

超高感度中性子モニターの開発と環境線量測定

海老沢徹・小林圭二・今中哲二・小出裕章・瀬尾 健・
川野真治（京大炉）、荻野晃也・河野益近（京大工）
小村浩夫（静岡大工）

京都大学原子炉実験所

第22回学術講演会

講演要旨集 別刷

1988年 3 月16日

(16) 超高感度中性子モニターの開発と環境線量測定

海老沢徹・小林圭二・今中哲二・小出裕章・瀬尾 健・
川野真治 (京大炉)、荻野晃也・河野益近 (京大工)
小村浩夫 (静岡大工)

ULTRA-HIGH SENSITIVE NEUTRON MONITOR AND MEASUREMENTS OF NEUTRON DOSE IN THE ENVIRONMENT

Tohru Ebisawa, Keiji Kobayashi, Tetsuji Imanaka, Hiroaki Koide, Takeshi Seo,
Shinji Kawano.

(Research Reactor Institute, Kyoto University, Osaka)

Koya Ogino, Masuchika Kohno

(Department of Engineering, Kyoto University, Kyoto)

Hiroo Komura

(Department of Engineering, Shizuoka University, Hamamatsu)

In order to detect very low neutron dose in the environment, ultra-high sensitive neutron counting system (HISENS) has been developed. Its sensitivity is about 2000 times as high as a typical commercial neutron rem-counter. Leakage neutrons in the environment from a transporting cask of spent fuels and also from nuclear facilities were clearly measured, using this HISENS. The response functions of HISENS were experimentally estimated with ^{252}Cf and $^{241}\text{Am-Be}$ neutron sources, and mono-energetic neutrons from a Van de Graaff accelerator. The results nearly agree with those of Monte Carlo calculations within statistical errors. Some improvements of the present HISENS are proposed on the basis of Monte Carlo simulations.

1. はじめに

原子力施設などから環境中に漏洩する中性子線については、ガンマ線測定に較べ関心の度合が低く、データも殆ど報告されていない。その主要な理由の1つに、通常用いられる中性子レムカウンターの感度が、環境中に漏洩する低線量中性子線の測定に全く適していないことがあげられる。

市販されている中性子レムカウンターは、施設内などの高線量域での使用に合わせて設計されており、1 mrem/h当りの計数はせいぜい3cps程度である。その検出限度は0.1 mrem/hと、かなり大きな値になっており、宇宙線バックグラウンドや漏洩中性子など環境中の

定では、バックグラウンド [カウント/0.5秒]

ドにかくれてはつきりわからないだろうと予想された。しかし実際に測定された計数は、最高で毎秒約2700と宇宙線のバックグラウンドの約1600倍に達し、私たちの予測をはるかに越えるものであった。HISENSは、道路横の高さ約2mの擁壁の上、キャスク表面から約8mのところにおかれており、この測定結果から評価される中性子線量は、後述べるように、HISENSのおかれていた所で最高約0.4 mrem/hとなる。また、キャスク表面および1mの所での中性子線量を推

定すると、約15 mrem/h、6.8 mrem/hに各々達する。これらの線量は、中部電力の発表値（キャスク表面で0.1 mrem/h以下から最高2.4 mrem/h）に比べ大きな値になっている。低線量の場合、一般に、発生源に近く時間的制約を受けない測定の方が信頼できる。しかし、原子力の分野では、多くの場合第三者によるチェックができないという特殊事情があり、今回の場合も、中部電力の発表値とのこの大きな差は、後に述べるように私達の線量評価における不確定さだけでは説明できないと、私達は考えている。

3. 研究用原子炉関連施設から

漏洩する低線量中性子の測定

次に、京大原子炉実験所敷地内における2つの低線量漏洩中性子の測定について述べる。

1つは、京大研究用原子炉の使用済み核燃料キャスクから漏洩する中性子線の測定である。研究用原子炉の使用済み核燃料については、その濃縮度、燃焼度、収納される燃料の量などの観点から、もともと発生する中性子数がけた違いに少ないため、キャスク表面から漏洩する数は、発電用原子炉の場合に比べてかなり少ないことが予想される。事実、図3に示すように、キャスクとの距離が接近したとき、中性子数の増加が観測されるが、その増加量は、キャスク表面から3mにおいて毎秒1.4個であり、バックグラウンド中性子の2倍程度である。この測定結果を前の結果と比較すると、キャスクから漏洩する中性子の総量は、京大原子炉用の核燃料では、発電用原子炉の場合のおよそ数千分の1と推定される。

