

亜酸化窒素化学線量計

Nitrous Oxide Chemical Dosimeter

高 谷 通* 関 道 治*
Tōru Takatani Michiharu Seki

内 容 梗 概

放射線線量測定方法には物理的方法と化学的方法がある。化学線量計は物理的方法を用いた測定器と比べ、検知部を小形とし任意の形状にでき、吸収線量を測定するなどの特長をもっている。化学線量計には種々の物質が用いられているが、いずれも 10^8 r までの線量しか測定できない。ここに用いた亜酸化窒素線量計は亜酸化窒素が放射線の作用により、窒素と酸素に分解することを利用して放射線線量を測定するのであるが、 γ 線線量計として本報では亜酸化窒素をガラスセルに封入し、 ^{60}Co γ 線で照射し、分解生成物である(窒素+酸素)をサーミスタ圧力計で測定し、照射全線量と分解生成した(窒素+酸素)圧力の間に直線関係があることを明らかにし、線量計としてすぐれたものであることを示した。この線量計は $8.4 \times 10^3 \sim 1.4 \times 10^6$ r/h の線量率で全線量 $8.4 \times 10^5 \sim 1.0 \times 10^9$ r の間で $\pm 10\%$ の誤差で利用できる。 $0 \sim 50^\circ\text{C}$ の間で温度依存性がなく、照射後の安定性良好で測定値は加成性をもつ。照射セルは $5\phi \times 50$ mm くらいまで小形化され、測定も簡単に行なうことができる。

1. 緒 言

放射線線量測定方法には物理的方法と化学的方法がある。化学的方法を用いた化学線量計は物理的方法を用いた放射線測定器に比べ、(1) 検知部が小形である、(2) 検知部を任意の形状とすることができる、(3) 吸収線量の測定を行なっている、などの特長があり、両法はそれぞれ適当な使用範囲を分担していくものと考えられる。

化学線量計のうち、 10^9 r (レントゲン) の大線量を測定することができるのは亜酸化窒素線量計のみである。しかし γ 線を測定する目的の亜酸化窒素線量計はまだあまり研究されておらず、測定可能な線量範囲、線量率依存性などが明らかでなく、しかも使用に際して非常に不便であるということになっている。

本報では亜酸化窒素線量計について不詳な点を明らかにするとともに、実用に便利な測定方法、測定器などを試作した結果について述べる。

亜酸化窒素〔正しくは酸化(二)窒素〕は常温で気体として存在し、最近では笑気として麻酔用にボンベに入れて市販されている。その放射線による分解機構については Dondes⁽¹⁾ により調べられたが、最終的には $\text{N}_2\text{O} \rightarrow \text{N}_2 + \text{O}_2 + \text{NO}_2$ の反応式にまとめることができる。

Dondes はこのようにして放射線分解の結果生成する物質を (1) (二)酸化窒素 NO_2 を比色法で定量し、(2) 亜酸化窒素および(二)酸化窒素を冷却して凝縮させ、残存する(窒素+酸素)をガス容量分析によって定量し、これらの定量値と照射線量の間に直線関係が成立することを示し、線量計として用いることを提案した。しかし、(1)の(二)酸化窒素の比色は特殊の比色管を照射セルとして用いなければならないので、任意の形状、大きさのものをを用いることがむずかしく、しかも測定線量範囲が限られている。(2)のガス容量分析はかなり複雑な装置と調整を要し、手軽に測定を行なえるとはいいがたい。それゆえに、分解生成ガスの定量をもう少し簡単に行なうことができるような方法を見出すことが亜酸化窒素線量計の実用化には必要である。

亜酸化窒素の放射線分解で生成するガスの圧力は、残存亜酸化窒素を冷却して凝縮させたのちには数 mmHg 以下と推定される。この範囲の圧力を測定するには水銀圧力計が用いられているが亜酸化窒素と水銀は γ 線照射に際して反応し、水銀表面に黒色微粉末を生じ、これがガラス壁に付着し、水銀メニスカスの高さの測定が不可

