

Title	固体飛跡による中性子検出の一方法 第一報
Author(s)	越島, 得三郎
Citation	日本医学放射線学会雑誌. 1971, 31(8), p. 928-932
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/15093
rights	
Note	

Osaka University Knowledge Archive : OUKA

<https://ir.library.osaka-u.ac.jp/>

Osaka University

固体飛跡による中性子検出の一方法(第一報)

放射線医学総合研究所 養成訓練部 (指導: 飯田博美部長)

越 島 得 三 郎

(昭和46年4月28日受付)

A practical method for neutron detection by fission track registration—I

Tokusaburo Koshijima

National Institute of Radiological Sciences

(Chief: Dr. Hiroyoshi Iida)

Research Code No: 203

Key Words: Fission track, Neutron

An easy method for neutron detection with fission tracks in solid was reported. A small amount of solution of fissionable material was dropped and dried up on a solid. This combination of a solid with fissionable material was explored its possibility of neutron detection. The fissionable layer formed on a solid had a thickness of 15—30 mg/cm² and attached to surface. The uranylacetate, easily obtainable common reagent, served as a fissionable material. For the track registering solid, the dosimeter glass (FD-PB-3, Toshiba) and the cellulose triacetate sheet were used. To investigate the effect of the thickness of fissionable layer on the track density, we tried an experiment on detectors that had various thickness of the layer.

There was a linear relationship between track density and neutron flux. For thin fissionable layer less than 5 mg/cm², the track density depended on the thickness of layer. The combination of a dosimeter glass with uranylacetate had a sensitivity of 1.9×10^{-6} tracks/neutron for the Ra-Be source.

緒 言

1960年代に入り、電子顕微鏡の進歩と共に重荷電粒子が固体中を作る飛跡について研究が行なわれてきている。また、その飛跡生成の機構についても調べられ、幾つかの説明がなされている⁸⁾。飛跡が etching によつて化学的に拡大され光学顕微鏡で観察し得ることが Price⁹⁾ らによつて報告されてから種々の方面に応用されるようになった⁴⁾¹⁰⁾。核化学、年代測定などへの応用¹²⁾のほか、核分裂物質を用いて中性子を検出、測定することも試みられている¹⁾⁷⁾¹¹⁾。

原理的にはウラン、トリウムなどを飛跡記録用の固体に密着させれば検出器になる。実際にはウ

ラン金属または箔と固体を組み合せたもの、平板上に核分裂物質を電着し、これと固体とを密着させるもの¹¹⁾、固体中に核分裂物質を含ませたもの¹²⁾などが用いられている。しかし金属ウランなどは加工取扱いに難があり、検出器を作ることは簡単でない。

われわれは容易に中性子を検出するものとして線量計用ガラスの表面に天然ウラン化合物を固着させたものを試作し、これを検出器として使用することについて検討を行なつた。また固体に高分子化合物(セルローストリアセテート)を使用することについても実験を試みた。

中性子線量を求める場合、中性子のエネルギー

成分とそのフルエンスを知る必要があり、検出器としてはこの両者が同時に測定できることが望ましい。核分裂断面積の異なるトリウムを併用し約1 MeV を境として中性子を分けて検出することを今後検討する予定である。

実験方法

核分裂物質としては市販されている試薬、酢酸ウラニル〔 $\text{UO}_2(\text{CH}_3\text{COO})_2 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ 〕を利用した。これの溶液を作り固体表面に滴下乾燥させて検出器とした。飛跡を記録する固体は etching 剤によつて食刻され、かつ表面にキズが無く光学的に研磨された平面を持つことが望ましい。etching 剤として NaOH 溶液を使用したとき、これらの条件を満たすものとして線量計用リン酸ガラス (FD-P8-3, 東芝) を選んだ。

酢酸ウラニルの約40°Cでの飽和水溶液 0.1ml ~ 0.2ml をリン酸ガラス面上に2~4回に分けて滴下し乾燥させた。これでガラス面上に約15 mg/cm²から30mg/cm²の厚さの酢酸ウラニルの層が得られる。乾燥後の酢酸ウラニルはガラス面上に固着し、温度、湿度にはほとんど影響されず、そのまま室内に1カ月以上放置しておいても変化しない。しかし横方向からの力によつて塗布層全体が剝離することがあり、その固着性は表面の洗浄処理により異なるようである。固体はアルコール及び蒸留水で超音波洗滌器により2~3回洗滌して使用した。

