

JAERI-M

6055

熱蛍光線量計によるトリチウム生成率分布の測定法

1975年3月

前 川 洋

日 本 原 子 力 研 究 所  
Japan Atomic Energy Research Institute

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

熱蛍光線量計によるトリチウム生成率分布の測定法

日本原子力研究所東海研究所原子炉工学部

前川 洋

(1975年2月12日受理)

核融合炉のリチウムブランケット模擬実験において、トリチウム生成率分布を測定するのは重要な課題であり、その測定法の確立が望まれている。トリチウムと他の誘導放射能の半減期の差をうまく利用して、LiFの熱蛍光線量計(TLD)による自己照射法を使った測定法を提案するとともに、FCAを用いた予備的実験から原理的に可能であることを示した。測定上の問題点についても検討を加えた。

JAERI-M 6055

A Method for Obtaining the Tritium Production Rate  
Distribution with a LiF Thermoluminescence Dosimeter

Hiroshi MAEKAWA

Div. of Reactor Engineering, Tokai, JAERI

(Received February 12, 1975)

The measurement of tritium production rate distribution in a lithium blanket is an important subject in the experiments of fusion blanket. A method for measuring the tritium production rate in the lithium blanket with a LiF thermoluminescence dosimeter is presented. The preliminary experiment with FCA shows the method to be feasible. Problems in the actual measurement are also described.

# 目 次

1. まえがき .....	1
2. 測定原理ならびにその実験的検討 .....	3
3. 測定手順 .....	4
4. F C A による照射実験 .....	8
5. 問題点の検討 .....	13
6. まとめ .....	14
謝 辞 .....	14
参考文献 .....	14

## 1. ま え が き

核融合炉のリチウムブランケット模擬実験において、トリチウム生成率分布の測定が重要な目標の一つになっている。その測定にはトリチウムの生成反応である ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 、 ${}^7\text{Li}(n, n'\alpha)\text{T}$ の反応を電気信号として測定するのが最も手軽な方法である。その意味ではLiIシンチレータやLi サンドウィッチカウンターの使用は有効である。しかし、1.4 MeVの高エネルギーを持つ中性子が主役をなす核融合炉ブランケットでは、目的の核反応の他に多くの反応、例えば ${}^6\text{Li}(n, n'\alpha)\text{d}$ や半導体検出器に含まれているSiによる ${}^{30}\text{Si}(n, \alpha){}^{27}\text{Mg}$ が共存しており、 ${}^7\text{Li}(n, n'\alpha)\text{T}$ は吸熱反応であることもあって、トリチウム生成反応のみを取り出すのはむずかしい。Liを含んだ原子核乾板の使用も考えられるが、実験体系の中では中性子は全方向から入射するので生成した粒子を識別するには多くの困難がある。Liを含んだポリカーボネイトなどの固体飛跡検出器を用いて、生成した $\alpha$ 粒子のトラックの計数からトリチウム生成率を測定する方法もLiIシンチレータで生じたと同様の問題が存在する。結局、生成したトリチウムを直接定量する以外に有効な手段がないと考えられる。

M.E.Wymanらは銅カプセルにリチウム金属を入れたサンプルを用いてLiD球体系でのトリチウム生成率分布の測定を行なった<sup>(1)</sup>。トリチウムの定量は生成したトリチウムガスを比例計数管の中に導いて、 $\beta$ 線を検出することによって行なっている。また、リチウム金属体系中での同種の実験がP.Clothらによって試みられている<sup>(2)</sup>。リチウムサンプルを化学的に処理して生成したトリチウムを水の形にし、液体シンチレータに加えて測定する方法が平岡により試みられている<sup>(3)</sup>。この報告書によりLiFの熱発光線量計(以下TLDと略す)による測定法について予備的な実験を行ないその可能性を検討したので報告する<sup>(4)</sup>。

$\gamma$ 線と中性子の共存した場では熱発光(thermoluminescence, 以下TLと略す)は $\gamma$ 線だけでなく、中性子との核反応で生じた荷電粒子等でも生じる。 ${}^6\text{LiF}$ と ${}^7\text{LiF}$ の2種類のTLDを用い、 ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ 反応以外の反応は ${}^7\text{LiF}$ のTLDによって補正し、熱中性子束を求める実験がJ.R.Camerouらによって行なわれた<sup>(5)</sup>。保健物理の立場からは $\gamma$ 線線量だけでなく、中性子線量を測定するのも重要な課題である。そのため、熱中性子と反応しやすいDyなどを含んだTLDの感度測定が勢力的にすすめられている<sup>(6)(7)</sup>。この種の測定法では熱中性子に限られ、1.4 MeVのような高いエネルギーの中性子には適応できない。

TLDの中に含まれている核種のうち中性子の照射によって放射化するものを用い、それから出る放射線による自己照射(self-dose)によって中性子束の測定が試みられている。M.R.Mayhughらは $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ 、 $\text{CaF}_2:\text{Dy}$ 、 $\text{CaF}_2$ のTLDにより、 ${}^{44}\text{Ca}(n, \gamma){}^{46}\text{Ca}$ 、 ${}^{164}\text{Dy}(n, \gamma){}^{165}\text{Dy}$ の反応を用いて熱中性子の測定を行なっており<sup>(8)</sup>。D.Pearsonらは ${}^{19}\text{F}(n, 2n){}^{18}\text{F}$ 反応を利用したLiFのTLDや ${}^{27}\text{Mg}(n, p){}^{26}\text{Mg}$ 反応を利用した $\text{Mg}_2\text{SiO}_4:\text{Tb}$ のTLDを用いて高速中性子の測定を行なっている<sup>(9)</sup>。

