
- (4) 感度のばらつきは、速中性子50 mrem照射に対し15%であった。
- (5) 速中性子に対する検出限界は、13 mremであった。

以上の試験から固体飛跡検出器は、速中性子個人モニタリング用検出器として充分実用性のあることが確認された。

* 安全管理部 安全対策課

目 次

1.	固体飛跡検出器による中性子線量測定について	1
2.	固体飛跡検出器に関する調査および調査結果	3
2-1	国内におけるアリル・ジグリコールカーボネイトの製造元と その品質について	3
2-2	中性子測定への利用の可能性	3
2-3	エッチングに必要な設備とエッチング条件	7
2-4	飛跡計数に必要な設備と飛跡計数の自動化について	14
3.	固体飛跡検出器に関する特性試験	17
3-1	線量率特性	17
3-2	方向依存性	29
3-3	ファントム効果	29
3-4	感度のばらつき	32
3-5	潜像退行特性	37
3-6	検出限界	37
4.	結 言	38

1. 固体飛跡検出器による中性子線量測定について

固体飛跡検出器 (Solid State Track Detecton 略してSSTD) は, 1960年代に R, L. Fleischer, P. B. Price^{1,2)}らが, 雲母などの絶縁体内に生成した核分裂片飛跡が, 適当な化学試薬で処理すると, その部分は特に腐食 (Etching) 拡大され 0.1 μm以上の幅となり, 光学顕微鏡で観察されるようになることを見出した。以後重荷電粒子に対する検出器としての利用が図られ, 地球物理学, 原子核物理学, 宇宙物理学の分野等に利用されるに到っている³⁾。今まで広く用いられてきたプラスチックは, 硝酸セルロース (CN) と, ポリカーボネイト (PC) であるが, 表面の荒れやトラックエッチング率のゆらぎのため安定した性能を持ちに到らなかった。これら問題を解決し, 理想的なSSTDを得るため Cartwright⁴⁾らは, 性質, 組成の一様性が高く, 放射線に対し高い感度を持ち, 光の透過率が高くかつ溶剤でなくエッチング溶液の存在するプラスチックを探し, CR-39^{注)}を見出した。

CR-39はアリル・ディ・グリコールカーボネイトの熱硬化性非結晶重合体で, 三次元的な重合がなされ, 等方性の樹脂である。CR-39は飛跡を形成する閾値が非常に小さく, 陽子では約10数MeVまでの, γ 線では60 MeVまで, 相対論的速度領域ではZ25の粒子の検出が可能となった。

CR-39は日本でも主にメガネやサングラスのレンズ, 溶接用耐熱窓として製造されている。CR-39は以下に示す物理的, 化学的性質をもっている⁵⁾。

- (1) 化学式 $C_{12}H_{18}O_7$ (分子量 274.3)
アリル・ディ・グリコールカーボネイト
- (2) 構造式
- $$\begin{array}{c}
 \text{O} \\
 || \\
 \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{O} - \text{C} - \text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH} = \text{CH}_2 \\
 / \quad \backslash \\
 \text{O} \\
 || \\
 \text{CH}_2 - \text{CH}_2 - \text{O} - \text{C} - \text{O} - \text{CH}_2 - \text{CH} = \text{CH}_2
 \end{array}$$
- (3) 比重 1.32 (25°C)
- (4) 屈折率 $n_p: 1.504, n_c: 1.501, n_f: 1.510$ (20°C)
- (5) 光透過率 6 mm厚さで 89~92%

このCR-39を用いて, ウランやトリウムが放出する α 線の検出や, 適当なラジエータやコンバータ (ポリエチレンや ^{10}B , ^6Li 等) と組合せて用いることにより中性子の検出に利用することが出来る。中性子を検出する方法として, 熱中性子に対しては, $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ 反応や $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{He}$ 反応の α 線による飛跡を利用する方法が代表的なものとして挙げられる。速中性子に対しては, ポリエチレン, ラジエータなどを利用した反跳陽子による飛跡を利用する方法が挙げられる⁷⁾。熱中性子を検出する目的で, $^{10}\text{B}(n, \alpha)^7\text{Li}$ の α 線を利用する場合には硝酸セルロースで十分なコントラストのエッチピットを得ることが出来, フランスのKODAK Pathe社から硝酸セルロース (厚さ 100 μm)

注) CR-39とはアリル・ディグリコール・カーボネイトの商品名

の上に14 μ mの濃赤色で透明度のある硝酸セルロースフィルムと密着させ、その上から硼酸リチウムを約50 μ mの厚さに塗布したものが市販されている⁶⁾。速中性子を検出する手法としては、先に述べたラジエータを用いてプロトンを発生させる方法が一般的で、ラジエータとして、アルミニウム、Be、Au、ポリエチレン板等を用いて実験が行なわれ、高密度のポリエチレンの厚さ約1mmのものが最も感度の高いことが報告されている⁷⁾。

2. 固体飛跡検出器に関する調査および調査結果

固体飛跡検出器に関し、特に速中性子線量測定にまとを絞り調査した結果を以下に述べる。

2-1 国内におけるアリル・ディ・グリコールカーボネイトの製造元、 およびその品質について

国内におけるアリル・ディ・グリコールカーボネイトの製造元はソーラオプティカルジャパン社と徳山ソーダ(株)の2社がある。もともとこのプラスチックはメガネ用レンズとして製造されてきたもので、飛跡検出器としては表面あれが少いこと、および製造ロットによってその品質(感度やバックグラウンド)が安定していることが最も大切である。米国でCR-39が速中性子用検出器として優れていることが最初に報告されたのは1978年で、以後国内においてそれ程普及しなかった最大の原因は品質(バックグラウンドが高かったこと)にある。ここ数年、ソーラオプティカルジャパン社の製品については表面あれを染色法により補う方法⁸⁾が開発されたこと、および徳山ソーダ(株)製のものは1板毎に周辺部を切り取ったものを化学エッチングし、バックグラウンドエッチピットが1コ/cm²以下のものを選別するという厳しい購入時テストを行うことにより、中性子個人被曝モニタリング用の素材として充分利用可能な状況になってきている。

しかし上述の様に、元来、この素材がメガネ用レンズとして大量生産されているもののうちの一部を利用している状況から考えると、中性子個人モニタリング用検出器として安定した品質のものを入手するためには、多少コスト高にはなるが厳選されたものを購入し、かつ使用前に厳しいテストを行うことが必要である。速中性子用検出器として用いるためには、このアリル・ディ・グリコールカーボネイトとポリエチレン(1mm厚さ)を熱収縮チューブで密着させて用いる。この段階で検出器のカッティングと番号付けも必要である。カッティングにはCO₂レーザー光を用いる方法がエッジ面が滑らかで良い。番号付けもレーザー光により行うことができる。

2-2 固体飛跡検出器の中性子測定への利用の可能性

東海事業所において中性子被曝のある作業はプルトニウム取扱作業であり、プルトニウム燃料製造施設の作業環境における中性子の平均エネルギーは約1 MeVである⁹⁾。従ってプルトニウム燃料製造施設で働く作業者の中性子用個人被曝線量計としては、1 MeV付近の中性子に対し高い感度と安定した性能を有していることが必須である。一般に中性子個人被曝線量計としては、TLDを用いるアルベド法、中性子用フィルムバッジ、固体飛跡検出器がある。TLDは⁶Liや¹⁰Bを用いるところから本来熱中性子に対し高い感度をもっている反面、速中性子に対しては、人体からの反射アルベドを用いるため、中性子エネルギーが高くなるにつれてこの反射の割合が小さくなることにより速中性子に対して感度が低下する特性¹⁰⁾を持っている。

また、 γ 線が混在する場合には、この γ 線の影響によりS/N比が悪くなり検出限界が大きくな

る。

速中性子用フィルムバッジは、中性子エネルギーが熱中性子と2 MeV以上の速中性子に対しては十分な感度を持っているがプルトニウムの放出する1 MeVまたはそれ以下近辺のエネルギーをもつ中性子の測定には適していない。

これに対し、固体飛跡検出器は γ 線に全く感度を持っていないこと、および平均エネルギーが500 KeV～2 MeVの速中性子領域のエネルギーレスポンスが比較的平坦であるという特長を持っている。

参考として、長瀬ラングウェア(株)の安淵が電総研のペレトロン型加速器の単色中性子を用いて、25 KeVから6.5 KeVの範囲について測定したエネルギー依存性を図2-1と図2-2に示す。図2-1は中性子の単位フルエンス当りの感度を、図2-2は中性子の単位線量当りの感度を示している。図2-2から、プルトニウムの燃料製造施設の作業場の平均中性子エネルギーである1 MeVを基準にとると、500 KeV～2 MeVの範囲で-7% (1.2 MeV)、+14% (500 KeVおよび2 MeV)とエネルギー依存性は小さい。

^6Li や ^{10}B コンバータを利用した γ 線によるエッチピットを計数する方法や R_n 娘核種の α 線を検出する方法について α 線によるエッチピットがプロトンによるエッチピットよりも大きく、素材のバックグラウンドの影響をそれ程受けないところから多くの研究者により数多くの報告がある。^{6,11,12,13,14}

速中性子を検出する方法としてはポリエチレンなどのラジエータと重ね合わせ、ポリエチレンなどからの反跳陽子による飛跡を利用する方法が優れた特性をもっていることが報告されている。⁷⁾ これによると、

- ① CR-39 と、ポリエチレンにAm-Be中性子が照射された時に生じる反跡プロトンを利用することにより約10 mremの検出が可能である。
- ② エネルギーレスポンスは0.2～2 MeVの間で30%と平坦である。
- ③ Am-Be中性子に対し1 mmのポリエチレンラジエータを用いた時27.7 tracks \cdot cm $^{-2}\cdot$ mrem $^{-1}$ の感度がある。
- ④ 潜像退行は、常温(22℃)で40日間では全く認められない。
- ⑤ 方向依存性は、中性子の入射角度と共に感度が低下し30°で約70%、60°で約40%、90°では10%以下となる。

この報告は米国の個人被曝線量測定の実務機関であるラングウェア社のR.U. Wheelerらにより報告されたもので、米国製のアリル・ディ・グリコールカーボネイトを使用したデータに基づくものがある。この報告からは、CR-39とポリエチレンラジエータを組合わせた中性子検出器は、Am-Be中性子に対し、個人被曝線量計として優れた性能を有していることがわかる。

国産のアリル・ディ・グリコールカーボネイトと上述のCR-39の特性比較、および、プルトニウムの放出する中性子エネルギー領域での性能確認が出来れば、この固体飛跡検出器はプルトニウムの放出する速中性子個人被曝線量計として実用性のあるものとなる可能性が非常に高いと言える。

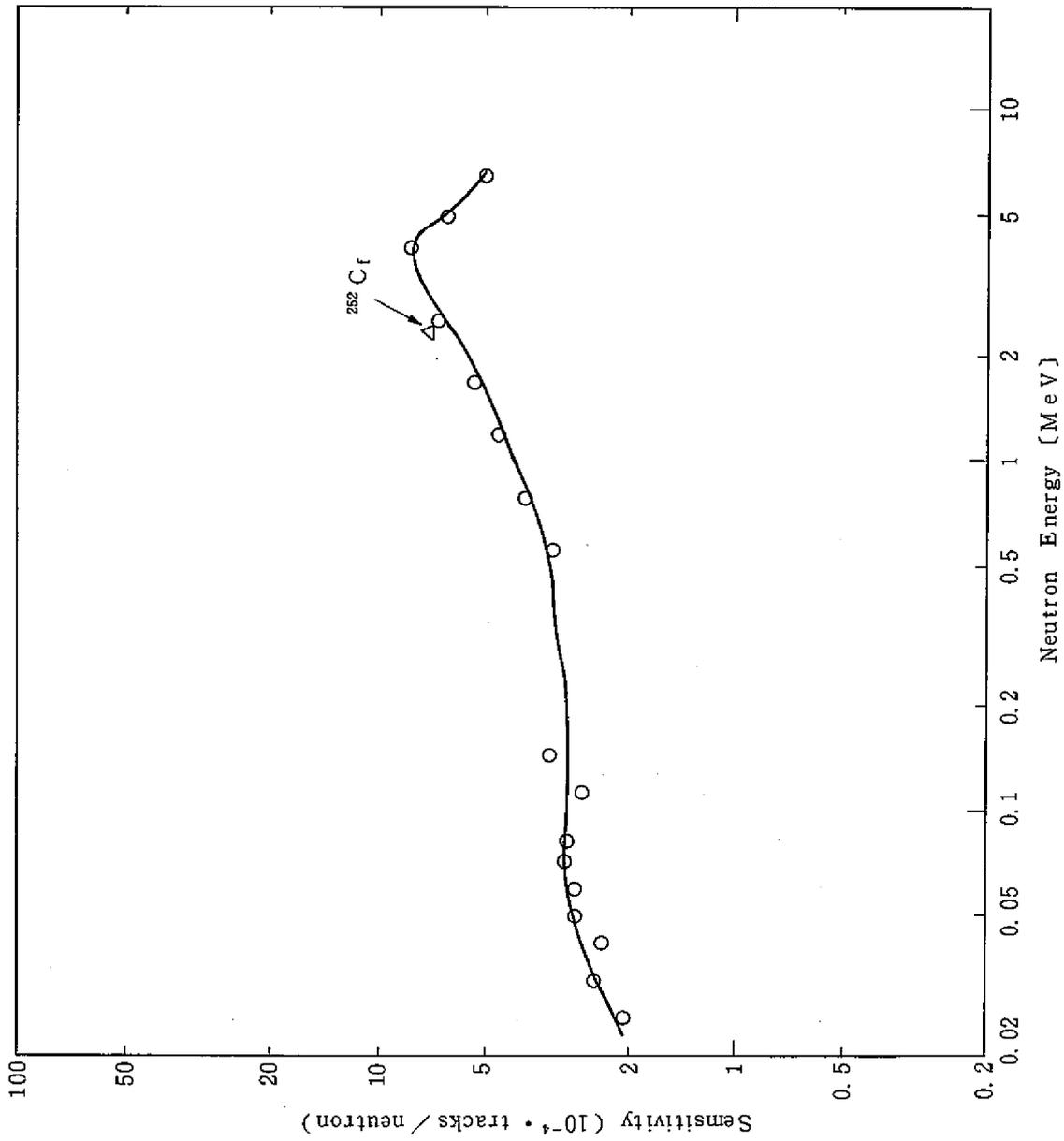


図2-1 Neutron energy dependence of solid state detector (安淵の提供による)