酢酸ウラニルの量による飛跡密度の変化を調べるため、塗布量(塗布厚)を変えた試料を作り、同一条件で中性子を照射し検討した。塗布量が少ないとき、乾燥後の塗布面が均一にならずムラを生ずるため、水溶液に表面活性剤(ドライウエル)を少量加え均一化をはかった。

中性子照射は Ra-Be 線源 (Ra : 1 Ci, 中性子放出率 : $1.5 \times 10^7 \text{n/sec}$) により行なつた。線源からの距離5 cm, 照射は12~50時間の範囲である。参照用として同じ原理に基づく中性子測定用ガラス (Th-, U- doped glass, 東芝)¹³⁾ を同時に照射した。

etching については、ある程度以上行なえば飛

跡密度は一定値を示すようになるため¹⁴⁾ここでは80°Cの NaOH 30%溶液により、中性子測定用ガラス：10分、リン酸ガラス：15分、セルローストリアセテート：20分、の etching を行なつた。

実験結果

etching によつてガラス面上に半球状の pit を生ずる、その大きさは処理時間、温度により異なるが5~30 μ の程度である。

Fig. 1 (a) は得られた飛跡であつて光学顕微鏡 ($\times 100$) で計数することができる。ガラス表面にある微少なキズも pit を生じバックグラウンドになるが、pit が比較的に浅く Fig. 1 (b) に示すように形状も異なるため容易に分裂片の飛跡と区別ができる。実際には、核分裂物質を塗布していないガラス裏面から正味バックグラウンドを

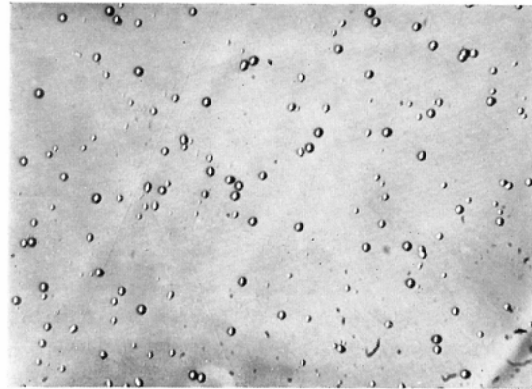


Fig. 1(a) Fission track etch pits in a dosimeter glass ($\times 100$)

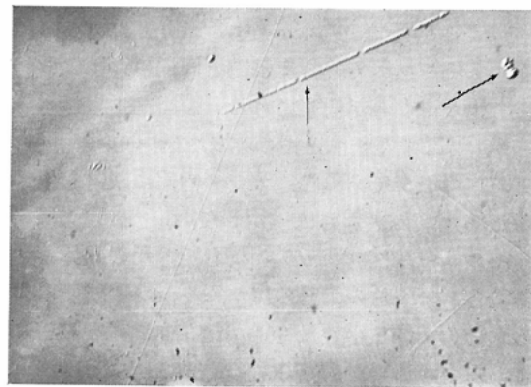


Fig. 1(b) Background etch pits caused by scratch in the opposite face of a glass ($\times 100$)

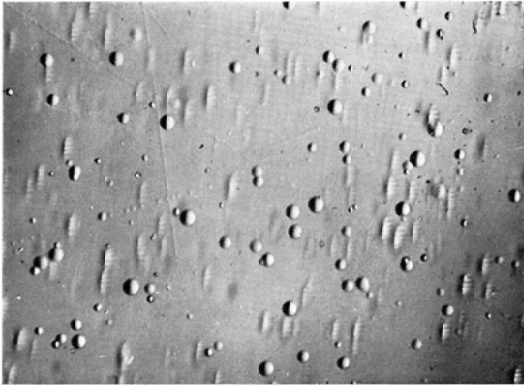


Fig. 2 Fission track etch pits in a Th-, U-doped glass (Toshiba) (×100)

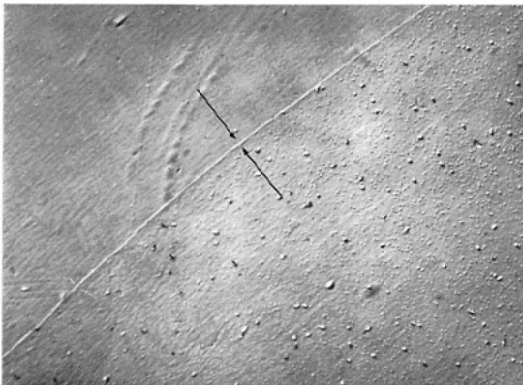


Fig. 3 Fission track (small specks) and α track (fine dots) etch pits in a cellulose triacetate sheet. Arrows indicate a boundary line dividing the coated area (the lower right part) and the non-coated area (the upper left part)

