

核分裂片飛跡検出法による速中性子測定のための トリウム薄膜ターゲットの作製

古賀 妙子, 森 嶋 彌 重,
丹 羽 健 夫, 河 合 廣

Preparation of Thorium Targets for Fast Neutron Measurement by Means of Spark Counting of Etched Fission Tracks

Taeko KOGA, Hiroshige MORISHIMA,
Takeo NIWA and Hiroshi KAWAI

The measurement of fast neutron flux was made by means of electrical spark counting of etched nuclear tracks on polycarbonate film (Makrofol KG) of 10 μm thickness. ^{232}Th electro-deposited disk was used as a detector target. By this method the upper limit of spark counts was about 660/cm² of detector film. A linear relation was obtained from 5×10^6 to 4×10^{10} n/cm² of neutron fluence for 199 $\mu\text{g}/\text{cm}^2$ thorium target. Detection sensitivity (the ratio of spark counts per unit area to fast neutron fluence) was estimated to be 3.8×10^{-8} counts/n, hence one spark count equivalent to 189 mrem (1.89 mSv).

Process of thorium electroplating on a stainless steel disk as a target for fast neutron detection was described in detail. Thorium nitrate dissolved in 0.035M ammonium oxalate $[(\text{NH}_4)_2\text{C}_2\text{O}_4]$ was used as electrolyte. Maximum electroplating efficiency obtained was about 70% with electric current density 22 mA/cm² and pH 6-8 at 80°C for 3 hrs.

KEYWORDS

fast neutron measurement, spark counting, fission track, polycarbonate film, Makrofol KG, detector target, thorium electroplating

I はじめに

個人被ばく線量および環境における中性子線量測定は中性子発生源すなわち原子炉, 加速器などの周辺において必要である。これら中性子発生源の近辺では, 多くの場合 γ 線を伴っているので中性子用フィルムバッジあるいは熱蛍光線量計を用いて測定する場合はなんらかの γ 線補償の工夫が求められる。しかしプラスチックフィルムのような絶縁性個体を中性子検出器

として利用し, 中性子線による (n, f) または (n, α), (n, p) 反応で生じる飛跡を計数するいわゆる固体飛跡検出器 (Solid State Track Detector, 略して SS-TD) による方法は, フィルムの γ 線の感度が低いため低線量率の中性子の測定にきわめて有効である。この方法による熱中性子線の測定は従来数多くの報告があり, さきにわれわれは SSTD として国産および西ドイツ, バイエル社製のポリカーボネートフィルムを用い, 核分裂性物質として ^{235}U (天然ウラン) の組合せで, 生じる核分裂片飛跡の放電計数による熱中性子

測定を報告¹⁻⁵⁾した。また速中性子線量測定に関する報告も近年新しいプラスチックの利用により多くなっている⁶⁻¹⁷⁾。

中性子検出において、核分裂性物質（ターゲットまたはコンバータと称する）と検出用フィルムの適当な組合せで測定する中性子のエネルギーとその中性子線束密度範囲を変えることができる。速中性子の測定には²³²Th、²³⁷Np など核分裂性物質を使用する方法⁶⁻¹²⁾、直接感度のよいポリマー（硝酸セルロースまたは酢酸セルロース、CR-39 プラスチック）と速中性子による反跳核を利用する方法¹³⁻¹⁷⁾が知られており、われわれは硝酸セルロースを用い放電計数法についても報告した⁴⁾。

今回は速中性子用ターゲットとして²³²Th を、SS-TD として 10 μ m 厚ポリカーボネートフィルム（バイエル社製 Makrofol KG）を用いた放電計数法により速中性子の測定を行った。この方法で検出される中性子エネルギーは Fig. 1¹⁸⁾ の²³²Th(n, f) 反応断面積からわかるように 1.2MeV 以上である。なお天然ウランターゲットを用いた²³⁵U(n, f) 反応による熱中性子測定の場合は²³⁸U(n, f) 反応断面積図 (Fig. 1) から 0.8MeV 以上の混在する速中性子と²³⁸U により生じる核分裂片飛跡も計数するので速中性子の補正が必要である。前回の報告³⁾では使用中性子源である原子炉 UTR-KINKI の場合、速中性子は熱中性子の約 1/10 の中性子線束密度であり、約 3% 以下の影響でしかない。²³⁷Np ターゲットの場合は、われわれは

