

中性子フルエンス標準に関する調査研究

原野 英樹*

(平成15年10月2日受理)

A survey on the neutron fluence standards

Hideki HARANO

1. はじめに

中性子は放射線的一种である。近年よい意味でも悪い意味でも放射線という言葉に耳にする機会が多くなったように思われるが、中性子と聞いてすぐにピンと来る方はまだ少ないのではないだろうか。しかし実は中性子は産業の様々な分野で活躍している。

原子力発電では中性子が核分裂連鎖反応を維持、制御する上で重要な役割を担っている。次世代エネルギー源として研究開発が進められている核融合炉では炉心プラズマからのエネルギーは中性子により取り出され発電に供される。また核破砕反応により発生する中性子により高レベル放射性廃棄物中に含まれる長寿命核種をより寿命の短い核種に核変換処理するプロジェクトも進行中である。また物性研究や生命科学、構造生物学研究におけるプローブなど基礎研究の分野でも活躍している。また中性子ラジオグラフィ、半導体材料の改質などの工業応用や硼素中性子捕捉療法 (BNCT) などの医療応用などその応用は非常に多岐に渡っている。

一口に中性子といってもそのエネルギーによってその振る舞いは大きく異なる。中性子と物質との相互作用が原子核反応であるために中性子のエネルギーに大きく依存し変化するからである。その状況は例えば光子がそのエネルギーによって高周波、赤外線、可視光、紫外線、X線、 γ 線などと名を変え、それぞれが別々の取扱いを受け、違った応用の仕方をされているのと似ている。各応用分野にて対象となる中性子のエネルギー範囲が大きく異なっている。従って広いエネルギー範囲に渡る中性子計測法の開発とその信頼性の確保のために必要な中性子標準の整備、供給が望まれている。

産業技術総合研究所 (産総研) では電子技術総合研究所 (電総研) 時代を通じて国の一次標準機関として中性子標準の確立に関する研究、標準供給業務、関連する計測技術の開発を行ってきた。本研究ではこれら中性子国家標準について技術的観点から調査する。標準がどのようにして確立、維持されているか、さらに国際的な同等性、信頼性が如何に確保され

ているか、についてまとめる。最後に中性子標準の有する技術的課題に触れ、解決を目指した現在の取り組みについても報告する。

2. 中性子標準の整備状況

中性子は、X線、 γ 線と同様、電荷を持たない間接電離放射線である。産総研では中性子標準の確立に関する研究を行ってきた。現時点では以下に示すように中性子場の強度、及び、中性子線源の強度に関する中性子標準が整備、供給されている。中性子場の強度は中性子の流れの強さを示すフルエンス (cm^{-2})、或いはフルエンス率 ($\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$) で記述される。中性子のエネルギー別に、速中性子フルエンス標準、或いは熱中性子フルエンス率標準が整備されている。中性子線源の強度は線源から放出される中性子放出率 (sec^{-1}) で記述される。これらの標準は図1に示したように、仲介検出器を用いる、或いは、校正器物を受け入れるといった形で二次校正機関にトランスファーされ、さらに二次校正機関から広く産業界へと供給される。

2.1 速中性子フルエンス (cm^{-2})

速中性子フルエンスは単色スペクトル及び線源放出スペクトルについて整備されている。単色中性子の発生は加速器で

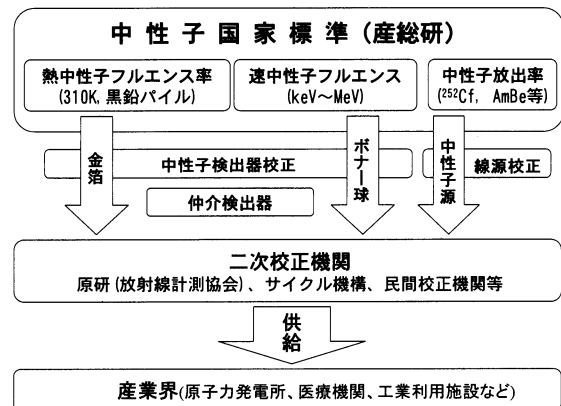


図1 中性子標準とトレーサビリティ

*計測標準研究部門 量子放射科

表 1 速中性子フルエンス標準のエネルギー点, 発生に用いる核反応, 標準設定用検出器

エネルギー	核反応	絶対強度測定用検出器
144keV, 565keV	${}^7\text{Li}(p, n){}^7\text{Be}$	反跳陽子比例計数管
5.0MeV	$\text{D}(d, n){}^3\text{He}$	Thick Radiator 検出器
14.8MeV	$\text{T}(d, n){}^4\text{He}$	随伴粒子計測装置