この報告書では次のような点に着目して、LiFのTLDを用いたトリチウム生成率分布の測定法を提案している。

Table I

Radio Isotope in LiF Produced by n and  $\gamma$

R.I.	Reaction	Half life	Decay
$^3\text{T}$	$^6\text{Li}(n,\alpha)$ $^7\text{Li}(n,n'\alpha)$	12.262 y	$\beta^-$
$^6\text{He}$	$^6\text{Li}(n,p)$ $^7\text{Li}(\gamma,p)$	0.82 s	$\beta^-$
$^8\text{Li}$	$^7\text{Li}(n,\gamma)$	0.844 s	$\beta^-$
$^{16}\text{N}$	$^{19}\text{F}(n,\alpha)$	7.14 s	$\beta^-, \gamma$
$^{17}\text{N}$	$^{19}\text{F}(\gamma, 2p)$	4.16 s	$\beta^-, \gamma, n$
$^{19}\text{O}$	$^{19}\text{F}(n,p)$	29.1 s	$\beta^-, \gamma$
$^{17}\text{F}$	$^{19}\text{F}(\gamma, 2n)$	66.6 s	$\beta^+$
$^{18}\text{F}$	$^{19}\text{F}(n, 2n)$	109.7 m	$\beta^+$
$^{20}\text{F}$	$^{19}\text{F}(n,\gamma)$	11.56 s	$\beta^-, \gamma$

Table II

Radio Isotope in  $\text{SiO}_2$  Produced by n and  $\gamma$

R.I.	Reaction	Half life	Decay
$^8\text{Be}$	$^{16}\text{O}(\gamma, 2\alpha)$	$2 \times 10^{-16}$ s	$\alpha$
$^{14}\text{C}$	$^{17}\text{O}(n,\alpha)$	5730 y	$\beta^-$
$^{16}\text{N}$	$^{16}\text{O}(n,p)$	7.14 s	$\beta^-, \gamma$
$^{17}\text{N}$	$^{17}\text{O}(n,p)$ $^{18}\text{O}(\gamma,p)$	4.16 s	$\beta^-, n$
$^{18}\text{N}$	$^{18}\text{O}(n,p)$	0.63 s	$\beta^-, \gamma$
$^{14}\text{O}$	$^{16}\text{O}(\gamma, 2n)$	70.9 s	$\beta^+, \gamma$
$^{15}\text{C}$	$^{16}\text{O}(\gamma, n)$	123 s	$\beta^+$
$^{19}\text{C}$	$^{18}\text{O}(n,\gamma)$	29.1 s	$\beta^-, \gamma$

Table III

Radio Isotopes in Mg Produced by n and  $\gamma$

R.I	Reaction	Half life	Decay
$^{24}\text{Na}$	$^{24}\text{Mg}(n,p)$	14.96 hr	$\beta^-, \gamma$
$^{25}\text{Na}$	$^{25}\text{Mg}(n,p)$ $^{26}\text{Mg}(\gamma,p)$	60 s	$\beta^-, \gamma$
$^{26}\text{Na}$	$^{25}\text{Mg}(n,p)$	1.04 s	$\beta^-, \gamma$
$^{23}\text{Mg}$	$^{24}\text{Mg}(\gamma,n)$	11.9 s	$\beta^+, \gamma$
$^{27}\text{Mg}$	$^{25}\text{Mg}(n,\gamma)$	9.45 m	$\beta^-, \gamma$

- ① TLD自身にLiが含まれている。
- ② トリチウムの半減期が長いのに比べて予想される他の誘導放射能の半減期は十分に短い。
- ③ TLDはアニーリングによってTLが消去できる。

トリチウムの生成率分布を測定する上で①は本質的なことであり、②の条件を満たすかどうかがこの測定法の一つのキーポイントになっている。もし、この測定法が成功するなら、複雑な化学的操作がないという特長が生かされ、有効な測定手段になるものと予想される。

以下の章で、FCAを用いた予備的実験からこの測定法が原理的に可能であることを示すとともに、測定上の問題点について整理・検討を加えた。

## 2. 測定原理ならびに実験的検討

### 2.1 測定原理

核融合炉ブランケット実験の目的の一つは前章で述べたように、 ${}^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ または ${}^7\text{Li}(n, n'\alpha)\text{T}$ によって生じた ${}^3\text{T}$ 、すなわちトリチウムの定量にある。従って、リチウムを含んだTLDを用い生成したトリチウムの量が測定できればよい。リチウムを含んだTLDとしてLiF、 $\text{Li}_2\text{B}_4\text{O}_7:\text{Mn}$ などがある。しかし、以下に述べるように、一緒に含まれている他の核種の誘導放射能の影響が殆んどないこと、リチウムの含有量が多いことからLiFのTLDが最も適当であろう。

生成したトリチウムは半減期12.262年で $\beta$ 崩壊し、 $\beta$ 線のエネルギーは18.6 KeVである。 ${}^{60}\text{Co}$  LiFを用いた場合、14 MeVの中性子が主役をなす核融合炉ブランケットではTable Iに示すように多くの核反応があり、トリチウム以外の放射性同位元素を生じる。高エネルギーの $\gamma$ 線の存在が予想されるので、表には $\gamma$ 線による核反応も付記した。d、tなどの荷電粒子による反応は二次的なものであり、確率的に少いと考え省略した。表から明らかなようにトリチウム以外の放射性同位元素の半減期は短く、最も長い ${}^{18}\text{F}$ でも1097分であって、数日間放置すれば全く問題とされない量まで減衰させることが可能である。この時、半減期の長いトリチウムは殆んど減衰していないから、TLDをアニーリング(Anealing)して $\gamma$ 線やその他の反応で生じたTLを消去する。その後、低バックグラウンドの状態では適当な期間放置して、生成したトリチウムからの $\beta$ 線による自己照射をし、線量の測定を行えばトリチウムの定量が可能となる。

アニーリングではTLDを500℃程度にするので、TLDが裸の状態ではトリチウムがもれて無くなってしまふ。そのため粉末のLiFをガラスに封入したTLDを使うことにした。ガラスは $\text{SiO}_2$ のみでできていると仮定して、その誘導放射能の表をTable IIに示す。また、LiFのTLDは100~200 ppm程度のマグネシウムが励起剤(Activator)として加えられているので、マグネシウムによる反応についてもTable IIIに示す。これらのうち、