もう一つは、研究用原子炉（熱出力：5 MW）とコッククロフト加速器建屋から野外へ

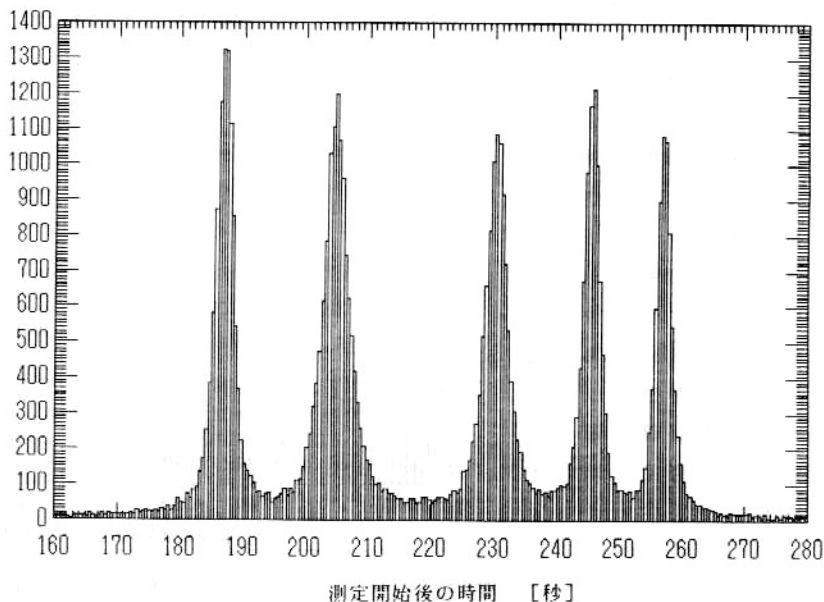


図2 浜岡における使用済み燃料キャスクからの漏洩中性子の計数値の推移
(キャスク通過前後2分間)

の漏洩中性子線の測定である。HISENSは、

原子炉格納容器から約50 m、加速器の建屋から約100 mのところに置かれた。図4に示すように、中性子計数の増加は、原子炉と加速器の運転に対応して、バックグラウンドの各々約2倍であった。

バックグラウンドレベルの低線量の漏洩中性子が、極く短時間で容易に測定されたことは、HISENSの超高感度の威力を如実に示すものである。

[カウント/10秒]

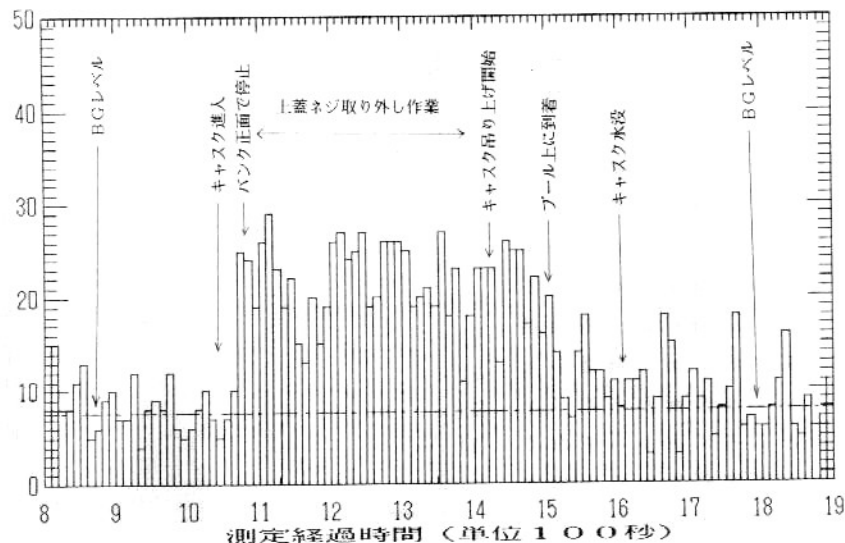


図3 KUR使用済み燃料輸送時における計数値の推移

4. 中性子モニターの計数と線量当量の関係

中性子モニターの計数から線量当量を推定するためには、モニターのエネルギー特性を良く調べておくことが必要である。

5-4節の図9-1の中性子束-レム換算曲線に示すように、中性子束から線量当量への換算は、エネルギーに強く依存し、高エネルギー中性子の寄与が支配的になる。中性子モニターの検出感度特性曲線が、レム換算曲線の形と一致していれば計数から線量を評価することは容易である。しかし、この条件を満たすことは

