

環境中性子の IN-SITU 測定

遠藤 暁*

広島大学原爆放射線医科学研究所・国際放射線情報センター

はじめに

環境中の中性子は、主に宇宙線によって生成されるため、環境中性子束の評価は、宇宙線研究において行われてきた。中性子線束は太陽の生成する磁場に関連づけられる、そのため線束測定は太陽の活動の良いモニターとなっている。したがって、環境中性子束は参考文献^{1,2,3)}で論じられているように、周期的に変動し、問題とする地点の緯度にも依存している。

他方、JCO 臨界事故^{4,5)}及び広島・長崎原爆の中性子線量推定^{6,7,8)}において、放出された中性子線束を評価するために中性子による誘導核種の低放射能測定が利用されている。このような研究においては、極低レベルの誘導放射能を評価しなければならないため、誘導放射能を決定するには上述のような環境中性子線束の効果を正確に知っておく必要がある。国際連合科学放射線委員会(UNSCEAR)の報告書では、環境の中性子線束は $0.008n/cm^2s$ ⁹⁾と報告されている。¹⁹⁷Au の放射化の例をとって、¹⁹⁸Au 飽和放射能を前述の線束で見積もると、およそ $2mBq/g$ である。この放射能値は、広島大学工学研究科の低バックグラウンド Ge 検出器¹⁰⁾や金沢大学低放射能実験施設尾小屋実験室の Ge 検出器において測定可能である。これは環境中性子が広島大学や金沢大学の低放射能測定においてバックグラウンド線となる可能性を示している。

大学院工学研究科と広島大学原医研には原爆被爆試料保管室があるため、この部屋での環境中性子線束を評価することは、原爆中性子の線量評価において重要である。

本報告では、環境中性子線束を測定し、環境中性子が被爆試料中の誘導放射能を決定する際にどの程度の寄与をするかについて報告する。

材料と方法

³He ガス比例計数管の校正

4 気圧の ³He ガスを封入した比例計数管 (ロイターズトク、モデル P4-810-204) を測定に用いた。Fig.1 に示すように、比例計数管を減速材ナイロンブロック(50mm 厚)で囲み ²⁵²Cf 核分裂中性子源 (~120kBq) からの中性子を 1 週間照射した。熱中性子束の評価にはカドミウムカットを用いるため、比例計数管表面に 20 μm の金箔を裸で 3 枚また、カドミウム (0.5mm 厚) でカバーした 3 枚の計 6 枚を貼り付けてある。金原子核は ¹⁹⁷Au(n,)¹⁹⁸Au

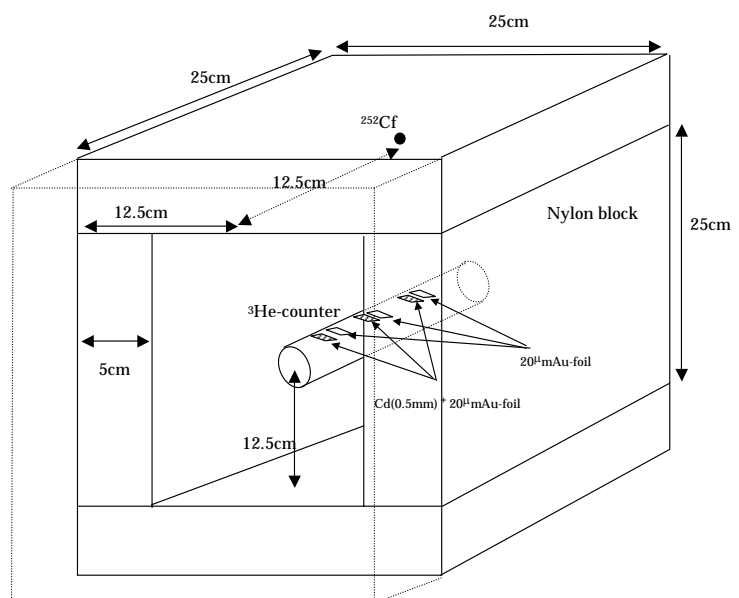


Fig. 1. ガス比例計数管測定効率校正の実験配置図。モデレータとしてナイロン板 (厚さ 5cm、 $25 \times 25cm^2$) を使用した。

* ENDO Satoru, Hiroshima University; endos@hiroshima-u.ac.jp

反応で放射化され、不安定な ^{198}Au 原子核が誘導される。この ^{198}Au は 411.8keV の線を放出するため、低バックグラウンド Ge 検出器を用いて測定し、中性子線束を求め比例計数管を校正する。