\* Table I~IIIのデータもこの文献から引用した。

$^{17}\text{O}(\text{n}, \alpha)^{14}\text{C}$  と  $^{24}\text{Mg}(\text{n}, \text{p})^{24}\text{Na}$  が測定の際害となりうるので以下実験的に検討を加えた。

## 2.2 実験的検討

LiF の TLD を中性子場で照射した場合、トリチウム以外の誘導放射能にどんなものがあるかを知るため、次のような実験を行なった。

ガラスに封入された約 25 mg の  $^6\text{LiF}$  および  $^7\text{LiF}$  の TLD 各 1 個を FCA VI-3 N 炉心のほぼ中心に設置し、炉出力を 200 W 付近で 65.2W·hr の照射をした。<sup>\*</sup> 照射後 TLD サンプルを炉心から取り出し、2 個を一緒にして、48 cc の Ge(Li) 半導体検出器でサンプルから出る  $\gamma$  線を測定した。照射後 50 分経過してから、64 分間測定した  $\gamma$  線のエネルギースペクトルを Fig.1 に示す。データからはバックグラウンドが除かれている。図から明らかなように、2 つの顕著なピークがあり、それぞれ、 $^{18}\text{F}$  のアネヒレーションによる 0.511 MeV の  $\gamma$  線と  $^{24}\text{Na}$  の 1.389 MeV の  $\gamma$  線と予想された。このことを確認するため、半減期の測定を行なった。Fig.2 と Fig.3 にそれぞれのピークの減衰曲線を示す。予想通り、半減期は 110 分と 15 時間であって、しきい値が 1.1 MeV の  $^{19}\text{F}(\text{n}, 2\text{n})^{18}\text{F}$  しきい値が 6.3 MeV の  $^{24}\text{Mg}(\text{n}, \text{p})^{24}\text{Na}$  の反応で生じたものと考えられる。

また、照射後 2 日間で  $\gamma$  線のスペクトルはほぼバックグラウンドの状態となった。PNS-A 加熱器による 1.4 MeV の中性子の照射実験でも同様の結果が得られており、数日でバックグラウンドにもどっている。1.4 MeV の中性子が支配的なため、 $^{18}\text{F}$  による 0.511 MeV の  $\gamma$  線が顕著にあらわれた。

以上の実験結果から、自己照射法 (Self Dose Method) に必要な条件、すなわち、目的としているトリチウム以外の誘導放射能が適当な時間で減衰してしまうという条件をほぼ満たしていると考えられる。

## 3. 測定手順

前章で自己照射法による見透しが得られたので、以下測定手順を整理してみた。この測定法では最初にトリチウムガスがもれないように処置された未使用の TLD を用意することが本質的である。測定手順のフローチャートを Fig.4 に示す。

〔測定手順〕

- ① 同じロットで作られた未使用の TLD を多数個用意する。
- ② それらをアニーリング (Annealing) して熱蛍光 (TL) を消去する。
- ③  $\gamma$  線の標準場で一定時間照射。
- ④  $\gamma$  線の照射量を TLD リーダーで測定し、TLD を校正するとともに、素子の選別を行なう。

