

再録論文

008 核分裂片癥痕計数法による中性子線量評価

西脇 安*, 鶴田隆雄, 大野 崇, 山崎勝彦,
河合 廣, 本田嘉秀, 森嶋弥重, 木村雄一郎,
古賀妙子

Etch-pit Counting of Nuclear Tracks for Neutron Dosimetry

by Yasushi NISHIWAKI, Takao TSURUTA,
Takashi ÔNO and Katsuhiko YAMAZAKI
Hiroshi KAWAI, Yoshide HONDA,
Hiroshige MORISHIMA, Yûichiro KIMURA
and Taeko KOGA

保健物理 3, 201—207 (1968)

When the fissionable material is placed in contact with the insulators such as glass and mica, the fission fragment marks a scar on the insulator. The scars on the insulator can be etched and enlarged by the chemical treatment with the aqueous solutions of inorganic base (NaOH), inorganic acid (HF), etc. This phenomenon has been investigated for the purpose of applying it to neutron dosimetry, using phosphate glass and mica as the insulator, and natural uranium and thorium as the fissionable material. The fissionable material was first electroplated on a gold foil. The amount of the fissionable material deposited on the foil was estimated from the alpha spectrum obtained with the grid ionization chamber.

The effect of the different etching condition on etching kinetics and the stability of the scars have been studied. It has been shown by the fission foil-glass combination that a good agreement exists between the expected number of fissions and the number of etchpits. Distribution of thermal neutron flux in the reactor (UTR-B) was estimated with this system. The results of the etch-pit counting were in good agreement with the results estimated with the activation method. A wide range of neutron dose 10 mrem to 1000 rem may be measured with a single of this type with reasonable accuracy.

1 はじめに

核分裂片のような重荷電粒子がガラス、雲母等ある種の絶縁性物質の表面に入射すると表面に微小な癥痕を作ることが知られている¹⁻³⁾。一部のプラスチックを除いてガラス、雲母では α 線、電子線等の軽い荷電粒子により癥痕は生じない。雲母の癥痕は電子顕微鏡の回折像によると40~170 Åと光学顕微鏡では観察できない大きさであるが⁴⁾、適当な溶液中で“エッチン

グ(蝕刻)”されると通常の光学顕微鏡で容易に観察することのできる大きさに成長し“エッチピット”を形成する。核分裂性物質を絶縁性物質の表面に均一に分布させ中性子照射をするとき絶縁性物質に記録されたエッチピット数は核分裂数に比例する。もし一定の条件でその比例定数がわかればエッチピット数から核分裂数を知ることができ、核分裂断面積の異なるいくつかの核分裂性物質を適当な中性子吸収材と組合せるこ

* 東京工業大学

とにより核分裂数から中性子束の時間積分量（フルエンス）とエネルギーを見積ることができるであろう。フルエンスとエネルギーから適当な換算を行って吸収線量もしくはRBE線量を求める。核分裂性物質の種類と量を適当に選ぶことにより高速中性子と熱中性子について必要な感度と精度をもって線量測定が可能であると予想される。この測定法は中性子吸収による核分裂反応を利用するので α 線、 β 線、 γ 線、 x 線等の放射線の存在に無関係な中性子線だけを分離して測定することができることが特徴である。

2 核分裂性物質の電着と定量

エッチピット数と核分裂数間の比例定数を見出す為には核分裂性物質の量が正確に知られていなければならない。又核分裂片の自己吸収を少なくする為にはその厚さが平均的飛程より大巾に薄いことが望ましい。こうした条件を満足させる為には核分裂性物質はFig-1に示される装置を用いて金箔に電着された。下部のステンレス鋼の枠とテフロン間に金箔を挟んでこれを陰極とし、上部の枠にあげられた穴から白金電極を挿入してこれを陽極とする。白金電極は通電中は