熱中性子束 (ϕ_{th}) は、次式で決定できる。

$$\phi_{th} = \frac{\varepsilon A_{th}}{N_{Au} \sigma} \quad (1)$$

ここで、 N_{Au} は金原子核の数、 σ は $^{197}\text{Au}(n, \gamma)^{198}\text{Au}$ 反応の熱中性子に対する断面積、また ε は用いた $20\mu\text{m}$ 厚の金箔に対する自己遮蔽因子である。熱中性子のみによって誘導された放射能 A_{th} は、裸の金箔の放射能 (A) とカドミウムカバーした金箔放射能 (A_{Cd}) を用いて、次式で決定できる。

$$A_{th} = A - F_{Cd} A_{Cd} \quad (2)$$

ここで、 F_{Cd} はカドミウムカバーによる吸収因子である。及び F_{Cd} は次節で示すように、モンテカルロ計算で見積り使用する。

^3He カウンターの生スペクトルを Fig.2 に示す。実線及び破線は、それぞれ、 ^{252}Cf のあるなしでのスペクトルに対応する。764keV 付近のピーク構造が熱中性子を示している。線源からの熱中性子ピーク計数率は、線源無しの計数率を補正すると $147.9 \pm 0.5\text{cps}$ であった。

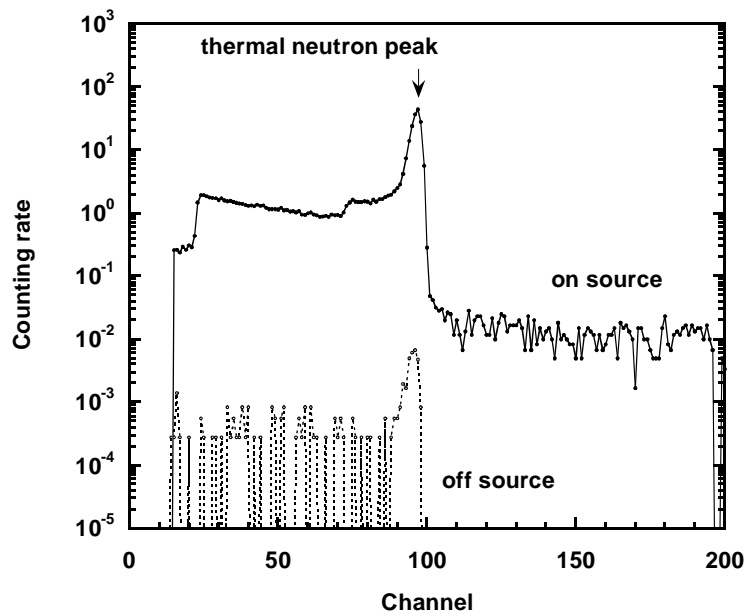


Fig. 2. ^3He ガス比例計数管生スペクトル。実線と破線はそれぞれ ^{252}Cf 線源あるなしに対応する。

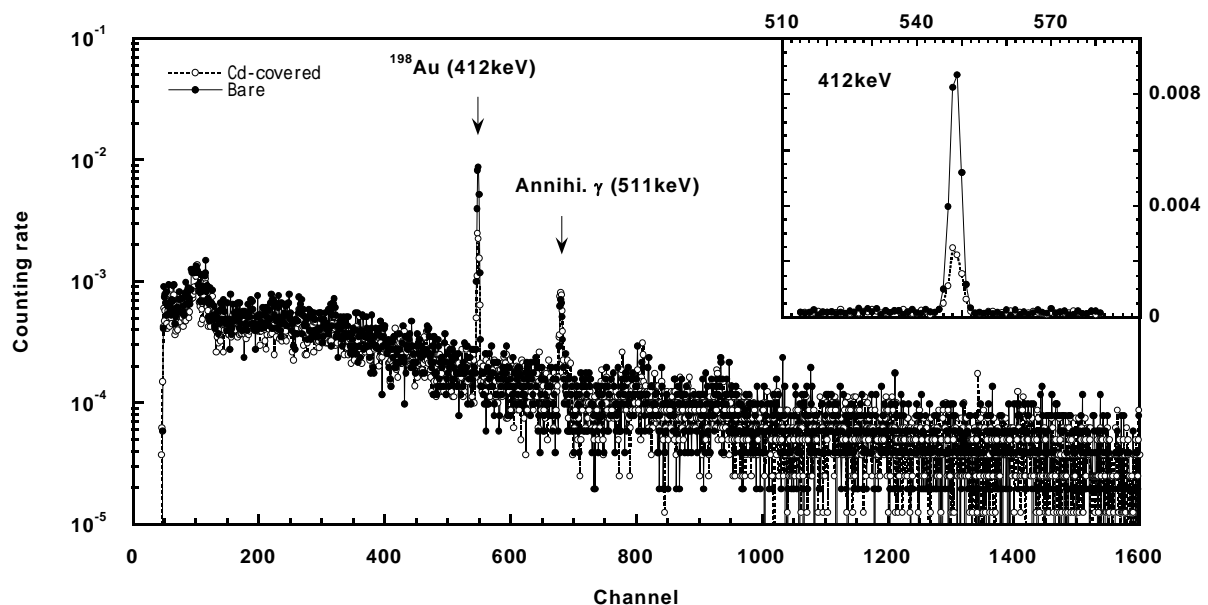


Fig. 3. 比例計数管表面に貼りつけた金箔中に 2 週間照射で誘導された ^{198}Au 放射能からの 412 keV 線がはっきりと見える。実線は裸の金箔、破線はカドミウムカバーの金箔を示す。

カウンター表面上貼り付けた金箔は相対的効率 23%の Ge 検出器 (EG & G ORTEC 社、GWL-120230S) を用いて測定した。測定した線スペクトルを Fig.3 に示す。中性子によって誘導された ^{198}Au からの 411.8keV 線が測定できていることがわかる。が裸の金箔、がカドミカバールした金箔である。それぞれの誘導放射能は 0.153Bq ($\pm 3\%$) 及び 0.051Bq ($\pm 6\%$) であった。

