

中性子標準と関連計測技術の研究 (A Study of Neutron Standard and Associated Measuring Techniques)

量子放射部

工藤勝久, 武田直人, 福田 昭

The present status of neutron standardization performed at ETL was described with emphasis of several topics of the development of intermediate neutron fluence standard, the calculation of response functions for gas proportional counters, the effective dose equivalent & energy distribution measurements of γ -rays mixed in a thermal neutron standard field and the precise measurements of stopping powers of gases for low energy ions. A further development of new neutron standards especially required in the higher energy region over 20 MeV was described as a strategy for the coming 10 years.

1. はじめに

電総研では、熱中性子から20 MeVエネルギー範囲の中性子標準の確立に関する研究を行い、熱中性子フルエンス率、144keV, 565keV, 2.5MeV, 5.0MeV, 14.8MeVにおける中性子フルエンスおよび ^{252}Cf 中性子源の中性子放出率の国際比較に参加し、国際的な同等性と信頼性を確保してきた。

近年原子炉周辺環境の放射線防護において、特に100keV以下の中性子による被ばく線量の測定に問題があり、正確な線量当量測定器の開発と同時にその基準となる中速中性子標準場の確立が望まれていた。そのため、電総研における中性子標準研究の一環として、未着手エネルギー領域である100keV以下の中速中性子の発生技術およびその計測技術に関する研究を実施した。

同時に、中速中性子エネルギーから速中性子エネルギー領域における中性子フルエンス測定に用いる水素比例計数管、 ^3He 比例計数管などのガス入り比例計数管によるフルエンス測定法の高度化を行った。従来のフルエンス絶対測定では、レスポンス関数の半解析的な式を実験で得られた波高分布にフィッティングする手法や計数管での中性子の散乱を無視したモンテカルロ計算を用いてきた^{1,2)}。これらの課題を解決しフルエンス測定の不確かさを改善するためにガス入り比例計数管のレスポンス関数を正確に計算するNRESPGモンテカルロ計算コードの開発を行った³⁾。

また、中性子標準場で中性子測定器を校正する場合、中性子場に混在する γ 線の影響を受けて出力計数が過大評価される事例があり、中性子場に混在する γ 線のエネルギー分布および実効線量当量の測定が望まれていた。そのため、熱中性子場における γ 線線量測定とエネルギー分布測定に着手した。

一方、ガス比例計数管のレスポンス関数決定で重要な混合ガス中における低エネルギー荷電粒子のエネルギー損失量をより正確に把握するため、ガス中における荷電粒子の阻止能を系統的に精密測定した。

2. 研究内容

2.1 中速中性子フルエンス標準に関する研究

ペレット加速器を用いた $\text{Sc}(p,n)$ 反応中性子源(水素、 ^3He ガス比例計数管によるフルエンス測定)および $\text{Sb}(\gamma,n)$ 反応RI中性子源(マンガバス法による中性子放出率測定)を用いて、中速中性子フルエンスの標準化に必要な中性子発生技術、測定技術及び解析技術を開発した。また、京都大学との共同研究により京大炉B-1実験孔の鉄フィルター中性子ビームの測定と解析を行った⁴⁾。研究を実施してきた3つの中速中性子フルエンス標準場について得られた結論を以下に述べる。

$\text{Sb}(\gamma,n)\text{Be}$ 光中性子源はマンガバス法により不確かさ $\pm 1\%$ でその中性子放出率(約 10^5 n/s程度)を決定した。他の方法と比較して大型装置が不要で簡単に使用する事が出来るが、半減期が60.2日と短いため、定期

的な線源の作製と放出率測定が不可欠である。また、 γ 線強度が中性子強度の約10000倍あるため、線源ハンドリングの問題や測定器からのパルス出力信号のピルアップなどの問題が発生する。一方、Sb-Be線源のBeブランケット部(3cm^φ×3cm^L)における中性子散乱により、24keVから低エネルギー側に連続エネルギー分布を持つ⁵⁾。