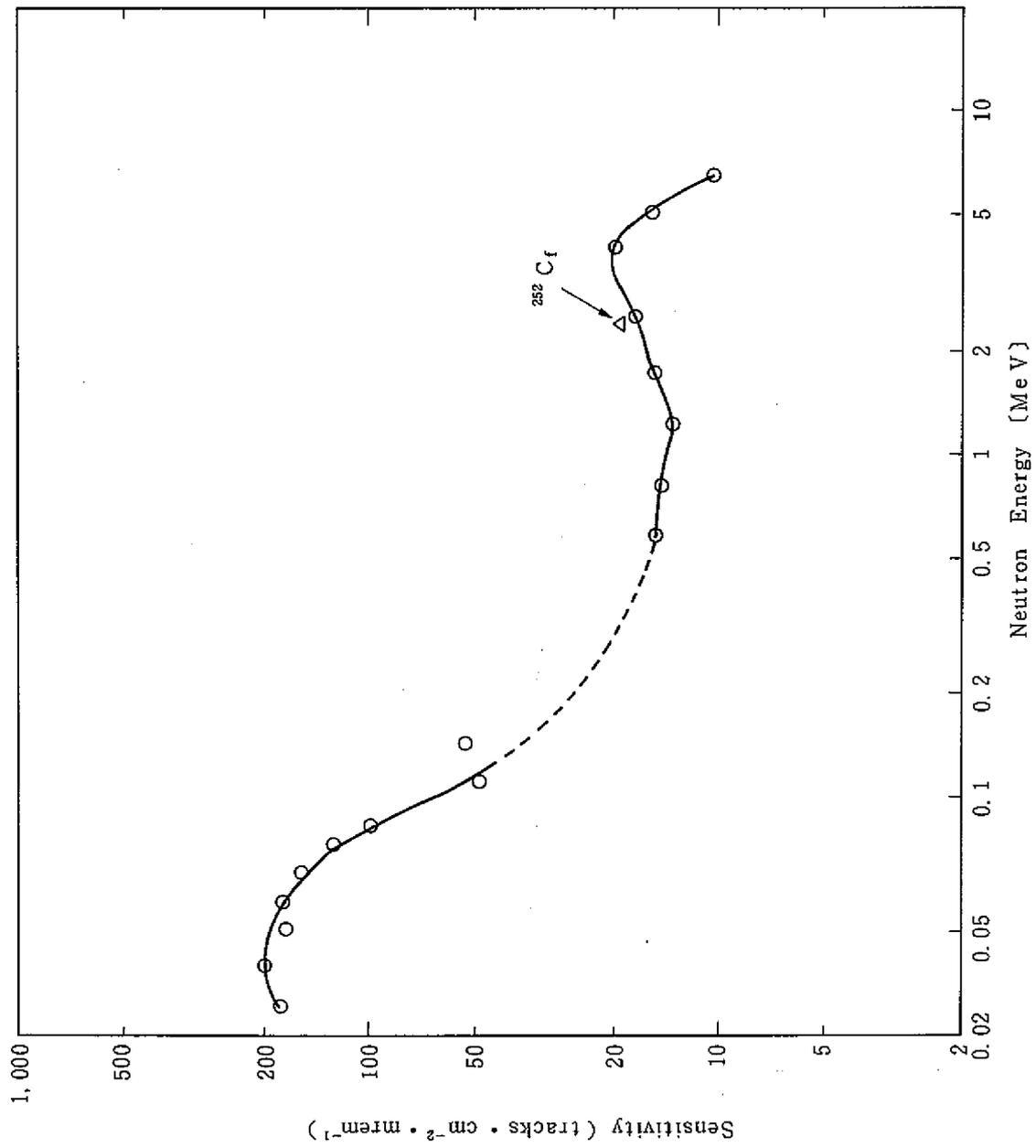


図 2-2 Neutron energy dependence of solid state detector (安瀬の提供による)

そこで国産のアリル・ディ・グリコールカーボネイトを用いてプルトニウム燃料製造施設で働く作業員の個人被曝モニタリングへの適用性の検討という観点から3節に述べる諸特性について試験を行った。

2-3 エッチングに必要な設備とエッチング条件

(1) エッチングに必要な設備

アリル・ディ・グリコールカーボネイトのエッチングには大別して2つあり、1つは電気化学的エッチング¹⁶⁾で、もう1つは化学エッチングである。一般には、NaOHやKOHを使用した化学エッチングが用いられることが多いので、ここでは化学エッチングに必要な設備について述べる。

化学エッチングは液温60℃～80℃で行うのでこのための恒温槽と、NaOH、又はKOHを入れる化学エッチング容器、および検出器を保持するホルダーが必要となる。現在準備中の恒温槽化学エッチング容器および検出器ホルダーの仕様と外観図を表2-1、図2-3、図2-4、図2-5に示す。

(2) エッチング条件

プラスチックの表面に垂直に入射した重荷電粒子飛跡を有する試料をエッチングする時、エッチング初期の時刻 t におけるエッチピット直径 D は、(1)式で示される¹⁶⁾。

$$D = 2 V_B t \sqrt{(V_T - V_B) / (V_T + V_B)} \quad \dots\dots (1)$$

$$\cong 2 V_B t \quad \dots\dots (2)$$

ここに V_B ：試料表面のエッチングされる速度（バルクエッチング速度）

V_T ：飛跡に沿ってエッチングが進行する速度（トラックエッチング速度）

アリル・ディ・グリコールカーボネイトの場合、 $V_T \gg V_B$ であり、(2)式に示される様に入射角のいかんを問わず、エッチピット直径の拡大は主としてバルクエッチング速度はエッチング液の温度に影響され、従ってエッチピット直径もエッチング液温によって変化する。この変化の傾向を図2-6に示す¹⁷⁾。

また、エッチング時間とエッチピット密度(cm^{-2})の間には図2-7に示す傾向があり、エッチング時間の増加につれてエッチピット密度も多くなる。この他エッチピット密度や直径は、エッチング液の濃度、放置時間、試料の処理数などにも影響を受けることが報告されている¹⁷⁾。

サービス機関が用いている代表的なエッチング処理条件の例を表2-2に示す。

エッチング液温度をパラメータにして、エッチング時間とエッチピット直径の関係を求めたグラフを図2-7に示す¹⁹⁾。

エッチング、水洗、乾燥までを自動化している装置も報告されている²⁰⁾。

表2-1 エッチング設備の仕様

(1) 恒温槽

性 能	構 成	規 格
使用温度範囲：室温+5～80℃ 最高温度到達時間： 165分 温度調整精度： ±0.02～0.05℃ 温度分布精度： ±0.1℃	ステンレス鋼SUS304 デジタル温度表示(0.1℃) ヒータ容量 2400W タイマ 1分～99時間59分 マグネットポンプによる槽内循環攪拌 安全装置(センサー断線, トラリアックショート, ヒータ断線)	外 寸 690×460×500 有効寸法 500×400×350 内 容 量 約70ℓ 電 源 AC100V 25A 重 量 約30kg