補正因子の計算

自己遮蔽因子およびカドミカバール因子は A General N-Particle Monte Carlo Code 4C (MCNP4C)¹¹⁾を用いた中性子輸送計算で見積もった。計算効率を上げるため、2つのステップで計算

を行った。まず、Fig.1 に示した幾何形状を考慮し、マクスウェル分布($N(E) \propto \sqrt{E} \exp(-E/1.42)$)

を仮定した ^{252}Cf からの核分裂中性子を輸送計算し、カウンター表面におけるエネルギースペクトルを求めた。次に、カウンター表面のエネルギー

スペクトルを仮想球(半径 10cm)の表面から発生し、中心部においた厚さ 20 μm の裸

の金箔中中性子束: ϕ_{Au}^b 、及び 0.5mm のカ

ドミウムカバーした金箔中の中性子束: $\phi_{\text{Au}}^{\text{Cd}}$

を求めた。カドミウムカバーの補正因子は以下の式で計算した。

$$F_{\text{Cd}} = \frac{\int_{E_c}^{\infty} \phi_{\text{Au}}^b \sigma dE}{\int_{E_c}^{\infty} \phi_{\text{Au}}^{\text{Cd}} \sigma dE} \quad (3)$$

ここで、 E_c はカットオフエネルギーとして

0.5mm のカドミウムの値 0.55eV を用いた。

自己遮蔽因子 も同様に空気中での中性子

束: $\phi_{\text{Au}}^{\text{air}}$ 及び金箔中での中性子束: ϕ_{Au}^b を

用いて

$$\varepsilon = \frac{\int_{E_c}^{\infty} \phi_{\text{Au}}^{\text{air}} \sigma dE}{\int_0^{\infty} \phi_{\text{Au}}^b \sigma dE} \quad (4)$$