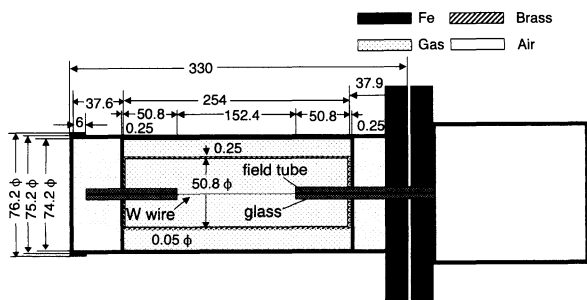


図 2 反跳陽子比例計数管

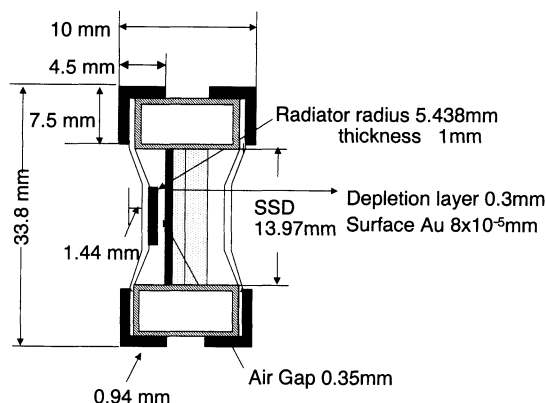


図 3 Thick Radiator 検出器

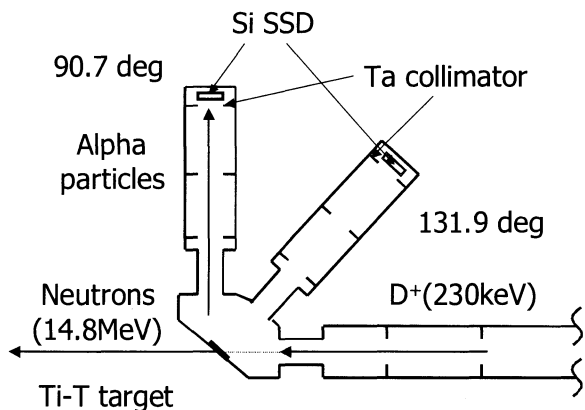


図 4 随伴粒子計測装置

発生したイオンをターゲットに衝突させ、核反応により発生する。144KeV, 565KeV および 5 MeV の中性子の発生にはバンデグラフ加速器, 14.8MeV の中性子に対してはコッククロフト・ウォルトン加速器を使用する。表 1 に使用する核反応, 及び, 中性子フルエンスの決定法についてまとめる。中性子はエネルギーによって最適な測定法が異なるため, フルエンスの絶対値の計測に用いる検出器, 即ち一次標準用の計測器もエネルギー領域によって使い分けている。1.2MeV 以下の中性子エネルギーに対して用いる反跳陽子比例計数管を図 2 に示す。計数ガスとして水素が充填されており, 中性子に弾かれた陽子のエネルギーを測定する。実験で得られた波高分布をモンテカルロ計算を用いて解析することで中性子フルエンスを決定する。さらに中性子のエネルギーが高くなると反跳陽子の飛程が長くなり, 検出器内で十分にエネルギーを落とせなくなることから, 検出器応答が複雑となりフルエンス測定精度が低下する。従って 2.5MeV 以上では図 3 に示した Thick Radiator 検出器を使用している。シリコン半導体検出器の前面をポリエチレンの膜で覆った構造である。中性子照射によりポリエチレン中で発生した反跳陽子をシリコン半導体検出器で検出する。こちらもモンテカルロ計算により解析し中性子フルエンスを決定する。14.8MeV 中性子に対しては図 4 に示す随伴粒子計測装置を用いる。コッククロフト加速器のビームラインに設置したトリチウムターゲット内で, 重陽子とトリチウムとの核反応により 14.8MeV 中性子が生成する。この際, ヘリウムの原子核である α 粒子が随伴粒子として重心系にて中性子と反対方向に同時放出される。重陽子ビーム方向から 90.7 度方向に設置したタンタルのコリメーターにより定めた立体角内に放出された α 粒子をシリコン半導体検出器により計数することで中性子フルエンスを決定する。線源放出スペクトルに対する速中性子フルエンス標準は ${}^{241}\text{Am}-\text{Be}$, ${}^{252}\text{Cf}$ 中性子線源に対して整備されている。これらの中性子源の中性子放出率は ${}^{241}\text{Am}-\text{Be}$ 標準中性子線源を用いて校正されており (2.3 中性子放出率を参照), 距離の逆二乗則を用いてフルエンスを決定する。