能となる。それで、この線量計には水銀圧力計を使用することができない。また油圧力計も一般に用いられているが、この場合には油が放射線分解をしてガスを発生するので用いることができない。ピラニ真空計、電離真空計、熱電堆真空計、フィリップス真空計、クヌートセン真空計などでは数 mmHg の圧力測定は不可能であるか、または精度が良くない。これらは α トロン真空計とともに検知部が大形で線量計として使用するには不適當である。隔膜圧力計は、放射線の吸収のおそれがあるため、金属材料を使用できないし、また小形のものの製作が困難である。

このように大部分の真空計は亜酸化窒素線量計には使用できないが、サーミスタ圧力計は測定圧力範囲も適合しており、検知部が小形であり、付属測定器も簡単なものでよく、この目的には最も適當な圧力計であると考え、これを使用することにした。

2. 実 験

2.1 亜酸化窒素

これは昭和電工株式会社製 40.6 l ボンベ入りのものを使用した。市販品には不純物として種々のガスが混在していることが考えられたので精製して使用した。

亜酸化窒素を精製するには、まず液体窒素で冷却したトラップを通して凝固させ、この温度では凝縮しない窒素、水素を真空ポンプで排気して除く。次にドライアイス-トリクロロエチレン寒剤 (-80°C) で冷却したトラップを通し、この温度で凝縮する(二)酸化窒素、炭酸ガス、水を除いた。

2.2 照射セルへの封入

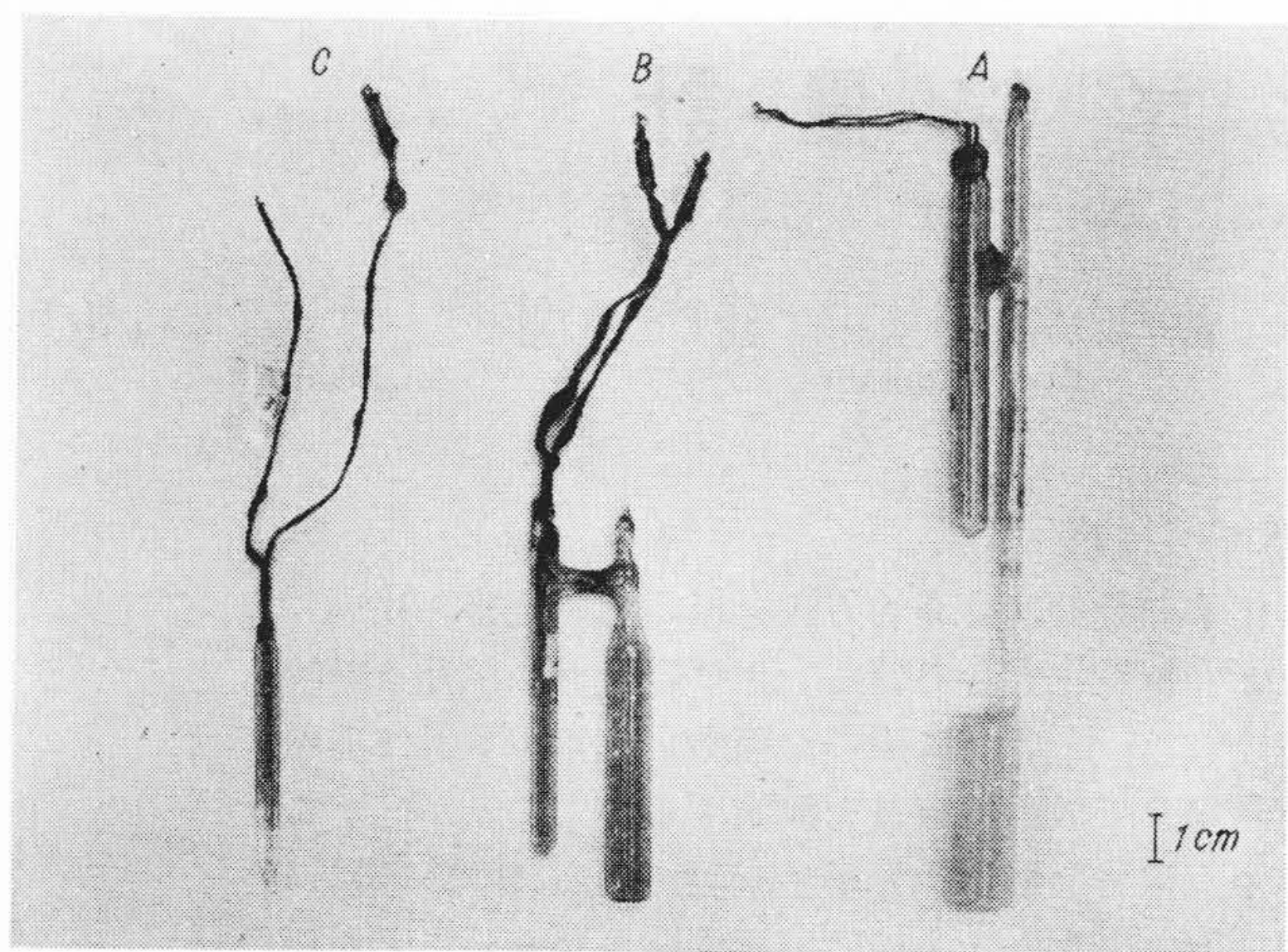
このようにして精製した亜酸化窒素を照射セルに入れ溶封する。第1図に照射セルを示す。