として求めた。

計算で得られた 20 μm 金箔中のスペクトル

を Fig.4 に示す。同様の計算を 0、1、10、

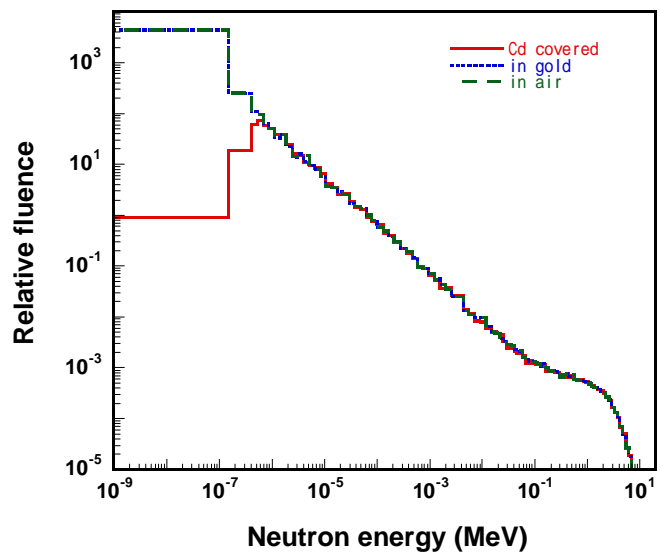


Fig. 4. 20 μm 金箔中の中性子線束のモンテカルロ計算結果。実線: カドミウムカバー金箔、点線: 裸の金箔、破線: 空気中の中性子エネルギー分布を示す。

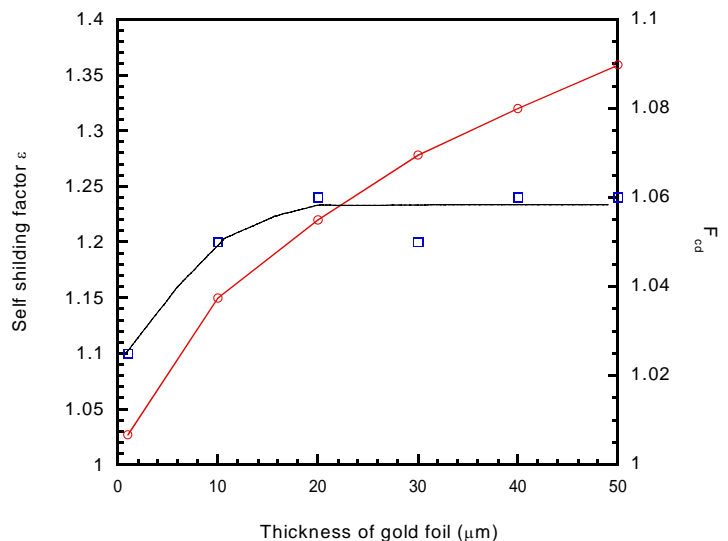


Fig. 5. MCNP4C 計算で求めた自己遮蔽因子(), カドミウムカバー補正因子()。

20、30、40 及び 50 μm で行い、得られた自己遮蔽因子、カドミウム補正因子 F_{Cd} を Fig.5 に示す。20 μm 金箔に対する自己遮蔽因子及びカドミウム補正因子は、それぞれ 1.22 及び 1.06 が得られた。

環境の中性子測定

我々は被爆試料保管室のある、海拔およそ 250m の広島大学大学院工学研究科 A3 棟の 10 地点において環境中性子測定を行った。測定は棟中心の地階から屋上までの 8 点及び保管室のある 6 階西端と比較のために東端の 2 点である。また更に、海拔およそ 60m の広島大学原爆放射線医科学研究所においても、被爆試料保管室及びその周辺 2 点(装置運転室及び照射室隣室)で測定した。原医研においては ^{252}Cf 中性子照射装置(7.14GBq)が設置されている。そのため、照射装置の稼働時、非稼働時についても測定した。

結果と考察

比例計数管の校正

金箔中の熱中性子による誘導放射能 0.153Bq ($\pm 3\%$) より熱中性子束は $4.2 \pm 0.5 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ と見積もることが出来た。この値と ^3He カウンターの計数率 $147.9 \pm 0.5\text{cps}$ より ^3He カウンターの測定効率は等方照射に対し 0.27、平行ビームに対し 0.99 の値が得られた。

工学研究科における環境中性子測定

工学研究科の測定結果を熱中性子束に換算した値を Fig.6(a)及び(b)に示す。環境中性子線束は階数とともに増加する傾向が認められる。地階の中性子線束が最も小を示し、地階から屋上までに $0.00017\text{--}0.00092 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ と変化した。これは床の遮蔽効果のためと考えられる。類似した傾向は 6 階の東と西端の測定結果である Fig.6(b)でも見られ、中心部で低く、建物のはずれでは高くなっている。これらの値は UNSCEAR に報告されている $0.008 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ と比較すると小さい値を示している。

花崗岩コアと鉄鋼材の被爆試料を保管している 6 階東端の部屋では、熱中性子線束として $0.00071 \text{ n/cm}^2 \cdot \text{s}$ が得

