

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 11 日現在

機関番号：82626

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2014

課題番号：24760057

研究課題名(和文)多層型マンガンバスによる中性子源放出率の絶対測定法の開発

研究課題名(英文)Development of a measurement method of the absolute neutron emission rate using a multi-layered manganese bath detector

研究代表者

松本 哲郎(Matsumoto, Tetsuro)

独立行政法人産業技術総合研究所・計測標準研究部門・主任研究員

研究者番号：70415793

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)： ^{252}Cf および $^{241}\text{Am-Be}$ といった放射性同位元素中性子源は、さまざま産業や研究の分野で利用されている。本研究では、中性子放出率を測定するために放射性溶液を生成しない新しいマンガンバス検出器を提案し、開発する。検出器は、約70%マンガンが含有するマンガン合金板とポリエチレン減速材を多層状に重ね合わせた構造である。測定では、検出器中心に線源をセットし、線源から放出された中性子はポリエチレンで減速され、 $^{55}\text{Mn}(n, \gamma)^{56}\text{Mn}$ 反応によって ^{56}Mn を生成する。 ^{56}Mn から放出されるガンマ線を測定することによって、最終的に中性子放出率を決定する。検出器の評価及び課題について検証を行った。

研究成果の概要(英文)：Radioactive neutron sources such as ^{252}Cf and $^{241}\text{Am-Be}(a,n)$ are used for various purposes. The neutron emission rate (neutrons per second) of the neutron source is very important for radiation protection and safety management. In the present study, we develop a new type of manganese bath for determination of neutron emission rate of a radioactive neutron source. The manganese bath has a multilayered structure composed of polyethylene plates and manganese alloy plates containing 70% manganese. In measurements of neutron emission rate, a neutron source is set in the center of the manganese bath at first. ^{56}Mn is produced by the $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$ reaction. The neutron emission rate is finally determined by measuring gamma rays emitted from ^{56}Mn using a $\text{NaI}(\text{TI})$ scintillation detector with a 5.08 cm diameter and a 5.08 cm length and a high purity Ge detector with relative efficiency of 60%.

研究分野：中性子計測

キーワード：中性子放出率 マンガン 放射化 中性子線源 $\text{NaI}(\text{TI})$ 検出器 不確かさ

1. 研究開始当初の背景

非破壊検査や水分計など工業用において²⁵²Cfや²⁴¹Am-Beといった放射性同位元素(RI)中性子線源が多く利用されている。これら中性子線源の作業現場においては、中性子線源に対する放射線管理や品質管理が求められている。その一つとして、放射能(Bq)とは別に、RI 中性子源からの中性子放出率という量がある。中性子放出率とは、1 秒あたりに線源から放出される中性子の数であり、単位は s⁻¹ である。中性子放出率測定は、従来硫酸マンガン水溶液を利用したマンガンバスによって行われるのが一般的である。マンガンバスによる測定では、直径約 1 m の球状の容器に硫酸マンガン水溶液を満たし、その中心に目的の中性子源がセットされる。中性子線源からの中性子は、水溶液中で減速され、マンガンバス内部で⁵⁵Mn(n,γ)⁵⁶Mn 反応によって捕獲される。中性子捕獲反応による放射化で生成された⁵⁶Mn から放出されるガンマ線を測定することによって中性子線源の中性子放出率が求まる。従来のマンガンバスでは、線源から放出される中性子を全吸収させることによって測定を行うため、中性子放出率決定の測定精度が高いという大きな特徴がある。一方で、放射性水溶液を取り扱うため、熟練した技術が必要であることや、重厚な設備が必要となるなど、測定は簡単ではないので、一般では利用されていないのが現状である。そこで、本研究課題では、比較的取扱いが容易であり、かつ現場での測定が可能な中性子放出率絶対測定用の検出器開発を目的とした。