亜酸化窒素を封入する際の圧力は、測定しようとする線量により数 mmHg $\sim$ 760 mmHg の間に区分する。これは分解生成する(窒素+酸素)の圧力を測定するに都合のよい大きさとするために行なった区分である。

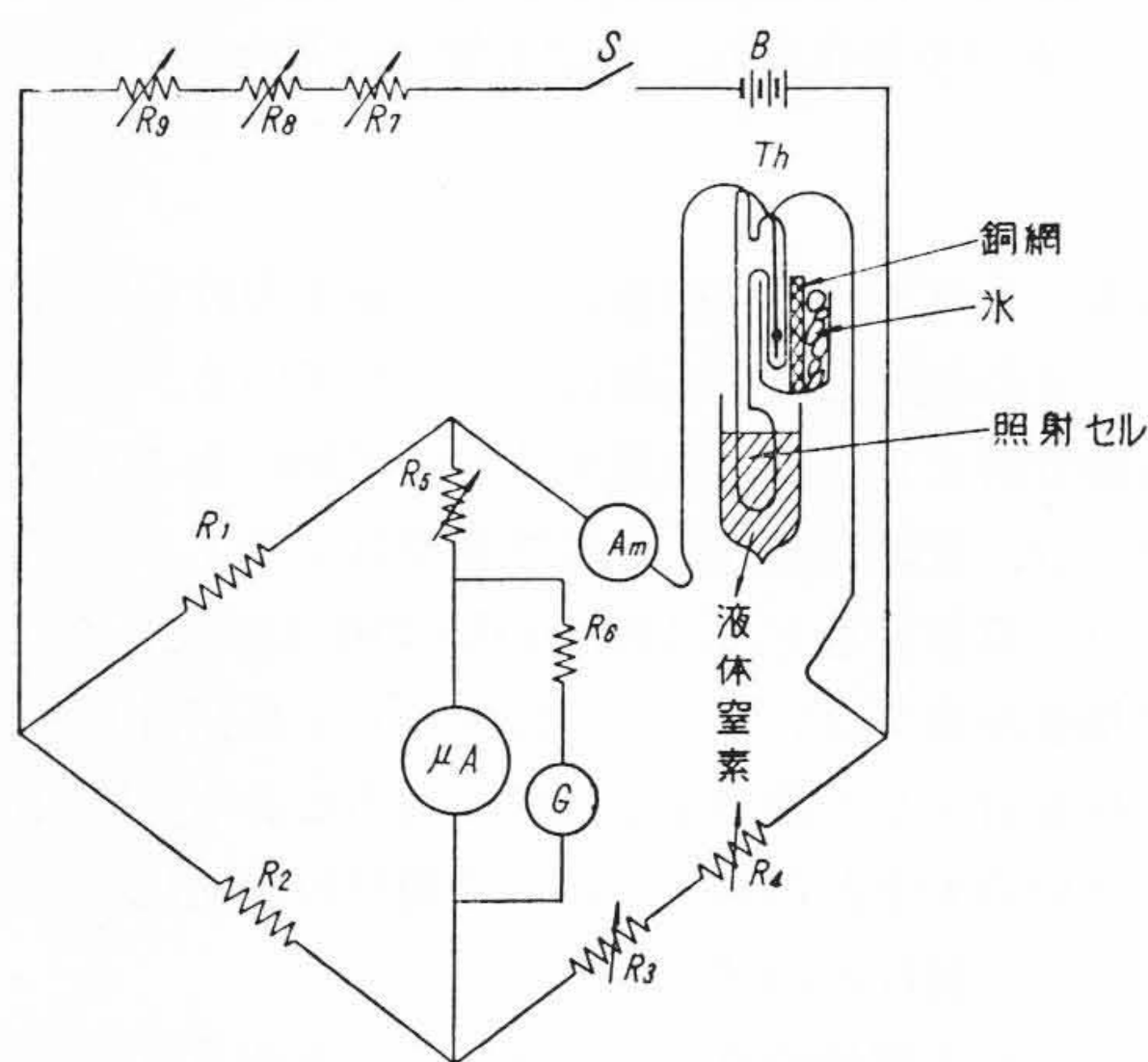
2.3 サーミスタ圧力計による圧力測定法

第1図に示したように照射セルにはサーミスタを封入してある。サーミスタに一定の強さの電流を通じると、サーミスタは加熱される。照射セル内の気体の種類および圧力によりサーミスタの放熱状態が異なるゆえ、サーミスタの温度はそれぞれの状態に応じて低下する。サーミスタの温度をセルの中が真空の場合と同じに保つには電流をより多く流さなければならない。サーミスタに流す電流を

* 日立製作所中央研究所



第1図 亜酸化窒素量計照射セル



Am: 電 流 計	R5: 0~10 kΩ
V: 電 圧 計	R6: Shunt 10 kΩ
Th: Thermister	R7: 0~10 Ω
G: Galvanometer	R8: 0~100 Ω
R1, R2: 750 Ω	R9: 0~1 kΩ
R3: 500 Ω	B: Battery 7.5~24 V
R4: 0~500 Ω	S: Switch