京大炉B-1実験孔の鉄フィルター中性子ビームは3つの方法の中で中性子フルエンス率が10⁵[n/cm²/s]と最も大きく、生物照射などに利用できる。鉄フィルターを厚くすることにより、高速中性子の混在比を減らしスペクトルの質を向上できるが、中速中性子強度は2桁ほど減少する。中性子ビームのエネルギー分布に、原子炉からの速中中性子成分、鉄フィルター高エネルギー成分および照射室内での散乱による低速中性子が混在している。

ペレトロン加速器を用いたSc(p,n)核反応により中速中性子を発生する場合、核反応に多数の隣接する共鳴反応ピークが混在するため入射プロトンエネルギーの高安定化が要求される。ペレトロン加速器の1Hzから1kHzの電圧リップルを平滑化するためのフィードバック装置を増設することにより、3MeVに対して±0.5keV以下の安定度が達成できた⁶⁾。

中性子エネルギーは、陽子のエネルギーおよび中性子の放出角度を選ぶことにより10keV～50keV範囲で発生でき、その単色性は3つの方法の中で最も優れていることが明らかとなった。

以上述べた3つの方法で得られた中性子場の中性子スペクトルシミュレーション結果をFig.1に示す。

2.2 ガス入り比例計数管のレスポンス関数に関する研究

中速エネルギー領域を含めた中性子フルエンスを精密に測定するため、³HeガスとArまたはKrなどの混合ガスの組成及び圧力を変化させて³He円筒型比例計数管の端効果、空間電荷効果及び再結合に関する基本特性を詳細に研究した。また、レスポンス関数を計算するNRESPGモンテカルロ計算コードの開発に際して、上記の研究で得られた基本特性を入力ライブラリーに組み込むことにより実験の波高分布をより正確に再現できるようになった。

