

平成 22 年 6 月 14 日現在

研究種目：基盤研究 (B)
 研究期間：2007～2009
 課題番号：19360431
 研究課題名 (和文) 核変換研究のための高速中性子捕獲微分断面積の高精度測定技術の開発
 研究課題名 (英文) Development of Accurate Measurement Method on Fast Neutron Capture Cross Sections for Study of Nuclear Transmutation
 研究代表者
 原田 秀郎 (HARADA HIDEO)
 日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学研究部門・グループリーダー
 研究者番号：80421460

研究成果の概要 (和文)：高速中性子に対する中性子捕獲断面積の測定精度を飛躍的に向上できる測定技術の開発に資することを目的に、新世代のガンマ線検出器である LaBr₃ 検出器の高エネルギーガンマ線に対する諸特性データを実験的に取得するとともに、LaBr₃ 検出器で構成される全立体角型のスペクトロメータ性能をモンテカルロシミュレーションにより評価した。この結果、LaBr₃ 全立体角型スペクトロメータが、高速中性子捕獲微分断面積の測定に強力なツールとなることを示した。

研究成果の概要 (英文)：To study the applicability of a new generation scintillation detector LaBr₃ for measurements of neutron capture cross sections for fast neutrons, its fundamental performances, such as energy resolution and response functions, were measured. Calorimeters composed of LaBr₃ scintillation detectors were designed and their performances were evaluated using the Monte Carlo simulation code, where their fundamental data on energy resolutions and response functions were used. The simulation showed that the LaBr₃ based calorimeter works as a powerful tool for the measurements of neutron capture cross sections.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	8,900,000	2,670,000	11,570,000
2008年度	1,200,000	360,000	1,560,000
2009年度	1,200,000	360,000	1,560,000
年度			
年度			
総計	11,300,000	3,390,000	14,690,000

研究分野：原子力学

科研費の分科・細目：

キーワード：核データ、中性子捕獲断面積、高速中性子、LaBr₃、シンチレーション検出器

1. 研究開始当初の背景

放射性廃棄物に含まれる核種の核変換手法の有用性を検証するために、核変換対象核

種に対する信頼性の高い核データ（中性子捕獲断面積や核分裂断面積など）が、熱領域から高速中性子エネルギーを含む広範囲のエ

エネルギー領域で求められていた。しかしながら、放射性核種である核変換対象核種に対する高速中性子領域の中性子捕獲断面測定は極めて困難であり、世界的にも測定データが殆ど存在しないか、存在しても測定値間に大きな差異が存在した。一方、研究開発当初、エネルギー分解能、時間分解能、及び検出効率という中性子捕獲断面測定に重要な3要素を同時に満足する新世代のLa系シンチレーション検出器の開発が急速に進んでいた。La系シンチレーション検出器を中性子捕獲断面測定に本格適用した例はなく、その適用性を定量的に検証する必要があった。

2. 研究の目的

核変換対象核種の高速中性子捕獲微分断面の測定精度向上を目的に、全立体角型LaBr₃スペクトロメータの適用性評価を実施する。このために、小型LaBr₃検出器を開発し、エネルギー分解能や応答関数などの諸特性データを取得するとともに、取得した諸特性データをシミュレーション計算に反映させ、全立体角型LaBr₃スペクトロメータの適用性を定量的に評価する。

3. 研究の方法

(1)LaBr₃シンチレーション検出器を1台製作し、そのガンマ線に対する諸特性データ(エネルギー分解能、応答関数等)を低エネルギー領域から高エネルギー領域まで取得する。

(2)諸特性データ取得のため、低エネルギー領域のデータはガンマ線標準線源を用い、高エネルギーガンマ線領域は¹⁴N(n, γ)¹⁵N反応、⁴⁸Ti(n, γ)⁴⁹Ti反応、¹⁹F(p, αγ)¹⁶O反応等の核反応を適用する。

(3)モンテカルロシミュレーション手法を適用することにより、任意のエネルギーに対する検出器の応答関数を計算可能とする。諸特性データは実験的に測定した(2)の結果を反映させる。

(4)有効性を検証したしたモンテカルロシミュレーション計算により、全立体角LaBr₃シンチレーションスペクトロメータを設計し、諸特性を評価する。

(5)複数のサンプルが混在する場合を想定した中性子捕獲断面測定をシミュレーション手法により模擬し、全立体角LaBr₃シンチレーションスペクトロメータの中性子捕獲反応断面測定への適用性を評価する。