まだ試みていないが、より低い 0.25MeV 以上のエネルギーの中性子の測定も可能である。これらに対し CR-39 プラスチックに直接中性子照射して反跳陽子による飛跡を計数する場合は 100keV 以上の中性子を検出できる。飛跡の放電計数法は適当な化学薬品でエッチング腐蝕拡大し、光学顕微鏡で観察する方法に比べ、試料面積数 cm² (280倍顕微鏡で13,000視野相当) 当りの低表面密度のエッチピットを 2, 3分間で計数できる迅速かつ容易な 1 方法である。速中性子線測定の場合、核分裂性物質ターゲットとして欧米ではトリウム金属板を使用しているが、わが国ではトリウムは核原料物質として規制がきびしくまた管理面の上からも困難なため、薄く均一な厚みの膜を電着法により作製して用いた。ウランの金属板への電解電着については当研究室を含め多く報告^{19-23, 25)}されているが、トリウムの電解電着については少ない。非水溶液すなわちイソプロピルアルコール^{19, 26)}、アセトンおよびイソプロピルアルコール²⁰⁾、およびフェロシアン化カリウム溶液²²⁾を電解溶液とするか、あるいは高電圧で電解する必要があり、定量的な電着は困難である。そこでウラン電着法を参考に、電解液としてシュウ酸アンモニウム溶液を若干修正し、均一な薄膜を定量的かつ容易に作製する方法を検討した。

II 方 法

1. 照射用ターゲット

飛跡検出用薄膜として西独バイエル社製ポリカーボネートフィルム Makrofol KG, 10 μ m 厚を、核分裂性物質としてはステンレス板に電着したトリウムを用いた。トリウム量は 2 μ g ガスフロー計数装置（富士電機製造¹⁸⁾社製、GCS-1A）によりそのアルファ放射能を測定し算出した。核分裂性物質ターゲットと飛跡検出用フィルムを密着し照射用ターゲットとした。

2. 中性子照射

近畿大学原子炉 UTR-KINKI, 中央照射用ストリンガー（モデレータ用黒鉛層に挿入された黒鉛ロッド表面 5 個所に試料照射孔がある）などの照射位置 5 点において、熱出力 0.1ワットおよび 1ワットで 30分～15時間中性子照射を行った。速中性子線束密度の較正は第一リン酸カルシウムの放射化法により生じた³¹Si のベータ放射能を測定することにより行った。

3. 検出用フィルムのエッチング法

中性子照射後、フィルムは 60 $^{\circ}$ C, 30%水酸化カリウム溶液に 20分間浸し、マグネチックスターでゆっくり攪拌しながらエッチングし、水洗、60 $^{\circ}$ C 1時間乾燥

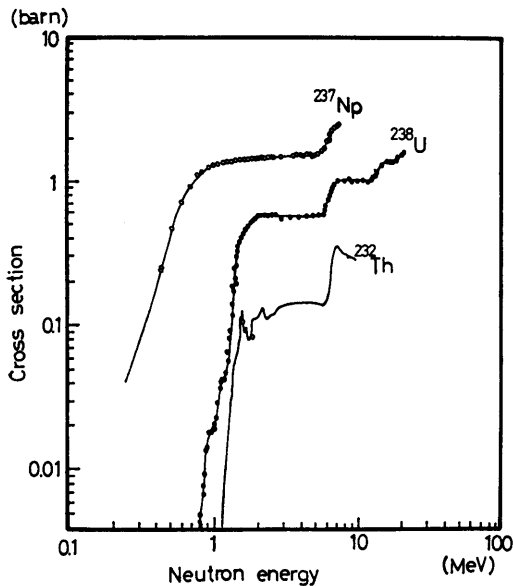


Fig. 1 Fission cross section (by BNL-325).