2.2 熱中性子フルエンス率 ($\text{cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$)

核反応等で発生した中性子は物質中を拡散する間に原子核と衝突し, エネルギーを失い, 最終的にはその物質の分子の熱運動と平衡に達し熱中性子となる。エネルギー分布は平均エネルギー 310K 程度のマクスウェル分布である。熱中性子フルエンス率標準では熱中性子の発生に黒鉛パイルを用いる。黒鉛パイルは幅 230cm, 奥行 190cm, 高さ 190cm の直方体形状であり, 長さ 90~120cm, 断面が 10cm 角の原子炉級黒鉛ブロックを 2 級精密定盤の上に隙間無く積み上げたものである。黒鉛パイルの中心に中性子放出率が校正された標準 ${}^{241}\text{Am}-\text{Be}$ 中性子源を装荷することで, 中性子は炭素原子との衝突により減速, 熱化し, 自然と黒鉛パイルの内外に熱中性子場が形成される。熱中性子フルエンス率の空間分布は金箔の誘導放射能測定及び ${}^3\text{He}$ 比例計数管を用いて測定する。校正器物が放

射化箔など小型の場合は黒鉛パイル内に埋め込んでの校正も可能である。

2.3 中性子放出率 (sec⁻¹)

中性子放出率の校正は²⁴¹Am-Be標準中性子線源との比較測定による。²⁴¹Am-Be標準中性子線源は英国 National Physical Laboratory (NPL)にて中性子放出率が校正されている。中性子放出率標準は²⁴¹Am-Be、²⁵²Cf中性子線源に対して供給可能である。比較校正には黒鉛パイルを用いる。黒鉛パイルの中心に中性子線源を装荷することで熱中性子場が形成されることは前述した。一般的には中性子線源から放出される中性子の放出率とエネルギースペクトルの違いによって熱中性子フルエンス率の空間分布は異なる。但し道川らの研究¹⁾によれば線源位置から90cm離れた位置では、単位中性子放出率あたりの熱中性子フルエンス率が線源の種類(放出中性子のエネルギースペクトル)によらず一定であることが示されている。このことを利用して比較校正を行う。線源から90cm離れた位置における熱中性子は³He比例計数管によりモニターする。

3. 国際基幹比較

以上紹介した中性子標準に対し、産総研では各国で確立された中性子標準間の不一致の改善を図り、より高精度で信頼性の高い国家標準を確立するための活動を行っている。具体的にはメートル条約の理事機関である国際度量衡委員会の放射線諮問委員会第三部会(中性子)が主催する国際相互比較に参加し、中性子放出率、熱中性子フルエンス率、速中性子フルエンスについて国際的な整合性を確保してきた。

ここではそうした活動のうち、2001年3月にドイツのPTBの標準場において行われた速中性子フルエンスの基幹相互比較についてまとめる²⁾。本国際比較には、AIST(日)、NIST(米)、PTB(独)、NPL(英国)、VNIIM(露)、CIAE(中)、IRMM(ベ)の7研究機関が参加した。各機関がそれぞれ独自の仲介検出器をPTBの速中性子フルエンス標準場に持ち込んで測定し、PTBの中性子モニターの感度を決定し、報告するというプロトコルにて実施された。