2. 研究の目的

本研究では、比較的取扱いが容易な中性子放出率絶対測定用検出器の開発を目的として、マンガン合金(固体)とポリエチレンを減速材とした多層型マンガンバス検出器の設計及びプロタイプ検出器の作製を行う。プロタイプ検出器による中性子放出率測定を通じて、生産現場の工場等における利用とその信頼性について検証することを目的とした。

3. 研究の方法

ポリエチレン板とマンガン合金を5層ずつ重ねた多層型マンガンバスの開発を行う。検出器に使用する材料としてマンガン含有合金を使用し、大きさとして運べるサイズにするという条件で、マンガン合金の材料選定、モンテカルロシミュレーション計算によって検出器形状等について最適な条件を検討する。次に、作製するプロタイプ検出器の形状で、中性子線源によるマンガン放射化を行った際に、ガンマ線測定を行う手順、データ処理法について確立する。ガンマ線測定には、NaI(Tl)検出器と高純度 Ge 検出器を使用

する。最終的に、研究代表者の施設で所有する中性子線源の中性子放出率を導出する。プロタイプ検出器による中性子放出率測定の不確かさの評価を行い、改良点について考察を行う。

4. 研究成果

(1)多層型マンガンバス検出器の原理

本研究では、固体材料を使用して、中性子の減速と中性子捕獲による放射化を効率的に行う中性子放出率測定用検出器の設計を行った。中性子減速材としては、一般的に利用される高密度ポリエチレンを用いる。放射化材料としては、建築資材として利用されるマンガン合金スターサイレント(D2052:大同特殊鋼株式会社)を採用した。採用した合金は、市販材料であり比較的安価であると同時に、ステンレス材と同様な加工が可能である。そのため、純マンガン金属を加工することや純マンガンや酸化マンガン粉末を固化させて利用するよりもメリットが大きい。また、粉末を使用する場合には、水分含有量が放射化に大きな影響を及ぼすが、合金の場合には、その影響も考慮しなくてよいメリットがある。合金の組成は表1に示す通りであり、Mnの他の主な成分は、Cu、Ni、Feである。目的のマンガンが70%以上含有されており、かつその他の原子核について、放射化測定で長寿命の核種が生成されないことが特徴である。

表1 スターサイレント材の組成
(大同特殊鋼株式会社成績表)

Mn	Cu	Ni	Fe	
70.3	22.4	5.1	2.0	wt%

検出器は、図1に示すように12 mm厚のマンガン合金板と8 mm厚高密度ポリエチレン板を交互に5枚ずつ重ね合わせた構造である。一番外側は、20 mm厚のポリエチレンとした。全体の大きさは一辺が30 cmの立方体である。中性子放出率測定用検出器は、基本的には中性子が検出器内部において中性子が中性子捕獲反応により全吸収されることが望ましい。そのためには、検出器の大きさは1辺60 cm以上であり、中性子捕獲反応の効率を上げるためには、合金板とポリエチレン板の厚さを薄くしなるべく多くの多層構造にすることが望ましいことが本研究におけるシミュレーションによりわかっている。しかしながら、現実的に加工が比較的容易であり、大きすぎない構造にするため、図1のような構造とした。