後デシケータ中に保存した。

4. エッチピット計数法

(1) 光学顕微鏡による観察

オリンパス(株)製光学顕微鏡 (ECE Tr-II) を用い、倍率280倍でフィルム上に生じたエッチピットを100視野を観測した。

(2) 放電計数法¹⁻⁵⁾

放電計数装置¹⁾ の検出部である 2.4cmφ の銅製の陽電極、アルミニウム蒸着ポリカーボネートフィルムの間に検出用フィルムをはさみ、鉛板をのせフィルムに均一に圧力がかかるようにして、穿孔電圧 1,000V、計数電圧 550V で計数した。

5. トリウム の電解電着

核分裂性物質として ²³²Th の薄膜を、シュウ酸アンモニウム溶液による電解電着法により作製した。市販の硝酸トリウム試薬の 0.2N 硝酸-80%エタノール混溶液より陰イオン交換分離法²⁴⁾ によって、樹脂カラム (Dowex 1×8, 100~200メッシュ, 0.9cmφ×4cm) に吸着させ、0.2N 硝酸溶液でトリウムを溶出し、分離した。電解電着は Fig. 2 に示した電解槽のガラス円筒の底面に、ステンレス板を陰極として、白金棒を陽極に、電解液として 0.035M シュウ酸アンモニウム溶液を用い、エタノールを添加 pH 6~8 で電流密度 22mA/cm², 80°C の恒温水槽内で3時間行った。白金電極は電解電着中に発生する気泡を除去し、溶液を均一にするため 200rpm で回転させた。

陰イオン交換分離処理前の硝酸トリウム試薬原液の α 線スペクトルでは ²³²Th のピークは放射平衡に達し

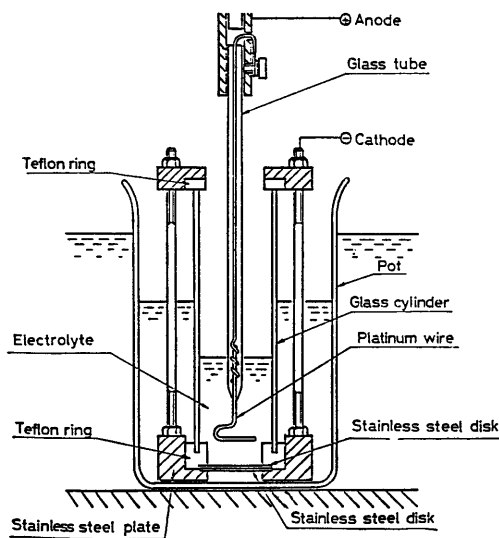


Fig. 2 Electrodeposition cell.

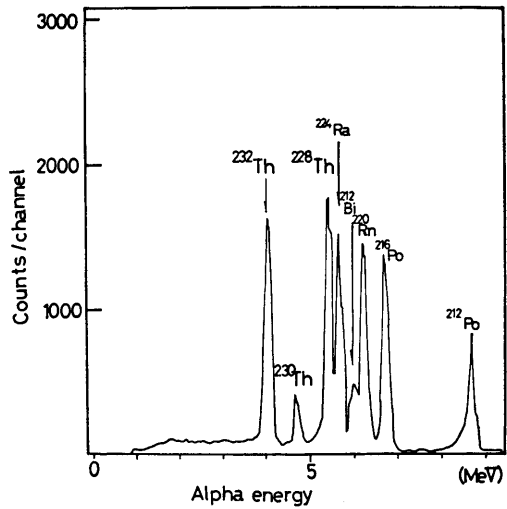


Fig. 3 Alpha ray spectrum of thorium sample.

ていると思われる ²²⁸Th より高く、²³⁸U の混在が疑われる。そこでウラン分離後のトリウム試料の α 線スペクトル (Fig. 3) によると、²³²Th およびその崩壊産物 ²²⁸Th の放射能比はほぼ 1 となり、4.7MeV のピークは ²³⁸U 系列の崩壊産物 ²³⁰Th と推定され、市販トリウム試薬の使用には微量のウランの分離が必要と思われる。

III 結果と考察

1. トリウム の電解電着について

固体飛跡検出法による速中性子測定において核分裂性物質トリウムを薄く、均一なターゲットを得るために電着法の検討を行った。電解液は 0.018~0.14M シ

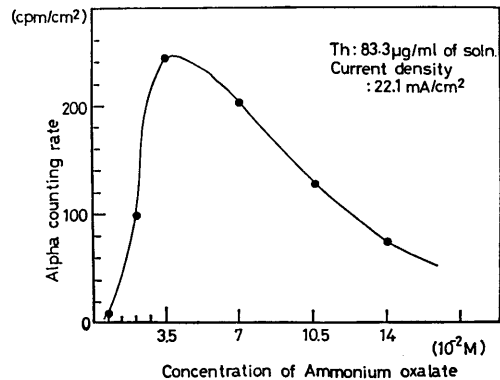


Fig. 4 Effect of electrolyte concentration on thorium deposition amount.