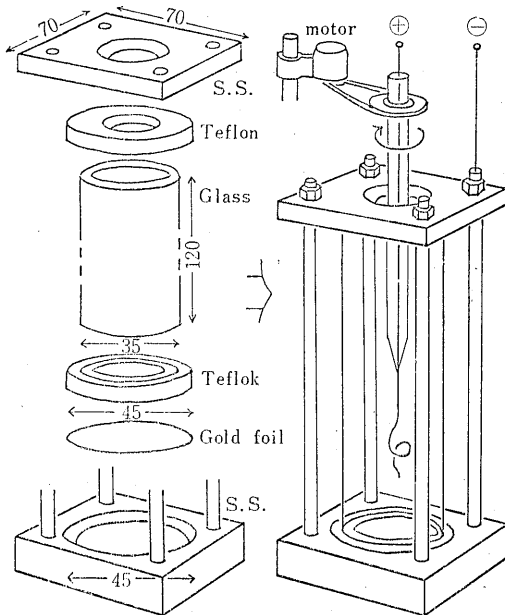


Fig. 1. Electrolytic Bath (mm)

回転して電解液を攪拌し陰極板上に発生する水素の気泡を除去して電解能率の低下を防ぐ。電着装置は恒温

槽に入れられ電解液は80°Cに保たれる。照射に使ったT(d, n) α 反応による約14 Mevの中性子に対して適当な核分裂断面積を有することから核分裂性物質として天然ウランとトリウムが選ばれた。電解液の組成は0.2モル硝酸アンモン：5cc, エチルアルコール：5cc, 水：45cc それに約 10^{-3} モルの硝酸ウラニル又は硝酸トリウムの水溶液を加えたもので、最後にアンモニアでPHを8~8.6に調整した。陰極面積5cm²に100 μ gのウラン又はトリウムを電着するとき電解電流は200mA, 電解時間は約3時間である。

電着を終った金箔は乾燥した後グリッド付パルス電離箱とマルチチャンネル波高分析器を使って α 粒子のエネルギースペクトルをとる。別に正確に定量されたウラン及びトリウムの100 μ gを金箔にマウント乾燥させた標準試料を作りそのスペクトルをとる。両者のスペクトルのウランについては²³⁸Uの放出する4.18 Mev, トリウムについては²³²Thの放出する4.00 Mevの α 粒子の示すピークを中心とする5チャンネルの面積の比から各電着箔の電着量を決定した。

ウラン・トリウムは金箔の上に水酸化物の形で析出しており、我々の作った電着箔の核分裂性物質を含む層の厚さは100 μ g \cdot cm⁻²以下であると見積られる。核分裂片の平均飛程は約4mg \cdot cm⁻²と報告されているから我々の作った電着層の厚さはその40分の1以下である。したがって核分裂片の自己吸収は無視することができ、核分裂性物質の電着面を絶縁性物質に密着させておくと核分裂が電着層のどこで起っても核分裂片の内の一個はエネルギーをあまり失うことなく絶縁性物質の表面に入射することが期待される。又4 Mevの α 粒子の平均飛程は8.7mg \cdot cm⁻²であることから電着層の厚さはその80分の1以下であり、 α 粒子についても自己吸収を考慮する必要はないと考えられる。

3 癍痕の拡大

核分裂片がガラス、雲母等の絶縁性物質の表面に衝突して作る癍痕はそのままでは小さすぎて光学顕微鏡で見ることができない。癍痕を計数する為には光学顕微鏡、万能投影器等で観察することが出来る大きさになるまで癍痕を拡大しなければならない。その為には適当な化学物質で絶縁性物質の表面をエッチングすればよいが絶縁性物質の種類、癍痕の密度、測定方法等により溶液の種類・濃度・温度・時間等のエッチング

条件を適当に定める必要がある。我々は絶縁性物質として主にリン酸塩ガラスと天然雲母を用いたがそれらのエッチング技術に関していくつかの実験を行った。

使用したリン酸塩ガラスは東芝が蛍光ガラス線量計用に開発したもので FD-1 と呼ばれる。その組成は LiPO_3 : 50%, $\text{Al}(\text{PO}_3)_3$: 50% の基本ガラスに B_2O_3 : 3%, AgPO_3 : 7% を混入したものである。実験には次の三種類の形状のガラスが使われた。即ち $8 \times 8 \times 4.7 \text{ mm}$ (市販の FD-P8-1), $25 \times 50 \times 1 \text{ mm}$ と $15 \times 50 \times 1 \text{ mm}$ で後の二種類は我々の注文により特別に東芝で作られたものである。リン酸塩ガラスのエッチング剤としては弗化水素酸, キレート化合物である EDTA, 水酸化ナトリウム等が考えられる。今 HF, EDTA, NaOH の各 20% 溶液を 60°C に保ちそれらのリン酸塩ガラス (以下単にガラスと言う) に対するエッチング効果を調べてみると, HF, EDTA の