[CPS]

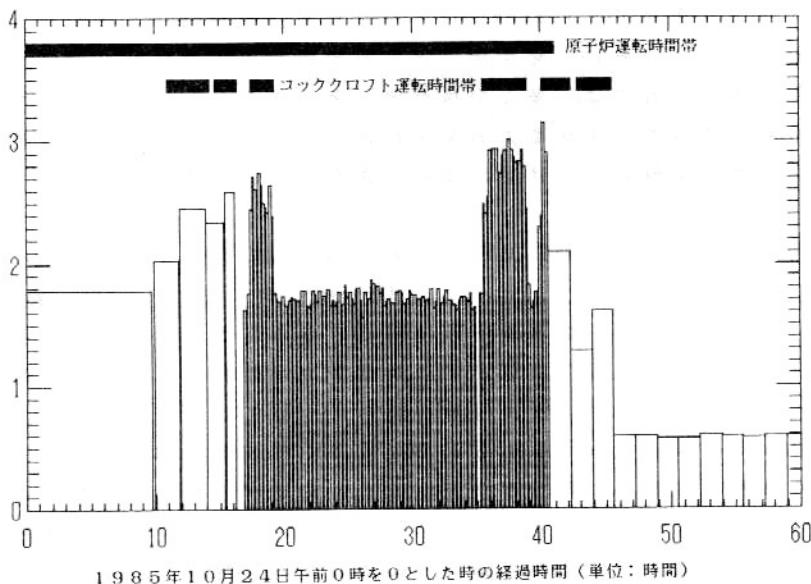


図4 原子炉および加速器の運転から生じる漏洩中性子の検出例

簡単ではなく、特別な工夫がいる。その理由は、検出器の中性子反応のエネルギー特性が、

一般的にレム換算曲線と全く逆の傾向を示すからである。

このような相反する傾向を相殺するためにとられる手段は、検出器のまわりをポリエチレンやパラフィンなどの中性子減速材で囲むことである。すると、(1) 高速中性子は減速され、検出されやすくなり、(2) もとから低速のものは、減速材による吸収のため検出されにくくなる。

減速材の厚さを増やしていくとき、感度のエネルギー特性がどのように変わるかについては板状あるいは球形の減速材に対して種々調べられている^{7,8,9,10)}。また、減速材中にボロンなどの吸収膜を適当な位置に配置することにより必要な減速材の厚さを減らすことができる^{1,11)}。市販されている中性子レムカウンターはこのタイプのものである。

5. H I S E N S の 構 造 と 特 性

HISENSの特性は実験的方法および数値計算により調べた。

5 - 1 H I S E N S の 構 造 の 概 要

HISENSの構造を図5に示す。高さ56cm、横幅66cm、厚さ10cmの厚板状のパラフィン減速材の中に、直径1インチ、有感部の長さ50cm、10気圧の³He検出器を6cm間隔で10本たてに埋めた。これを1バンクとして2バンク製作した。この構造は、線量測定における見落としを無くするために感度をできるだけ大きくするという観点から選択された。回路的には検出器を5本づつひとまとめにして前置増幅器に入力し、それらをサムアンプを経由して1台のリニアアンプにまとめている。アンプ出力はADCに入力しパソコンによりオンラインでデータ解析ができるようになっている。