NRESPGはモンテカルロシミュレーションコードで

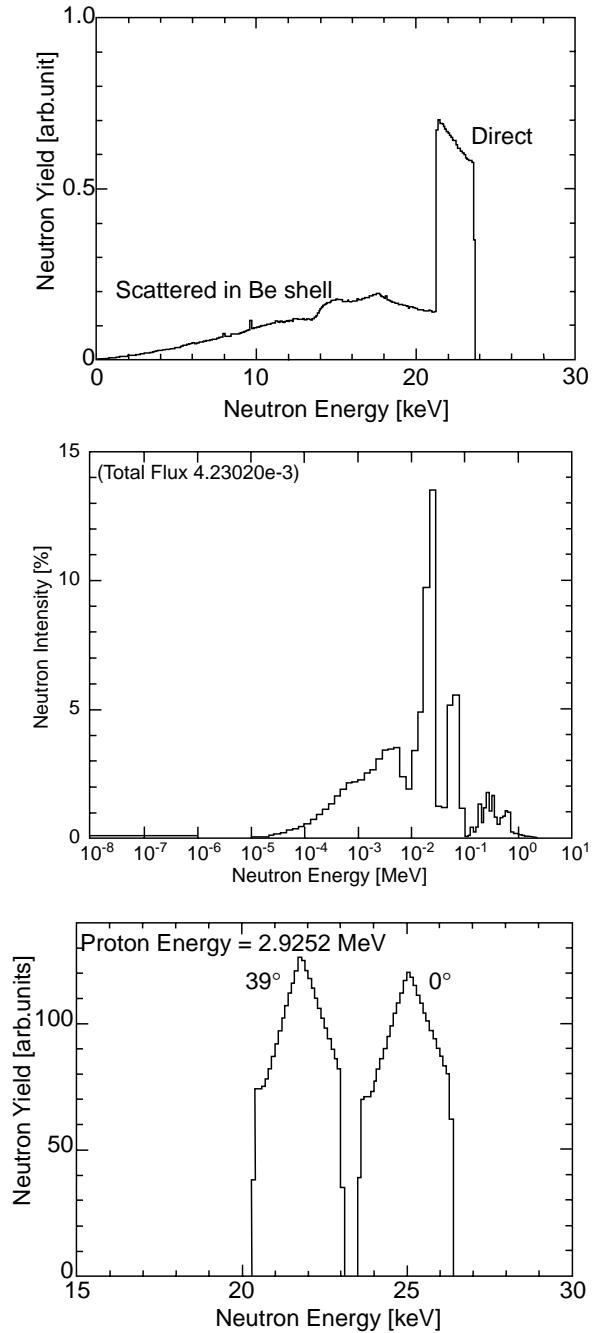


Fig.1 中速中性子場の中性子スペクトル
上から順にSb-Be光中性子源、京大炉B-1実験施設の鉄フィルター中性子場、ペレトロン加速器によるSc(p,n)Ti中性子場。

あり、中性子の反応断面積はENDF/B-Vを用いている。

レスポンス関数を精密にシミュレーションする際に問題となるのが、検出器における非線型効果である。それらの非線型効果についての研究結果を以下に要約する。

比例計数管においてそのガス増幅率は放射線を検出した位置に依存せず一定であることが望ましい。し

かし、一般的に陽極線の端においてはガス増幅率が0から一定の値になるまでの遷移領域が存在する。

Fig.2に市販の³He円筒型比例計数管の陽極線に沿ったガス増幅率の変化を示す。市販の検出器のため内部構造の詳細は分からないが、この測定結果から、陽極線の端の部分の太さを変化させている事(フィールドチューブ)が分かる。このメーカーではフィールドチューブ間の長さを有効長と定義している。この間で中性子と検出ガスが反応した場合、確かに何らかの信号が出るので有効な領域には間違いないが、フィールドチューブ近傍ではガス増幅率が一定になるまでの遷移領域があり、その間で中性子を検出した場合(正確には飛程の長さを考慮する必要あり)、信号パルスの波高値は遷移領域が無いと仮定した場合に比べ小さくなる。実際の測定においては雑音等の影響を無くするため波高値の下限値を設定し、それ以上の波高を持つ信号パルスのみを処理する。このような計数管を用いて測定した場合、本来計数されるべき信号が下限値以下になり、過小評価になる可能性がある。

NRESPGでは陽極線近傍でのガス増幅率の変化を取り込んで、シミュレーションを行える。ガス増幅率の変化は実際に測定したもの、もしくは内部構造から有限要素法を使い電界分布を計算し、さらに各点でのガス増幅率を計算したもののどちらかを入力条件に出来る。

Fig.3にガス増幅率が有効領域内で一定(理想的な計数管)の場合とガス増幅率の遷移領域を考慮した場合の熱中性子に対するレスポンス関数のシミュレーション結果と測定した波高分布の比較を示す⁷⁾。ガス

増幅率は測定によって求めたもの(Fig.2)を使っている。ガス増幅率を一定と仮定した場合のレスポンス関数は全エネルギー吸収ピークの占める割合が多くなり、測定結果とは一致しない。一方ガス増幅率の遷移領域を考慮した場合、全エネルギー吸収ピークの計数の割合が減り、測定結果と良い一致を示している。

一方、比例計数管においてその動作電圧・封入ガスの種類及びその圧力・荷電粒子の飛程及びその向き等により、空間電荷効果や再結合が起きる可能性がある。

荷電粒子の飛程の向きが陽極線に垂直の場合、検出器への放射線の入射により生じた一次イオン対が陽極線に到達するのに時間差が生じ、また陽極線の同じ部分に到達するため空間電荷効果によりガス増幅率の低下が生じる。この効果は計数管に印加する電圧が高くなるほど顕著になる⁸⁾。

荷電粒子の質量が重くなり、LETが大きくなった場合、再結合により生じた一次イオン対の数が減少する。この結果波高値は小さくなる。再結合の割合は印加電圧を高くすることにより減らすことができるが、LETの大きさによっては完全に無くすことはできない⁹⁾。