(2) エッチング槽

材 質	SUS 304 1mm t
寸 法	170 × 170 × 250 (上蓋付)
形 状	図2-4

(3) 試料ホルダー

材 質	SUS 304 1mm t
寸 法	123 × 33 × 180
構 成	6mm × 30minの試料100個
形 状	図2-5

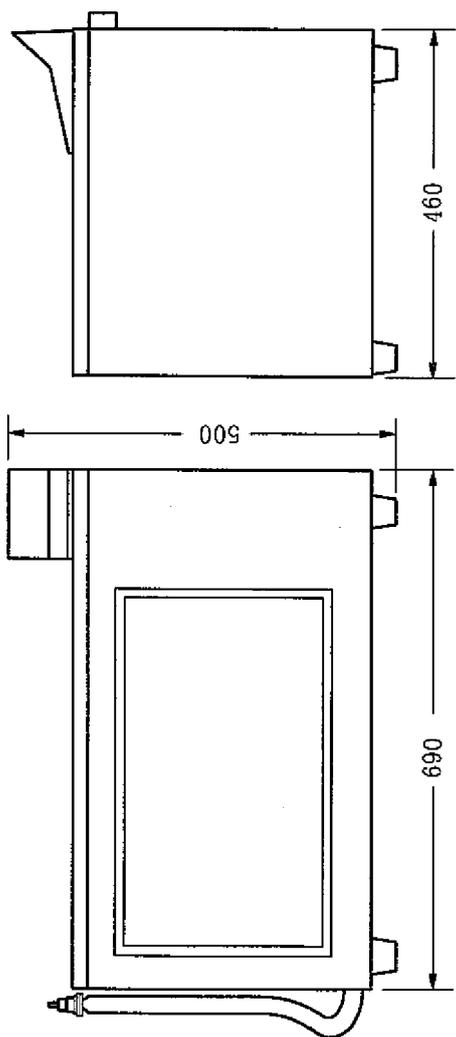


図2-3 恒温槽の外観図

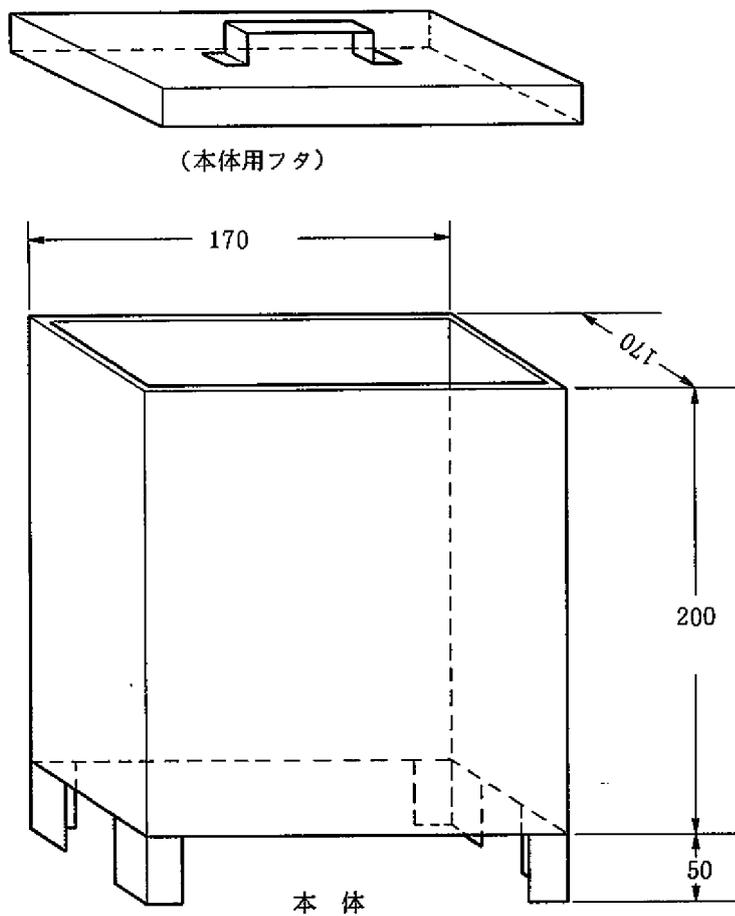


図2-4 化学エッチング容器

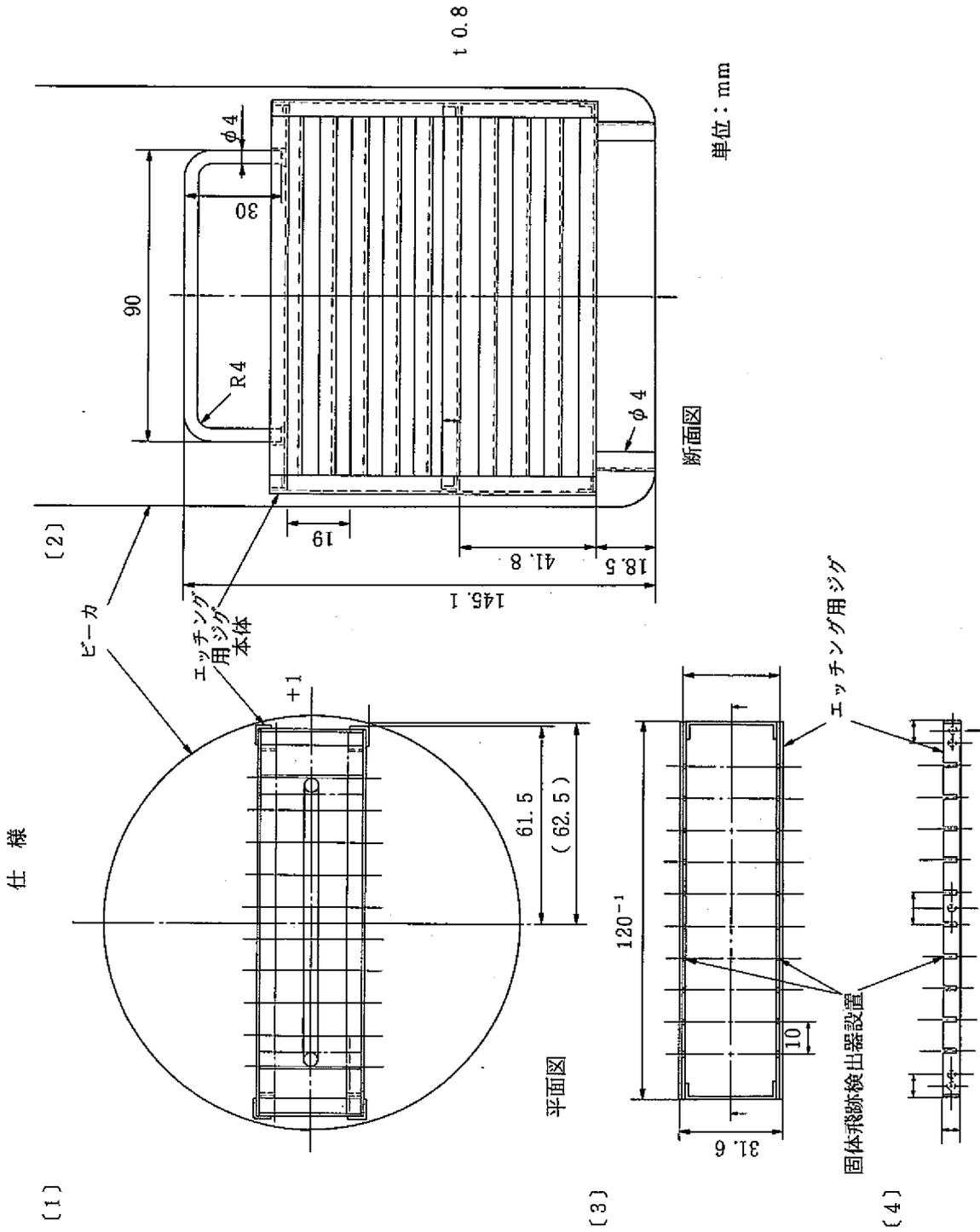


図2-5 検出器支持ホルダー

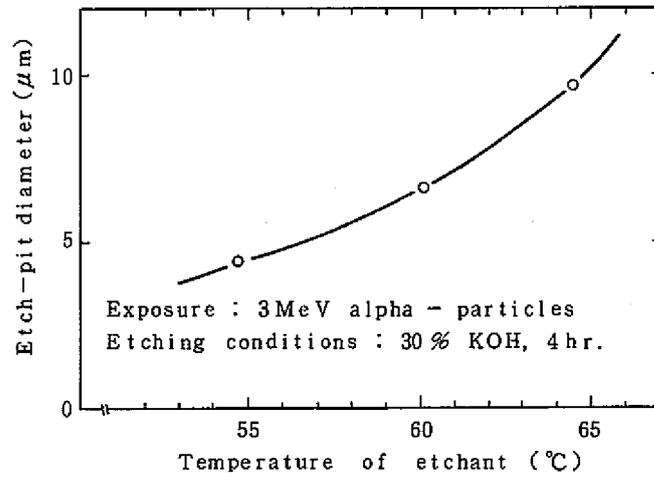


図 2-6 エッチング液温度とエッチピット直径の関係¹⁷⁾

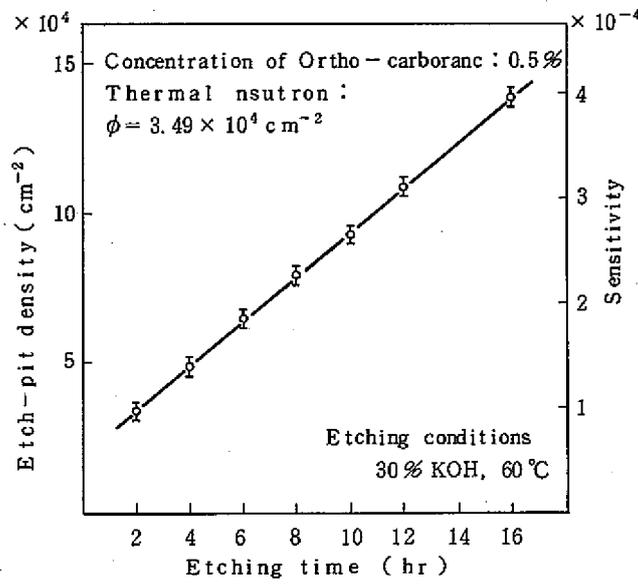


図 2-7 エッチング時間とエッチピット表面密度の関係¹⁸⁾

表 2-2 サービス機関が用いているエッチング処理条件の例

No.	エッチング液	エッチング液温度	エッチング時間
1	NaOH (約5N)	70℃	15 ~ 16 時間
2	KOH (30 w/o)	90℃	2 時間

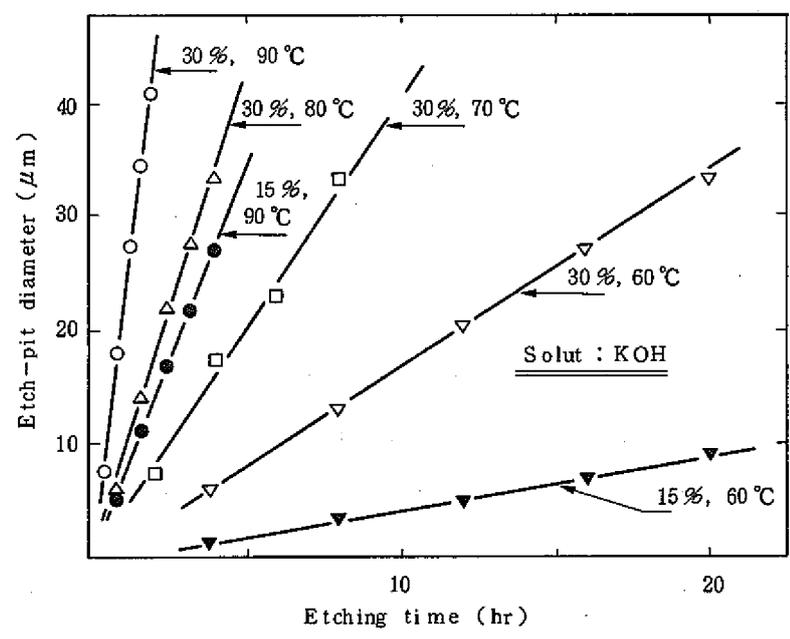


図 2-7 エッチング液温度、濃度およびエッチング時間とエッチピット直径の関係¹⁹⁾

2-4 飛跡計数に必要な設備と飛跡計数の自動化について

化学エッチング後のエッチピットは5～10 μ mの直径を持ち、透過光の光学顕微鏡を用いて、倍率200～300で計数することが出来る。又、走査型電子顕微鏡を用いると化学エッチング前でも観察できるという報告もある。

電子顕微鏡と自動計数装置を組合わせて飛跡計数の自動化を行っている例も報告されている²¹⁾。しかし前処理として、金属のコーティング操作が必要である。従って通常の飛跡計数には光学顕微鏡が適している。光学顕微鏡を用いた場合、数多くの試料を接眼レンズを通して肉眼で計数する方法には眼の疲労の点で限界があり、計数の再現性も悪いため、接眼レンズにはITVを接続し、TVブラウン管上に写し出されたエッチピット像を計数する方法、さらにこのTVブラウン管上のエッチピット像を画像処理装置により解析した後、自動計数する方法がある。また試料の移動²¹⁾、ピント合わせの自動化を組合わせることにより、試料を顕微鏡のステージ上に置いた後は、ピント合わせ、ステージ移動、画像処理、計数に到るまでを自動化することができる。

飛跡計数の際の画像解析装置に必要な機能としては、①ごみや傷の様に細長い像と円に近い反跳陽子によるエッチピットの弁別と②重なり合ったトラックの弁別③Rn-娘核種の α 線によるエッチピットを反跳陽子のエッチピットの弁別(エッチピットの大きさによって弁別する機能)④TV画面上のある指定された大きさのエッチピットと観測視野面積を演算する機能などが必要である。

自動ピント合わせ方式としては、半導体の表面検査に用いられている方法を応用することができる。自動ピント合わせ方式として①レンズ出口から風を送り、試料表面から反射してくる風圧を測定し対物レンズと試料表面間距離を一定に保つ方式②ITVで撮影した像の画像解析(画像のエッジを微分し、像が最もシャープになる位置をフィードバックをかけてサーチする)により行う方法③光学的にレーザー光を用いて試料表面の反射光を利用し、対物レンズと試料表面間距離を一定に保つ方法などがある。

①は固体飛跡検出器のように数mm角の小さな試料には適用が難しい。②は試料上に必ずエッチピットがある場合は適用できるが、実際の管理に用いた時は、検出限界以下でエッチピットが全くない場合も想定されるため、方式としては、試料表面と対物レンズ間距離を一定に保つ方式が望ましい。

このような条件を満足する自動ピント合わせ方式を調査した結果、西独のLeize社の光学顕微鏡がレーザー光を用いた光切断法を開発している事が分かり、この光学顕微鏡を用いて自動ピント合わせを試みたところ、エッチピットが全くない試料についても、確実にピント合せの出来ることがわかった。この光学顕微鏡の仕様を表2-3に示す。この顕微鏡ではピント合わせは反射光でエッチピット観察は透過光又は反射光を用いて行うことになる。画像解析装置はすでに完成された製品が市販されており、光学顕微鏡の接眼レンズにITVを接続して用いることができる。

自動ピント合わせ機構、ステージ移動機構、画像解析、エッチピット計数の一連の動作を制御し、エッチピット数にあらかじめ定めた校正定数を乗じて、線量当量(rem)を求めるためにパーソナ

ルコンピューターが必要である。

表2-3 Leige社の光学顕微鏡の仕様

<p>照 明 レ ン ズ</p>	<p>ハロゲンランプ, 落射光又は透過光の明暗視野 対物 10×, 20×, 50×, 接眼 10×</p>
<p>オートステージ</p>	<p>走査速度 最大 50 mm/sec 最小移動 1 μm 位置精度 ±2.5 μm 移動範囲 155 mm × 155 mm 移動モード プログラミングによる自動駆動</p>
<p>オートフォーカス (光切断法)</p>	<p>適 応 検 鏡 法 $\left. \begin{array}{l} \text{透過光} \\ \text{落射光} \end{array} \right\} \text{明・暗視野}$ 適応対物レンズ倍率 5×, 8×, 16×, 20×, 32× 50×, 80×, 100× 精 度 0.1 μm 捕 捉 範 囲 対物鏡PL 80×使用時 1000 μm オートマニュアル切換 可 フォーカシング時間 数 msec</p>

3. 固体飛跡検出器に関する特性試験

固体飛跡検出器を中性子個人被曝管理に適用するに当っては中性子に対する基本特性の確認が必要である。今回行った試験項目は以下の通りである。試験に使用した中性子は、作業環境の中性子エネルギースペクトルに近い方が好ましいため、プルトニウムの原料缶から出る中性子、プルトニウム第二開発室F-102室のプルトニウムペレットの入った焼結炉表面およびプルトニウムペレットの入っているグローブボックスパネル表面などを選んだ。