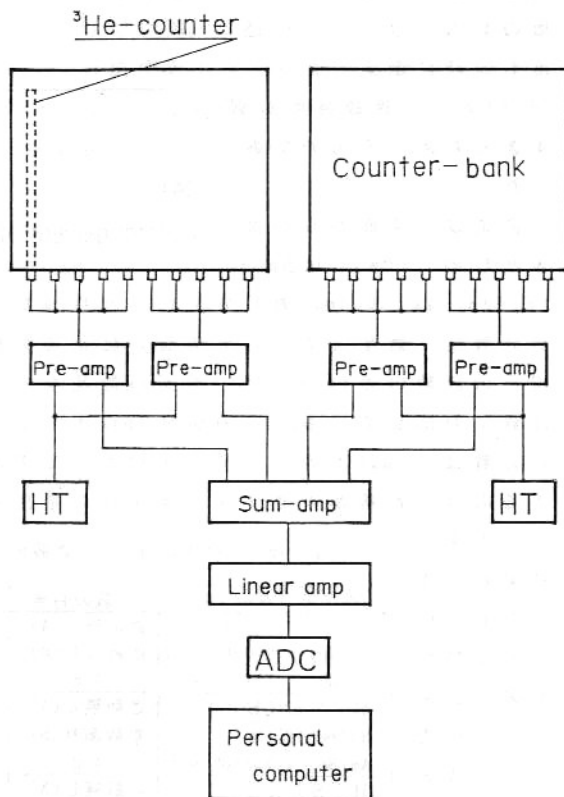


図5 H I S E N S の 構 造 と 構 成

5 - 2 放 射 性 同 位 元 素 中 性 子 源 に よ る H I S E N S の 感 度 特 性

中性子モニターの感度を実験的に調べるために最も簡便な方法は、エネルギーと強度のわかった中性子源を用いて、それからある距離におかれたモニターで中性子を計測し、その数を調べることである。しかし、中性子の場合、周囲の物体による散乱の影響を強く受けるので、それをきちんと評価できる適切な実験条件を選択することが重要である。

実験配置を図6に示す。床面以外からの散乱中性子の影響を少なくするため、測定の間

として原子炉格納容器内の広い空間（直径約29m、高さ約30m）を利用した。また、散乱中性子の影響を評価するため次の2種類の測定を行った。

(1) 実験体系全体を床面からいろいろな高さに設定し、高さによる散乱中性子の影響を調べる。

(2) HISENSにたいして中性子源を遮蔽し、散乱中性子のみを測ることにより、計数を散乱中性子による成分と線源から直接入射する中性子による成分とに分離する。

中性子源としては、

Am-Be(約2Ci, エネルギー代表値約5MeV)と ^{252}Cf (約4 μCi , エネルギー代表値約2MeV)を用い、HISENSと線源の間の距離は206cmに設定した。Am-Beの線源に対しては、比較のため市販のレムカウンターの感度も同時に測定したが、 ^{252}Cf では、線源強度が弱すぎるため、不可能であった。

Neutron source Neutron shielding

Neutron monitor

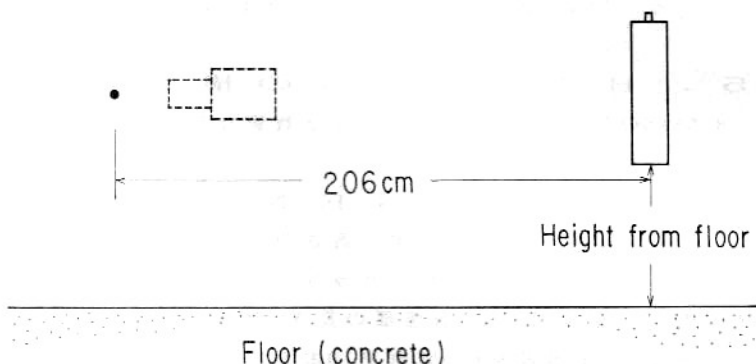


図6

測定は、床面からの高さとして、0m, 0.5m,

A arrangement of a monitor efficiency measurement by isotope

1m, 2m, 4m, 6.4mに対してそれぞれ行った。それらの結果を表1に示す。遮蔽有りの場合の計数は、散乱（主として床面）による中性子の計数に対応し、また、遮蔽無しと有りの場合の計数の差(A-B)は、周囲の散乱を受けずに線源から直接HISENSに入射した中性子の計数に対応している。この値は2m以上でデータがよく一致しているので、直接入射中性子の計数は、2m以上のデータの平均として求めた。床上のデータで、散乱の寄与が小さく見えるのは、遮蔽が大きすぎて床からの散乱も1部遮蔽したためである。

この測定結果から求めたHISENSの感度特性を表2に示す。この表では、代表的なものとして、高さ2mの場合の

表1 種々の高さに対して、遮蔽体有り無しの場合に測定された中性子計数率 (counts/sec)