\* 実験の概要は 4 章でも説明する。

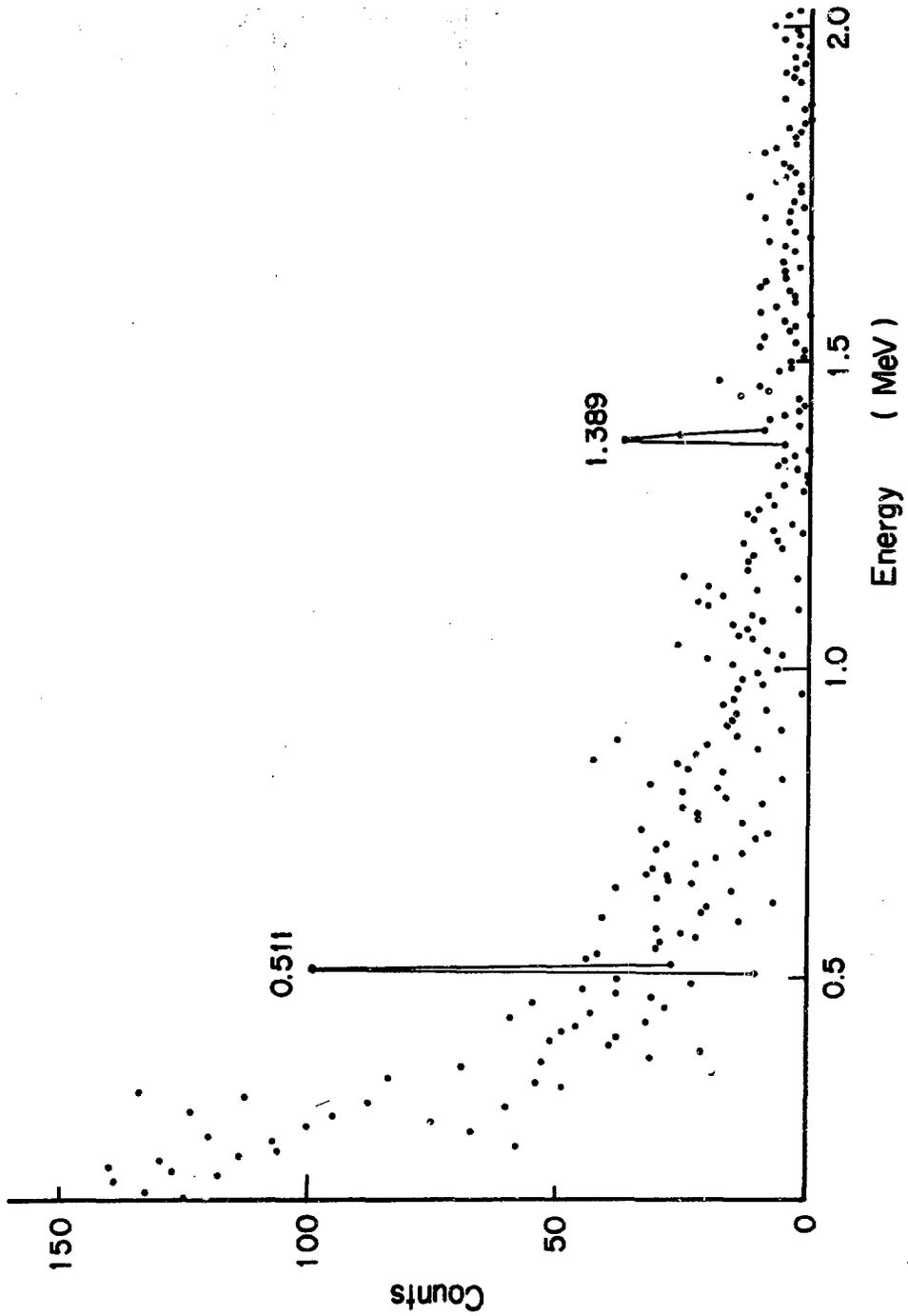


FIG 1 Energy Spectrum of  $\gamma$  rays from LiF TLD after Irradiation of Fast Neutrons