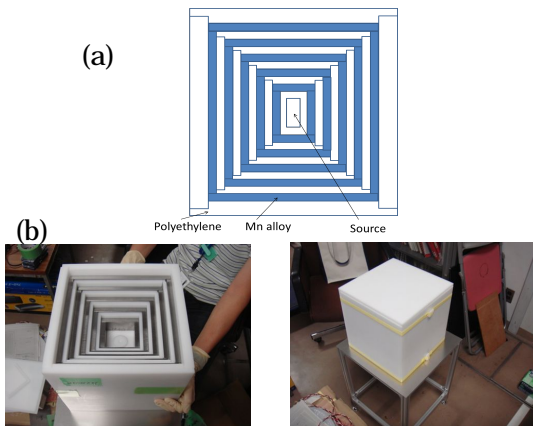


図 1. (a)多層型マンガンバス検出器の断面図。(b)多層型マンガンバス検出器の組み立て時の様子

測定対象の中性子線源が ^{252}Cf である場合について、線源から放出された中性子の検出器内部での挙動について MCNPX モンテカルロシミュレーションコードを用いて検証を行った。図 2 に、計算によって得られた、検出器内部における中性子の振る舞いを示す。中性子線源から放出された中性子は、ポリエチレンによって減速され約 60 %は、 $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$ 反応によって捕獲される。そのほか、 $\text{Cu}(n,\gamma)$ 反応、 $\text{H}(n,\gamma)$ 反応によって捕獲され、残りの約 30 % について検出器外部へ逃れる。したがって、検出器は床に直接置いた場合、床からの散乱中性子による影響を受けてしまう。したがって、測定時は床から約 40 cm 離れた位置で行うようにし、検出器から漏れ出した中性子が床等との散乱によって検出器に戻る量が少なくしている。また、 ^{56}Mn を生成する反応として $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ 反応がある。この反応敷居エネルギーは約 4.5 MeV であり、中性子線源から放出されるエネルギー領域である。しかしながら、 ^{252}Cf 線源の場合、全体に占める $^{56}\text{Fe}(n,p)^{56}\text{Mn}$ 反応の割合は 0.006 % であるため、最終結果に与える影響は小さい。

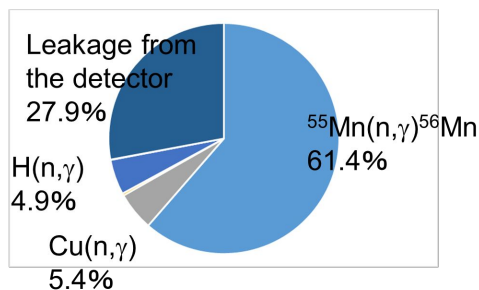


図 2. ^{252}Cf 中性子線源の中性子放出率測定の際に、線源から中性子のマンガンバス検出器内における振る舞い。

(2)マンガン合金ロッド間比較

検出器の作製には、12 枚のスターサイレント板を使用した。本研究では、マンガンの量を把握することが重要である。使用している板の違いで、マンガン含有量に変化がないことを確認した。

確認は、熱中性子による放射化測定と、熱外中性子ビームによる中性子共鳴吸収の測定によって行われた。

熱中性子による放射化測定は、産総研熱中性子場で行われた。産総研熱中性子場は、230 cm × 190 cm × 190 cm 黒鉛パイルとその中心にセットした $^{241}\text{Am-Be}$ 線源から構成されている。スターサイレント材は、3 枚の板を抽出し、20 mm 直径 × 1 mm 厚に加工した。3 個の試料に対して、放射化量と重量の比を取って比較したところ、 $\pm 0.5\%$ 以内で一致した。

熱外中性子ビームによる測定では、京都大学原子炉実験所電子ライナックの施設を利用した。電子ライナックにより加速された 30 MeV 電子を Ta ターゲットに入射させ、光核反応により生成された中性子ビームを使用した。ビーム中に熱中性子場で放射化した試料と同じ試料を設置し、透過中性子の測定を行った。図 3 は、透過中性子の飛行時間測定の結果である。 ^{55}Mn の 341 eV, 1.1 keV, 2.4 keV の共鳴が観測されている。これら共鳴の内、1.1 keV 共鳴を利用し、3 種類の試料を比較した。熱中性子による放射化の結果と同様に $\pm 0.5\%$ 以内で一致した。本研究で使用した各合金板に含有されるマンガンの割合は一致していると考えられる。