中性子モニター・線源	遮蔽の有無	0.0m	0.5m	1.0m	2.0m	4.0m	6.4m	平均*
レムカウンター Studsvik-2202D Am-Be, $4.75 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$	遮蔽無し(A)	2.51		2.36	2.27	2.15	1.95	—
	遮蔽有り(B)	0.48	0.86	0.75	0.54	0.28	0.24	—
	A-B	2.03		1.61	1.73	1.87	1.71	1.77
HISENS No4検出器1本 Am-Be, $4.75 \times 10^6 \text{ s}^{-1}$	遮蔽無し(A)	605.3		526.4	464.3	424.6	411.9	—
	遮蔽有り(B)	165.0	220.1	166.9	108.5	70.2	53.5	—
	A-B	440.3		359.5	355.9	354.3	358.4	356.2
HISENS 検出器10本 ^{252}Cf , $1.71 \times 10^4 \text{ s}^{-1}$	遮蔽無し(A)	30.6		25.5	23.5	21.8	20.8	—
	遮蔽有り(B)	12.0	14.1	10.0	7.2	5.0	4.5	—
	A-B	18.6		15.5	16.3	16.8	16.3	16.5

* 直接入射中性子についての平均値であり、2m以上のデータの平均として求めた。

結果を示しているが、他の場合の結果も同様に求められる。

右端の3列に感度を示す。8列目は、直接入射中性子の単位中性子束当りの計数で、遮

表2 同位元素中性子源によるH I S E N Sの感度特性

中性子モニター	中性子源 s^{-1}	a) 中性子束 $s^{-1}cm^{-2}$ A	中性子計数率(s^{-1}) (検出器10本分)			比 E B/D	規格化中性子束率		
			遮蔽無し B	遮蔽有り C	直接入射分 D (B+C)		単位中性子束当り (cps/(n/s.cm ²))		単位線量率当り (cps/(mrem/h)) b) R*B/A/1.24 R*D/A
							測定値 B/A D/A	計算値	
レムカウンター Studs vik-22020	Am-Be 4.75X10 ⁵	8.91	2.2	0.54	1.77	1.24	0.25 0.20		1.35 1.35
H I S E N S	Am-Be 4.75X10 ⁵	8.91	4640	1085	3560	1.30	520 400	500 320	2860 2720
H I S E N S	²⁵² Cf 1.71X10 ⁴	0.0321	23.5	7.2	16.5	1.42	740 520	710 570	4130 3600

中性子源とモニター間の距離：2.06m, 床面からの高さ：2m。但し、直接入射分(D)の値は2m以上のデータの平均値を示した。

a) モニター位置での直接入射中性子束

b) 1mrem/hに対応する中性子束をRとする。Am-BeではR=6.8, ²⁵²CfではR=7.0。1.24という値はレムカウンターのE値の値。

遮蔽無しの場合と直接入射分とを上下2段で示してある。9列目にモンテカルロ計算で求めたHISENSの感度を示すが、測定結果と良い一致を示している。右端列はmrem/h当りのcpsで表したモニターの感度である。ただし、散乱中性子による線量への寄与は、レムカウンターの測定結果に基づいて、直接入射分の24%と規格化している。

この右端列の数値に示されるように、1バンク当りの感度として、圧倒的高感度が達成されているのが、HISENSの第一の特徴である。その値は、Am-Be中性子源に対して市販のレムカウンターに較べて約2000倍である。ただし、線量評価には、この表からもわかるように、エネルギー特性に関する注意が必要である。

5-3 バンデグラフ加速器による2MeV中性子の検出効率における実験と計算との比較

バンデグラフ加速器を用いて2MeV中性子に対するHISENSの検出効率を測定し、その結果をモンテカルロ計算の結果と比較した。

D(d,n)³He反応において、入射する重水素のエネルギーが2ないし3MeVのとき、実験室系で135度方向に放出される中性子は、かなり広い範囲(Dの入射エネルギー、放出される中性子の角度)において、約2MeVのエネルギーをもっている。そのとき、³Heは約18度方向に放出される。そこで、図7に示されるように、表面障壁型半導体検出器(SSD)により³He粒子をコリメートして計数し、それに対応してビーム状に放出される中性子を、SSD信号と時間相関を取りながら、HISENSで同時計測した。SSDによる³Heの検出