本研究により、熱中性子から14MeVまでの広いエネルギー範囲の単色中性子線に対するレスポンス関数を極めてよく再現することができた。この計測技術の確立により中性子フルエンス測定の高高度化を実現できた。

2.3 熱中性子場に混在するγ線測定に関する研究

電総研の熱中性子標準場に混在するγ線を熱中性子の妨害反応を避けて測定するために、圧力可変の³Heガ

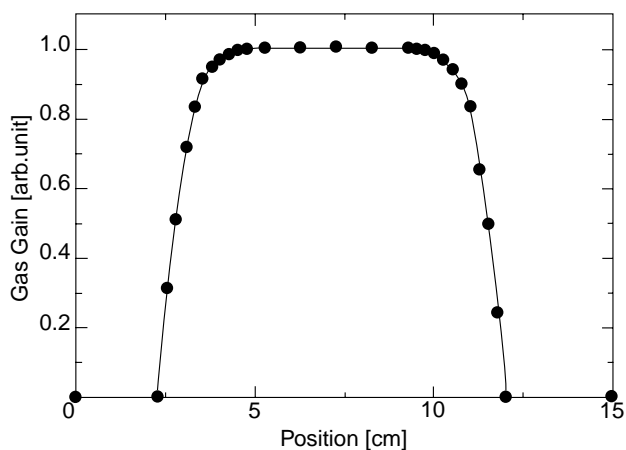


Fig.2 円筒型³He比例計数管の陽極線に沿ったガス増幅率の変化

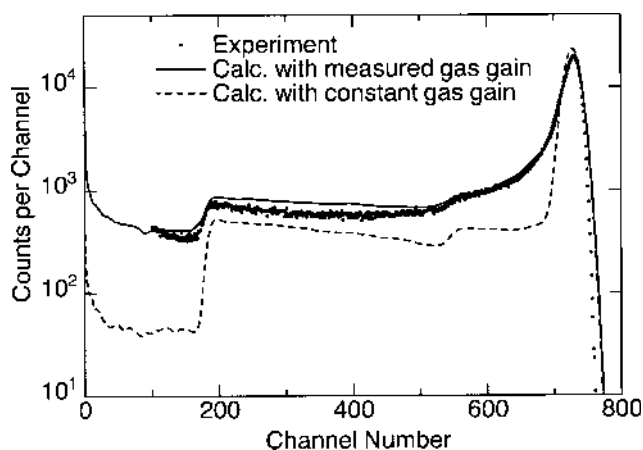


Fig.3 NRESPGによる熱中性子に対する³He比例計数管のレスポンス関数と測定結果の比較

スフィルター付GM計数管を開発した。裸のGM計数管による測定では、入射した熱中性子がGM計数管中で捕獲され二次的な γ 線を発生し出力計数が増加してしまう。これを避けるため、GM計数管の周囲を ^3He ガスの封入されたアルミ容器で囲み $^3\text{He}(n,p)\text{T}$ 反応を用いて熱中性子を捕獲することにより、二次的 γ 線の発生を防ぐことができる¹⁰⁾。測定では、 ^3He ガスの圧力を変化させて飽和計数率を求めた。この場合、熱中性子場の γ 線のエネルギー分布はMCNPモンテカルロ計算により、またGM計数管のレスポンスはEGS4モンテカルロ計算によりそれぞれ決定した¹¹⁾。更に、フルエンスから実効線量当量への換算係数を用いることにより γ 線の実効線量当量を決定した。

次に熱中性子場に混在する γ 線のエネルギー分布を測定するために、中性子と γ 線の分離測定ができるNE213液体シンチレータを用い、 γ 線波高分布の分離測定を行った。また、シンチレータに入射した熱中性子の水素捕獲による2.2MeV γ 線の発生を阻止するために、シンチレータの外側を熱中性子吸収用LiFフィルターで囲った。得られた波高分布をHEPROコード¹²⁾によりアンフォールディングすることによりFig.4に示す γ 線のエネルギー分布を求めた。更にフルエンスから実効線量当量への変換係数を用いて実行線量当量を決定した¹³⁾。