第2図 亜酸化窒素線量計圧力測定回路図

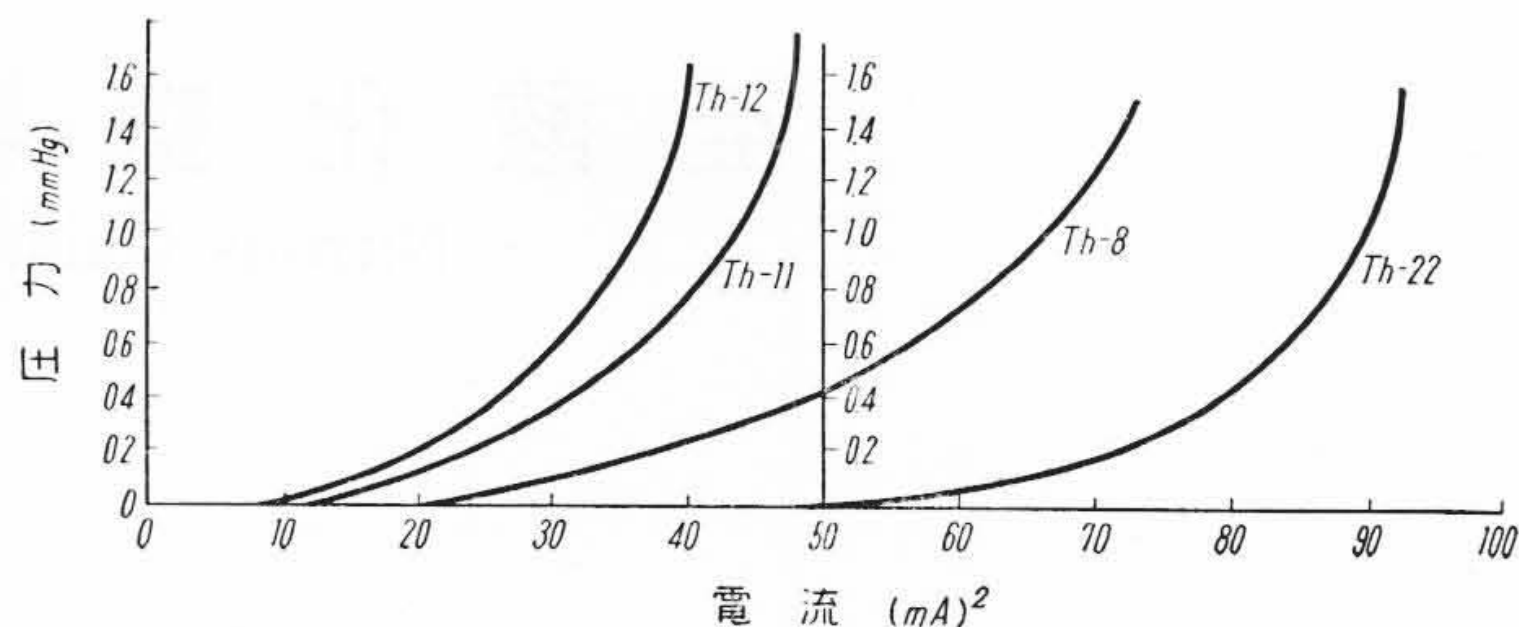
i , セル内の気体の圧力を p とすると,

$$i^2 = K_1 p + K_2 \dots \dots \dots (1)$$

の関係が成立することが知られている。ここで K_1 は気体の種類により, K_2 は気体の種類によらない恒数である。しかし, この関係は i の値の広い範囲では成立しないので, 各サーミスタごとにまえもって亜酸化窒素を封入するまえに i^2-p 関係を測定しておかなければならない。

i^2-p 関係の測定は第2図に示したホイットストンブリッジに接続して行なった。すなわち, セルを 10^{-5} mmHg の真空とし, ブリッジの R_3-R_4 を調節して G が振れなくなる点を求め, そこで R_3-R_4 を固定する。そのときの i が Am の読みから求められ, (1) 式の K_2 に相当する。サーミスタの圧力に対する感度を良くするために K_2 は 1 mA 以上であることが必要で, B の電圧を適当に選んで 1 mA 以上とする。次にセル内の圧力を順次 1 mmHg まで高めてゆき, 各圧力に対応する i を R_7-R_9 を調節して G の振れなくなったときの Am の読みから求める。このようにして測定した i^2-p 関係の数例を第3図に示す。この際にセル内に入れる気体は, 窒素と酸素の熱伝導度が非常に近いので, 放射線分解で生じると同じ窒素, 酸素の割合の混合気体を用いる必要はなく, 空気を用いてよい。