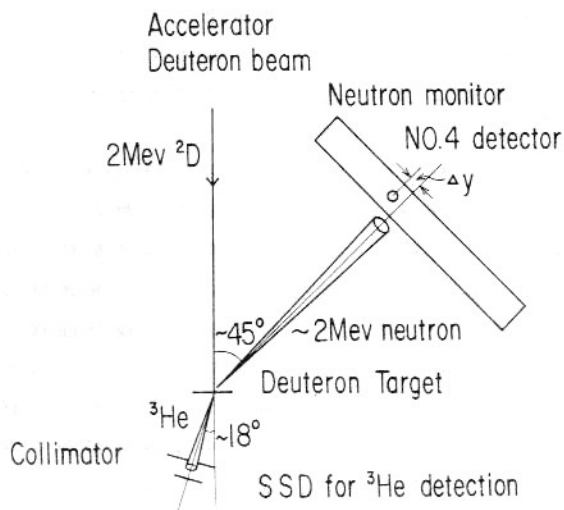


図7

A arrangement of a monitor efficiency measurement by accelerator

効率は 100% と考えることができるので、2MeV のエネルギーに対する HISENS の検出感度を両者の計数の比から求めることができる。

バンデグラフ加速器を用い、このようにして測定された 2MeV 中性子に対する HISENS の測定結果と、モンテカルロ計算によるシミュレーション結果を比較した。図 8 に検出効率の比較を示す。測定値はターゲットチェンバーのノズルでの散乱による減衰を補正してある。ビームの拡がりが大きく、期待したほど精度のよい比較とはならなかったが、両者の一致はよいと言える。

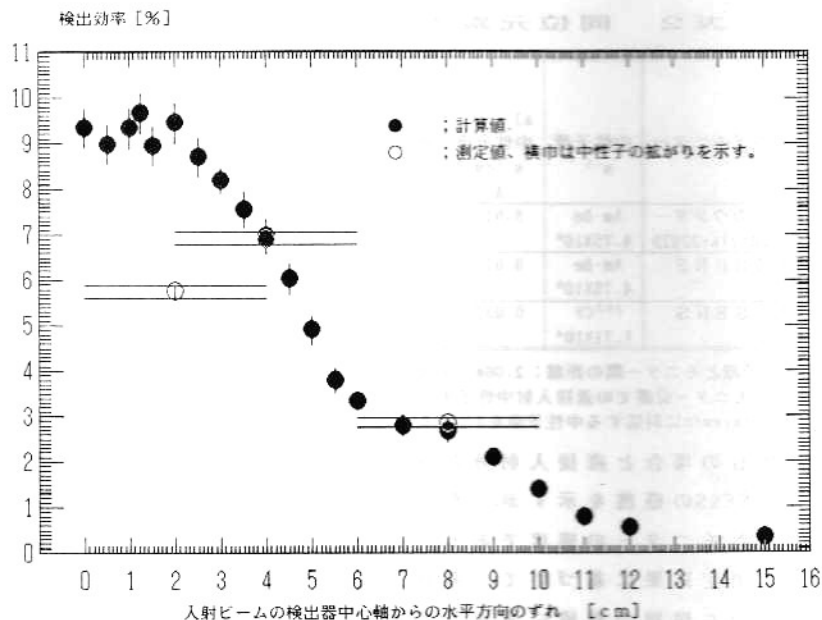


図 8 バンデ実験と計算による 2MeV 中性子に対する検出効率 (1 本分) の比較

5-4 モンテカルロ計算による感度特性

同位元素中性子源を用いた実験およびバンデグラフ実験のいずれについても、モンテカルロを用いた計算は、測定結果とよい一致を示している。従って、私たちの計算手続きは、HISENS のシミュレーションとして十分有効なものと考えられる。そこで、HISENS の特性に関するより詳細な計算を行い、板状の減速材の厚さを変えたときこの種のモニターの感度特性がどのようになるか調べた。

計算コードには MORSE-MT を用い¹²⁾、核断面積データは ENDF/B-4 から作成した¹³⁾。計算にさいし、Am-Be および ^{252}Cf 中性子源のスペクトルとしては、文献¹⁴⁾のデータを用いた。