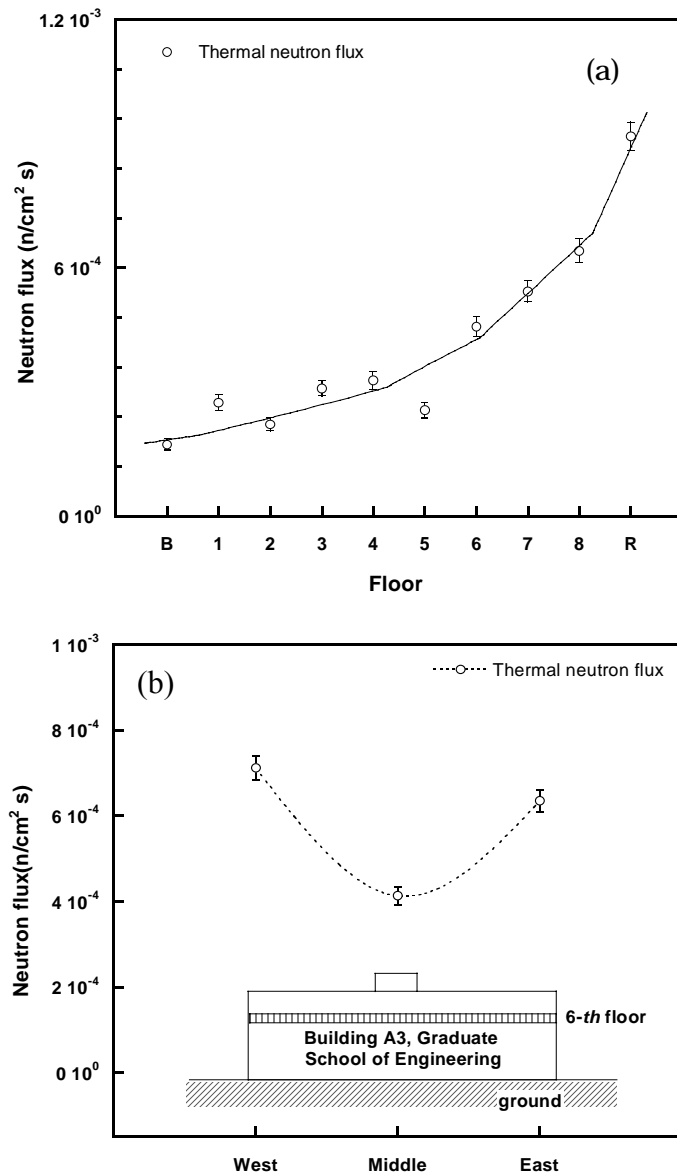


Fig. 6. (a): 工学研究科の環境熱中性子線束の階依存性 . (b): 被爆試料保管室のある 6 階での位置依存性 .

られた。鉄材中に $^{59}\text{Co}(n, \gamma)$ 反応を通して誘導される ^{60}Co 放射能は 0.27 mBq/gCo と見積もられる。原爆被爆試料の測定にどの程度寄与するか評価するために、原爆中性子誘導放射能に行う崩壊補正を行ったところ 487mBq/gCo であると推定された (Table 1)。同様に、花崗岩コアに $^{151}\text{Eu}(n, \gamma)$ ^{152}Eu 反応で誘導される ^{152}Eu 放射能は 7.9 mBq/gEu と見積もられ、更に原爆被爆時換算で 147mBq/gEu と推定される。これらの値は、DS02 計算の 1200m での評価値 1.13×10^4 mBq/gCo 及び 9.91×10^4 mBq/gEu と比較した場合、それぞれ 1/20 及び 1/670 と無視できる。

Table. 1 環境中性子によって誘導される ^{60}Co および ^{152}Eu 比放射能 . 2001 年に測定を行った際の比放射能を原爆被爆時への崩壊補正を行い比較した . 統計誤差は ~ 8 %、系統誤差は ~ 20% である .