i^2-p 関係はサーミスタごとに異なった特性を示すが, p の比較的大きい値を測定しようとする場合には傾斜の小さいものを, p の比較的小さい値には傾斜の大きいものを用いるようにする。



第3図 サーミスタ圧力計の i^2-p 関係

i^2-p 関係の測定が終わったら 2.2 に述べたようにして亜酸化窒素を封入し, 溶封する。この際, 亜酸化窒素は一部ではあるが, 酸水素焰の高温の影響を受け熱分解し, 窒素や酸素を生じるので, ふたたび i を測定し照射前の真の p を求め照射後の p の測定値から差引かなければならない。

サーミスタは数種の金属酸化物を焼結して作られ, 放射線に対しては安定であると考えられるが, 念のため全線量 6.6×10^8 r で照射し, 照射前後の i^2-p 関係を比較した。その結果, 測定誤差の範囲内ではほとんど変化がみられず, この程度の放射線線量測定に使用できることがわかった。

2.4 ^{60}Co γ 線照射

線量率 2.0×10^5 r/h までは日立製作所の設備で, それ以上は日本原子力研究所の設備で行なった。日立製作所の設備は昭和36年3月8日にラドコン標準線量計で線量率を測定した。原子力研究所のものは昭和36年2月1日に決められた値⁽²⁾が通知されている。本報告で用いた線量率値はこれらの値に, 照射実験までの期間における ^{60}Co の崩壊による減少を補正して用いた。