図 9-1、図 9-2 に減速材の厚さを種々変えたときの感度のエネルギー特性を示す。この図から明らかなように、HISENS の減速材の厚さは、大きな感度を得るためにはほぼ最適であるが、エネルギー特性をレム換算曲線に近づけるためには、減速材の厚さを増やしたり、減速材中にボロン膜を挿入することなどの改良が必要である。また、図 9-1 の板状減速材に関する結果を同じ厚さの球形減速材の場合の感度¹⁸⁾と比較すると、板状減速材では高エネルギー中性子に対する感度がかなり高くなっている。したがって、超高感度中性子モニターとしては、球形より板状の方が適している。

6. 浜岡における使用済み核燃料輸送時

における漏洩中性子線量評価

前述のように、HISENS の感度は、そのエネルギー特性がレム等価曲線からずれているた

め、その計数から線量を評価するとき、中性子スペクトルに関する情報が必要である。

一般的に、使用済み核燃料から発生する中性子は、自発核分裂が主であり、それに (α, n) 反応によって発生する中性子が混入していると考えられる。この漏洩中性子のスペクトルの評価には、使用済み核燃料に関して、その組成、燃焼度、冷却期間あるいはキャスクの遮蔽性能などに関する情報が必要であるが、個々の場合に対してこれらのデータは発表されていない。

そこで、キャスク漏洩中性子スペクトルとして、とりあえず、 ^{252}Cf の自発核分裂中性子スペクトルを仮定し、私たちが浜岡で測定した中性子の線量当量を評価してみる。

HISENSの感度は、表2より1 mrem/h当りおよそ4000cpsである。実際の計数は、2バンク17本の検出器で2700cpsであったので、1バンク(検出器10本)当りにすると1590cpsになり、測定場所(キャスク表面から約8 m)

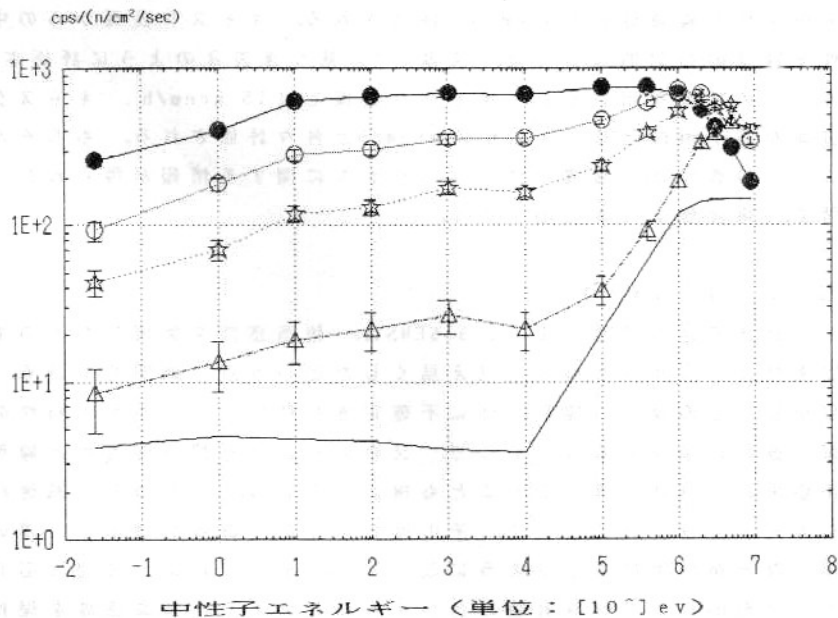


図9-1 感度の減速材厚さ依存性とICRPのレム換算曲線

—●— ; 10cm ---○--- ; 15cm
---☆--- ; 20cm ---△--- ; 30cm — ; ICRPレム換算曲線
ICRPレム換算曲線についての縦軸の単位は任意単位である。