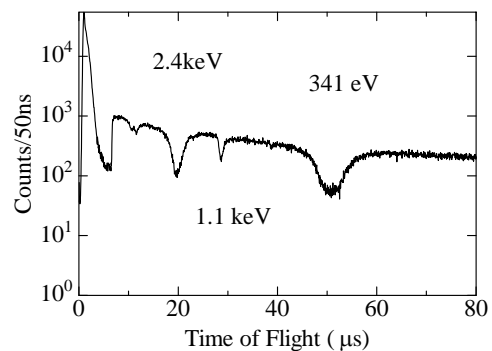


図 3 スターサイレント試料の透過中性子を飛行時間測定した結果。

(3)測定とデータ処理

測定では、中性子線源を検出器の中心にセットする。検出器の内部において、中性子は減速され $^{55}\text{Mn}(n,\gamma)^{56}\text{Mn}$ 反応によって合金中のマンガンによって捕獲される。中性子線源による照射後、中性子線源を取り出し、マンガンバス上辺の板を取り除き、代わりに NaI(Tl)検出器(直径 5.08 cm × 厚さ 5.08 cm)

をマンガンバス検出器中心にセットする。図4は、マンガンバス検出器に NaI(Tl)検出器をセットしたときの様子である。

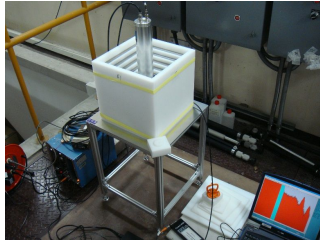


図4. NaI(Tl)検出器による測定の様子。

放射化マンガン (^{56}Mn) は、半減期が 2.58 時間で、847 keV ($I_\gamma=98.9$)、1.81 MeV ($I_\gamma=27.2$)、2.11 MeV ($I_\gamma=14.3$)、2.52 MeV ($I_\gamma=0.99$)の4種類のガンマ線を放出する。そのうち、847 keV のガンマ線に注目し、NaI(Tl)検出器によって測定する。NaI(Tl)検出器によって得られた波高スペクトルを図5に示す。

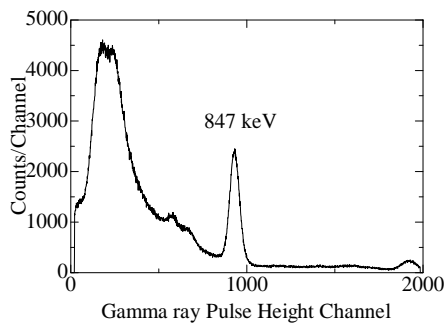


図5 NaI(Tl)検出器によって得られた波高スペクトル。

NaI(Tl)検出器による測定の際に取り外されるマンガンバス上部のマンガン合金については、別途高純度(HP)Ge 検出器 (相対検出効率 60 %) によって測定される。図6はHPGe 検出器によって得られた波高スペクトルである。

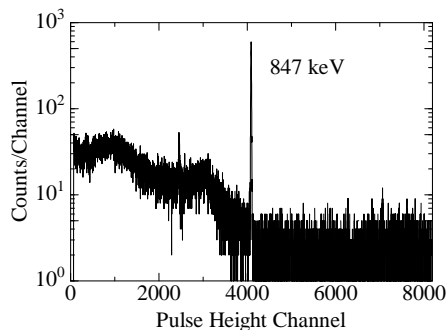


図6 HPGe 検出器によって得られた波高スペクトル。

(4)結果と考察

中性子放出率測定実験は、産総研で所有する 3.7 MBqCf 中性子源を用いて行われ、多層型マンガンバスの特性評価が行われた。データ処理においては、中性子放出率と各マンガン合金層の飽和状態における ^{56}Mn 生成率、各マンガン合金層から 847 keV 単色ガンマ線が放出されたときに、NaI(Tl)検出器で得られる計数率を、MCNPX モンテカルロシミュレーションを用いて計算した。図7は、 ^{252}Cf 中性子線源から放出中性子に対して各マンガン合金層で生成される ^{56}Mn の量である。グラフ左側から右側に向かって、マンガン合金の内側から外側の層で生成される ^{56}Mn を示している。図8は、各マンガン合金層から 847 keV ガンマ線が放出された時に NaI(Tl) 検出器で観測される計数率である。図7と図8の結果を利用することによって、NaI(Tl) 検出器で得られた計数率から中性子放出率が求まる。