3. 実験結果および考察

3.1 照射セルの小形化

亜酸化窒素を封入し, γ 線照射を行ない, 線量を測定するに用いるセルは実験の進行につれて第1図A→Bとしたいに小形化して行なった。しかしA, Bの形式のセルでは, p の測定の際に第2図に示したように, 主容積を占める部分を液体窒素で冷却し, 亜酸化窒素などを凝固させ, サーミスタ封入枝管を氷で冷却して放射線分解で生成する(窒素+酸素)の圧力を測定する。このようにセルを二つの部分に分け, 2種の冷媒を用いて冷却しているかぎり, 小形化には限界があることはいうまでもない。

しかし検知部セルの小形化は, 頭初に述べたように, 化学線量計の特長の一つであるので, いっそうの小形化が望ましい。それで第1図Cに示したように枝管のないセルを試作した。

この寸法は約 $5 \phi \times 50$ mm で, サーミスタ封入を行なうことができる最小限度のものである。このような形式のセルで p を測定するには, サーミスタ封入部まで液体窒素に漬ければよい。このようにしても p の測定は支障なく行なわれ, 操作も簡単化されることがわかった。

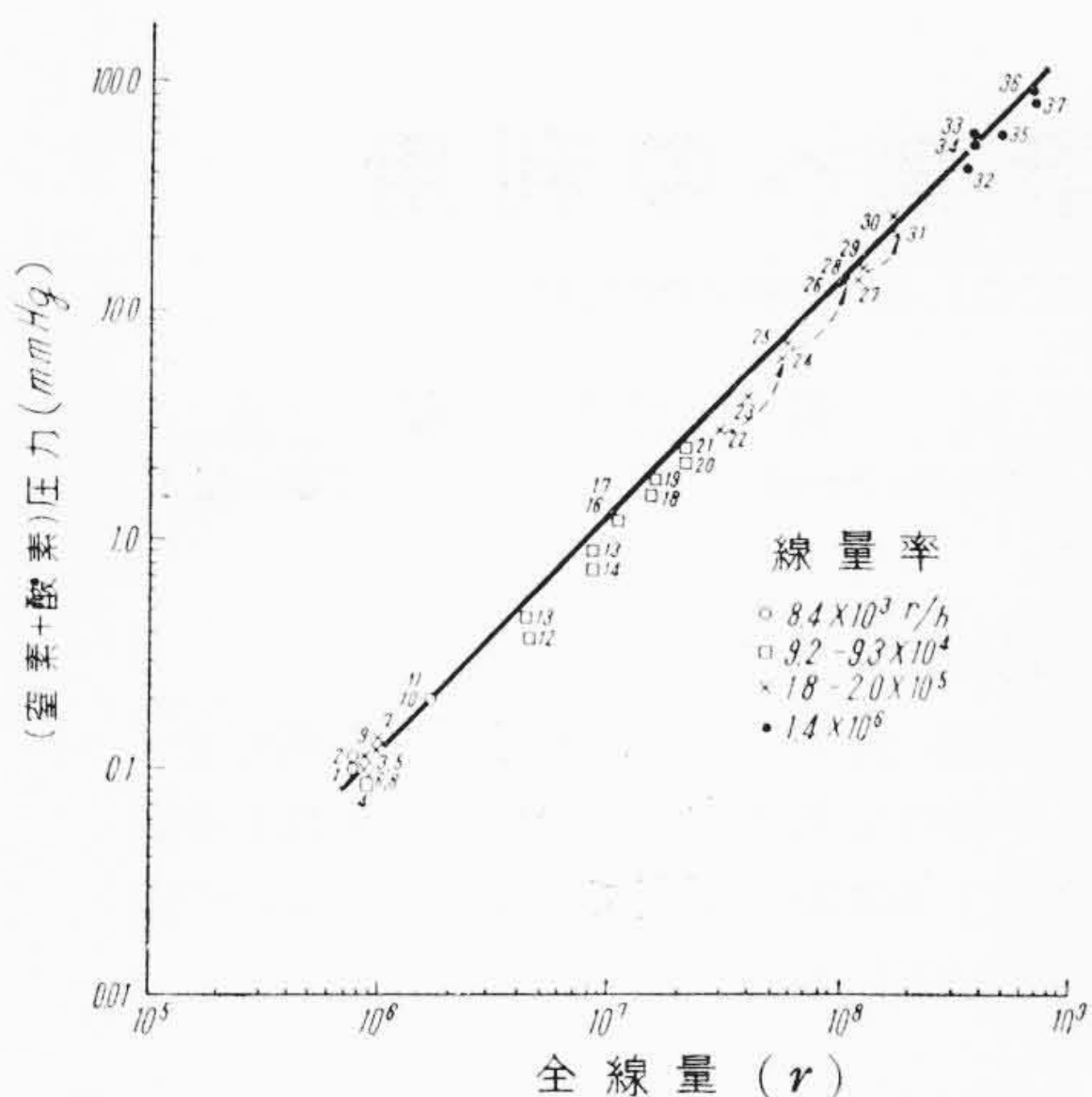
3.2 全線量と(窒素+酸素)圧力の関係

種々の形式のセルを用い種々の条件で測定した全線量と(窒素+酸素)圧力(p)の関係を第4図に示す。すなわち $10^6 \sim 10^9$ r の範囲では $r-p$ は良好な直線関係を示す。最小自乗法により $r-p$ の関係を求めると

$$p = 1.07 \times 10^{-7} r \dots \dots \dots (2)$$

となる。(2)式により p を求めたときの誤差は $\pm 10\%$ であった。

Dondes はセル中に $\text{U}^{235} \text{O}_2$ を封入し原子炉中で中性子で照射し, U^{235} の核分裂に伴って放出される β , γ 線の線量測定に亜酸化窒素線量計を用いた。Dondes の結果では 3×10^7 r 以上の線量では直線関係から多少かたよっているが, 本報の結果は 10^9 r までまったく



第4図 全線量-(窒素+酸素) 圧力関係

直線関係が成立していることが著しい相違である。この原因は主として両実験で照射に用いた放射線の線質が異なっているためと考えられる。