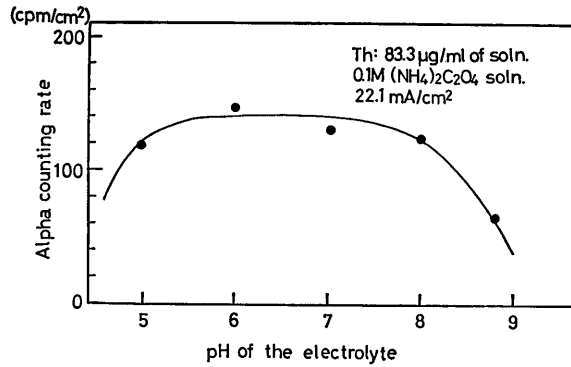


Fig. 5 Effect of initial pH of the electrolyte on thorium deposition amount.

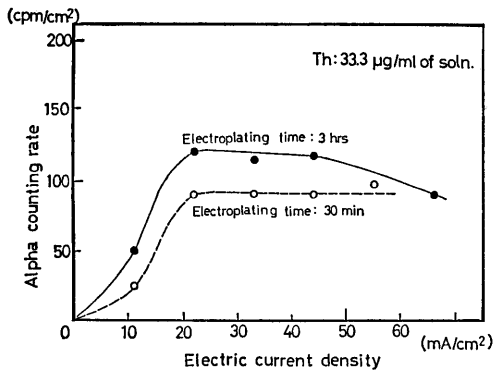


Fig. 6 Effect of electric current density on thorium deposition amount.

シュウ酸アンモニウム溶液, pH 5~9 に変化させたときの電着状況を Th 83 μ g/ml, 電流密度 22.1mA/cm² について Fig. 4, 5 に示し, これらにより 0.035M シュウ酸アンモニウム溶液で, pH 6~8, 3時間電解を最

適条件とした。全量 30ml の 0.035M シュウ酸アンモニウム溶液で電流密度 11mA/cm²~66mA/cm² に変化させ, 電解時間30分および3時間における電着状況を Fig. 6 に示した。これによると 22mA/cm² 以上ではほぼ電着量は一定となり, 60mA/cm² 以上では徐々に減少した。トリウムの電着の場合, フレーク状の沈着が多くなるため, 電解後十分水洗し, 均一で薄い電着層のみ残した。電流密度 22mA/cm² において, トリウム濃度 3.3 μ g/ml から 33.3 μ g/ml について電解時間による電着量の変化を Fig. 7 に示した。25.0 μ g/ml までのトリウムについては電着時間1~2時間までは電着率は直線的に増加しているが, 2時間以上ではほぼ一定となり, 電着率は3時間で約70%となり, 電着速度すなわち飽和電着量の1/2に到達するに要する時間で示すと, トリウム濃度33.3, 25.0, 8.3, 3.33 μ g/ml について, それぞれ0.16, 0.3, 0.91, 1.4時間とトリウムが多いほど速く, トリウム濃度 33.3 μ g/ml

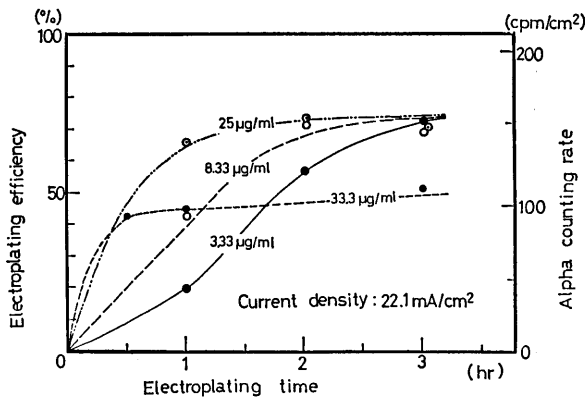


Fig. 7 Relation between electroplating efficiency and electroplating time. (The parameter is the content of thorium in the electrolytic solution.)