エッチング速度はほぼ同じであり, NaOH のエッチング速度は HF, EDTA のそれのほぼ二倍であることがわかった。取扱いが容易であることとエッチング速度が比較的大きいという理由でガラスのエッチングには水酸化ナトリウム溶液を用いることにし, そのエッチング効果について色々な角度から実験を行った。

一定濃度・一定温度の水酸化ナトリウム溶液にガラスを浸しておくとき、痕痕は深さ・直径ともしだいに大きくなるが、数時間の範囲では深さはほぼ直線的に増加し、直径は最初の内は急速に後にはしだいに緩慢な速度で増大して行く傾向がある。一例として濃度 28%, 温度 60°C という条件でガラス表面の痕痕のエッチピットへの成長過程を示す顕微鏡写真が Fig-2 である。この条件で痕痕は約 5 分で光学顕微鏡により観察出来る大きさのエッチピットに成長する。エッチング時間が短い間は個々のエッチピットはそれを作る原因とな

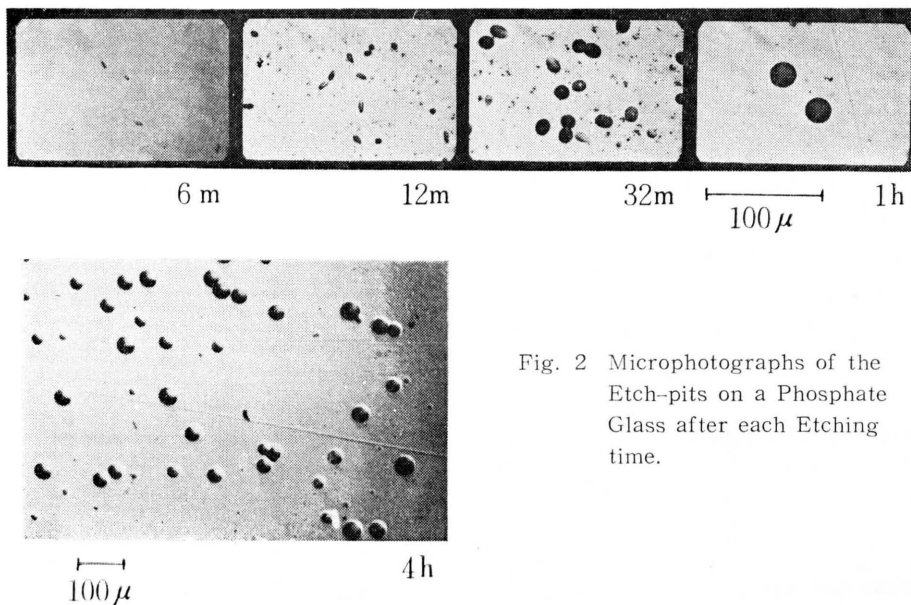


Fig. 2 Microphotographs of the Etch-pits on a Phosphate Glass after each Etching time.

った個々の核分裂片の入射角, エネルギー等の違いを示唆するかのように色々な形と大きさをしているがエッチング時間が長くなるに従ってその形を真向に近づけながらその直径を大きくして行くことが観察される。Fig-3はエッチング時間に対するエッチピットの深さ, 直径の増加の傾向を示すグラフで, 各平均値を中心とする上下の棒は標準偏差を示す (以下 Fig-4, 5, 7, 8 も同様) エッチピットを光学顕微鏡又は万能投影器等で計数する際ピットの直径が主に問題となるが, 10μ 以上あれば測定が可能である。それ故通常上記のエッチング条件で 1~2 時間もエッチングすれば

十分である。特に痕痕の密度が大きい場合にはエッチング時間を長くするとエッチピットが重なり合い計数しにくいばかりか, それによる誤差が無視出来なくなるから注意する必要がある。エッチング速さは Fig-4 に示されるように溶液の温度に依存し, エッチピットの直径が 30μ に達する時間は温度が約 10°C 上る毎に 2 分の 1 になることが見られた。換言すればエッチング速さは温度が約 10°C 上昇すると 2 倍になる。エッチング速さは又 Fig-5 に示されるように溶液の濃度に依存し, 濃度の上昇と共に大きくなるが 30% 以上ではあまり大きな変化はない。