4. 研究成果

(1) LaBr₃シンチレーション検出器の開発

中性子捕獲断面を測定するためには、低エネルギーガンマ線から約10MeVまでの高エネルギーガンマ線までを計測する必要がある。このためには、可能な限り大型のシンチレーション結晶を用いることが有効であり、図1に示す直径7.6cm長さ7.6cmの円柱型LaBr₃シンチレーション検出器を製作した。

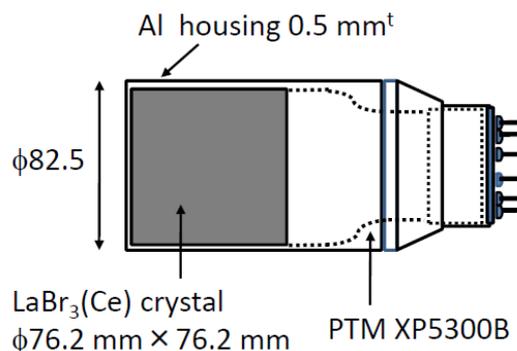


図1 直径7.6cm長さ7.6cmの円柱型LaBr₃シンチレーション検出器断面図

(2) 諸特性データの取得

① エネルギー分解能

原子力機構研究炉JRR-3の中性子導管により得られる熱中性子ビームを用い、¹⁴N(n, γ)¹⁵N反応及び⁴⁸Ti(n, γ)⁴⁹Ti反応を起こし、中性子捕獲反応で発生するガンマ線をLaBr₃検出器により測定した。図2及び図3に得られたスペクトルの例を示す。

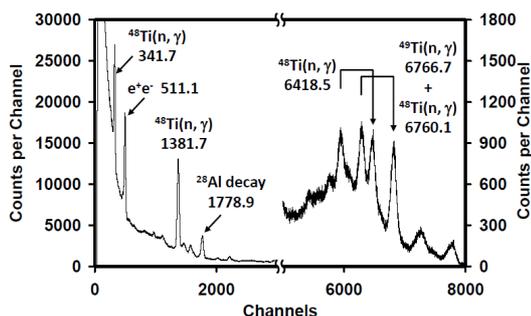


図2 LaBr₃検出器で観測した⁴⁸Ti(n, γ)⁴⁹Ti反応の即発ガンマ線波高スペクトル

低エネルギー領域の測定には、ガンマ線標準線源を用いた。得られたスペクトルより、LaBr₃検出器のエネルギー分解能を0.122~10.829 MeVの範囲で定量的に導出した(図4)。10MeVでのエネルギー分解能は1.2%であり、NaI(Tl)検出器に比べ格段に高いエネルギー分解能を有することを示した。

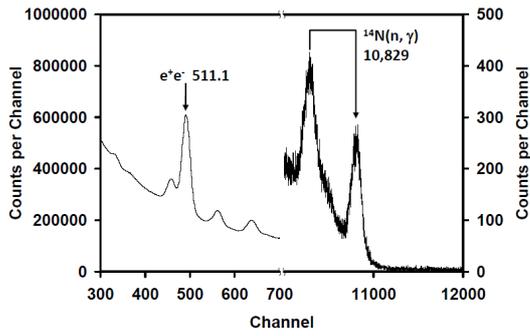


図3 LaBr₃ 検出器で観測した ¹⁴N(n, γ)¹⁵N 反応の即発ガンマ線波高スペクトル

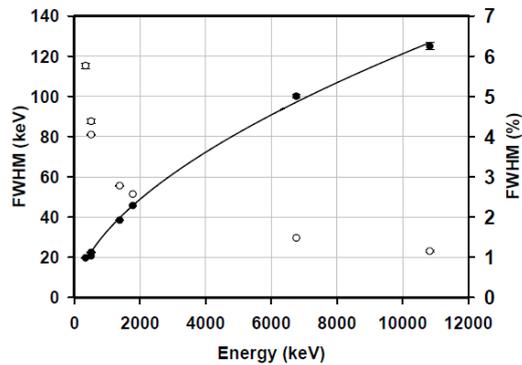


図4 LaBr₃ 検出器のエネルギー分解能
黒丸は、半値幅 FWHM を keV の単位で、
白丸は、% の単位で示す。

② 応答関数

高エネルギーガンマ線に対する応答関数（単色ガンマ線に対するガンマ線波高スペクトル）情報を得るため、原子力機構ペレトロン加速器施設にて、¹⁹F(p, αγ)¹⁶O 反応で発生する 6~7MeV のガンマ線を、LaBr₃ 検出器により計測した。¹⁹F(p, αγ)¹⁶O 反応では、図5で示すような3本の高エネルギーガンマ線を発生する。入射陽子のビームエネルギーは、この場合 2.0MeV である。