推定することができる。Fig. 1 (b) はガラス裏面の一例であつて分裂片飛跡と同様の pit はきわめて少ないことが観察される。

Fig. 2 は中性子測定用のガラス(U-doped glass, 東芝) の場合であつて、ガラス内部に飛跡を生ずるため pit の大きさは一定しない。

セルローストリアセテートを記録用の固体とする場合、分裂片の飛跡のほかウランの壊変による α 粒子が作る小さな pit が塗布面に砂を撒いたように生ずるのが観察される。キズによる pit と分裂片によるそれとの大きさ、形状の相違はガラスの場合より顕著なので区別し易い (Fig. 3)。

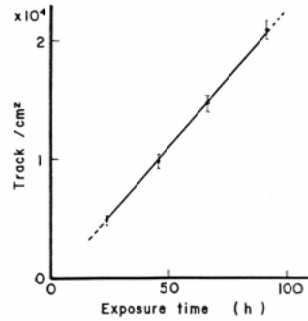


Fig. 4 Track density in a dosimeter glass/uranyl-acetate combination exposed to Ra-Be neutron source at 5cm

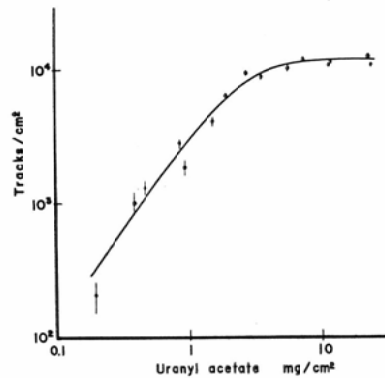


Fig. 5 Effect of the thickness of fissionable layer on the track density in a dosimeter glass combined with uranylacetate

照射時間を変えた場合の飛跡密度の変化を Fig. 4 に示す。中性子の量と得られた飛跡密度はよい直線関係にある。

Fig. 5 は飛跡密度と酢酸ウラニルの量との関係であつて、飛跡密度は厚さと共に増加するが、約 5 mg/cm² 以上の厚さではほぼ一定値となる。これより塗布層内の核分裂片の最大飛程は 20 μ 程度と推定され、この値より酢酸ウラニルの層が厚い場合はいわゆる無限厚層になり、量および塗ムラの影響は無視できるものと考えられる。

etching によつて計数される飛跡密度 ρ_i は次式で表わし得る。

$$\rho_i = \iint \phi(E) \cdot t \cdot \sigma(E) \cdot N \cdot k(x) \cdot dE \cdot dx \text{ (tracks/cm}^2\text{)}$$

$\phi(E)$: エネルギー E の中性子束密度
(cm⁻²·sec⁻¹)

t : 照射時間 (sec)

$\sigma(E)$: エネルギー E の中性子に対する核分裂物質の分裂断面積 (cm^2)

N : 核分裂物質の原子密度 (cm^{-2})

k(x) : 固体表面から距離 x の点で生じた分裂片が飛跡を作る確率と、その飛跡が etching により計数される確率との積

中性子および検出器の条件が一定であれば

$$\rho_i = \phi \cdot t \cdot S$$

と表わせる。S はこの条件における中性子に対する検出器の感度 (中性子 1 ケ当りの飛跡数) となる。Ra-Be の中性子に対するそれぞれの感度は Table 1 のようになる。

Table 1. Sensitivity of materials exposed to Ra-Be neutron source

Material	Tracks/ cm^2	Tracks/ neutron	Etching
U-doped glass	1.15×10^4	1.8×10^{-6}	10min.
Dosimeter glass	1.2×10^4	1.9×10^{-6}	15min.
Cellulose-triacetate	9.9×10^3	1.5×10^{-6}	20min.