産総研が参加したエネルギー点は144KeV、5.0MeV、14.8 MeVの三点である。図5に産総研が本国際比較にて仲介検出器として使用したボナー球検出器を示す。ポリエチレンの球体(直径24.13cm、密度0.94g/cm³)の中心に³He比例計数管(SP90、英国 Centronic Ltd.製)を埋め込んだ構造であり、中性子をポリエチレンの球体で減速することで速中性子に対する高い検出感度を実現している。また衝撃に強く持ち運びやすいことも仲介検出器として採用する上で重要なファクターである。このボナー球検出器は産総研の速中性子フルエンスの一次標準である反跳陽子比例計数管(1.2MeV以下)、Thick Radiator 検出器(2.5MeV~5.0MeV)、随伴粒子計測装置(14.8MeV)を用いてエネルギー毎に絶対校正された。

本国際比較の結果として各機関が報告したPTBの中性子モニターの感度を図6に示す。各グラフの一番左側は産総研が

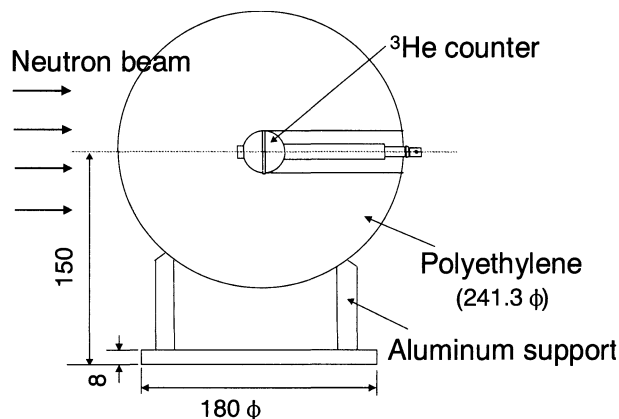


図5 ボナー球仲介検出器

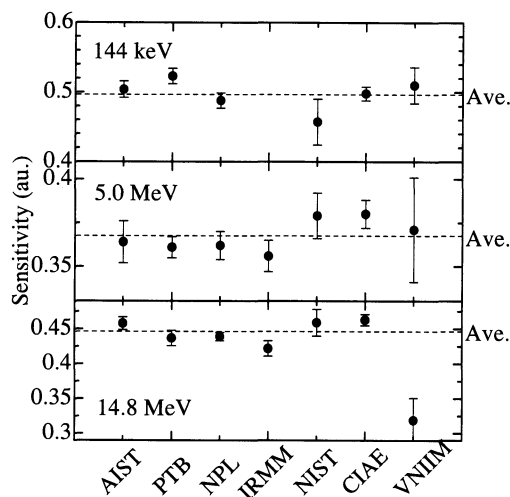


図6 各研究機関が報告したPTBの中性子モニターの感度の比較

報告した値で、各グラフ中に点線で示したのは各機関からの報告値の平均値である。なお14.8MeVについてはVNIIMを除いて平均値を求めた。産総研の値はいずれのエネルギーにおいても各機関からの報告値の平均値と不確かさの範囲内で一致することが確認できる。産総研の速中性子フルエンス標準が国際的に見ても大変信頼性の高い国家標準であることを示している。

なお次回の国際比較は2005年3月に熱中性子フルエンス率に関して実施される予定である。また具体的なプロトコルは未定であるが、その際、金箔の誘導放射能の絶対測定により熱中性子フルエンス率を行う予定であるので、金箔試料の準備、その放射能測定のための準備を進めている。

4. 今後の課題

中性子標準における今後の課題についてまとめる。

4.1 未整備エネルギー領域の速中性子フルエンス標準の確立

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

中性子から20MeVまでのエネルギー範囲における中性子フルエンス（率）の標準整備がほぼ完了したが、未整備エネルギー領域の中性子について発生技術及びその計測技術の確立に関する研究を実施し、標準整備計画に遅れることなくフルエンス標準確立を進める必要がある。

原子炉周辺環境の放射線防護上重要であり、特に整備が急がれる100KeV以下の中性子については、これまで複数の発生方式（加速器を用いた核反応、光中性子源、原子炉など）について検討を重ねてきたが、最終的にバンデグラフ加速器を用いた $^{45}\text{Sc}(p, n)$ 反応中性子源を採用した。本方式を用いる場合、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水素イオンのエネルギーを高安定化させることが要求される。バンデグラフ加速器に加速電圧に対するフィードバック装置を増設することで3 MeVに対して $\pm 0.5\text{KeV}$ 以下の安定度を達成した。平成15年度中の整備完了を目指している。