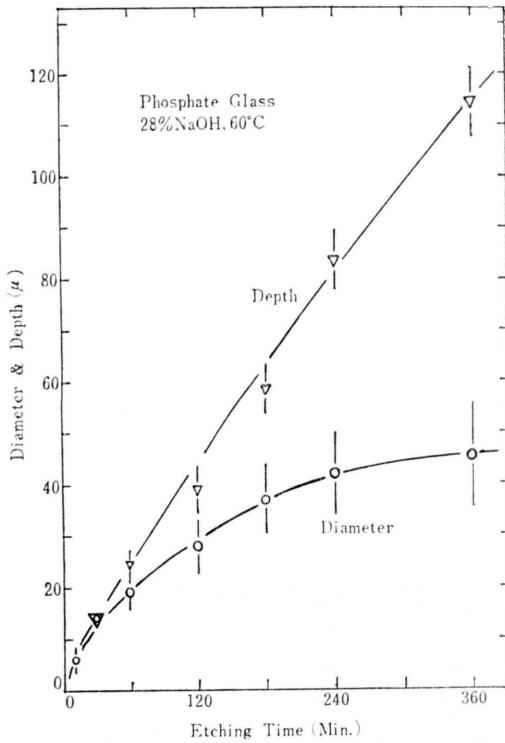


Fig. 3 Increase of Etch-pit Diameter and its Depth.

次に雲母について述べよう。使用したのは天然雲母でそれを厚さ 50 μ 前後の薄い板状にして試料とした。そのエッチングの為には何種類かの溶液が試みられてがその結果硫酸 20%を含む 20%弗化水素酸が効果的であることが見出された。硫酸を加えることによりエ

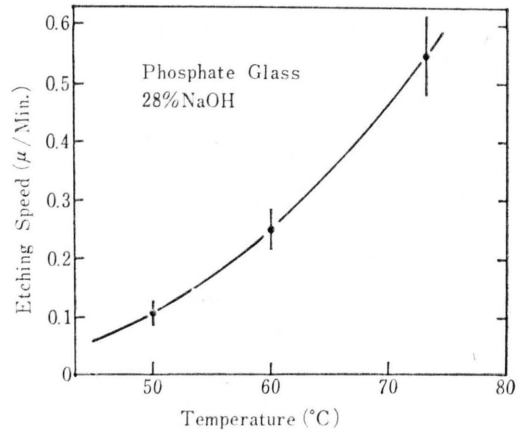


Fig. 4 Effect of NaOH Temperature on the Etching Speed.