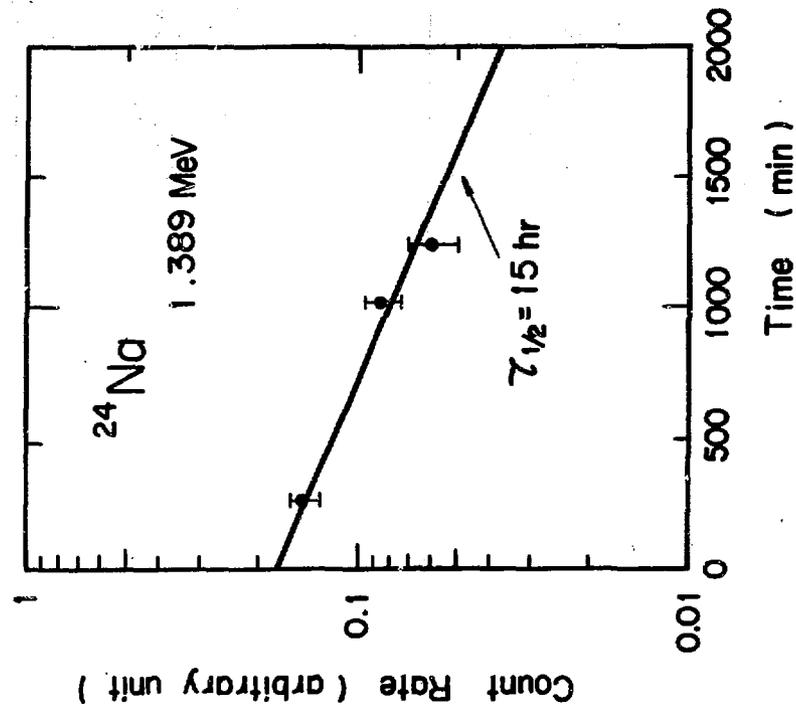


Fig 3 Decay Curve of 1.389MeV  $\gamma$  rays

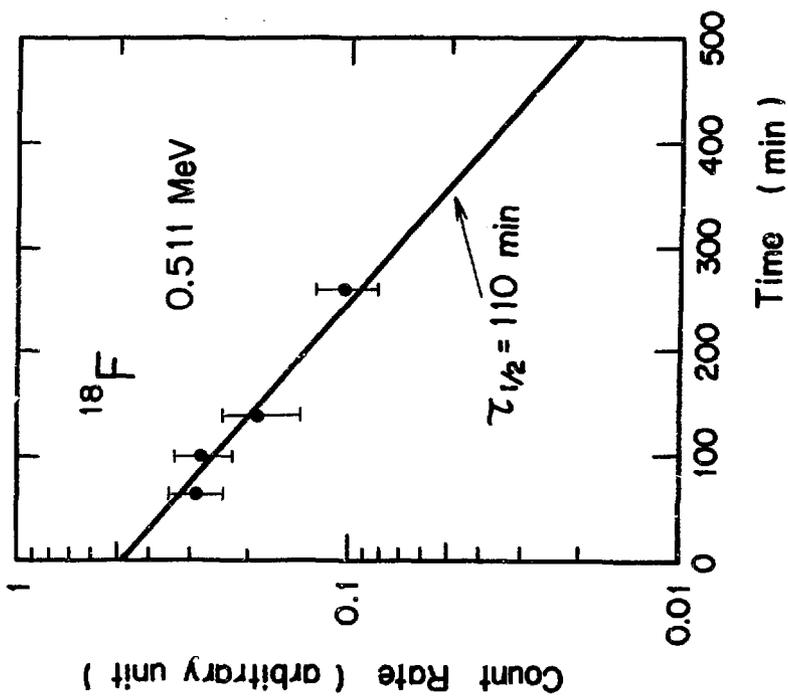


Fig 2 Decay Curve of 0.511MeV  $\gamma$  rays

## 測定手順のフローチャート

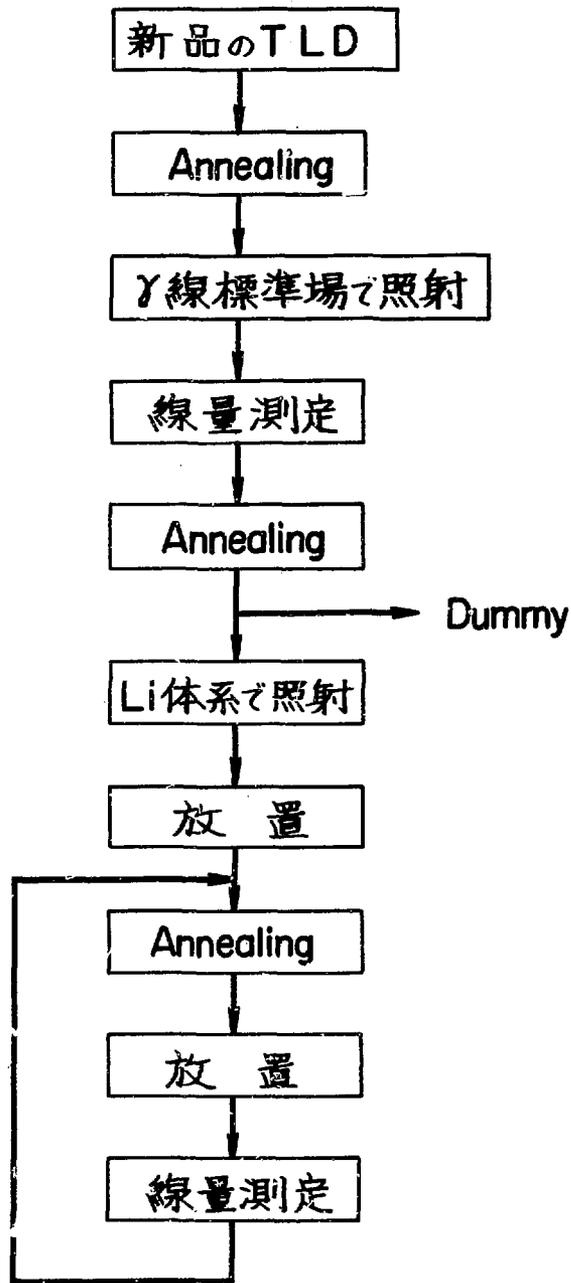


Fig 4 Flow Chart of Measurement

- (5) アニールした後、一部は比較のための Dummy として残す。
- (6) リチウムブランケット体系の測定点の位置に TLD を配置して適当な時間照射する。
- (7) 中性子も含めて十分に低いバックグラウンドの場所に数日間放置して、トリチウム以外の放射性同位元素が減衰してなくなるのを待つ。
- (8) アニールをして、照射中および放置した間に生じた TL を消去する。
- (9) (7)と同様、低バックグラウンドを場所で適当な期間トリチウムからの  $\beta$ 線による自己照射を行なう。(トリチウムの生成量によってはかなりの長時間になると予想される。)
- (10) TLD のリーダーで線量を測定し、トリチウムの生成量を求める。

なおトリチウムの半減期が長いので、必要があれば(8)から(10)までの操作を数度行なって測定精度を上げることが可能である。

## 4. FCAによる照射実験

### 4.1 実験の概要

実験に使用したサンプルは約 25 mg の  ${}^6\text{LiF}$  ( ${}^6\text{Li}$ : 95.62%,  ${}^7\text{Li}$ : 4.38%) と  ${}^7\text{LiF}$  ( ${}^6\text{Li}$ : 0.007%,  ${}^7\text{Li}$ : 99.993%) の TLD 粉末を外形  $2\text{mm}\phi \times 10\text{mm}$  のガラスのカプセルに封入したもの各 4 個である。照射に使用した日本原子力研究所にある高速臨界実験装置 (FCA) の V-3 N 炉心については別途報告されている<sup>(1)</sup>ので省略する。炉心中心のスペクトルを 25 群の JAERI-FAST-2 セットを用い、ARGO コードで 1 次元円筒計算した結果<sup>(2)</sup>を Fig. 5 に示す。図には著者らが行なったリチウムブランケット実験<sup>(3)</sup>で用いた体系中のスペクトルも同時に図示してある。V-3 炉心のスペクトルは 2 MeV 以上を除き、半径 3.41 cm の裸のリチウム球体系のスペクトルとかなり似かよっている。

FCA による照射は 2 度に分けて行なった。1 回目は  ${}^6\text{LiF}$  と  ${}^7\text{LiF}$  のサンプル各 2 個を約 100 W で 16.7 W·hr 照射し、残りの各 2 個はバックグラウンド除去のためのダミーとした。1 回目の照射後、2 章述べた  $\gamma$  線スペクトルの測定には不十分であることがわかった。そこで、2 回目はダミー用に残したうちの各 1 個を約 200 W で 65.2 W·hr 照射した。照射後行なった  $\gamma$  線スペクトルの測定については第 2 章ですでに述べた。FCA による照射前および各自己照射前に行なったアニール条件は 500°C で 1 時間である。

自己照射をすすめるための低バックグラウンドの場所として、鉛のブロックを研んで小さな空間を作った。鉛の壁の厚さは少くとも 10 cm 以上になるようにした。アニールおよび自己照射はダミーも含めてすべてのサンプルを同時に行なった。線量の測定に用いた TLD リーダーは松下電気産業 K.K. の UD-502A 型のものである。 ${}^6\text{LiF}$  の測定結果を次節で述べる生成したトリチウムによる自己照射量の算定値と共にまとめて Table IV に示す。 ${}^7\text{LiF}$  の測定値はダミーの値、すなわちバックグラウンド程度で有意な差は得られなかった。これは次節で述べるようにトリチウムの生成量が少いためと考えられる。そこで  ${}^7\text{LiF}$  のデータはバックグラウ