3-1 線量率特性

中性子源としてはプルトニウム第二開発室F-102のD-19の焼結炉に入っているプルトニウムペレットから放出される中性子を利用した。線量率の試験範囲は0～約100 mremの間で3点、1ヶ月毎に合計6回行い、エッチピット密度とレムカウンタの計数率から求めた線量当量 (rem) との直線性および変換係数の安定性を調べた。

照射はアリル・ディ・グリコールカーボネイトとポリエチレンを熱収縮チューブを用いて密着し、これをTLDバッジの中に入れ、パラフィンファントに着けた条件で行った。今回使用した検出器の仕様を表3-1に、また検出器の外観図を写真3-1に示す。

照射後の検出器は、約5規定のNaOH溶液70℃で15時間化学エッチングした後、光学顕微鏡を用いて3.363 mm²中のエッチピット数を計数した。今回、化学エッチングとエッチピット計数は全てサービス機関に依頼した。中性子の総照射線量はレムカウンタのカウント数から線量当量率を求め、これと照射時間との積から求めた。照射は一測定条件で4コの検出器を用い、4個の平均値と標準偏差を求めた。

以上の条件で得られたエッチピット密度と線量当量の関係を図3-2から図3-8および表3-2に示す。表3-2には最小二乗法で求めた実験式を示した。

数10 mremの速中性子照射では200倍の倍率の光学顕微鏡を用いて観察した時1視野中のエッチピット数は1～2個、多くても3個程度である。この時のエッチピットの写真を写真3-2に示す。

また、エッチピットを走査電子顕微鏡を用いて撮影した写真を写真3-3に示す。

表3-2の結果からプルトニウム原料缶以外のF-102室のプルトニウムペレット入焼結炉表面において中性子照射した時のエッチピット数と線量 (mrem) との変換係数は2.10～2.34で、Na 2からNa 6の6回の平均は2.21、標準偏差は0.093であり変換係数は比較的安定していることがわかった。プルトニウム原料缶からの中性子の場合には変換係数は3.68となっているが、これは固体飛跡検出器の中性子エネルギー依存性によるものである。

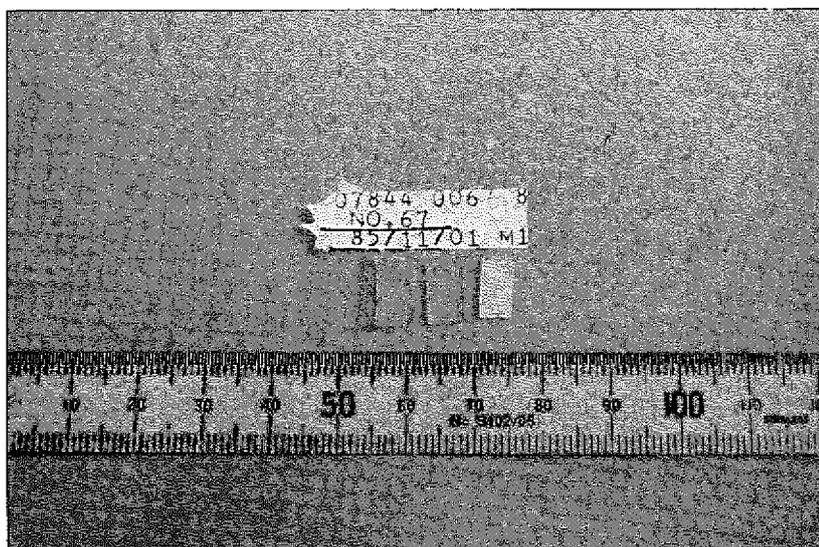
表3-1 固体飛跡検出器の仕様

	材 質	寸 法
検 出 器	アリル・ディ・グリコールカーボネイト*	9 mm × 5 mm × 1 mm ^t
ラジエータ	高密度ポリエチレン	9 mm × 5 mm × 1 mm ^t

* 徳山ソーダ(株)製



(a) 熱収縮チューブで一体化したもの



(b) 検出器，ラジエータを分解したもの

写真3-1 固体飛跡検出器の外観図

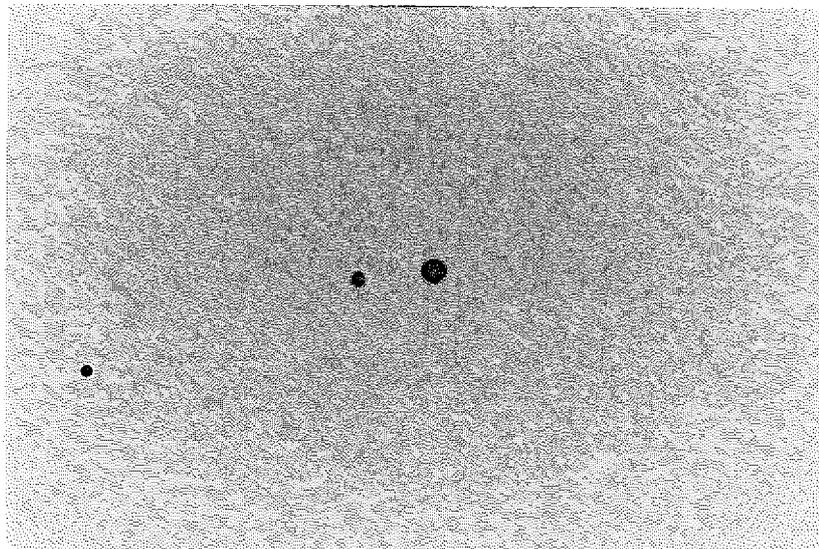


写真3-2 数10mremの速中性子照射時のエッチピットの
光学顕微鏡像（200倍）

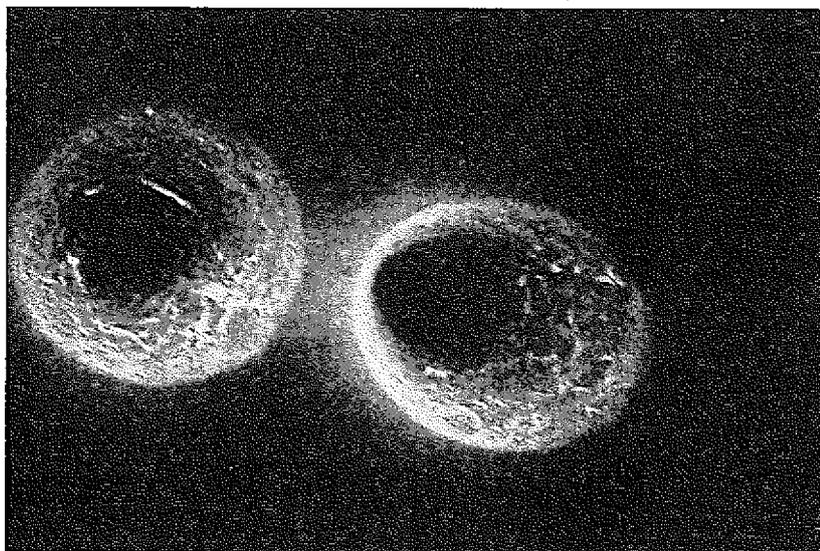


写真3-3 エッチピットの電子顕微鏡像（5000倍）

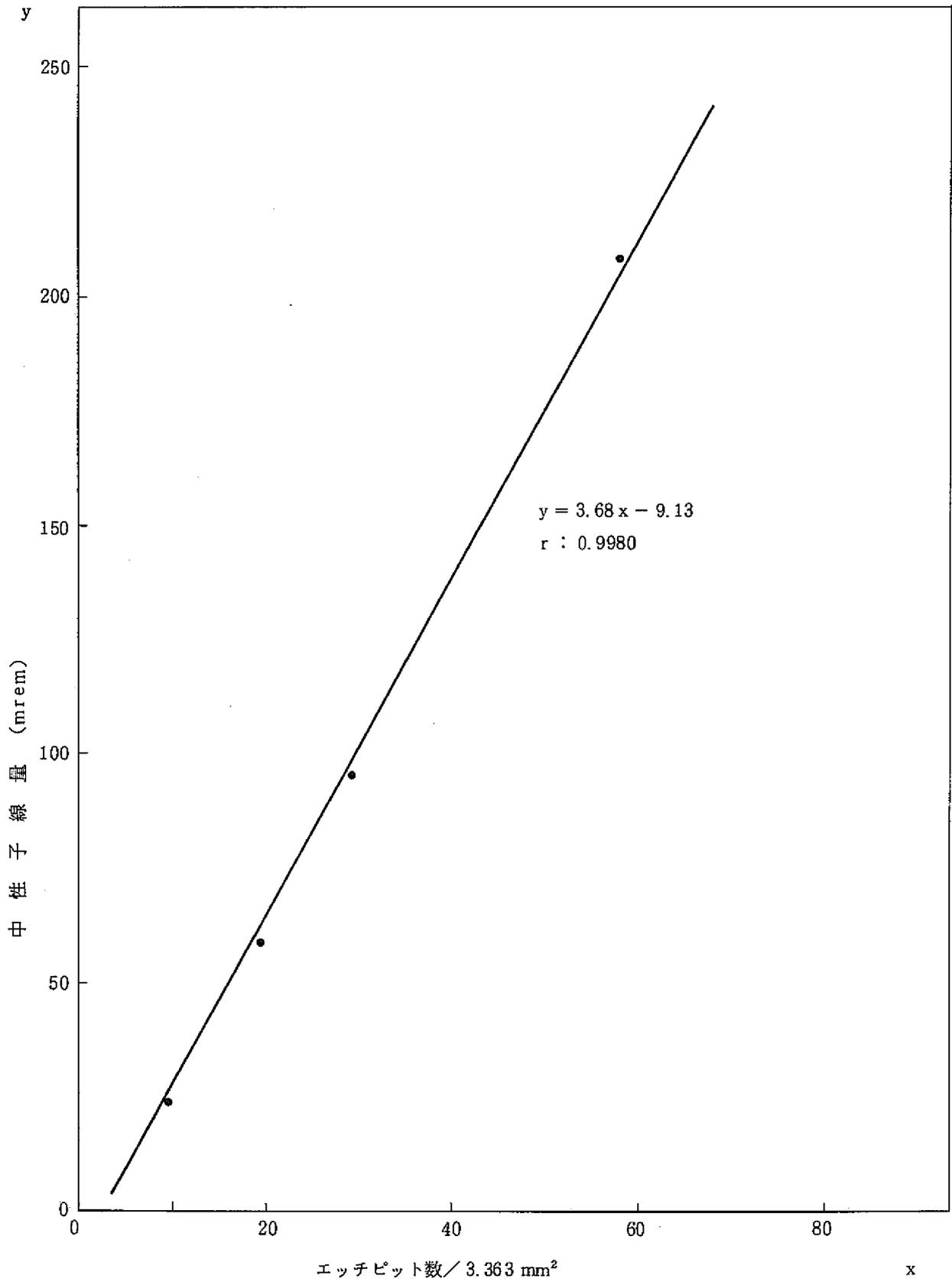


図3-2 固体飛跡検出器のエッチピット数と中性子線量の関係 (No.1)