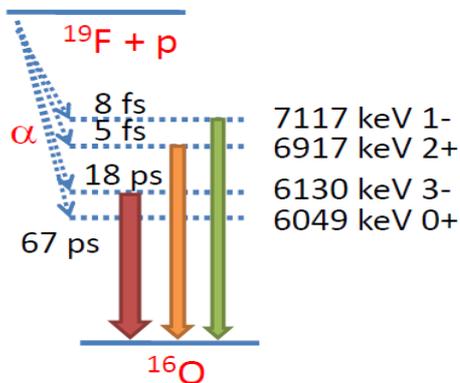


図5 ¹⁹F(p, αγ)¹⁶O 反応で発生するガンマ線

図6の黒色で示した実線は、LaBr₃ 検出器により測定したガンマ線波高スペクトルである。赤い実線は、モンテカルロシミュレーション(コード名は GEANT)により計算したガンマ線波高スペクトルである。図中の朱色、黄緑色、茶色の実線は、モンテカルロシミュレーションにより計算した 7117, 6917, 6130 keV ガンマ線に対する応答関数であり、これらを足し合わせたものが赤い実線のガンマ線波高スペクトルに対応する。モンテカルロシミュレーションの入力として必要な検出器の体系は、低エネルギーのガンマ線標準線源の測定を再現するように微調整したものであるが、高エネルギーガンマ線の応答もよく再現できることが示されている。

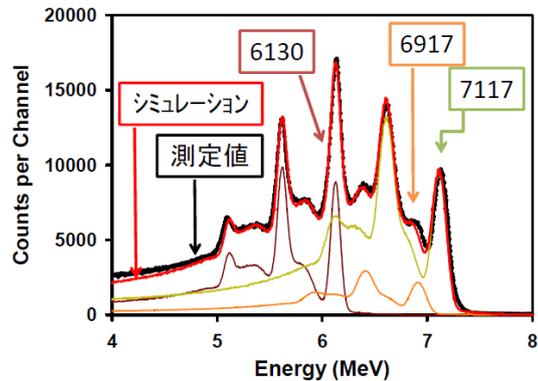


図6 ¹⁹F(p, αγ)¹⁶O 反応で発生するガンマ線波高スペクトル

(3) 全立体角型 LaBr₃ スペクトロメータの性能評価

実験的に取得した小型 LaBr₃ 検出器のエネルギー分解能や応答関数の情報をモンテカルロシミュレーション計算の入力情報として用いることにより、LaBr₃ 検出器で構成される全立体角型、LaBr₃ スペクトロメータの性能を評価した。評価に当たり図7に示す4通りの検出器配置を検討した。配置A及びBは6角柱形状の LaBr₃ 検出器の場合であり、検出器総数は36本及び54本である。配置C及びDは円柱形状の LaBr₃ 検出器の場合であり、検出器総数は36本及び54本である。

各要素検出器の大きさを3種類変化させ、全立体角型スペクトロメータとしての性能を計算した。ここでは、直径97mm長さ244mmの結晶を用いた場合の結果を示す。図8は全検出効率であるが、広いエネルギー領域でフラットな検出効率特性を示すとともに、その値は90%以上と大きい。