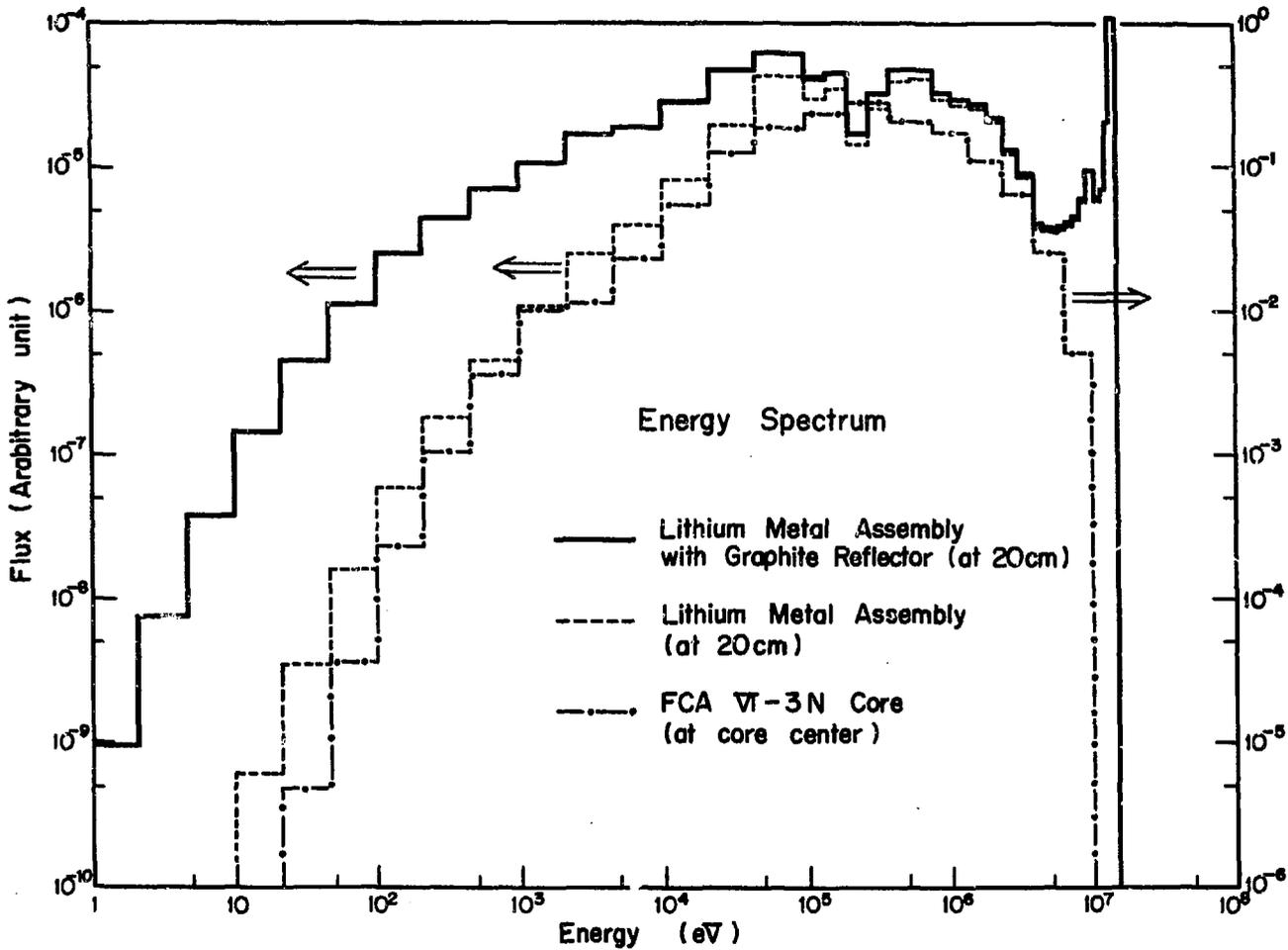


Fig 5 Neutron Energy Spectra in FCA and Lithium Metal Assemblies

ドのデータとして用いた。表中のデータはバックグラウンドを除いてある。単位の1 Rとは<sup>60</sup>Co のγ線を1 R照射した線量に相当するという意味である。TLDリーダーの測定値からの換算は田中らの測定した換算係数<sup>(14)</sup>

$$\eta_{\text{LiF}} = 1.492, \quad \eta_{\text{LiF}} = 1.278$$

を用いた。

#### 4.2 自己照射による線量の算定

LiF のTLDが内部で生成したトリチウムからのβ線による自己照射で受ける線量は次のようにして計算した。

FCAM-3Nの炉心中心にある<sup>6</sup>Li, <sup>7</sup>Liの各原子1個当りのトリチウム生成率は

$${}^6\text{Li} : \sum_j \sigma_j^6 \phi_j = 0.0168 \times 10^{-24} \text{ ( T/source n )} \quad (1)$$

$${}^7\text{Li} : \sum_j \sigma_j^7 \phi_j = 0.0000665 \times 10^{-24} \text{ ( T/source n )} \quad (2)$$

で与えられる。中性子束 $\phi_j$ は前記のARGOコードによる計算結果で中性子源が1になるように規格化してある。<sup>6</sup>Li(n, α)Tと<sup>7</sup>Li(n, n'α)Tの反応断面積 $\sigma_6$ と $\sigma_7$ はブランケット計算用に作成した42群のものを用いた。<sup>(15)</sup>

一方、計算から全核分裂数は0.350であり、1核分裂当りの発熱量を215 MeVとすると、1wの出力に対して、

$$8.29 \times 10^{10} \text{ ( source n/W )}$$

の中性子源がある。従って、25 mgのLiFのTLDのサンプルを炉心中心に置いて、1Wで1秒間照射したときに生じるトリチウムの量はそれぞれ、

$${}^6\text{LiF} : 8.10 \times 10^8 \text{ ( T/sample} \cdot \text{w} \cdot \text{sec )} \quad (3)$$

$${}^7\text{LiF} : 3.20 \times 10^8 \text{ ( T/sample} \cdot \text{w} \cdot \text{sec )} \quad (4)$$

である。

トリチウムの半減期は12.262年であるから、1原子当りの崩壊の割合は

$$1.79 \times 10^{-9} \text{ ( decay/T} \cdot \text{sec )}$$

となる。β線のエネルギーは18.6 KeVであり、平均エネルギーはその1/3と仮定すれば、

LiFのTLD中でこのβ線が放出するエネルギーは

$$1.78 \times 10^{-17} \text{ ( erg/T} \cdot \text{sec )}$$

である。

古田らによって<sup>6</sup>LiFあるいは<sup>7</sup>LiFのTLD 1gが<sup>60</sup>Coのγ線1Rで吸収するエネルギーはそれぞれ、

$${}^6\text{LiF} : 89.0 \text{ ( erg/g )}$$

$${}^7\text{LiF} : 85.7 \text{ ( erg/g )}$$

と与えられている。<sup>(16)</sup> LiF中に含まれているトリチウムのβ線によってTLを作る効率をεとすると、自己照射1秒当り25 mgのLiFのTLDの照射線量が<sup>60</sup>Coのγ線換算で1Rとなるに必要なトリチウムの量は

$${}^6\text{LiF} : 1.25 \times 10^{17} / \epsilon \text{ ( T} \cdot \text{sec/R}_{60\text{Co}} \text{ )} \quad (5)$$

$${}^7\text{LiF} : 1.04 \times 10^{17} / \epsilon \text{ ( T} \cdot \text{sec/R}_{60\text{Co}} \text{ )} \quad (6)$$