2.4 荷電粒子効果定数に関する研究

荷電粒子の阻止能は中性子線の吸収線量の評価において必要であり、その阻止能のデータベースが世界的にも完全ではないので独自に絶対測定を行うという動機から、電総研においては約20年前から阻止能の絶対測定の準備を始めた。当初は、人体組織等価の材料による吸収線量測定チェンバーのために、陽子線に対する人体組織等価気体(窒素・炭酸ガス・メタンの混合気体)の阻止能測定から始まった。人体組織等価気体を構成する各気体に対する測定も行い、混合比での阻止能の和が混合気体の阻止能になるという加算則が成立する限界と精度を示した。また各気体の平均励起エネルギーをも示すことができた。

当初の目的はここまでであった(ここまでの成果は放射線計測において権威のあるICRUが発行するICRU REPORT No.49 1993に全て採用された)が、以上の成果を学術誌や国際会議で発表する過程での阻止能関係

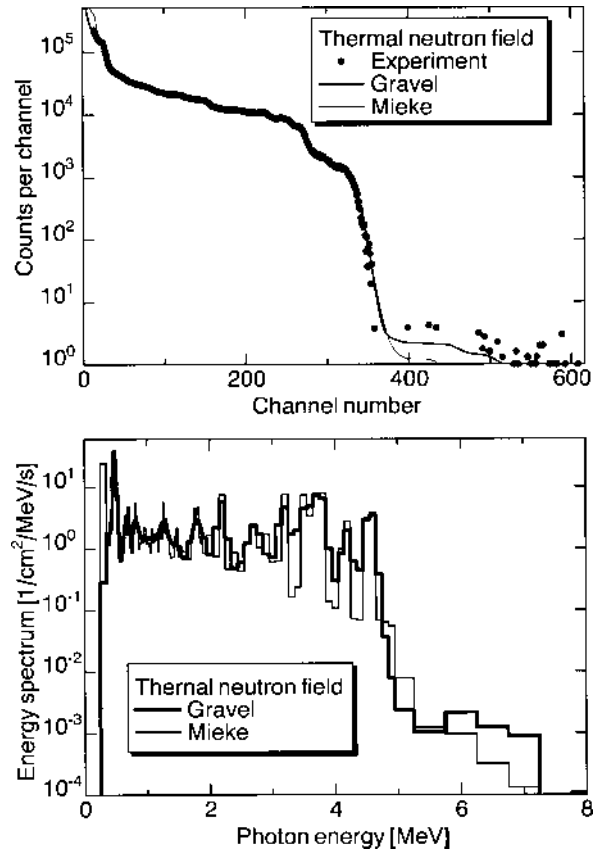


Fig.4 NE213シンチレータで測定した黒鉛パイルからの熱中性子場に混在する γ 線の波高分布とHEPROにより得られた γ 線スペクトル

の研究との交流から、さらに深い阻止能の研究を行うことが必要と判断し、阻止能測定の研究を続けてきた。阻止能は荷電粒子そのものの利用(半導体工業・材料の改質・医療等)においても必要不可欠な物理定数である。

その後、希ガスイオンに対する希ガスの阻止能を系統的に測定し、低エネルギーでの気体の阻止能の全体像を明らかにした¹⁴⁾。この過程で、より低エネルギーでの阻止能が従来言われているような単純な傾向を示すものではなさそうであるということを指摘した^{15,16)}。当ラボでの研究となってからは、以前は入手困難であったヘリウム3気体を用いての阻止能測定を行い、同位体での阻止能の差を論じた。ここまでのデータは現在編集のICRU REPORTに採用されることが決まっている。