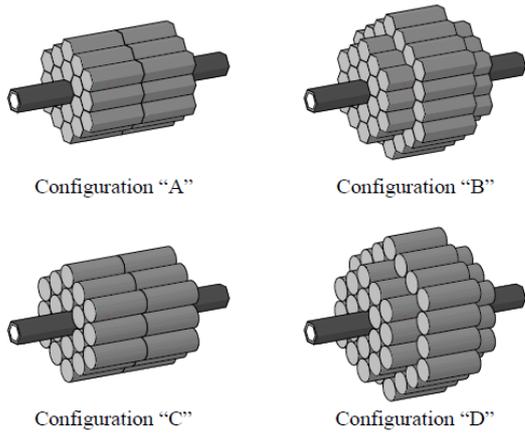


図7 シミュレーションした LaBr₃ 検出器の配置

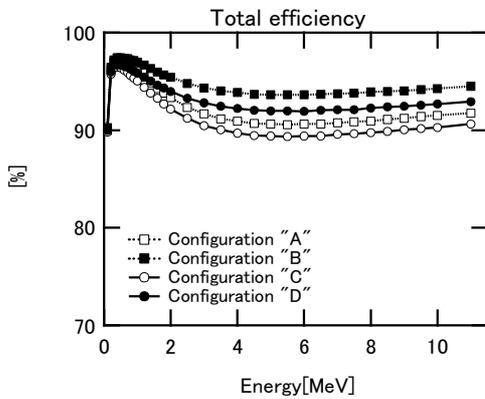


図8 全立体角型 LaBr₃ スペクトロメータの全検出効率

図9はピーク検出効率を示す。約40-60%のピーク検出効率が広いエネルギー範囲で得られることを示している。図10は、ピーク検出効率と全検出効率の比を示す。約45-65%の検出効率比 (S/N比) が広いエネルギー範囲で得られることを示している。

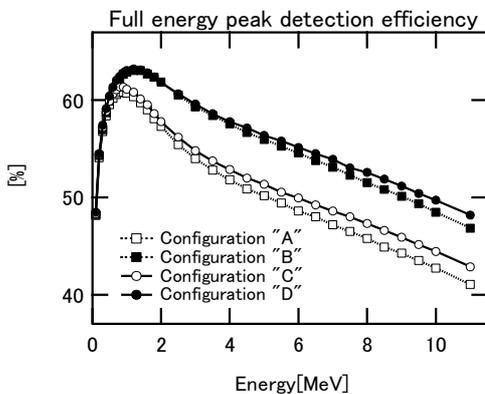


図9 全立体角型 LaBr₃ スペクトロメータのピーク検出効率

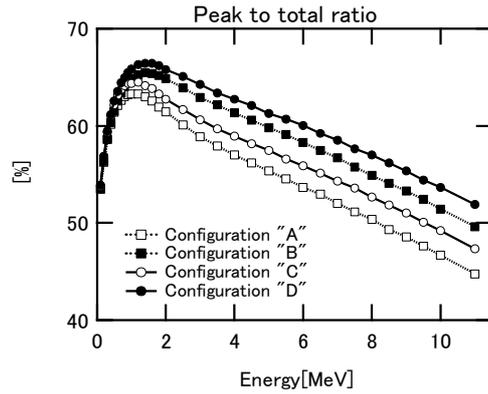


図10 全立体角型 LaBr₃ スペクトロメータのピーク検出効率対全検出効率比

(4) 全立体角型 LaBr₃ スペクトロメータの適用評価

全立体角型 LaBr₃ スペクトロメータの中性子捕獲断面積測定への適用性を評価するため、^{nat}Ag をサンプルとした模擬実験をシミュレーションした。天然の Ag は、¹⁰⁷Ag 及び ¹⁰⁹Ag をそれぞれ 52% 及び 48% 含む。中性子捕獲反応で発生する複雑なガンマ線の分布は、理論計算コード TALYS を用いて計算し、シミュレーションコード GEANT の入力として用いた。

図11にシミュレーションにより得られたガンマ線波高スペクトルを示す。黒い実線は、全ての検出器に付与されたエネルギーを足し合わせた波高スペクトルである。2つのピークは明らかに分離しているが、これらは ¹⁰⁷Ag 及び ¹⁰⁹Ag の中性子捕獲事象に対応するものであり、複数の核種が混在しても分離可能であることを示している。点線は、検出器1台で観測する場合の波高スペクトルのシミュレーション結果であり、核種を分離できないことを示している。