	^{152}Eu activity induced by background neutron	DS02 calculation
$^{60}\text{Co}/\text{Co}$	0.27 mBq/gCo	5.5 mBq/gCo
$^{152}\text{Eu}/\text{Eu}$	7.9 mBq/gEu	5.3×10^3 mBq/gEu

原医研における環境中性子測定

原医研測定の結果を Fig. 7 に示す。核分裂中性子照射装置非稼働時の中性子線束は、工学研究科 6 階被爆試料保管室での値とほぼ同じであった。照射装置稼働時には運転室の線束は、非稼働時の 10 倍高い結果となった。原医研被爆試料保管室の中性子線束は、照射装置稼働時におよそ 22% 高くなり照射装置の影響があることが示された。しかしながら、この効果は照射装置常時稼働している場合である。実際には、照射装置の使用条件である週最大 40 時間を考慮すると最大でも 5% 以下と見積もられる。

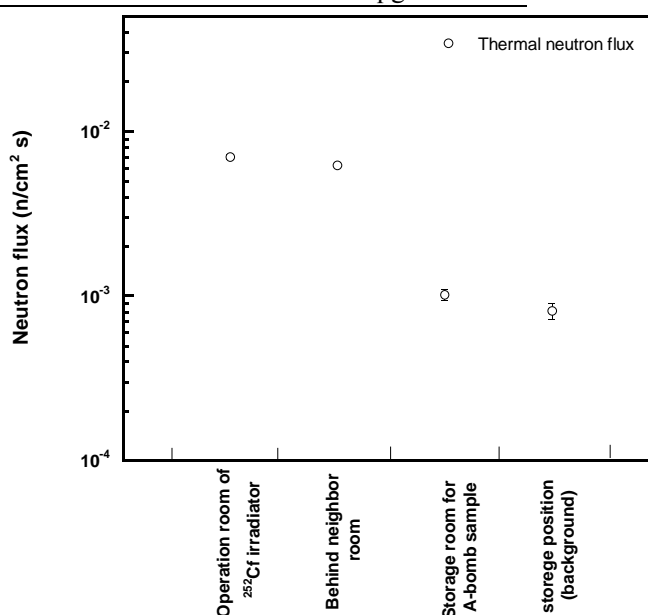


Fig. 7. 原医研被曝試料保管室近傍の稼働時の環境中性子束 .

石川によるガス比例計数管データとの比較

広大原医研石川は、同種のガス比例計数管を用いて、試料採取場所近くでの環境中性子測定を行った。データを Table 2 にまとめる。中性子束はおよそ $6-9.7 \times 10^{-4}$ n/cm²·s であり本測定の値と同様の

Table 2. 石川等によるガス比例計数管の結果.

Location	Measuring time (sec)	Count	Thermal neutron flux (1/cm ² /s)	^{152}Eu activity induced (mBq/gEu)	Error (mBq/gEu)
Rooftop at RIRBM	5F	50,913	9.16×10^{-4}	10.3	0.2
		412,232	9.08×10^{-4}	10.2	0.07
Higashi-Senda (Old Fac. Science)	Ground	3,600	9.20×10^{-4}	10.3	0.75
		3,600	9.79×10^{-4}	11.0	0.78
Rooftop at Takeichi clinic	5F	3,600	6.02×10^{-4}	6.77	0.61
Roof at NHK building	27F	3,600	6.95×10^{-4}	7.82	0.66
		3,600	7.14×10^{-4}	8.04	0.67
		3,600	8.56×10^{-4}	9.63	0.73

結果が得られている。

小村による金放射化データとの比較

金沢大 LLRL の小村は、金シートを用いた環境中性子線による誘導放射能を、極低バックグラウンド Ge 検出器（尾小屋）を用いて測定した。試料となる金シート（厚さ 0.1mm、質量 ~ 12g）を広島大学、長崎大学へ配布し、およそ 3 週間保管し、カドミウムカバーし金沢大学へ送り返した。 ^{198}Au の半減期は 2.695 日であるので、飽和放射能の 99.5% となる。測定結果を Table 3 に示す。誘導放射能はおおよそ 50 ± 10 ^{198}Au atom/g-gold であった。0.1mm 厚の金の自己遮蔽因子として星等による 0.4 を仮定すると熱中性子束として $(8.8 \pm 1.0) \times 10^{-4}$ n/cm² s と見積もることが出来る。この値は、 ^3He 計数管による測定結果と矛盾しないことがわかる。

Table 3. 小村による金の放射化測定結果 .