このように亜酸化窒素線量計は $10^6 \sim 10^9$ r の ^{60}Co γ 線線量範囲内ではすぐれた線量計ということができ、ほかの化学線量計が 10^8 r までしか用いられないことと比べ、著しい特長をもっているといえることができる。

3.3 線量率依存性

第4図に示した結果は $8.4 \times 10^3 \sim 1.4 \times 10^6$ r/h の間で種々の線量率で照射を行なったもので、線量率依存性はほとんどみられない。Dondes の結果では 3×10^7 r 以上では線量率依存性があり、本報の結果と多少異なるが、3.1に述べたように線質が異なっているために起こったことと考えられる。

3.4 温度依存性

本研究では 0°C および 50°C においても照射し、温度依存性を検討したが、常温照射の結果と比べ著しい相異は見られなかった。

3.5 照射後の安定性

γ 線照射終了後測定までに放置する時間が測定値に影響するかど

うか調べた。その結果少なくとも25日間の放置では測定誤差範囲内で(窒素+酸素)圧力は不変であることがわかった。

このように亜酸化窒素線量計は照射後の安定性が良好であるため、途中で照射を中止し、いったん線量を測定し、また照射を続けて線量を測定するということが可能である。すなわち、この線量計は測定値に加成性があることがわかる。第4図に破線および矢印を付した測定値は、このように途中で照射を中止し線量測定を何回も行なったものを示す。

4. 結 言

亜酸化窒素をガラスセルに封入し、 ^{60}Co γ 線で照射し、分解生成物である(窒素+酸素)をサーミスタ圧力計で測定し、照射全線量と分解生成した(窒素+酸素)圧力の間に直線関係があることを明らかにし、線量計としてすぐれたものであることを示した。この線量計は $8.4 \times 10^3 \sim 1.4 \times 10^6$ r/h の線量率で全線量 $8.4 \times 10^5 \sim 1.0 \times 10^9$ r の間で $\pm 10\%$ の誤差で使用できる。 $0 \sim 50^\circ\text{C}$ の間で温度依存性がなく、照射後の安定性が良好で測定値は加成性をもつ。照射セルは $5\phi \times 50$ mm くらいまで小形化され、測定も簡単に行なうことができる。