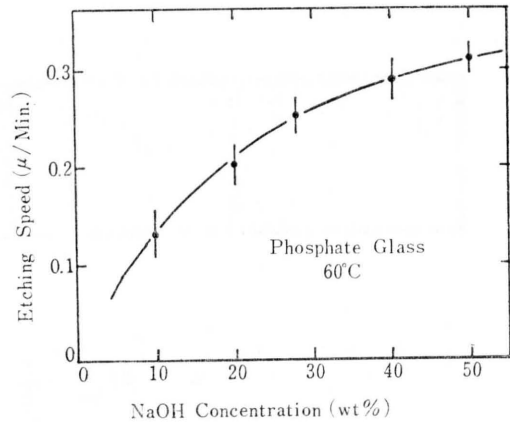


Fig. 5. Effect of NaOH Concentration on the Etching Speed

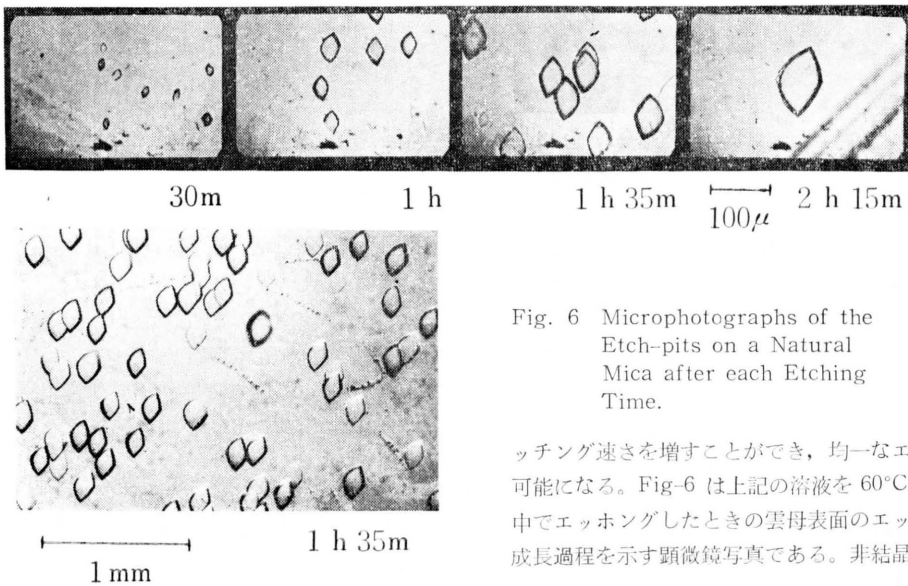


Fig. 6 Microphotographs of the Etch-pits on a Natural Mica after each Etching Time.

ッチング速さを増すことができ、均一なエッチングが可能になる。Fig-6 は上記の溶液を 60°C に保ちその中でエッチングしたときの雲母表面のエッチピットの成長過程を示す顕微鏡写真である。非結晶のガラスで

は成長したエッチピットは真円であったが、結晶である雲母の場合方向のそろった菱形をしている。Fig-7はエッチング時間に対するピットの各対角線長の増加の傾向を示す。エッチング速度は3時間の範囲ではほ

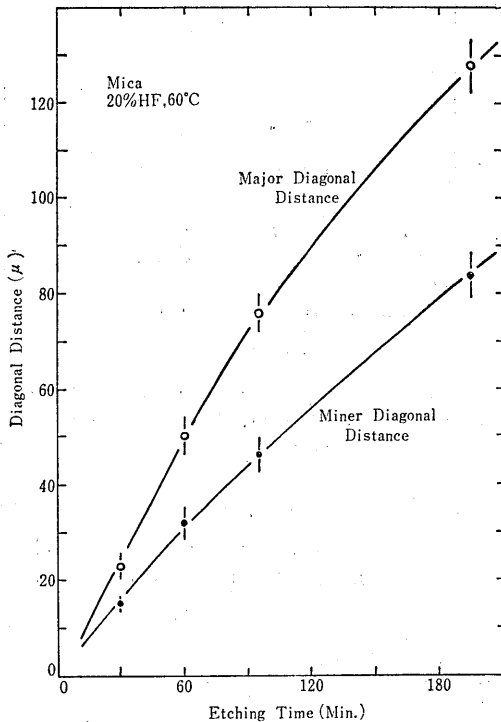


Fig. 7 Increase of Etch-pit Diagonal Distance

一定と見てよい。ガラスの場合エッチピットの深さはエッチング時間とともに増加することが観察されたが雲母ではエッチピットが光学顕微鏡で観察される大き

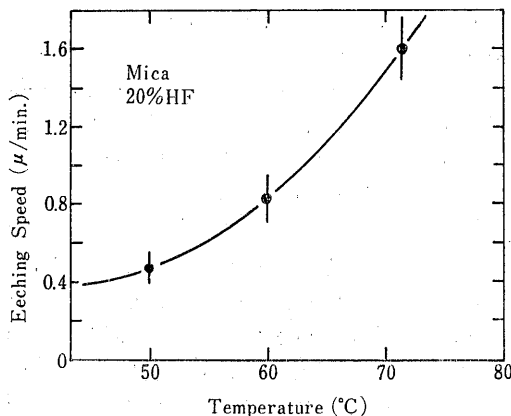


Fig. 8 Effect of HF Temperature on the Etching Speed.