Location	Target form	Irradiation	Target weight (g)	^{198}Au atoms		Cd ratio		
				atom/g-gold	error	atom/atom	error	
Hiroshima	Nisseki Hospital	0.1mm sheet	bare	12.00	50.5	4.1	1.56	0.29
		0.1mm sheet	Cd-covered	12.07	32.2	5.3		
	Honkawa Prim. Sch.	0.1mm sheet	bare	12.00	41.7	5.1	1.4	0.30
		0.1mm sheet	Cd-covered	13.22	29.7	5.1		
	RERF	0.1mm sheet	bare	12.00	42.3	4.0	1.53	0.30
		0.1mm sheet	Cd-covered	12.00	27.7	4.7		
Saijo	0.1mm sheet	bare	13.00	55.0	5.6	2.68	0.45	
	0.1mm sheet	Cd-covered	12.59	20.5	2.7			
Nagasaki	Nagasaki U	grain	bare	20.03	55.5	7.0	1.60	0.46
		grain	Cd-covered	20.00	34.6	8.9		
Reference	LLRL	grain	bare	20.00	52.4	5.8		
	MRI, Tsukuba	0.7 mm plate	bare	11.50	77.6	11.4		

結論

^3He ガス比例計数管を 120kBq の ^{252}Cf 核分裂中性子線源を用いて測定効率の校正を行った。構成済みの計数管を用いて広島大学大学院工学研究科及び原爆放射線医科学研究所被爆試料保管室の環境中性子線の測定を行った。

環境中性子は工学研究科の建物で地下室から屋上までの 10 地点で測定したところ、環境中性子は熱中性子線束で $0.00017 - 0.00092$ n/cm²·s が得られた。被爆試料保管室での熱中性子束は、 0.00071 n/cm²·s であった。環境中の熱中性子で誘導される爆心から 1200m の被爆花崗岩、鉄材試料測定への寄与は、原爆当時換算した場合 ^{152}Eu と ^{60}Co 放射能について、それぞれ 1/650 及び 1/20 が得られた。

謝辞

実験を行うにあたり、広島大学原爆放射線医科学研究所先端放射線実験施設スタッフ及び工学研究科量子エネルギー工学研究室一同のご協力に感謝する。

REFERENCES

- 1) M. Yamashita, L.D. Stephens and H.Wade (1966) Patterson, Cosmic-ray-produced neutrons at Ground level: Neutron Production rate and flux distribution, J. Geophys. Res. 71, 3817-3834.

- 2) H. Schraube, V. Mares, S. Roesler and W. Heinrich (1999) Experimental Verification and Calculation of aviation route dose, *Radiat. Prot. Dos.* 86, 309-315.
- 3) H. Kornmayer, H. H. Mielke, J. Enger and J. Knapp (1995) High-energy cosmic ray neutrons at sea level. *J. Phys. G Nucl. Part. Phys.* 21, 439-447.
- 4) S. Endo, N. Tosaki, K. Shizuma, M. Ishikawa, J. Takada, S. Suga, K. Kitagawa, M. Hoshi (2000) Radioactivity of ^{51}Cr in stainless steel collected from residences in the JCO neighborhood, *J. Environm. Radioact* 50 (1-2), 83-88.
- 5) S. Endo, N. Tosaki, K. Shizuma, M. Hoshi (2000) Neutron dose equivalent estimation from the specific activity of ^{51}Cr , *J. Environm. Radioact.* 50 (1-2), 88-96.
- 6) K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka, S. Endo, J. Takada, M. Hoshi, S. Fujita, T. Watanabe (1998) Residual ^{60}Co activity in steel samples exposed to the Hiroshima atomic-bomb neutrons, *Health Phys.* 75(3): 278-284.
- 7) Nakanishi, K. Miwa and R. Ohki (1998) *J. Radiat. Res.* **39**, 243-250.
- 8) K. Shizuma, K. Iwatani, H. Hasai, T. Oka and H. Morishima (1993) Residual ^{152}Eu and ^{60}Co activities induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb, *Health Phys.* **65**, 272-282.
- 9) United Nations Science Committee on the Effects of Atomic Radiation (1988) Sources, effects and risks of ionizing radiation. New York: United Nations. P.107.
- 10) Shizuma, K., Fukami, K., Iwatani, K. & Hasai, H., Low-background of Ge detectors for the measurement of residual ^{152}Eu radioactivity induced by neutrons from the Hiroshima atomic bomb, *Nucl. Inst. Method.* B66, 459-464, 1991.
- 11) Briesmeister, J. F. (Ed.) (2000) Los Alamos National Laboratory (Los Alamos, NM, USA) report LA-13709-M.