これはいままで用いられている化学線量計と比べて、特に 10^9 r までの大線量測定が可能であること、小形であること、照射後の安定性の良いことがすぐれている。

本研究は35年度原子力平和利用委託研究費を交付されて行なったものである。研究を行なうにあたり、ご指導いただいた日立製作所中央研究所北川部長、 ^{60}Co γ 線照射を願った斎藤主任研究員、繁田研究員、サーミスタ製作を願った二木主任研究員に厚くお礼申し上げる。また随時協力いただいた当研究室中井主任、寺西研究員、実験を担当した関口邦夫君にお礼申し上げる。

参 考 文 献

- (1) S. Dondes: A/Conf. 15/p/151, 14, 176-8 (1956)
- (2) 日本原子力研究所 Co-60 γ 線照射室: 共同利用説明書 p. 4 (昭 36. 1. 20 改正)



特 許 の 紹 介



特許第286707号

中 村 省 一 郎

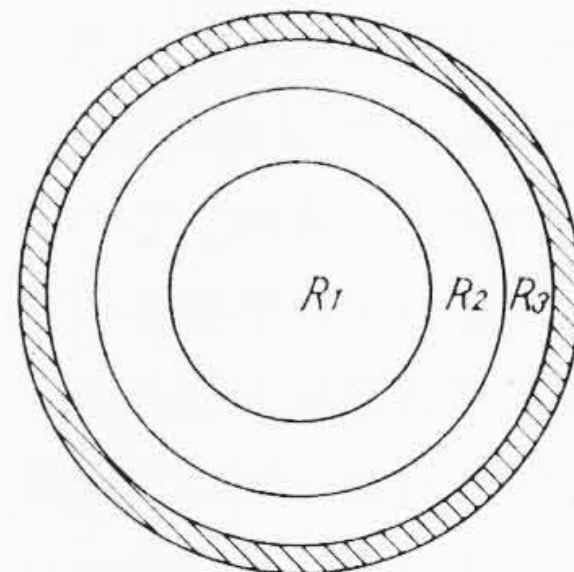
原 子 炉 の 核 燃 料 入 替 方 法

原子炉炉心は、中性子束が炉中心部で高く、外部に向って低くなるサイン分布をしているので、燃料棒を装てん後、炉内で移動しないと各燃料棒は配置された位置の条件に従った中性子照射を受けて、反応することになり、炉心部の反応状態を不均等なものとする。

この発明は、新品燃料棒が廃棄体となる間に、どの燃料棒も均一な中性子照射を受けるようにし、また炉運転中、炉心のいずれの部分でも中性子照射量によって決まる性質が一樣な燃料棒の配置を行なえる方法を提案するものである。

この発明による炉心は、同心円状にして、 $2N$ 本の燃料棒からなる層、つまり図において $R_1 R_2 R_3$ に示すように分割された型に構成される。

燃料を入れ替える際には、中心の層 R_1 と最外部の層 R_3 に、各層全体の半数、つまり N 本あての燃料棒が装てんされる。そこで、 R_1 層に装てんされた N 本の燃料棒は、次の入替時には R_2 層に移され、さらに次の入替時に R_3 層に移される。つまり R_1, R_2, R_3 の各層で一定期間、順次に照射を受けたのち、炉外に取り出される。一方 R_3 層に装てんされたものは、これとは逆の方向において、 R_3, R_2, R_1 の順序で移され各層で一定期間照射されたのち炉外に取り出さ



れる。

すなわちこの発明は、燃料棒の入れ替えを行なうに、内側に入れ外側に移していく燃料棒の流れと、外側に入れ内側に向け順次移していく燃料棒の流れを組み合わせ、各燃料棒に均一な中性子照射を行ない、炉心における反応状態を均一なものとするものであり、この発明によれば、前記したような目的を達成し原子炉の運転を良好にし、燃料棒の経済性を高めることができる。

(丸山)