で与えられる。

従って、式(3)~(6)を用いれば、生成したトリチウムによるLiFのTLDの照射線量は $^{60}\text{Co}$ の $\gamma$ 線換算で

$$^6\text{LiF}: 8.39 \times 10^{-6} \cdot \epsilon \cdot W_H \cdot T_H \quad (\text{R}) \quad (7)$$

$$^7\text{LiF}: 3.44 \times 10^{-7} \cdot \epsilon \cdot W_H \cdot T_H \quad (\text{R}) \quad (8)$$

と計算される。式中の記号 $W_H$ ,  $T_H$ はそれぞれ、

$W_H$ : 炉の総出力 (W·hr)

$T_H$ : 自己照射の時間 (hr)

である。

Table IVに示してある計算値はTLを作る効率を100%であるとして(7), (8)式により求めてのものである。従って、表中の計算値と実験値の比、 $C/E$ は効率の逆数 $1/\epsilon$ に相当する。

## 験

### 4.3 実験結果の考察

今回の実験では使用したTLDの個数が $^6\text{LiF}$ ,  $^7\text{LiF}$ 各4個とわずかであり、生成したトリチウムの量も少なかったため定性的な判断しかできないが、Table IVに示された結果から次のようなことが明らかとなった。

まず第1に、原子炉での照射時間や自己照射の照射に関係なく、 $C/E$ がほぼ一定の値を示している。これはこの報告書で提案しているLiFのTLDによるトリチウムの生成率分布の測定法が原理的に可能であるという一つの裏づけとなる。もし、測定されている線量が $^6\text{Li}(n, \alpha)^3\text{T}$ 反応によるトリチウム以外の放射性同位元素によるものであれば、当然 $^7\text{LiF}$ のTLDでも検出されなければならない。しかし、 $^7\text{LiF}$ の測定値に常にバックグラウンド程度であった。この違いは $^6\text{LiF}$ と $^7\text{LiF}$ に含まれている核種の差、すなわち、 $^6\text{Li}$ と $^7\text{Li}$ の差としか考えられない。式(1)と(2)から明らかのようにFCAによる照射ではトリチウムの生成量は桁違いに $^6\text{LiF}$ の場合の方が多い。PNS-Aを用いた半径3.41cmのリチウム球体系の中心近くに置いたTLDによる測定では、バックグラウンドに比べて明らかに有意な差が検出された。しかも、計算でも示されているように $^{17}\text{LiF}$ の線量の方が大きかった。しかし、この場合は1.4 MeV中性子の全発生量は十分とはいえないので今後の追試が望まれる。

また、 $C/E$ がほぼ一定であるということはそのまま式(7)と(8)を満足していることになる。このことはトリチウム生成量が小さい場合でも、リチウムブランケット内でのTLDの照射時間および自己照射時間を適当に長くすることによって検出可能となりうる。

トリチウムの $\beta$ 線による自己照射によるTLの生成効率が約2%と小さい。この原因が何に起因しているかわからず今後の検討が必要であろう。

生成したトリチウムがもれないようにするため用いているガラスカプセルの影響はほとんど無視してよさそうである。 $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ 反応による $^{14}\text{C}$ の半減期が長いので一番心配していた。この点について次章の問題点で検討を加える。

アニーリングをくり返しても線量は自己照射時間に比例したことからトリチウムはもれなかったと思われる。

Table IV Data of  $^6\text{LiF}$  Irradiated by FCA

Sample NO.	$\frac{W}{H}$	$\frac{T}{H}$	Exp.	Cal.	C/E*
565	65.2 W·hr	171 hr	18.9 mR	0.934 R	49.4
		665.5	73.1	3.64	49.8
		1271	144	6.96	48.3
( 560 575	16.7 W·hr	171 hr	4.4 mR	240 mR	34.0
		665.5	20.4	933	45.7
		1271	40.8	1.78 R	43.7

\* C/E =  $1/\epsilon$

## 5. 問題点の検討

この章では今回の予備的な実験では解決しなかった問題点も含めて、LiFのTLDを用いてトリチウム生成率分布を測定する場合の問題点を整理し、検討を加える。

## i) 測定の期間中、特にフーリング中の生成したトリチウムのもれ。

前章の結果から判断して、ガラスカプセルに封入することで一応解決できると考えている。照射する前にHeリークディテクターでガラスカプセルのピンホールを検査すればさらに安心して使用できるであろう。他に封入する方法があれば検討をしたい。

ii)  $^{17}\text{O}(n, \alpha)^{14}\text{C}$ の反応で生じた $^{14}\text{C}$ の影響。

この反応の断面積のデータは乏しく、測定の障害になるかどうかは全く予想つかなかった。酸素はガラスの主成分である。 $^{17}\text{O}$ の量は全酸素の0.0373%と極くわずかであっても、反応断面積が大きければかなりの影響があると考えられる。実験結果からこの効果は無視してよいであろうと判断している。このことは多分、 $^{17}\text{O}$ の存在比が小さいこと、 $^{14}\text{C}$ の半減期が5730年と長いので崩壊率が逆に小さいこと、 $^{14}\text{C}$ のβ線のエネルギーが低いためガラスの内側のごとく表面に生じたものしか効果がないことなどによると考えられる。