では30分間電着で電着率50%，それ以上電解時間をかけても，電着率は増加しない。この電着条件では電着面積（2.4cm ϕ ）当り，効率よく電着されるトリウム濃度最大 25.0 $\mu\text{g/ml}$ までで，そのときの電着率は70%，それ以上のトリウム濃度については電着率は低下する。電着時間については少なくとも3時間は必要である。トリウムの電着条件は 0.035M シュウ酸アンモニウム溶液で，pH 6~8，電流密度 22mA/cm 2 ，80 $^{\circ}\text{C}$ で3時間が最適である。

2. トリウム核分裂片飛跡の光学顕微鏡による計数値と放電計数値との関係

光学顕微鏡により計数したエッチピット数と放電計数値との関係を Fig. 8 に示した。放電計数値の上限は 3,000個/4.52cm 2 (660個/cm 2) で，これ以下の範囲でエッチピットの顕微鏡による計数値との間に直線関係があり，放電計数効率率は約60%であった。さきに報告した 18 μm 厚パンライト（帝人製）の検出限界の上限は 400個/cm 2 で²²⁾，このフィルムよりは測定範囲は若干拡がる。Makrofol KG, 10 μm 厚を用いて，放

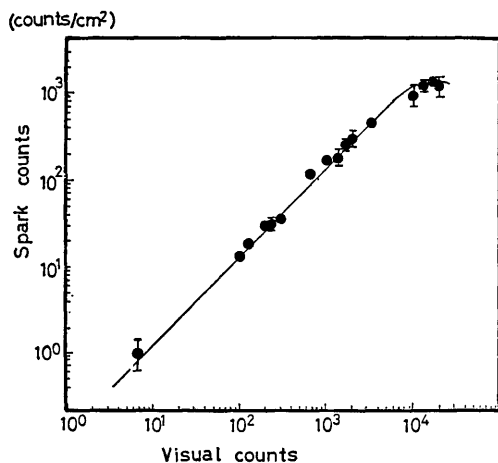


Fig. 8 Comparison between spark counts and visual counts with a microscope.

電計数装置の陽電極を通常の 25mm ϕ の小陽電極を用いた場合の上限は，われわれが行った測定条件中最良のもので，3,300個/cm 2 であった²³⁾。照射位置の速中性子フルエンスをもとに核分裂性物質トリウム量より計算した核分裂片飛跡数と光学顕微鏡により計数したエッチピット数との間には 1:1 の相関があり，ほぼ 100%の飛跡検出効率を示した。

3. 速中性子フルエンスと核分裂片飛跡の放電計数値との関係

近畿大学原子炉 UTR-KINKI，熱出力 0.1~1W において 0.5時間から 15時間 中性子照射を行い，トリウム量 11.1~199 $\mu\text{g/cm}^2$ の範囲において，第一リン酸カルシウムの放射化法により求めた速中性子フルエンスと飛跡の放電計数値の関係を Fig. 9 に示した。照

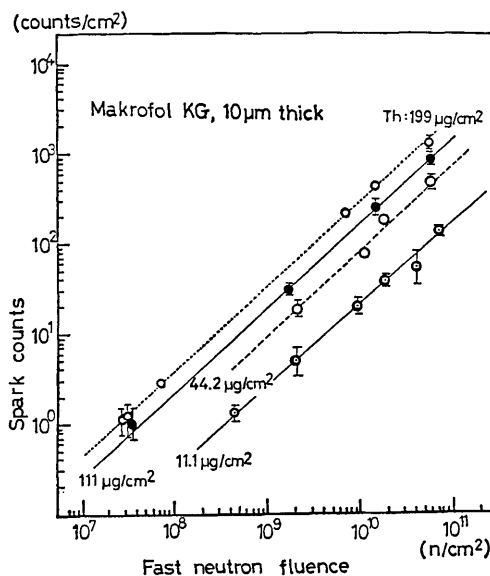


Fig. 9 Relation between spark counts and fast neutron fluence. (The parameter is the amount of thorium on the target disk.)

Table 1 Measurable fluence range and detection sensitivity of fast neutron using the spark counting method (Makrofol KG, 10 μm thick).