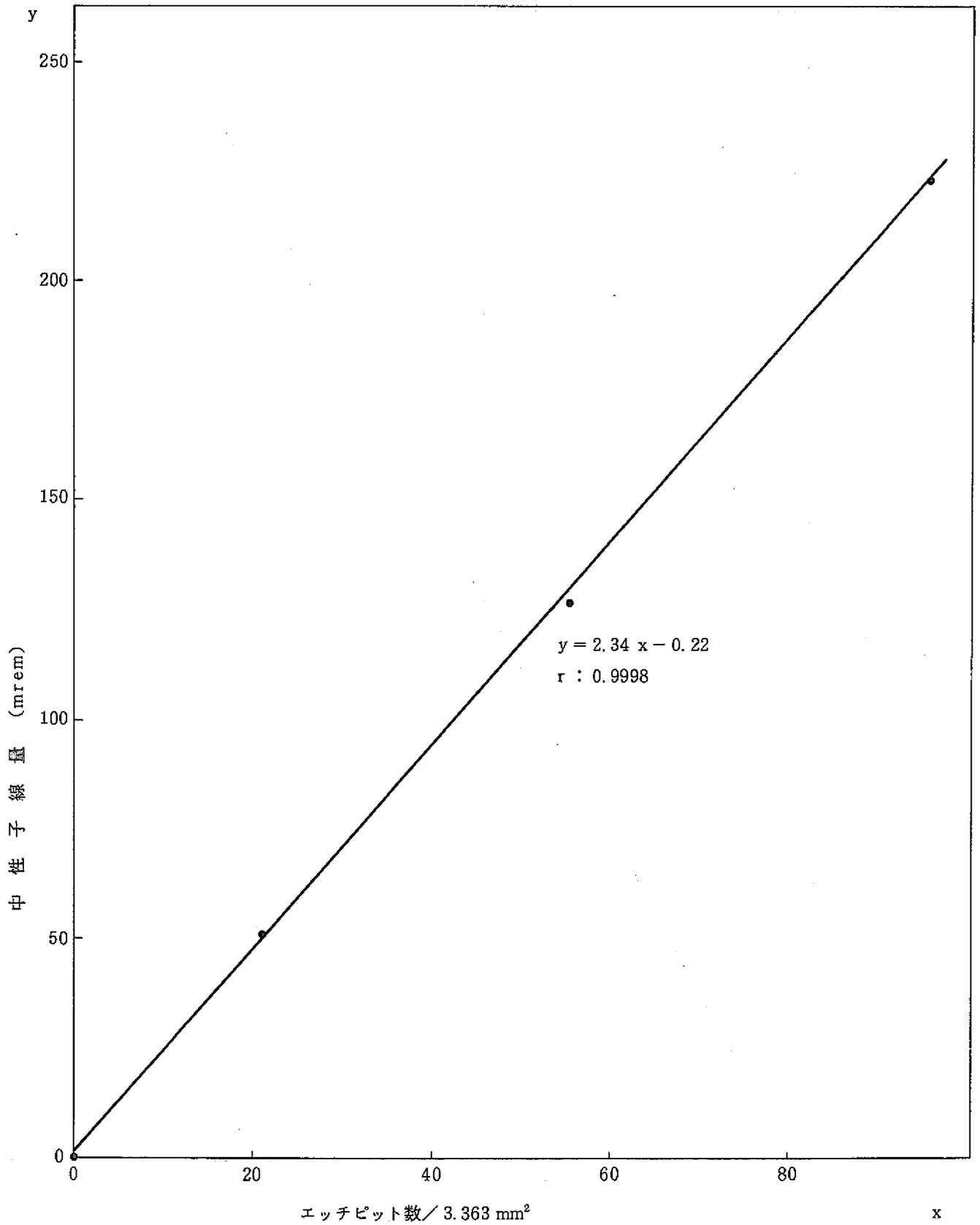


図3-3 固体飛跡検出器のエッチピット数と中性子線量の関係 (No.2)

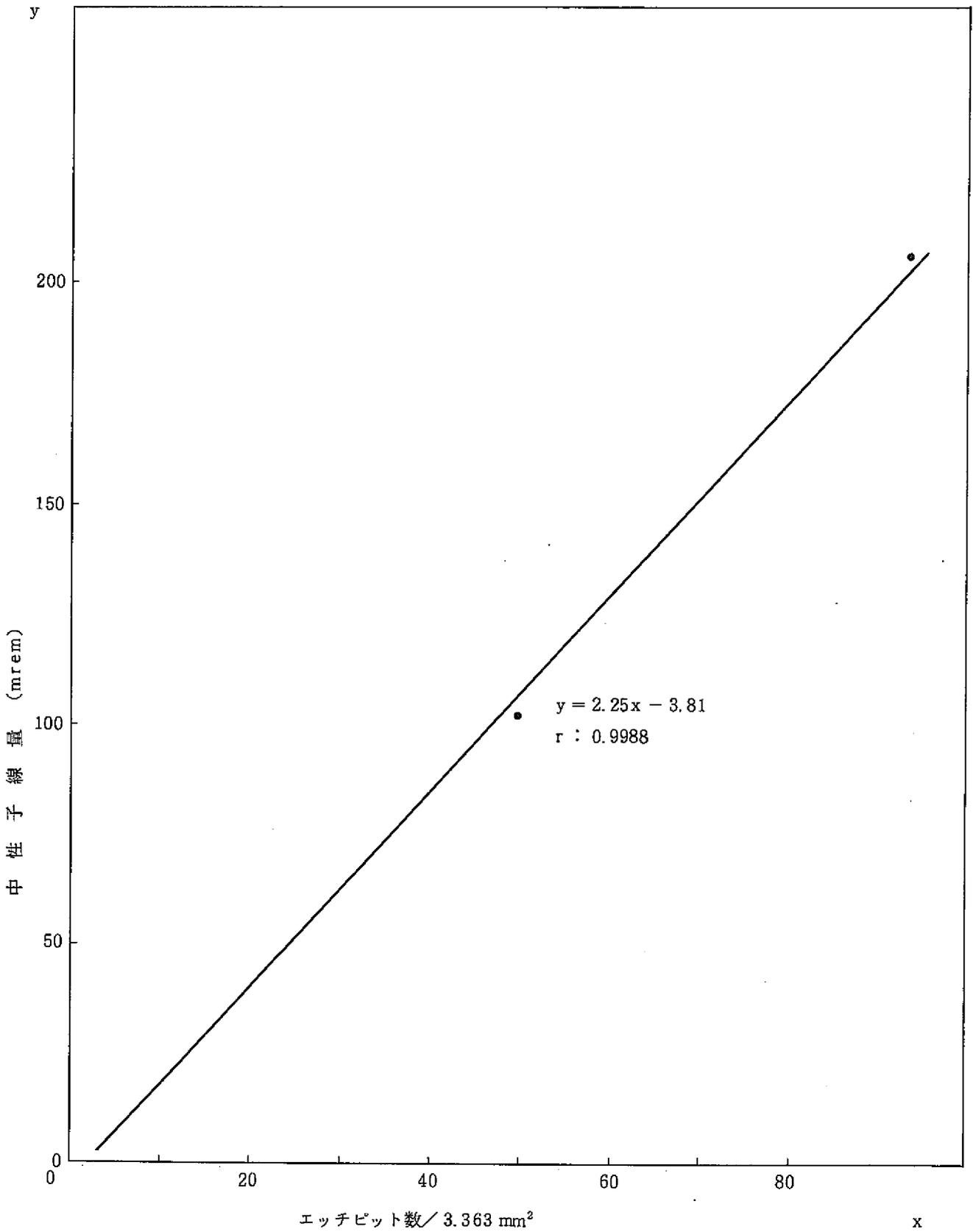


図 3 - 4 固体飛跡検出器のエッチピット数と中性子線量の関係 (No. 3)

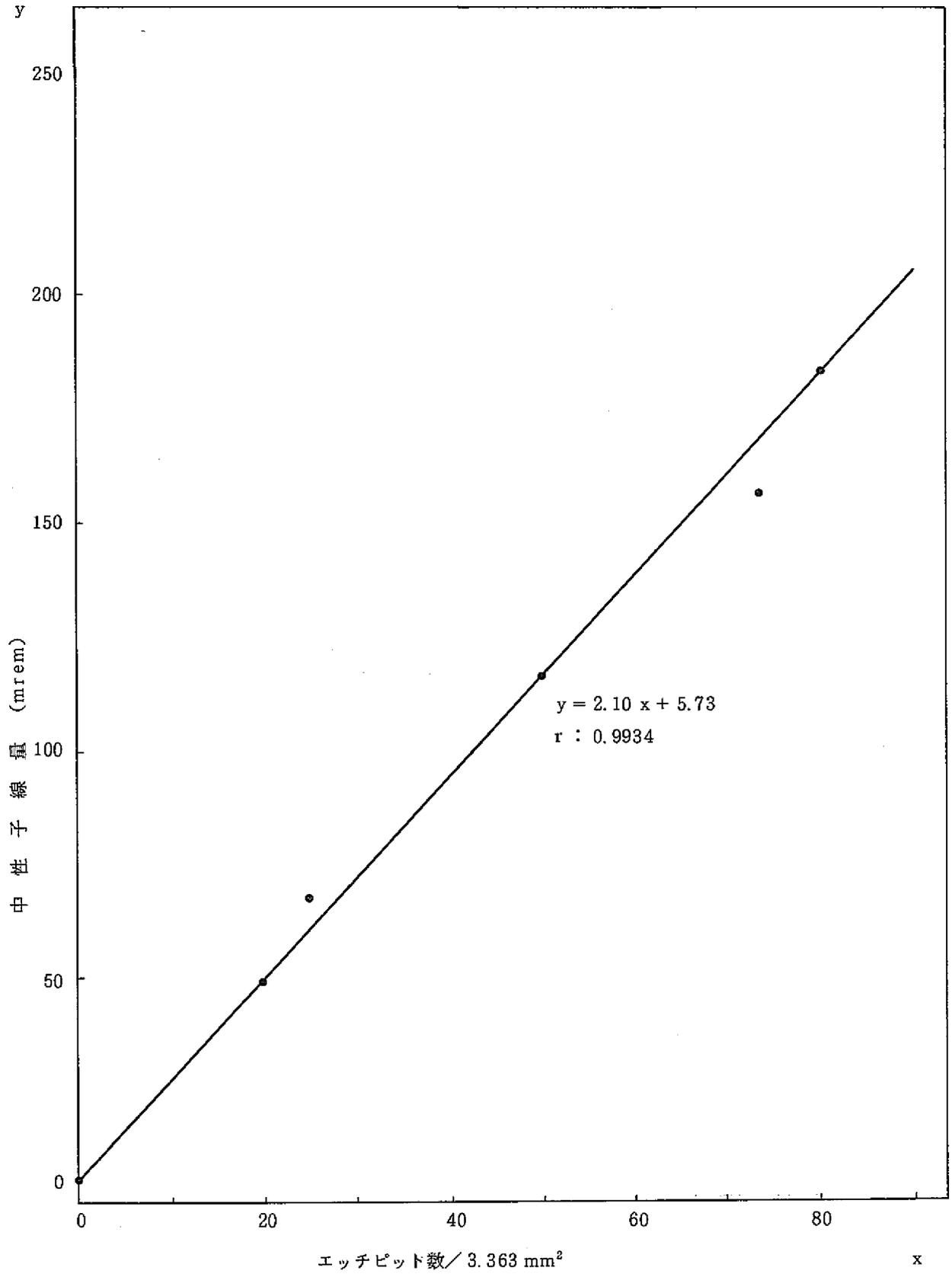


図3-5 固体飛跡検出器のエッチピット数と中性子線量の関係 (No.4)

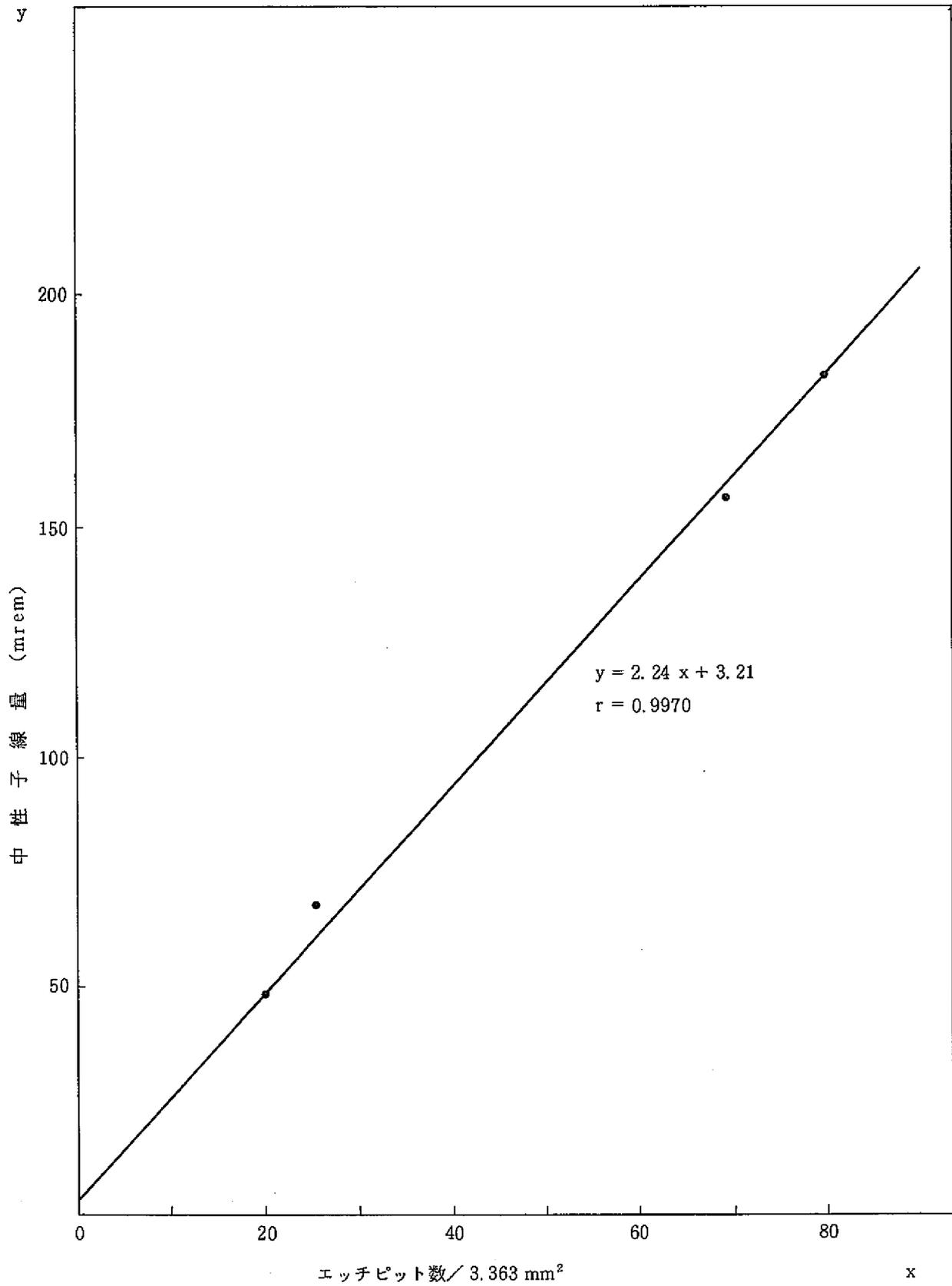


図 3-6 固体飛跡検出器のエッチピット数と中性子線量の関係 (No.5)