さに成長した後の深さの増加はほとんど認められない。雲母のエッチピットの底は平で十分成長したガラスのエッチピットがお椀形なのに対して雲母のエッチピットは底の浅い重箱形であると言える。又 Fig-3 と比較すればわかるように雲母はガラスに比べてエッチピットの大きさにばらつきが小さい。エッチング速度は Fig-8 に示されるように温度に依存し、大きさがおよそ $100 \times 60 \mu$ に達するまでの時間は温度が約 10°C 上る毎に2分の1になることが見られた。

4 癍痕の安定性

個人線量計又はエアモニター用線量計としては低い線量を比較的長時間にわたり測定できることが必要で、そのため常にフェイディングが問題となる。我々は同じ条件で中性子照射した試料を一定期間保存した後エッチング及び計新を行ってエッチング前の癍痕の安定性を一年間にわたってしらべたがガラスについても雲母についても室温に保存したものにフェイディングは認められなかった。天然雲母については、それに含まれているウランの自発核分裂による癍痕は地質学的年代にわたって保存されていると仮定して矛盾のない結果が導かれたという報告がある⁶⁾。又ガラスについては 100°C 以上の高温ではフェイディングが起るが室温では無視することができるであろうとの報告がある⁷⁾。エッチング前の癍痕が非常に安定であることはこの測定法の中性子線量計に応用する場合の一つの制度である。たとえ低い線量率で、検出器の感度もそれほど高くなくても長時間の蓄積線量の測定が可能となるからである。

5 核分裂数をエッチピット数の対比

核分裂数をエッチピット数から算定する為には両者の比例定数がわかっていなければならない。比例定数を求める為の実験では核分裂断面積の一義的に定まる単一エネルギー中性子を使うことが望ましい。我々は東京コスのコッククロフト型加速器を使用し $T(d,n)\alpha$ 反応で得られる 14 Mev 中性子に試料を照射した。試料は金箔に電着された天然ウラン又はトリウムにガラス又は雲母を密着させたものである。

ターゲットから毎秒S個の中性子が 4π 方向に均一

に放出されているとき源から ℓ cm の点の中性子束 ϕ cm⁻²·sec⁻¹ は次式で表わされる。

$$\phi_{C.M} = \frac{S}{4\pi\ell^2} \quad (1)$$

これは重心系で測った中性子束に相当するから実験室系では実験室系から重心系への変換係数: J で割って次式のようになる。

$$\phi_{lab} = \frac{1}{J} \frac{S}{4\pi\ell^2} \quad (2)$$

中性子束: ϕ の場に核分裂断面積 σ_F cm² の物質が Wg あるとき一定時間: t sec におこる核分裂数 F は次式で表される。

$$F = W \frac{Na}{A} \sigma_F \phi t \quad (3)$$

ここで Na はアボガドロ数, A は物質の原子量である。(2) 式を (3) 式に代入して

$$F = \frac{1}{J} \frac{1}{4\pi\ell^2} W \frac{Na}{A} \sigma_F S t \quad (4)$$

(4) 式中 ℓ はターゲットから試料までの距離をノギス, 物指等で測定する。W は核分裂性物質の電着量である。St の積はターゲット近傍に置かれた α カウンター及び BF₃ ロングカウンター又はプラスチックシンチレーションカウンターの計数值から求められる。ウランの場合自発核分裂も起っているはずであるが我々の実験精度ではその数は中性子吸収による核分裂数に比して無視することができる。

中性子照射を終った試料は電着箔と絶縁性物質に分けられ, ガラスは通常 28%・60°C の水酸化ナトリウム溶液中で 2~4 時間, 雲母は通常硫酸をふくむ 20% 弗化水素酸中で約 1 時間エッチングを行い癩痕を拡大した後光学顕微鏡又は万能投影器により計数した。天然の雲母にはかなり多くの数のエッチピットのバックグラウンドの存在することがある。それ故雲母表面の核分裂片によるエッチピット数を見積る時には核分裂物質を密着させなかった部分の同じ面積のバックグラウンドを計数してそれを差引く必要がある。それに対して表面をよく磨かれたガラス表面ではバックグラウンドはほとんど存在しないと云ってよい。エッチピットの全数は無作為にぬき出されたいくつかの領域の単位面積あたりの計数值から見積られた。絶縁性物質としてガラスを選びこうして見積られたエッチピット数と核分裂数を各試料に比較して Fig-9 に示される結果を得た。図中の各測定値を中心とする縦の棒はエッチピット数の 95% 信頼区間を示している。核分裂数とエッチピット数の間には良い一致が成立つように思われる。又雲母を使っても同様の結果が得られた。これ