Fissile material (Th $\mu\text{g/cm}^2$)	Range of fast neutron fluence (cm $^{-2}$)	Detection sensitivity (Spark counts/fast neutron fluence)	Dose equivalent per one spark count at 1.2 MeV of neutron energy (mrem/spark)
11.1	$7 \times 10^7 - 8 \times 10^{11}$	2.9×10^{-9}	2,380
44.2	$2 \times 10^7 - 2 \times 10^{11}$	1.0×10^{-8}	667
111	$9 \times 10^6 - 1 \times 10^{11}$	2.5×10^{-8}	333
199	$5 \times 10^6 - 4 \times 10^{10}$	3.8×10^{-8}	189

射位置における速中性子線束密度は第一リン酸カルシウムの ^{31}P の速中性子放射化によって生じた ^{31}Si の β 放射能値より計算により求めた。この結果より核分裂性物質 $11.1\sim 199\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の場合に、生じた飛跡の放電計数による測定可能範囲と検出感度（飛跡の放電計数値の速中性子フルエンスに対する比）を **Table 1** に示した。トリウム $11.1\mu\text{g}/\text{cm}^2$ では、速中性子フルエンス $7\times 10^7\sim 8\times 10^{11}\text{n}/\text{cm}^2$ の範囲において、放電計数との間に直線関係が得られ、トリウム量を $199\mu\text{g}/\text{cm}^2$ に増加すると速中性子フルエンス $5\times 10^6\sim 4\times 10^{10}\text{n}/\text{cm}^2$ が測定可能で、検出感度はそれぞれ 2.9×10^{-9} 個/n および 3.8×10^{-8} 個/n であった。すなわちトリウム量の増減により速中性子フルエンスの測定範囲を変化できる。原子炉および加速器などの低レベルの漏洩速中性子の測定を行うには速中性子検出ターゲットとして核分裂性物質のトリウム量を多くするとともに、検出器ターゲットの照射時間を長くすることにより可能となる。

バックグラウンド計数値すなわち核分裂性物質零のときの検出用フィルムの放電計数値はゼロであるため、1放電計数値を最小検出限界とすると $199\mu\text{g}/\text{cm}^2$ のトリウムターゲットによる測定の場合、速中性子フルエンスは $5\times 10^6\text{n}/\text{cm}^2$ となる。光学顕微鏡下の観測では計数が困難である低エッチピット密度 $2,000$ 個/ cm^2 以下の放電計数法による相対標準偏差は約17%である。

4. 速中性子線量評価

核分裂性物質ターゲットとしてトリウム、核分裂片飛跡検出用フィルムとして Makrofol KG, $10\mu\text{m}$ 厚を用いた放電計数による固体飛跡検出法において、核分裂反応の中性子エネルギーのしきい値を 1.2MeV とすると、単位速中性子フルエンス当りの線量当量²⁷⁾ は $3.39\times 10^{-8}\text{rem}/\text{n}/\text{cm}^2(3.39\times 10^{-10}\text{Sv}/\text{n}/\text{cm}^2)$ であるので、 $1\text{rem}(10^{-2}\text{Sv})$ に相当する放電計数値はトリウム量 $199\mu\text{g}/\text{cm}^2$ のターゲットの場合、 5.3 個となり1放電計数値当り $189\text{mrem}(1.89\text{mSv})$ となった。

トリウムターゲット $442\mu\text{g}/\text{cm}^2$ の電着面における γ 線量率を熱蛍光線量計（松下電器産業 KK 製、UD-200S）により測定した結果 $9.6\mu\text{R}/\text{hr}$ 、ステンレス面（ターゲット裏面）では $9.7\mu\text{R}/\text{hr}$ 、そのときの室内の空間線量率の平均値は $8.6\mu\text{R}/\text{hr}$ であったため、 $422\mu\text{g}/\text{cm}^2$ のトリウム量による γ 線被ばくは無視できる。

IV ま と め

核分裂片飛跡検出器により速中性子を測定する方法として、トリウムを核分裂性物質ターゲット、ポリカーボネート (Makrofol KG) $10\mu\text{m}$ 厚を検出用フィルムに用い、生じた飛跡はエッチング後、放電計数により計数した。低レベルの速中性子の測定の場合として、トリウム量 $199\mu\text{g}/\text{cm}^2$ をターゲットを使用して速中性子フルエンスの測定可能範囲は $5\times 10^6\sim 4\times 10^{10}\text{n}/\text{cm}^2$ 、検出感度は 3.8×10^{-8} 個/n、1放電計数値当り $189\text{mrem}(1.89\text{mSv})$ に相当する。

中性子線量測定において核分裂性物質ターゲットとしてウランおよびトリウムは欧米では金属板そのものを使用することが多いが、今回われわれは薄く、均一なフィルムを利用するため、ウランの電解電着法として広く行われているシュウ酸アンモニウム溶液を電解液として、トリウム薄膜の作製法を検討し、最適条件として 0.035M シュウ酸アンモニウム溶液、電流密度 $22\text{mA}/\text{cm}^2$ 、pH 6~8、電解温度 80°C で3時間電解で、 $25\mu\text{g}/\text{ml}$ のトリウム溶液 30ml の電着率は約70%であった。