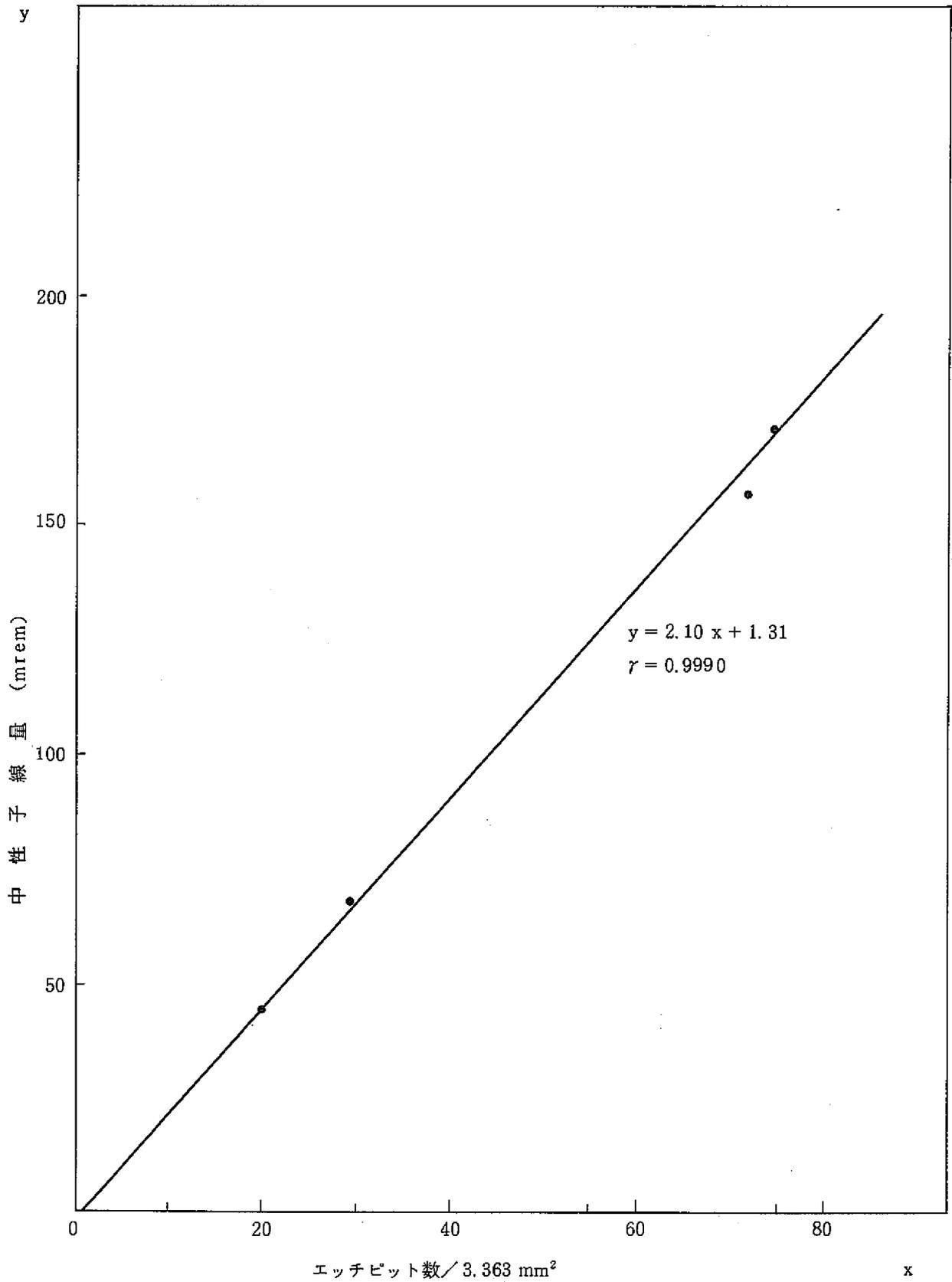


図3-7 固体飛跡検出器のエッチピット数と中性子線量の関係 (No.6)

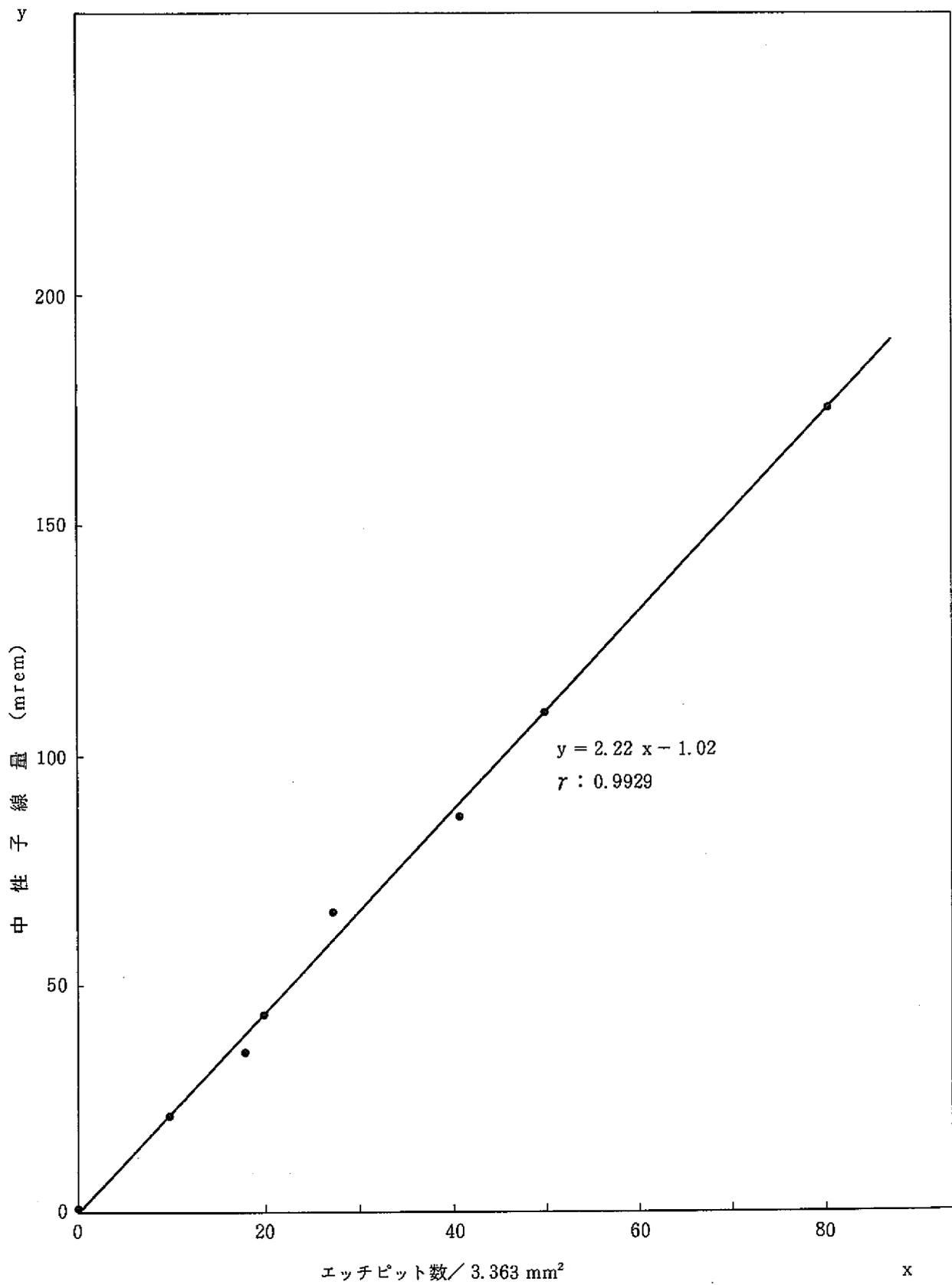


図 3-8 固体飛跡検出器のエッチピット数と中性子線量の関係 (No.7)

表3-2 固体飛跡検出器の照射線量とエッチピット密度の関係

No.	中性子線量 (y) mrem	エッチピット数/3.363 (x) mm ²	最小二乗法から求めた 実験式(相関係数)	照射条件
1	0 23.8 59.5 95.2 208	0.5* 9.8 ± 1.5 19.8 ± 1.3 29.4 ± 2.1 58.0 ± 4.6	$y = 3.68x - 9.13$ ($r : 0.9980$)	プルトニウム原料缶
2	0 51.2 127.1 240.0	0.5* 21.0 ± 1.4 55.3 ± 3.2 102.5 ± 10.9	$y = 2.34x - 0.22$ ($r : 0.9998$)	F-102室 グローブボックスD-19 焼結炉表面
3	0 102.2 207.6	0.5* 49.8 ± 2.9 92.8 ± 5.9	$y = 2.25x - 3.81$ ($r : 0.9998$)	同上
4	0 67.9 156.0	0.5* 24.8 ± 1.3 73.3 ± 5.3	$y = 2.10x + 5.73$ ($r : 0.9934$)	F-102室 グローブボックスD-19 グローブボックス表面
5	0 67.9 156.0	0.5* 25.8 ± 3.5 69.3 ± 5.2	$y = 2.24x + 3.21$ ($r : 0.9970$)	同上
6	0 67.9 156.0	0.5* 29.8 ± 1.9 74.3 ± 6.3	$y = 2.10x + 1.31$ ($r : 0.9990$)	同上
7	0 35.3 65.9 86.8	0.5* 18.0 ± 0.83 27.3 ± 2.06 40.8 ± 2.14	$y = 2.22x - 1.02$ ($r : 0.9929$)	F-102室 グローブボックスD-19 焼結炉表面

* B.Gは7回の平均の0.5を一律用いた。

3-2 方向依存性

中性子が検出器に入射する角度と感度との関係を知るため中性子の入射角度が 0° 、 30° 、 60° 、 90° および 180° の条件について、F-102室プルトニウムペレット入り焼結炉表面および校正室の ^{252}Cf 線源をそれぞれ照射した。固体飛跡検出器はプルトニウム板に張り付け空気中（free-air）で照射し、1つの角度について各3個用い、平均値と標準偏差を求めた。

以上の結果を表3-3と図3-9に示す。図3-9からわかるように、感度は中性子の入射角度が大きくなるにつれて悪くなり、入射角度が 60° では、感度は入射角度が 0° の時の約50%となる。 ^{252}Cf の中性子とプルトニウムの中性子による差はほとんど認められない。Benton⁷⁾等の実験では入射角度 60° で感度は35%と悪くなっている。中性子のエネルギーによる差がない点では一致した結果となっている。線源がプルトニウムで入射角度が 180° 、即ち裏側から中性子が照射された時の感度は入射角度が 0° の時の約50%という結果が得られた。これらの結果を実際の人の被曝線量評価に反映させるためには、作業者が中性子線源に対しどのような位置関係で作業している時間が最も多いかを解析してその結果と方向依存性のデータを組み合わせて結果を解釈することも必要である。固体飛跡検出器の角度依存性は、固体飛跡検出器のエッチピットの計数が単位面積当りを計数することから、検出器と中性子の入射方向のなす角度で説明することができる。即ち、検出器と中性子の入射方向がなす角度を θ とすると、感度は $\text{COS } \theta$ で表わすことができる。

図の3-9に $\text{COS } \theta$ の曲線を実線で示すが、 ^{252}Cf 線源、プルトニウム線源のいずれの場合も、入射角度 60° までは、この理論曲線に良く一致している。入射角度 90° においては検出器と中性子の入射方向が平行となるため、理論上は感度が0となるが、検出器が厚みをもっていることと、中性子の入射方向が必ずしも一様でないことなどの理由から、入射方向 0° の時の約25%の感度を持っている。また、中性子が裏面から入射した時にも、前面のラジエータではなく検出器自体からの反跳陽子による飛跡がエッチングされることにより、入射角度が 0° の時の約50%の感度を持っている。