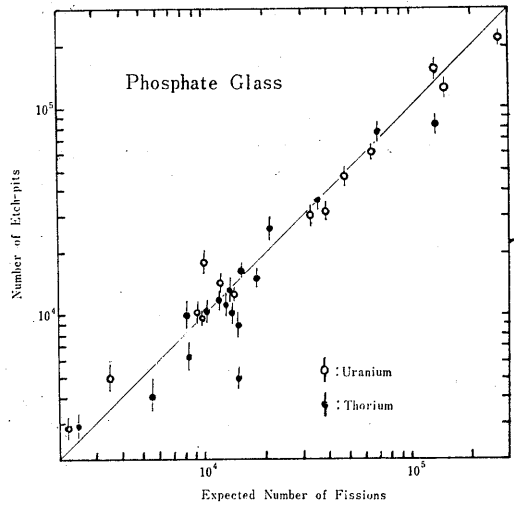


Fig. 9 The Correspondence between the Expected Number of Fissions and the Number of Etch-pits

らの実験結果から核分裂性物質を核分裂片の平均飛程よりもずっと薄く電着し, リン酸ガラス又は雲母に密着させるときガラス, 雲母上のエッチピット数は核分裂数に等しいと結論してよいであろう。

核分裂性物質の層が厚くなると自己吸収が無視できなくなりエッチピット数と核分裂数の比が上記のように 1 にならない。核分裂片の飛程に対して無限厚さの金属ウラン, 金属トリウムを使うときその感度は約 1.2×10^{-5} tracks/neutron·barn である。

6 原子炉内熱中性子束の測定

前章までの実験で得られた結論を基に“核分裂片癩痕計数法”は様々の分野に応用することができると思われる。我々はこの方法による中性子線量評価の可能性を考えているが, 第一の段階としては種々のエネルギー領域で中性子束がある程度の精度で測定できることがわかればよい。14 Mev 中性子についての実験は逆に言えばエッチピット数が核分裂数に一致するとの仮定の下にその中性子束を測定したことになるが, 次にこれを原子炉内熱中性子束の測定に応用した。天然ウランの電着量, 照射時間等の関係から測定すべき中性子束が設定され近畿大学原子炉の中央ストリンガーの 5ヶ所の照射孔が測定点に選ばれた。近畿大学原子炉は UTR-B と呼ばれ熱出力 0.1W の教育訓練用原子炉である。Fig-10 に示されたように 2 個の燃料タ

ンクは厚さ 45.7 cm の黒鉛反射体で隔てられており、その外部を 30.5 cm の黒鉛反射体がかこんでいる。

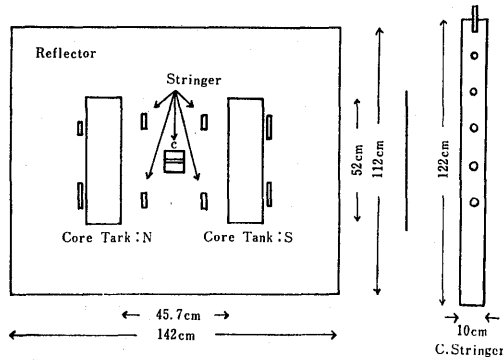


Fig. 10 UTR-B (horizontal view)

内部反射体にはいくつかの実験用ストリンガーが装置されていて、各ストリンガーにはその上端から約 15 cm おきに照射用実験孔が 5 ケ所あけられている。実験ではセンターストリンガーの各照射孔に金箔に電着された約 100 μg の天然ウランにガラスを密着させた試料が挿入され、0.1 W で運転される原子炉中で 3 時間照射された。照射後各試料のエッチピットが計数され、それが核分裂数に一致するとして炉内熱中性子束