現在は、上記の、「より低エネルギーでの阻止能の様子」および「同位体での阻止能の差」をさらに明らかにすべく、測定システムの高精度化をはかり、低エネル

ギーでの安定した荷電粒子を得るべく装置の準備中である。測定システムは、このエネルギー領域の阻止能の研究を行えるものとしては世界唯一のものである。建設当初からの装置において真空排気装置を交換した以外は20年来稼動しており、このシステムから得られるデータの長期間の整合性は優秀であり、そのデータは論文および会議などでの時々の海外の研究者の評価にも十分応えている。測定システムの高度化としては測定対象気体を一定圧力に維持する装置を20年前の真空管式から替えて、独自の方式とした。より高精度の測定により低エネルギー荷電粒子の広い利用のための成果が期待される。

3. 成果の波及効果

筑波移転後、国際度量衡委員会の主催する中性子フルエンスの国際比較に8回、中性子放出率の国際比較に1回参加した。その結果、米国、ヨーロッパの先進諸国の国家標準との同等性を確認し、日本の測定技術の国際的な信頼性を確保できた。国内では原研、核燃料サイクル機構、原子力発電所や大型加速装置の関連施設、大学の研究所、関連メーカーなどの二次標準機関への標準供給を行い、国内外の中性子標準の整合性を確保してきた。また、ミュオン触媒核融合からの中性子発生量の定量化などの基礎研究分野にも高精度標準の供給を目的とした共同研究を実施し、成果の普及に貢献している。

また、標準確立のために研究開発された中性子計測技術も一般へ公開されている。ガス比例計数管のレスポンス関数計算のために開発されたNRESPGモンテカルロコードは、核燃料サイクル開発機構との共同研究により3次元体系のシミュレーションモデルへ一般化され、減速材付ボナー球のレスポンス計算もできるようになった¹⁷⁾。これらの成果は、2000年6月にピサで開催された中性子場スペクトロメトリー国際会議における冒頭の「中性子スペクトロメトリーの現状」講演の中で紹介された。

一方、ガスに対する低エネルギー荷電粒子の阻止能精密測定データは国際的なICRUレポートのデータベースとして採用され、関連分野で広く利用されている。

4. 今後の研究展開の方向

これまでの研究により、一部のエネルギー範囲を除いて熱中性子から20MeVエネルギー範囲における中性子フルエンス(率)の標準研究がほぼ完成した。20MeV以下で残された未整備エネルギー範囲は、核融合関連分野で重要な5-10MeV領域(平成11年度から16年度まで原子力特別研究で実施)及び15-20MeV領域である。また、熱中性子フルエンス率の強度を 10^8 [n/cm²/s]まで増強するために、京大炉の重水減速設備を利用した共同研究を実施している。ただ、京大炉も近い将来シャットダウンする可能性があり、研究拠点の確保が今後の課題である。

次の課題として、中性子標準場に混在する最大エネルギー10MeVの γ 線のエネルギー分布と実効線量当量の測定が要求される。速中性子フルエンス標準場に混在する γ 線測定は、NE213液体シンチレータが有力であるが、速中性子とシンチレータとの相互作用により発生する二次 γ 線の除去または定量化が大きな課題である。また、 γ 線レスポンス関数を測定するための基準線源として、電子蓄積リングTERASとレーザー光の相互作用により発生する高エネルギーフォトンが有望であり、現在実施している高エネルギーフォトン量子標準の研究(科学技術振興調整費知的基盤 平成10年度~14年度)の成果が待たれる¹⁸⁾。

最近のトピックスとして航空機の搭乗員の被ばくがEC諸国を中心に問題となっている。特に大気圏の上層部では中性子のエネルギー分布が最大で1GeVに達し、中性子被ばくによる人体への影響は不明であり、今後の研究が待たれる。同様に、スペースシャトルの内部における被ばくの問題の他に超高エネルギー中性子と高集積半導体デバイス中のSiとの核破砕反応により発生する多種類の高エネルギーイオンによるソフトエラー(single event upset)が問題となっている。これらの超高エネルギー中性子測定の基準化も今後取り組むべき課題であろう。そのためには、高エネルギー加速器研究開発機構と日本原子力研究所が進めている大強度陽子加速器による核破砕反応により発生する中性子の標準化に関する共同研究を検討したい。