また核融合炉関連分野で重要な5-10MeV領域及び15-20 MeV領域については、それぞれ平成18年度、平成22年度までの整備完了を目指している。前者はバンデグラフ加速器を用いてベリリウムターゲットに α 粒子を加速して衝突させ、 (α, n) 核反応により中性子を発生する。但しベリリウムの (α, n) 核反応は二種類の単色エネルギーの中性子を同時放出するので、新たなフルエンス決定手法を開発する必要がある。後者はトリチウムターゲットをバンデグラフ加速器のビームラインに導入し、重水素ビームを照射し $\text{T}(d, n)^4\text{He}$ 核反応により中性子発生を行う。

さらに20MeV以上の領域は現時点では全く未整備である。しかし宇宙飛行士の大気圏上層部における中性子のエネルギー分布は最大で1 GeVに達し、航空機の搭乗員や宇宙飛行士の被ばく評価を行う上で今後ますます重要性が増していく領域であろう。これら超高エネルギーの中性子測定の標準化も今後取り組むべき課題であると思われるが、そのためには高エネルギー加速器研究機構、日本原子力研究所などの外部機関との協力が不可欠であろう。

4.2 中性子標準の高度化

4.2.1 中性子標準場の高精度化

中性子場には通常 γ 線が混在する。産総研の標準場にも最大エネルギー10MeVの γ 線が混在する。個人被ばく線量計、中性子サーベイメータなど、中性子と γ 線の両方に感度を持つ検出器の校正を行うには、 γ 線のエネルギー分布と実効線量当量の評価が必要である。これまで熱中性子場に混在する γ 線について評価した³⁾。図7にGRAVEL, MIEKEコード⁴⁾によるアンフォールディングにより求めた熱中性子場に混在する γ 線スペクトルを示す。速中性子場についても中性子のエネルギー毎に解析を進め、データを整備する必要がある⁵⁾。 γ 線の測定にはNE213液体シンチレーション検出器を使用する。検出器からのパルス波形が中性子と γ 線入射時で異なっていることを利用して、 γ 線の情報の抽出を行うが、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

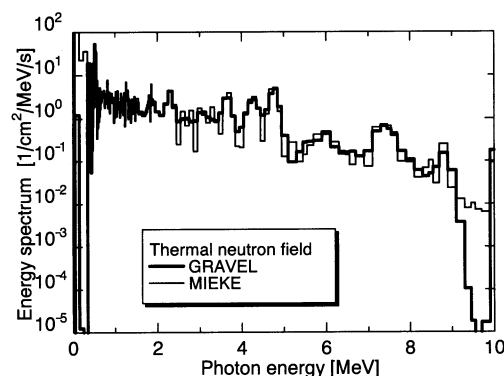


図7 熱中性子場に混在する γ 線スペクトル

定量化が必要である。現在、中性子を吸収するフィルターやモンテカルロ計算により検討を進めている。また電子蓄積リングTERASとレーザー光との相互作用（逆コンプトン散乱）により発生する高エネルギーフォトンを用いて、 γ 線レスポンス関数測定などの特性試験を進めている。

4.2.2 次世代中性子計測法の開発

中性子標準グループは中性子計測技術に関する最新技術を積極的に取り入れ、標準の高度化に繋がる中性子計測機器の開発に取り組んでいる。ここに例として現在開発中の高速中性子スペクトロメータ⁶⁾及び光ファイバーを用いた超小型中性子プローブ⁷⁾について紹介する。前者は三段の位置敏感型比例計数管とシリコン半導体検出器を組み合わせた複合型検出器である。中性子入射により一段目の比例計数管で発生した反跳陽子のエネルギーと反跳角を同時測定することで中性子エネルギー測定の高分解能化を目指したものである。後者は光ファイバの先端近傍にフッ化リチウムを蒸着した硫化亜鉛（銀）シンチレータを装着した構造であり、場に外乱を与えることなく熱中性子場の高精度モニタリングを目指したものである。微小領域における中性子線量を評価するためのプローブとして硼素中性子捕捉療法（BNCT）への応用も期待されている。