3-3 ファントム効果

固体飛跡検出器を個人被曝モニタリングに使用する場合、検出器は通常胸部に装着して使用される。そこで中性子が人体に当り反射して検出器に裏面から入るいわゆるファントム効果について調べた。中性子としてはF-102室グローブボックスD-19の焼結炉中のプルトニウムを線源として用い、焼結炉表面から約20cmの位置においてレムカウンタを用いて同じ線量率を示す2ヶ所を選び、一方にはパラフィンファントム（20cm×30cm×40cmの楕円型）を置き、この表面に固体飛跡検出器を4個張り付けた。他方には、アルミニウム板に固体飛跡検出器を4個張り付け、両方共同じ時間照射し、照射後の検出器を同一条件で化学エッチングし、エッチピット密度を計数した。

この結果を表3-4に示す。両者のエッチピット密度はファントムの有る場合が 54.0 ± 2.94 ,

表 3-3 固体飛跡検出器の方向依存性試験結果

線 源	照 射 角 度	エッチピット数 個 / 3.363 mm ²	中性子線量 (mrem)	相 对 感 度
²⁵² Cf	0	55 50 53.3 ± 2.9 55	79.4	1.0
	30	47 43 44.0 ± 2.7 42	65.6	0.826
	60	17 28 26.0 ± 8.2 33	38.7	0.488
	90	12 12 13.0 ± 1.7 15	19.4	0.243
	180	32 36 33.7 ± 2.1 33	50.2	0.609
プルトニウム	0	22 24 22.3 ± 1.5 21	48.7	1.0
	30	18 15 19.3 ± 5.1 25	42.1	0.865
	60	11 12 10.7 ± 1.5 9	23.3	0.480
	90	4 5 5.67 ± 2.1 8	12.2	0.254
	180	20 15 10.5 ± 6.2 11	22.9	0.471

エッチピット密度 (x) から線量 (y) への換算係数

²⁵²Cf y = 1.49 x (約 80 mrem 照射)

PuO₂ y = 2.19 x - 0.16 (約 50 mrem 照射)

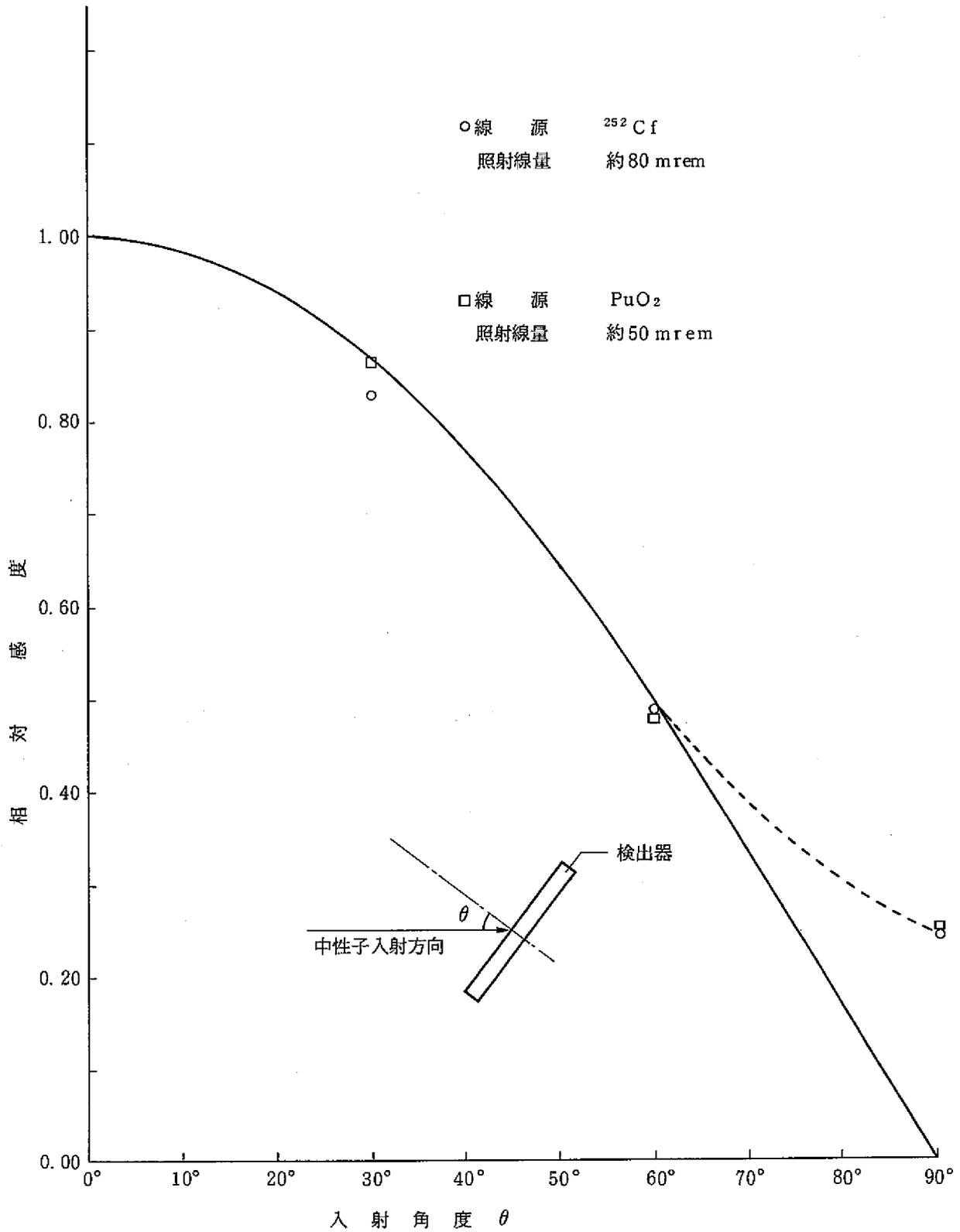


図3-9 固体飛跡検出器への中性子の入射角度と相対感度の関係

ファントムの無い場合が 58.0 ± 3.65 で、この両者について t 検定を行った結果、95%信頼度をもって両者に有意差は無いと結論された。従って、固体飛跡検出器のエッチピット数から線量に変換する校正は空気中 (free air) で行い、これから求めた校正定数をそのまま個人の線量評価に用いても問題のないことがわかった。

3-4 感度のばらつき

プルトニウムから放出される速中性子について、照射線量と感度のばらつきの関係を調べた。感度のばらつきは平均値に対する百分率標準偏差により表わすことが出来る。即ち、数個の検出器を同一条件で照射した時のエッチピット数から求まる線量を X_i 、平均値を \bar{X} とすれば、

$$\text{標準偏差} : \sigma_{n-1} = \sqrt{\frac{(X_i - \bar{X})^2}{(n-1)}} \quad \dots\dots (3-1)$$

$$\text{百分率標準偏差} : (\sigma_{n-1} / \bar{X}) \times 100 (\%) \quad \dots\dots (3-2)$$

で示され、この値が小さい程統計的に感度のばらつきが小さいとすることができる。

中性子としては F-102 室グローブボックス D-19 の焼結炉中のプルトニウムペレットを線源として用い、レムカウンタを用いて測定した線量率が約 9 mrem/hr, 約 4 mrem/hr, 約 2 mrem/hr, 約 1 mrem/hr の各個所に、1 個所に付き、20 個の検出器を置き約 16 時間照射した。照射後の検出器を同一条件で化学エッチングし、レムカウンタから求めた線量率を照射時間から照射線量を計算し、エッチピット密度と照射線量の変換係数を求めた。

この変換係数を図 3-10 に示す。

図 3-10 の校正曲線を用いて個々の検出器のエッチピット密度を線量に変換し、照射線量が、139 mrem, 65.3 mrem, 31.2 mrem, および 15.5 mrem の 4 つの条件について、20 個の平均値と標準偏差を求め、各々の百分率標準偏差を求めた。その結果を表 3-5 と図 3-11 に示す。図 3-11 に示すように百分率標準偏差は、照射線量が 20 mrem では 28%, 50 mrem では 15%, 80 mrem では 10%, 140 mrem では 8% と、線量の増加とともに減少し、中性子個人被曝線量計として満足できる性能を持っていることがわかった。20 mrem 程度の低線量域での百分率標準偏差をさらに小さくするためには、エッチピットの計数面積を大きくし、統計的ゆらぎを小さくすることが必要である。

表3-4 ファントム効果実験結果

条 件	エッチピット数 (個/3.363mm ²)	平均および 標準偏差
ファントム有	55 50 57 54	54.0 ± 2.94
ファントム無	54 62 56 60	58.0 ± 3.65

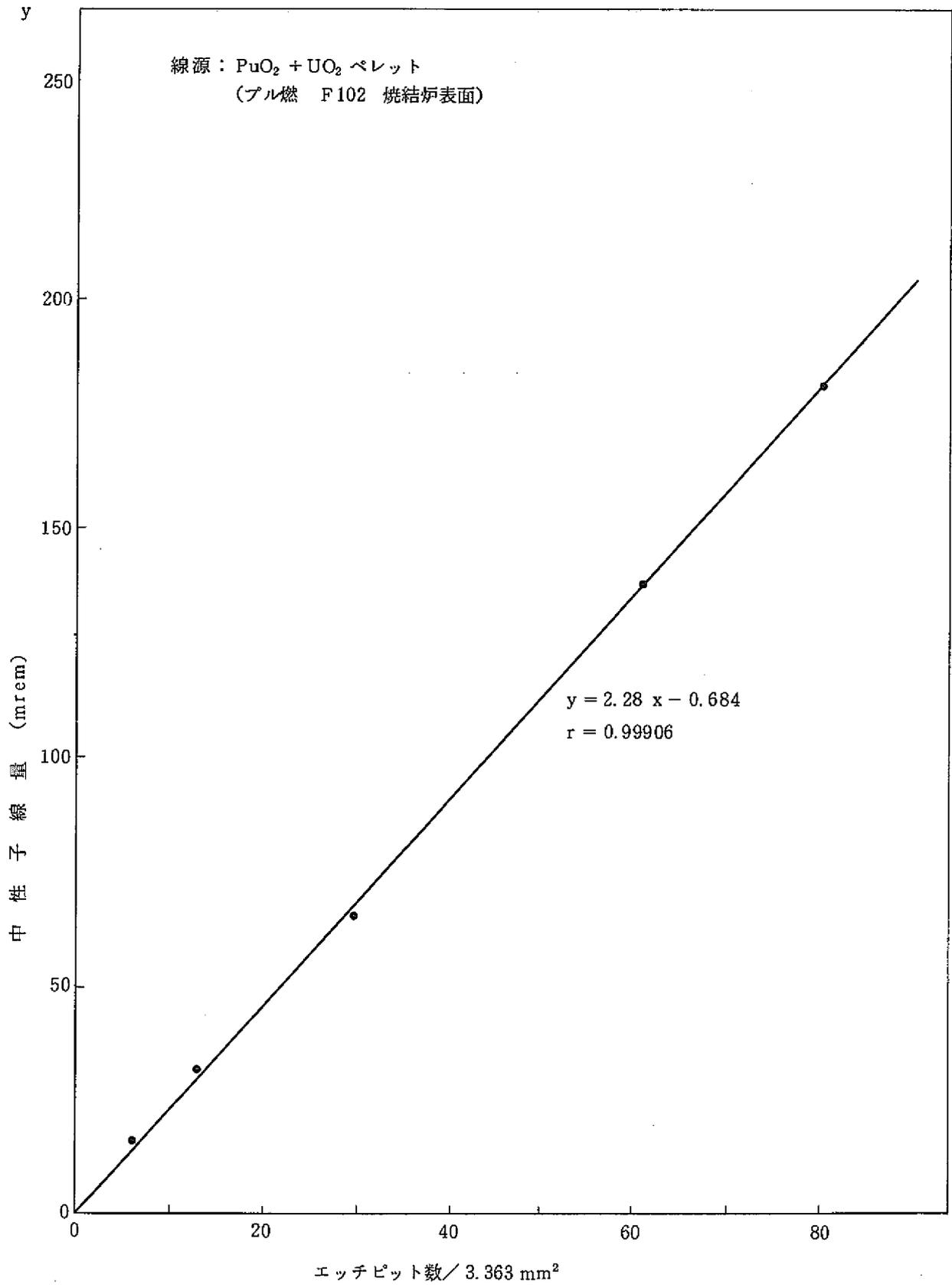


図3-10 固体飛跡検出器のエッチピット数と照射線量の関係

表3-5 百分率標準偏差試驗結果

	0 mrem	15.5 mrem	31.2 mrem	65.3 mrem	139 mrem
1	1.6	24.4	31.2	72.2	129.1
2	0	8.42	26.6	69.9	138.2
3	0	8.42	15.3	72.2	129.1
4	1.6	13.0	22.1	72.2	133.6
5	1.6	19.8	35.7	69.9	138.2
6	0	8.42	40.3	54.0	122.3
7	3.9	17.5	31.2	54.0	142.7
8	0	17.5	31.2	74.4	138.2
9	3.9	13.0	33.5	56.2	158.7
10	1.6	13.0	24.4	57.6	158.7
11	3.9	22.1	24.4	56.2	138.2
12	1.6	15.3	40.3	67.6	142.7
13	3.9	10.7	38.0	70.0	129.1
14	3.9	17.5	28.9	57.6	122.3
15	8.4	8.42	28.9	65.3	154.1
16	0	8.42	22.1	63.1	140.5
17	8.4	13.0	24.4	65.3	133.6
18	15.3	8.42	24.4	63.1	156.4
19	8.4	13.0	31.2	72.2	147.3
20	8.4	15.3	26.6	58.5	133.6
平均	3.8	13.8	29.0	64.6	139.3
標 偏 準 差	4.1	4.86	6.49	6.99	11.1
百 標 準 分 率 差	—	35.2 (%)	22.4 (%)	10.8 (%)	8.0 (%)