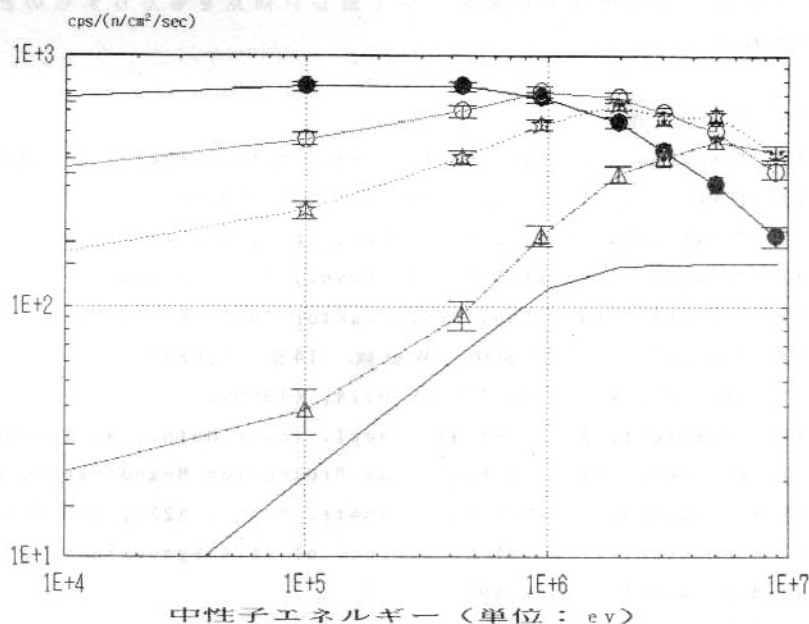


図9-2 感度の減速材厚さ依存性とICRPのレム換算曲線(拡大図)

での中性子線量は0.4 mrem/hと評価される。キャスク表面からの中性子線量の相対的な分布は、文献¹⁵⁾に基づき表3のように評価される。この結果を用いると、キャスク表面では15 mrem/h、キャスク表面から1 mのところでは6.8 mrem/hと各々評価される。もちろん、これらの数値は、漏洩中性子スペクトルに関する情報が得られた段階で、再評価すべきものである。

表3 キャスク表面からの距離と減衰割合

表面からの距離 [m]	減衰割合
0	1.0
1	0.435
2	0.231
3	0.130
4	0.0833
5	0.0578
6	0.0425
7	0.0325
8	0.0257
9	0.0208
10	0.0172
14	0.00925
19	0.00520
24	0.00333
29	0.00231
34	0.00170
39	0.00130
44	0.00103
49	0.000833

7. おわりに

これまで述べてきたようにHISENSは、超高感度を実現したもので、従来見えにくかったものを見え易くしたという点で画期的である。しかし、その反面、線量評価に不確定さを伴い、エネルギー特性の面で改善の余地がある。そこで、2台のバンクを超高感度用と線量評価用とに分けて併用することも検討している。すなわち、減速材をカートリッジ方式にして、その厚さの変更、あるいはボロン膜の挿入などが自由にできるように改良する。そうすれば、必要に応じて、2台のバンクを適宜組み合わせることにより、超高感度を保持しながら線量評価の容易な測定システムの開発が可能となる。

また、今後の環境中の線量測定として、運転中の原子力発電所などからの中性子スカイシャインの測定、あるいは天然中性子の線量に関するデータの蓄積を考えている。超高感度中性子モニターによる測定は、環境中性子線量について新しい知見をもたらすものと期待される。

参考文献

- 1) T.Nakamura et al.: Nucl. Instr. Meth., A241, 561(1985).
- 2) I.Urabe: Nucl. Instr. Meth., 236, 390(1985)
- 3) T.Nakamura et al.: Nucl. Sci. Eng., 90, 281(1985).
- 4) T.Nakamura et al.: Health Phys., 53, 509(1987).
- 5) I.Urabe: Ann. Rep. Res. Reactor Inst. Kyoto Univ., 20, 166(1987)
- 6) 小林圭二 他: 印刷中、放射線、14巻、(1988)
- 7) Wallace, R. et al.: UCRL-9214, (1960).
- 8) Bramblett, R. L. et al.: Nucl. Instr. Meth., 9, 1(1960).
- 9) H. Kiefer et al.: Radiation Protection Measurement, Pergamon Press, (1970)
- 10) Y. Uwamino, et al.: Nucl. Instr. Meth., A239, 299(1985).
- 11) Andersson, I. O. et al.: Proc. of IAEA Symposium, Harwell(1962).
- 12) M.B.Emmett: ORNL-4972(1975)
- 13) K.Koyama, et al.: JAERI-M 7155(1977)
- 14) J.A.B.Gibson et al.: IAEA Technical Reports Series No.252(1985)
- 15) 山越寿夫 他: 船舶技術研究所報告、第20巻、431(1983)