4.2.3 次世代中性子標準の開発

現在中性子源として用いられるのは、① ^{252}Cf などの自発核分裂中性子源、② $^{241}\text{Am-Be}$ など α 線放出核種と (α, n) 反応を起こす核種とを組み合わせた中性子源、③光中性子源、④加速器を用いた荷電粒子核反応や核破砕反応などによる中性子源、⑤原子炉、の主に5種類である。③の光中性子源とは γ 線放出核種とその γ 線を吸収し中性子を放出するターゲット核種を組み合わせたものであり、代表的なものとしては $^{124}\text{Sb-Be}$ などが挙げられる。

光中性子源の特徴としては、もし γ 線が単一エネルギーであれば、中性子もほぼ単色エネルギーとなることである。用いられる (γ, n) 反応は約2 MeVのQ値を持つ吸熱反応であることから、このQ値を超えるエネルギーの γ 線を放出

する核種と組み合わせて使用されるが、そのような γ 線放出核種は少なく、得られる中性子のエネルギー点数は限られている。また ^{88}Y ($T_{1/2}=107\text{d}$)、 ^{124}Sb ($T_{1/2}=60.2\text{d}$) を除けば、その半減期は数分から数日程度と大変短く、使用期間中原子炉にて再放射化することが必要であり、中性子標準としての利用には適さないように考えられてきた。

一方、近年のレーザーや加速器技術の発展により、レーザー逆コンプトン散乱を用いた新しい γ 線発生技術が登場し、脚光を浴びている。レーザー逆コンプトン散乱とは電子加速器で発生した電子ビームとレーザーとを衝突させることで γ 線に変換する現象のことである。非破壊検査等の工業応用や造影等の医療応用など様々な応用が期待される次世代光源である。レーザーの波長、電子のエネルギー、衝突角、発生角を調整することでエネルギーが可変であり、かつ単色性、指向性などに優れたパルス γ 線である。

このレーザー逆コンプトン散乱 γ 線と上述の (γ , n) 核種と組み合わせることで、従来の光中性子源の抱える半減期が短いという制約がなく、かつ、中性子のエネルギーを調整できる次世代光中性子源の実現が期待できる。

光中性子源で用いる (γ , n) 反応の断面積は小さく、通常の線源の場合、光子が中性子を放出する確率は $1/10^5$ - $1/10^6$ 程度である。従って光中性子源では、適当な強度の中性子発生率を実現するために大強度の γ 線源が使われており、その結果、中性子は非常に強い γ 線のバックグラウンドを伴う。これは中性子標準場として、出来るだけ γ 線レベルが低いことが要請されており、これが現在速中性子フルエンス標準場発生に光中性子源が採用されていない一因である。一方、レーザー逆コンプトン散乱 γ 線は非常に指向性に優れた光源であり、図 8 に示したように側方に放出される中性子を利用すれば、 γ 線の混入の少ない中性子場の生成が可能である。

また速中性子フルエンス標準では中性子エネルギーの単色性を保証することが大変重要であるが、レーザー逆コンプトン散乱を用いた光中性子源はパルス中性子源であることから、飛行時間測定を用いることで中性子の単色性を極めて高精度に決定することが可能である。

レーザー逆コンプトン散乱については1984年に電総研の蓄積リング TERAS において国内で初めての確認実験が行われ⁹⁾、

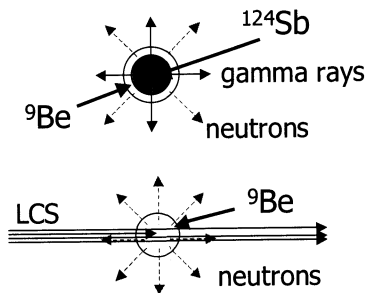


図 8 RI 光中性子源 (上) とレーザー逆コンプトン散乱 γ 線 (LCS) を用いた光中性子源 (下)

現在では 1-40MeV の単色 γ 線の発生が可能である。今後、レーザー逆コンプトン散乱を用いた光中性子源の実現性及び中性子標準場への適用性について検討してみたい。

なおレーザー逆コンプトン散乱には蓄積リングやライナックなどの電子加速器とレーザーを組み合わせた大掛かりな設備を必要とする。もっとコンパクトで手軽 (安価) にレーザー逆コンプトン散乱を実現するための試みが東京大学などで行われている。