## iii) LiFに励起剤として含まれているMgの効果。

MgはLiFのTLDに100~200ppm含まれており、 $^{24}\text{Mg}(n, p)^{24}\text{Na}$ の断面積は8~14MeVの間で120~200mbとかなり大きい。事実、かなりの $^{24}\text{Na}$ が生じることがわかった。しかし、半減期は14.96時間と比較的長いがトリチウム( $\frac{1}{2}T$ )の12.262年に比べれば短いので、数日間放置すれば十分に減衰させられる。

## IV) ガラスに含まれているSi, O, Mg以外の元素の効果。

実験結果から問題ないと考えてよいだろう。

## V) フーリングによって完全にTLをバックグラウンドまで消去できるか。

$10^6$ Rまでは大丈夫というデータもあり、今回の実験でも問題はなかった。

## VI) 1次反応で生じたp, d, tなどの粒子とTLD(またはガラス)との2次反応による放射性同位元素の効果。

$^7\text{Li}(d, p)^6\text{Li}$ ,  $^7\text{Li}(d, n)^6\text{Li}$ などの反応が考えられる。 $^7\text{Be}$ は半減期が53.5日と比較的長いが、これらは2次の反応であってその確率はきわめて小さく、実験でも検出されていないので問題はないであろう。

以下、今回の実験では検討できなかった問題を列挙する。

## i) 自己照射によるTLの生成効率が低い。

LiFのTLDの中で生成するトリチウムの量はかなり強力な中性子源を使ったとしてもそれほど十分とはいえない。TLの生成効率が低いとすれば大きな障害となりうる。詳しく検討していないが、1個のサンプル中のLiFのTLDの量を増加しても解決しないように思われる。

- ii) 生成したトリチウムと TLD との核反応によるトリチウムの損失。  
 iii) 生成したトリチウム (三重水素 $^3\text{T}$ ) と重水素 ( $^2\text{D}$ ) との反応によるトリチウムの損失。

## 6. ま と め

LiF と TLD を用いた自己照射法によるトリチウム生成率分布の測定は検出効率に問題があるとしても、原理的に可能であることが判明した。使用可能な TLD の素子が少なかったこと、PNS-A の中性子発生量が十分でないこともあって、今回は予備的な実験しかできなかった。PNS-A の直流化の整備も完了寸前である。今後、新たに TLD を用意し、PNS-A を用いて測定手法の確立を急ぎたいと考えている。

最後にこの測定法の長所を挙げてまとめたい。

### [ 長 所 ]

- (1)  $^6\text{Li}(n, \alpha)\text{T}$ ,  $^7\text{Li}(n, n'\alpha)\text{T}$  の反応のみを取り出すのが容易である。
- (2) リチウムブランケット体系での照射実験とは独立にトリチウムの  $\beta$  線による自己照射ができる。
- (3) 検出効率が悪いとしても、初めの照射時間と自己照射時間を十分長くすることが可能である。
- (4) トリチウムの半減期が比較的長いので一度の照射実験で何度でも同じ TLD によってトリチウム生成率を測定できる。
- (5) 複雑な化学的操作がない。

## [ 謝 辞 ]

有益な助言をして下さるとともに、TLD およびリーダーの使用の便宜をはかって下さいました遮蔽研究室古田悠氏に感謝いたします。この研究をすすめるにあたり、協力して下さいました原子炉工学部の弘田実弥主任研究員、黒井英雄高速炉物理研究室長をはじめとして研究室員に感謝いたします。

## 参 考 文 献

- (1) M.E. Wyman, et al., "An Integral Experiment to Measure the Tritium Production from  $^7\text{Li}$  by 14 MeV Neutrons in a Lithium Deuteride Sphere"

- LA-2234 (Rev) (1972)
- (2) P. Cloth, et al., "Studies of the Space Dependent Tritium Production and the Fast Flux Distribution in a Lithium Blanket Experiment" Proc. 8th Symposium on Fusion Technology, Noordwijkerhout, The Netherlands, 17-21 June, 1974
  - (3) 平岡 徹, 私信
  - (4) 前川 洋, "熱蛍光線量計によるトリチウム生成率分布の測定法の検討" 日本原子力学会 炉物理・炉工学分科会 E-51 (1974)
  - (5) J.R. Cameron et al., "Thermoluminescent Radiation Dosimetry Utilizing LiF" Health Physics 10 25 (1964)
  - (6) K. Ayyangar, et al., "Mixed Field Dosimetry with  $\text{CaSO}_4:\text{Dy}$ " Phys. Med. Biol. 19 [5] 656 (1974)
  - (7) K. Ayyangar, et al., "A Comparison of Thermal Neutron and Gamma Ray Sensitivities of Common TLD Materials" Phys. Med. Biol. 19 [5] 665 (1974)
  - (8) M.R. Mayhugh, et al., "Thermal Neutron Dosimetry by Phosphor Activation" Proc. 3rd Int. Conf. on Luminescence Dosimetry, Oct., 1971
  - (9) D. Pearson, et al., "Fast Neutron Dosimetry Using Activated TL Phosphors" COO-1105-175 (1972)
  - (10) 日本放射性同位元素協会編 "アイソトープ便覧" 丸善 K.K. (1970)
  - (11) 小山 謙二, 他, "FGA VI-3 集合体による3次元ベンチマーク実験" 日本原子力学会 炉物理炉工学分科会 A22 (1974), JAERI-memo で発表予定
  - (12) 藤崎 伸吾, 私信
  - (13) H. Maekawa, et al., "Fission Ratio Distribution in Spherical Lithium Metal Assemblies With and Without a Graphite Reflector" To be published in Nucl. Sci. Eng.
  - (14) 田中 俊一, 私信
  - (15) T. Hiraoka, et al., "Integral Experiments on a Spherical Lithium Metal Blanket System" Nuclear Fusion Suppl. 363 Sep. (1974)
  - (16) Y. Furuta and S. Tanaka, "Response of  $^6\text{LiF}$  and  $^7\text{LiF}$  Thermoluminescence Desimeters to Fast Neutrons" Nucl. Inst. Meth. 104 365 (1972)
  - (17) 前川 洋, 他, "Li ブランケット 模擬実験の予備解析" 原子力学会 炉物理・炉工学分科会 C-49 (1973)