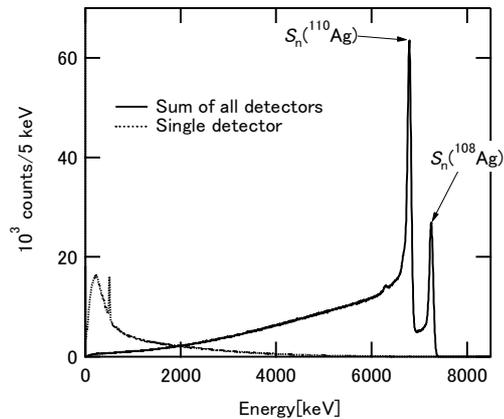


図11 ^{nat}Ag をサンプルとした模擬実験をシミュレーションした LaBr₃ スペクトロメータのパルス波高スペクトル

(5)まとめと今後の展望

LaBr₃ 検出器のエネルギー分解能や応答関数の情報を実験的に約 10MeV のエネルギー領域まで整備した。これらの基礎特性データをモンテカルロシミュレーション計算の入力として用いることにより、LaBr₃ 検出器で構成される全立体角型 LaBr₃ スペクトロメータの性能を評価した。Ag-107 及び Ag-109 を含む天然 Ag をサンプルとした模擬実験をシミュレートした結果、LaBr₃ ベースの全立体角型スペクトロメータは、Ag-107 と Ag-109 からの中性子捕獲事象を高い分解能で分離可能であることを定量的に示した。この分解能は米国のロスアラモス国立研究所や欧州セルン研究所で採用されている全立体角型 BaF₂ 検出器を用いたスペクトロメータよりも約 1 桁高い分解能であり、全立体角型 LaBr₃ スペクトロメータが、高速中性子捕獲微分断面積の測定に強力なツールとなることを示した。また、実際に中性子捕獲反応断面積測定に適用した場合の技術的課題についても有益な知見を得ることができた。今後、大型 LaBr₃ 検出器の製作技術が進捗した場合、中性子捕獲断面積の精度向上に大きく貢献することが期待できる。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

- ① J. GOTO, H. HARADA, F. KITATANI, Y. NAGAI, M. OSHIMA, M. SEGAWA, Y. TOH, DESIGN OF A 4 π LaBr₃(Ce) SPECTROMETER FOR NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION MEASUREMENTS, Nuclear Engineering and Technology, 査読有、投稿中
- ② H. OHGAKI, T. KII, K. MASUDA, H. HARADA, F. KITATANI *et al.* (他 6 名), Performance of the LaBr₃(Ce) Scintillator for Nuclear Resonance Fluorescence Experiment, 2009 IEEE Nuclear Science Symposium Conference Record, 査読無、p.1490-1492 (2009).

[学会発表] (計 4 件)

- ① J. GOTO, H. HARADA, F. KITATANI, Y. NAGAI, M. OSHIMA, M. SEGAWA, Y. TOH, DESIGN OF A 4 π LaBr₃(Ce) SPECTROMETER FOR NEUTRON CAPTURE CROSS SECTION MEASUREMENTS、核データ国際会議 ND2010、2010 年 4 月 26 日、韓国済州島
- ② H. OHGAKI, T. KII, K. MASUDA, H. HARADA, F. KITATANI *et al.* (他 6 名), Performance of the LaBr₃(Ce)

Scintillator for Nuclear Resonance Fluorescence Experiment, 2009 IEEE Nuclear Science Symposium Conference, 2009 年 10 月 28 日、米国オランダ

- ③ 原田秀郎、瀬川麻里子、永井泰樹、北谷文人、藤暢輔、大島真澄、松江秀明、谷村嘉彦、古渡意彦、堤正博、後藤淳、3"×3" LaBr₃(Ce) 検出器の高エネルギーガンマ線に対する性能試験、日本原子力学会 2009 年春の年会、2009 年 3 月 23 日、東京工業大学 (大岡山)
- ④ H. HARADA, Experimental techniques for nuclear data: State of the art and future prospects, 5th Workshop on Neutron Measurements, Evaluations and Applications (NEMEA-5), 2008 年 10 月 29 日、Ljubljana, Slovenia

[図書] (計 0 件)

[産業財産権]

○出願状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況 (計 0 件)

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

[その他]

大学連携ネットワーク (日本原子力研究開発機構と 6 大学) による原子力教育の一環として実施される「放射線に係る科目 (講義項目: 放射線計測)」に反映

6. 研究組織

(1) 研究代表者

原田 秀郎 (HARADA HIDEO)

日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学
研究部門・グループリーダー

研究者番号: 80421460

(2)研究分担者

北谷 文人 (KITATANI FUMITO)
日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学
研究部門・研究員
研究者番号：50421459
(H19→H20: 連携研究者)

大島 真澄 (OSHIMA MASUMI)
日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学
研究部門・上級嘱託
研究者番号：40354815
(H19→H20: 連携研究者)

瀬川 麻里子 (SEGAWA MARIKO)
日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学
研究部門・研究員
研究者番号：00435603
(H19→H20: 連携研究者)

永井 泰樹 (NAGAI YASUKI)
大阪大学・核物理研究センター・協同研究
員
研究者番号：80028240
(H19→H20: 連携研究者)

後藤 淳 (GOTO JUN)
新潟大学・アイソトープ総合センター・助
教
研究者番号：90370395
(H19→H20: 連携研究者)

藤 暢輔 (TOH YOSUKE)
日本原子力研究開発機構・原子力基礎工学
研究部門・研究副主幹
研究者番号：50421459
(H19→H20: 連携研究者)