5. おわりに

産業界や研究分野から要求される次世代の新しい中性子標準のシーズの探索と研究を率先して実施するのみならず、確立された標準を円滑に国内外に供給できる体制を整備することが要求される。特に、昨年10月の第21回国際度量衡委員会の決議で、加盟国間の基幹相互比較により国家計量標準の同等性を評価して公表するとともに、更に各国家計量標準および各国立標準研究所で発行される校正証明書に関する相互承認の取り決めを制定することになった。そのため、電総研の中性子標準の国際的な同等性を放射線諮問委員会の加盟国間の基幹相互比較により再実証するとともに、その成果をアジア太平洋計量プログラム (APMP) の加盟国間の基幹相互比較に生かしていくことが責務である。また、同時にISO17025で要求される校正機関としての品質システムを確立することにより、電総研の発行する校正証明書が国際的に相互承認されるような枠組み造りを推進しなければならない。

謝辞

京大炉鉄フィルタービームおよびSb-Be中性子源を用いた中速中性子標準の共同研究は、京都大学原子炉実験所の小林捷平先生、義本孝明先生、岡本賢一先生、大阪府立大学先端科学研究所の藤代正敏先生と行い、貴重なご意見やご教示を頂き、多くの成果を得ることができました。ここに深く感謝の意を表します。また本研究を進めるにあたりご協力頂きました電総研量子放射部関係者の方々に深く感謝致します。

参考文献

- 1) E. Teranishi et al., Bull of Electrotech. Lab., Vol. 41 (1977) p. 693.
- 2) N. Kobayashi, N. Kinoshita, T. Michikawa, Nucl. Instr. Meth. Vol. A242 (1985) p. 164.
- 3) N. Takeda, K. Kudo, H. Toyokawa, et. al., Nucl. Instr. and Meth., Vol. A422 (1999) pp. 69-74.
- 4) N. Takeda, K. Kudo, M. Fujishiro, K. Okamoto, K. Kobayashi and S. Yoshimoto, Proceedings of Int. Symp. On Reactor Dosimetry, in Osaka (1999), in press.
- 5) 武田直人, 工藤勝久, 杉田武志, 岡本賢一, 京都大学原子

炉実験所学術講演会報文集, (1996) p. 67.

- 6) 林伸行他, タンデム加速器およびその周辺技術の研究会報告書, (1994) p. 77.
- 7) N. Takeda, K. Kudo, IEEE Trans. on Nucl. Sci., Vol. 41, No.4 (1994) pp. 880-883.
- 8) N. Takeda, K. Kudo, IEEE Trans. on Nucl. Sci., Vol. 42, No.4 (1995) pp. 548-551.
- 9) N. Takeda, K. Kudo, IEEE Trans. on Nucl. Sci., Vol. 44, No.1 (1997) pp. 42-46.
- 10) K.Kudo, N.Takeda, IEEE Trans. on Nucl. Sci., Vol. 43 (1996) p. 1851.
- 11) W.R. Nelson, H. Hirayama and D.W.R. Roger, The EGS4 code system, SLAC-265 (1985).
- 12) M. Matzke, The HEPRO Program System, PTB-N-19 (1994).
- 13) K.Kudo, N.Takeda, S. Koshikawa, H. Toyokawa, H. Ohgaki and M. Matzke, Proceedings of Int. Workshop on Neutron Field Spectrometry, in Pisa (2000).
- 14) A. Fukuda, J. of Phys. B, Vol. 29, (1996) pp. 3717-3725.
- 15) A. Fukuda, Atomic Collision Research in Japan, Vol. 24 (1998) p. 68.
- 16) A. Fukuda, J. of Phys. B: Vol.32 (1999) pp153-159.
- 17) 橋本周, 斎藤圭, 安藤秀樹, PNC TN9410 98-061 (1998).
- 18) K. Kudo, N. Takeda, H. Ohgaki, T. Toyokawa, Proceedings of Int. Symp. On Reactor Dosimetry, in Osaka (1999), in press.