ここではプラズマカソードを用いたレーザー逆コンプトン散乱 γ 線発生について紹介する。大強度超短パルスレーザー光をガス中に集光入射すると、ある条件下でレーザーパルスの後ろに航跡場と呼ばれる大振幅のプラズマ波を励起することが出来る。このプラズマ波の加速位相に別途電子加速器にて発生させた電子パルスを同期入射することで加速する方式をプラズマ航跡場加速と呼ぶ。東京大学ではテーブルトップテラワットレーザーと電子ライナックを組み合わせ、プラズマ航跡場加速により 300MeV に至る電子加速 (加速勾配は 15 GeV/m 程度) を実証した⁹⁾。現在航跡場への電子入射にプラズマ波破碎現象による自己入射を適用したプラズマカソード方式が提案されている¹⁰⁾。本方式により発生した電子ビームを用いることで、電子加速器を使用せず、レーザー台のみでレーザー逆コンプトン散乱 γ 線発生が行える可能性がある¹¹⁾。他にもレーザーのみで MeV オーダのイオン発生を可能とするレーザープラズマイオン源¹²⁾など様々な面白いアイデアが提案されている。中性子標準としての適用の観点からもこれからの展開が楽しみであり、今後の動向に着目したい。

5. ま と め

産総研の中性子国家標準について技術的観点から調査した。中性子標準の現状及び国際比較について紹介し、中性子フルエンス標準関連技術の現状とその技術的課題を明らかにした。さらにそれらを解決し打開することで次世代標準の候補となるポテンシャルを有する新技術についても議論した。本調査研究で得た知識を活かし中性子標準の発展のために取り組んでいきたい。

謝 辞

本調査研究を行うにあたりご指導、ご助言を頂きました量子放射科科長鈴木功博士、工藤勝久博士 (現能力開発部門)、放射能中性子研究室室長松野良穂博士、瓜谷章博士、及び、量子放射科の皆様へ感謝致します。

参 考 文 献

- 1) 道川太一, 電子技術総合研究所彙報 第47巻 第9, 10号 928-933(1983).
- 2) K. Kudo, A. Uritani, N. Takeda, AIST Bulletin of Metrology 2(1), 61-122 (2003).
- 3) K. Kudo, N. Takeda, S. Koshikawa, H. Toyokawa, H. Ohgaki, M. Matzke, Nucl. Instr. and Meth. A 476, 213

- 217 (2002).
- 4) M. Matzke, PTB Report PTB-N-19, Braunschweig (1994).
 - 5) H. Harano, T. Matsumoto, Y. Ito, A. Uritani, K. Kudo, submitted to Radiat. Prot. Dosim. (2003).
 - 6) T. Matsumoto, H. Harano, Y. Ito, A. Uritani, K. Emi, K. Kudo, submitted to Radiat. Prot. Dosim. (2003).
 - 7) Y. Ito, H. Harano, T. Matsumoto, A. Uritani, K. Kudo, K. Kobayashi, T. Yoshimoto, Y. Sakurai, T. Kobayashi, C. Mori, submitted to Radiat. Prot. Dosim. (2003).
 - 8) H. Ohgaki, H. Toyokawa, K. Kudo, N. Takeda, T. Yamazaki, Nucl. Instr. and Meth., A455, 54-59 (2000).
 - 9) H. Dewa, H. Ann, H. Harano, M. Kando, K. Kinoshita, S. Kondoh, H. Kotaki, K. Nakajima, H. Nakanishi, A. Ogata, H. Sakai, M. Uesaka, T. Ueda, T. Watanabe, Y. Koji, Nucl. Instr. and Meth., A410, 357-363 (1998).
 - 10) T. Hosokai, K. Kinoshita, A. Zhidkov, K. Nakamura, T. Watanabe, T. Ueda, H. Kotaki, M. Kando, K. Nakajima, M. Uesaka, Phys. Rev. E 67, 036407 (2003).
 - 11) Private Communication with Dr. M. Uesaka (See <http://www.utnl.jp/~kiki>).
 - 12) K. Kinoshita, T. Ohkubo, H. Okuda, T. Kobayashi, K. Yoshii, T. Watanabe, T. Ueda, M. Uesaka, Proceedings of the 2001 Particle Accelerator Conference, Illinois, USA, 2138-2140 (2001).