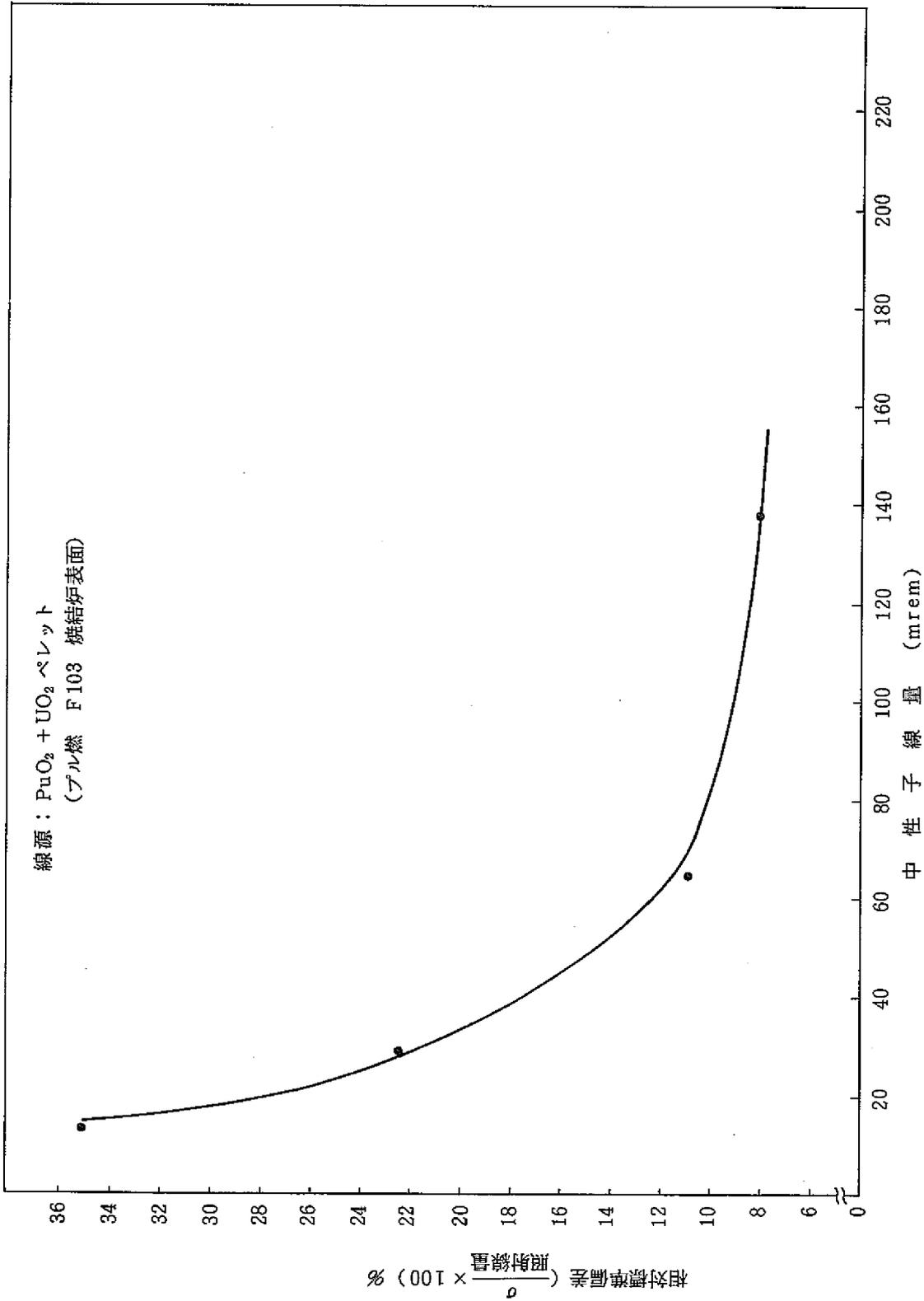


図3-11 中性子線量と相對標準偏差の關係

3-5 潜像退行特性

反跳陽子による飛跡は常温では安定で消失しないことが報告されている。国産のアリル・ディ・グリコールカーボネイトについて、プルトニウムからの中性子を、約 25mrem 照射と約 73mrem 照射について各々 12 個、合計 24 個照射した後これらを 3 つの組に分け、1 組は約 1 週間後に、1 組は 40 日後に、1 組は 70 日後に化学エッチングし、中性子照射と化学エッチング迄の経過時間と、エッチピット数の関係を調べた。その結果、これら 3 組について有意判定を行った結果、信頼度 95 % で有意性は認められず、常温においては 70 日間の放置で像退行は全く認められなかった。この結果は Benton 等の結果とも一致し、Benton 等は 22℃ では 40 日間で全く潜像退行が認められないと報告している。

3-6 検出限界

固体飛跡検出器の検出限界を調べるため検出器 20 個を 1 ヶ月間、室内に放置した後、化学エッチングし、 3.363 mm^2 中のエッチピット数を計数し、これを 3-1 節に示した校正定数を用いて線量に変換し、20 個の検出器の平均値と標準偏差を求めた。その結果平均値は 3.8 mrem、標準偏差は 4.1 mrem であった。検出限界を標準偏差の 3 倍と定義すると検出限界は約 13 mrem となる。従って固体飛跡検出器は検出限界 20 mrem で個人中性子モニタリングとして利用できるといえる。特に γ 線が混在する場合においても、固体飛跡検出器は γ 線に感度をもっていないところから同じ検出限界を維持できることが大きな特長である。

結 言

固体飛跡検出器による中性子個人被曝線量測定、特に、プルトニウム燃料製造施設における速中性子個人被曝モニタリングへの適応のための調査並びに特性確認試験を実施した。その結果、以下のことが明らかになった。

〔調査結果〕

- (1) 固体飛跡検出器としては、ポリカーボネイト、ニトロセルロース、雲母などが用いられているが、速中性子の検出器には、アリル・ディ・グリコールカーボネイト（CR-39）を使用し、これと約1 mmのポリエチレンを組み合わせ、反跡陽子による飛跡を利用する方法が感度、低バックグラウンドの点で最も優れている。
- (2) エネルギーレスポンスは、0.5 MeV～2 MeVの間で30%と平坦である。
- (3) 潜像退行は、常温（22℃）で40日間では、全く認められない。
- (4) 化学エッチングに必要な設備と条件について調査し、装置等の仕様を決定した。エッチング条件は、特に、液温のコントロールが重要で速中性子の検出のためには、NaOH（6.25 N）70℃で約15時間のエッチングが適している。
- (5) エッチピットを光学顕微鏡を用いて観察する際、数多くの試料を迅速に処理するためには、自動ピント及び自動試料送り装置が必要となる。この場合、数10 mremの速中性子照射では、200倍の倍率で1視野当りの飛跡は0～3個程度であり、画像に着目して自動的にピント合わせを行うことは難しい。従って、自動ピント方式としては、試料表面を自動検出する方式が適している。これらの調査結果をもとに、エッチピットの自動計数のための装置の仕様を決定した。

〔特性試験報告〕

- (1) プルトニウムの放出する速中性子を利用して、0～約100 mremの線量範囲についてエッチピット数と照射線量との直線性を調べた結果、相関係数で0.999以上の良い直線性を示した。約6ヶ月にわたり計6回、検出器のロット、異なる時期の化学エッチングについて、エッチピット数から線量に変換する校正定数の安定性を調べた結果、校正定数の6回の平均は2.21、標準偏差は0.093と良好であった。
- (2) 固体飛跡検出器の方向依存性を調べた結果、速中性子の入射方向と検出器のなす角度が大きくなるにつれて感度は減少し、入射角度60°で50%に減少することがわかった。
- (3) 潜行退行は常温において70日で全く認められなかった。
- (4) 固体飛跡検出器のファントム効果は、実験の結果無視できることがわかった。
- (5) 固体飛跡検出器の速中性子に対する感度のばらつきは、百分率標準偏差で表わすと線量が20 mremでは28%、50 mremでは15%、80 mremでは10%、140 mremでは8%であった。

- (6) 固体飛跡検出器の速中性子に対する検出限界は、バックグラウンド計数値を線量当線へ変換した時の標準偏差の3倍(3σ)と定義すると13 mremであった。

参 考 文 献

- 1) P. B. Price and R. M. Walker : Phys. Rev. Letters, 8 (1962) P 271~219
- 2) R. L. Fleischer, P. B. Price and R. M. Walker : J. appl. Phys.
36 (1965) P 3645~3652
- 3) 阪上正信：固体の粒子トラック法とその発展
化学の領域 24-2 P 124~137
- 4) B. G. Cartwright, E. K. Shirk and P. B. Price : Nucl. Instrum&Methods
153 (1978) P 457
- 5) 林孝義：固体飛跡検出器としてのCR-39プラスチック応用物理 49巻7号(1980)
P 705~712
- 6) 鶴田隆雄：硼酸リチウム塗布硝酸セルロースフィルムによる中性子線量測定, 近畿大学研究所年報 第21号(1984) P 79~86
- 7) E. V. Benton, R. A. Oswald et al: Proton-recoil neutron dosimeter
for personnel monitoring, Health Physics Vol.40 (1981) P 801~809
- 8) 大口裕之, 寿藤紀道他：染色処理によるCR-39プラスチック表面状態の改善 日本保健物理学会第20回研究発表会要旨集(1985) P 77
- 9) 大和愛司, 小泉勝三, 宮部賢次郎他：プルトニウム燃料製造施設に於る中性子エネルギースペクトルの測定および線量評価 PNC SN8410 86-08 (1986)
- 10) 宮部賢次郎, 野村幸広他： $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7(\text{Cu})$ 蛍光体を利用したTLDバッジによる中性子線量評価に関する検討 PNC N841 84-48 (1984)
- 11) P. Kotrappa, S. K. Dua, et al: Passive measurement of radon and
thron using TLD or SSNTD on electrets, Health Physics Vol.43
(1982) P 399~404
- 12) 飯田孝夫：固体飛跡検出器を用いたラドン濃度測定法, 放射線科学, Vol. 27, No 12, P217~220
- 13) T. M. J knöfel and J. J. S Estrada: Responce characteristics of
cellulose nitrate track-detectors to radon and radon-daughter
mixturs Nucl. Inst. Z Methods 212 (1983) P. 387~392
- 14) Nobuhito Ishigure and Osamu Matsuoka: Energy dependenct of etch pit
diamater in a CR-39 detector for α -particles with the energy from
1.29 to 5.48 MeV Radioisotopes Vol. 31, No 9 (1982) P 3~8
- 15) M. Sohradi: A new mult - chamber electrochemical etching system
approach for rapid characteristic response studies in polymeric

dosemeters

Radiation Protection Dosimetry Vol. 12. No1 (1985) P 55 ~ 59

- 16) L. Tommasino and K. G. Harrison: Damage track detectors for neutron dosimetry : I. registration and counting method. Radiation Protection Dosimetry Vol. 10 No1 - 4 (1985) P 207 - 217
- 17) 鶴田隆雄, 磯部吟子: CR - 39 プラスチック中の粒子飛跡のエッチング特性, 保健物理 19 (1984) P 133 ~ 139
- 18) 鶴田隆雄, 寿藤紀道他: ホウ素溶解 CR - 39 プラスチックによる熱中性子線量の測定, 日本保健物理学会第 17 回研究発表会要旨集 (1982)
- 19) 福本善巳, 寿藤紀道他: CR - 39 プラスチック中の粒子飛跡の高温エッチング特性, 日本保健物理学会第 17 回研究発表会要旨集 (1983)
- 20) G. Streubel and C. Melde: Apparatus for automatic track etching of SSNTDs, Radiation Protection Dosimetry Vol. 4 No1 (1983) P 47 ~ 49
- 21) C. C. Preston et al: Progress in automated scanning electron microscopy for track counting, Nucl. Tracks Vol. 7 Nov. 1/2 (1983) P 53 ~ 61