考 按

天然ウランの99.3%は ^{238}U であり、これの約 1 MeV 以下の中性子に対する断面積はきわめて小さい。また0.71%を占める ^{235}U は熱中性子に対し大きな核分裂断面積を持っている⁵⁾。この存在比と断面積の積が感度に比例するものとするれば、天然ウランを使用したときの検出器の相対的な感度のエネルギー特性は Fig. 6 のようになる。エネルギー分布が同一ならば、既知の中性子束による照射結果と比較して未知の中性子束を知ることができる。また固体に線量計用ガラスを使用するときは γ 線の線量も測定できるが、塗布したウランによる線量が加算されるためにこれを差し引く必要があり、mR 単位の線量では誤差が大きくなることがある。

中性子の量が大きく約 $10^{12}\text{n}/\text{cm}^2$ 以上になると pit が重複し誤差が増加してくる、このような場合、感度を低くすることが必要となるがこの方法では酢酸ウラニル (厚さ) を減らし、感度

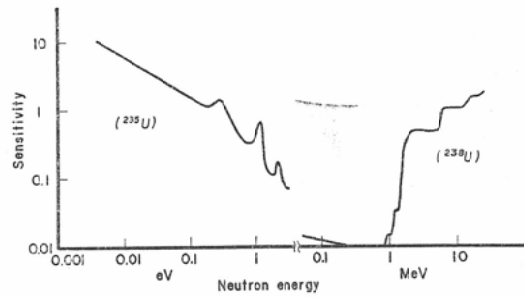


Fig. 6 Relative sensitivity of natural uranium for different neutron energies.

を下げる可以降低 (Fig. 5). しかし分裂片の飛程に対し無限厚さでなくなるため、ムラを生ぜぬよう均一に塗布することが必要になる。測定可能な中性子の最少量は使用するガラス表面の状態及び中性子エネルギーによつて異なるが約 $10^{10}\text{n}/\text{cm}^2$ より小さくなると計数値が小さくなり相対的な誤差が増加してくる。中性子の有無を調べるだけであるなら $10^8\text{n}/\text{cm}^2$ 程度まで可能であろう。中性子が 2 MeV の単一エネルギーを持つものとするると前記の値は線量値でそれぞれ約 500rem, 及び 5 rem となる。

固体にセルロイドのような高分子化合物を用いると α 粒子も検出することができ、すでにウラン鉱山などで利用されている⁶⁾⁹⁾。また (n, α) 反応による α 粒子の飛跡を利用して中性子を測定することも試みられており²⁾、この方法によつて分裂片飛跡の場合と同様に中性子を検出することができよう。

核分裂物質であるウランは半減期 4.51×10^9 年の α 放射性物質である。1ケの検出器に使用した酢酸ウランは約10mgであつて、これは約 0.002 μCi の天然ウランに相当し、法令で定める放射性物質には該当しない。しかし、本方法による酢酸ウランの処理については非密封線源に準じて取扱うことが望ましい。

結 語

固体飛跡によつて中性子を測定する方法は α 、 β 線に関係なくまた光核分裂を生じないようなエネルギーであれば γ 線が混在していても中性子のみを測定することができる。このほか温度・湿度

の影響が少い, fading が無い, などの利点を持っている。

ここに述べた方法は特別な材料および装置を必要とせず, 簡単に中性子を検出でき, また比較測定をすることができるものである。更に数種の核分裂物質を利用することができるなら, もつと詳細に中性子を測定することも可能であろう。

(御助言をいただいた千葉大学理学部高原光助教授, Th-, U-doped glass の御提供をいただいた東芝総研横田良助氏, ならびに実験に協力された放射線医学総合研究所技術部長内忠亮(現在, 日本原子力発電 K.K.), 令亀一郎の両氏に感謝します。この論文の要旨は第29回日本医学放射線学会で発表した。)

文 献

- 1) Becker, K.: Health Physics 12: (1962) 769.
- 2) Becker, K.: Health Physics 16 (1969) 113.
- 3) 道家忠義: 応用物理, 38: 1065, 1969.
- 4) Fleischer, R.L., Price, P.B., Walker, R.M.: Ann. Rev. Nucl. Sci. 15 (1965) 1.
- 5) Hughes, D.J., Schwartz, R.B.: Neutron Cross Sections BNL-325, (1958).
- 6) Lovett, D.B.: Health Physics 16 (1969) 623.
- 7) 西脇 安他: 保健物理, 3: 201, 1968.
- 8) Price, P.B., Walker, R.M.: J. Appl. Phys. 33 (1962) 3407.
- 9) Rock, R.L., Lovett, D.B., Nelson, S.C.: Health Physics 16 (1969) 617.
- 10) 阪上正信: Radioisotopes 17: 212, 1968.
- 11) 阪上正信, 中西考: 日本原子力学会誌, 11: 332, 1969.
- 12) 島 誠: 科学, 40: 11, 1970.
- 13) Yokota, R., Nakajima, S. Muto, Y.: Nucl. Instr. Meth. 61 (1968) 119.