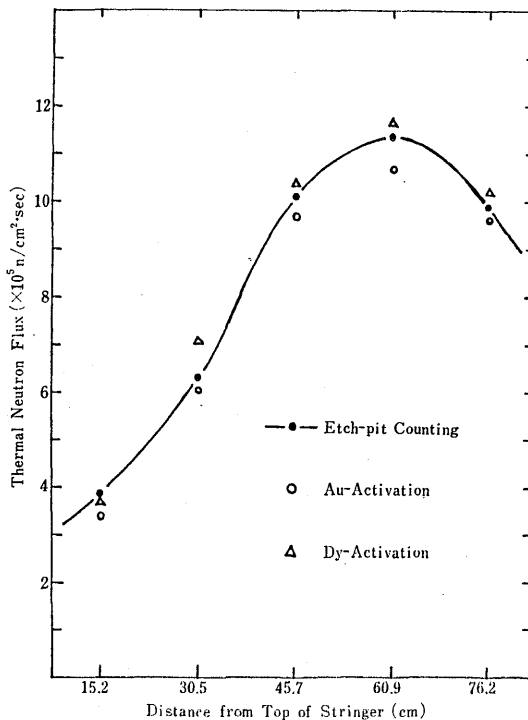


Fig. 11 Distribution of Thermal Neutron Flux in C-Stringer of UTR-B

分布が見積られた。金に対するカドミ比から高エネルギーの中性子による癍痕形成の割合は他の実験誤差に比して無視できると判断された。各測定点の熱中性子束は同時に照射試料の金箔の放射化によっても測定された。又同じ測定点の熱中性子束分布は過去に Dy_2O_3 の放射化によっても測定されたことがある。⁷⁾ ディスプロシウム放射化による測定の時と我々の測定の時との炉の状態は全く同じではないかもしれないがこれら三種の測定結果を Fig-11 にまとめる。癍痕計数法による結果は二つの放射化法による結果によく一致していると見られる。

7 おわりに

我々のエッチピット計数の経験によれば絶縁性物質表面のエッチピット計数可能密度は有意な精度で $10^2 \sim 10^7 \text{ cm}^{-2}$ と見積られる。換言すればこの形成の一個の検出器で 5 桁にわたる広範囲の中性子照射線量の測定が可能である。例えば RBE 線量の単位で 10 m rem から 1000 rem までの範囲を一個の検出器で測定することができる。我々は天然ウラン及びトリウムの核分裂片の平均飛程よりもはるかに薄い電着箔を作ることによりエッチピットが重なる確率を下げ、極めて高い中性子束もしくは中性子線量を測定することができた。核分裂性物質を電着した金箔は絶縁性物質に記録された積算線量とは別に事故時にはその際与えられた線量をその放射化量から教えるであろう。核分裂性物質の種類や電着量を変えると感度を変えることができる。核分裂片の飛程よりも多い天然ウランの箔又は板を使用すれば最低測定限界は癍痕密度を 100 cm^{-2} として熱中性子で 2 m rem, 2 Mev の高速中性子で 60 m rem と見積られる。エッチング前の癍痕が非常に安定で長時間の積算測定に耐えることからこの測定法の個人線量計及びエリアモニター用検出器としての利用が有望である。

一方エネルギーと中性子束のわかっているところで中性子照射をすればこの測定法を核分裂性物質の分析、定量、ウラン濃縮度の測定、核分裂断面積の測定等多方面に應用することが可能である。我々は現在海水及び河川水中のトリウムの分析にこの測定法を併用している。

本報告を行うにあたり、研究上何かと便宜を与えて下さった動力炉・核燃料開発事業団の丸山正倫氏、東

京芝浦電気株、中央研究所の横田良助氏に厚く御礼申し上げます。

References

- (1) D. A. Young: Etching of Radiation Damage in Lithium Fluoride, *Nature*, vol. 182, p. 375 (1958)
- (2) E. C. H. Silk, R. S. Barnes: Examination of Fission Fragment Tracks with an Electron Microscope, *Phil. Mag.*, Vol. 4, p. 970 (1959)
- (3) K. Izui, F. E. Fujita: Observation of the Tracks of Fission Fragments in Molybdenite, *J. Phys. Soc. Japan*, Vol. 16, p. 1779 (1961)
- (4) P. B. Price, R. M. Watker: Observations of Charged-Particle Tracks in Solids, *J. Appl. Phys.* Vol. 33, p. 3400 (1962)
- (5) K. Becker: Nuclear Track Registration in Dosimeter Glasses for Neutron Dosimetry in mixed Radiation Fields, *Health Physics*, Vol. 12 p. 769 (1966)
- (6) R. L. Fleischer, P. B. Price: Decay Constant for Spontaneous Fission of ^{238}U , *Phys. Rev.* Vol. 133B, p. 63 (1964)
- (7) K. Nakamura, H. Simizu, H. Tanaka, T. Niwa: Thermal Neutron Flux Distribution of UTR-B, *Ann. Rept. Kinki Univ. Atomic Energy Res. Inst.* Vol. 1 p. 57 (1963)