参 考 文 献

- 1) 古賀妙子, 森嶋彌重, 丹羽健夫, 河合 廣, 他 6 名; 近畿大学原子力研究所年報, **16**, 17 (1979).
- 2) 森嶋彌重, 古賀妙子, 丹羽健夫, 本田嘉秀, 河合 廣, 長野文彦, 西脇 安; 保健物理, **10**, 141 (1975).
- 3) 古賀妙子, 森嶋彌重, 丹羽健夫, 河合 廣, 西脇 安; 保健物理, **14**, 81 (1979).
- 4) 丹羽健夫, 古賀妙子, 森嶋彌重, 河合 廣, 西脇 安; 保健物理, **14**, 89 (1979).
- 5) Y. Nishiwaki, H. Kawai, H. Morishima, T. Koga and Y. Okada; IAEA-SM-167/22, 117 (1973).
- 6) P. F. Rago, P. B. Barrall and T. G. Carter; *Health Phys.*, **26**, 102 (1974).
- 7) W. G. Cross and H. Ing; *Health Phys.*, **28**, 511 (1975).
- 8) S. Pretre; IAEA-SM-167/14, 99 (1973).
- 9) J. Jasiak and E. Piesch; *Nucl. Instrum. Methods*, **128**, 447 (1975).
- 10) E. T. Agard, R. E. Jervis and K. G. McNeill;

- Health Phys.*, **21**, 625 (1971).
- 11) M. Várnagy, L. Vasváry, E. Gyarmati, S. Juhász, T. Scharbert and T. Sztaricskai; *Nucl. Instrum. Methods*, **141**, 489 (1977).
 - 12) K. Becker; *Health Phys.*, **16**, 113 (1969).
 - 13) U. Lotz, E. Pitt and A. Scharman; SSTD, Proc. of the 10th Int. Conf., p. 403 (1979).
 - 14) M. Sohrabi and K. Z. Morgan; *Am. Ind. Hyg. Assoc. J.*, (39), 438 (1978).
 - 15) S. A. Johnson, P. L. Ziemer, R. B. Gammage and J. H. Thorngate; ORNL/TM-6167 (1978).
 - 16) 伊藤 精, 熊沢 蕃, 西 健雄, 沼宮内弼雄; 保健物理, **17**, 443 (1982).
 - 17) S. Faermann, Y. Eisen, E. Ovidia, Y. Shamaï and T. Schlesinger; Proc. of the 6th Int. Cong. of Int. Rad. Protection Assoc., p. 1123 (1984).
 - 18) Brookhaven National Laboratory; Neutron Cross Sections, 2nd ed. (BNL-325) (1958).
 - 19) M. V. Ramanian, R. J. Singh, S. K. Awasthi and S. Prakash; *Int. J. Appl. Radial. Isot.*, **26**, 648 (1975).
 - 20) W. Parker, H. Bildstein and N. Getoff; *Nature*, **200** (4905), 457 (1963).
 - 21) J. S. Alercio, B. S. George, M. S. Welford and R. S. Morse; *Ind. Hyg.*, **443** (1961).
 - 22) R. W. Dodson *et al.*; Micellaneous Physical and Chemical Techniques of the Los Alamos Project, NNES V-3, 1-46 (1952).
 - 23) 河合 廣, 木田嘉秀, 森嶋彌重, 古賀妙子他; 近畿大学原子力研究所年報, **4・5**, 117 (1965. 6).
 - 24) L. Akaishi; *Bull. Chem. Soc. Jpn.*, **34**, 1198 (1961).
 - 25) H. Ries, J. Drexler, R. Fischer, W. Günther, K. Huber, U. Kneissl, H. Ströher and W. Wilke; *Nucl. Instrum. Methods*, **185**, 373 (1981).
 - 26) M. A. Saettel; *Nucl. Instrum. Methods*, **200**, 87 (1982).
 - 27) 科学技術庁; 放射線を放出する同位元素の数量等を定める件, 科学技術庁告示第22号, 別表第5, 141 (1981), 日本アイソトープ協会, 東京.