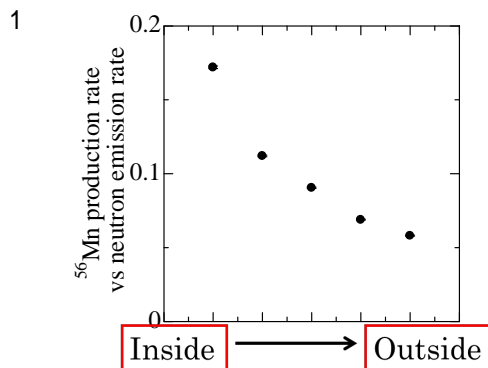


図7 ^{252}Cf 中性子線源から放出中性子に対して各マンガン合金層で生成される ^{56}Mn の量。

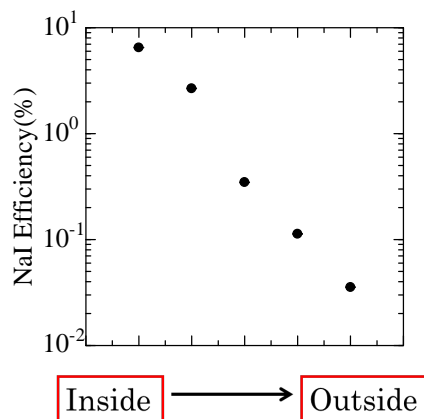


図8 各マンガン合金層から 847 keV ガンマ線が放出された時に NaI(Tl)検出器で観測される計数率。

各マンガン合金層で生成される ^{56}Mn 量の計算結果について妥当性を確認するために、NaI(Tl)検出器による測定をするために取り外した上辺のマンガン合金板を HPGe 検出

器で測定した。図 9 は、 ^{252}Cf 線源から 1 個の中性子が放出されたときに、各マンガン合金層で ^{56}Mn が生成され、847keV ガンマ線を HPGe 検出器で測定したときの計数率について、MCNPX による計算と測定結果の比を取ったものである。図 9 に示した不確かさは、計数の統計に起因するもののみである。図 9 の結果は、おおむね計算結果と測定結果は一致しているが、5%程度のばらつきがある。結果の不確かさとしては、加工精度のより詳細な検証、多層に組み上げる際の隙間による中性子のストリーミングや減速効果に対する影響の検証が必要であると考えられ、現時点においては少なくとも 10%の不確かさを見込んでいる。

最終的に、 ^{252}Cf 線源の放出率は、 1.85×10^5 (10%) /s と得られた。一方、産総研の国家標準で校正された結果は、 1.91×10^5 (2%) /s である。不確かさ内で、一致した結果となった。

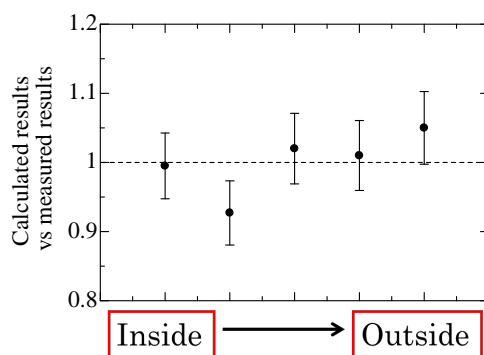


図 9 ^{252}Cf 線源から 1 個の中性子が放出されたときに、847keV ガンマ線を HPGe 検出器で測定したときの計数率に対する計算と測定結果の比

(5) 今後の課題

中性子放出率の結果を導出際に、放射線防護や品質保証に利用するためには、より精度を向上させる必要がある。中性子放出率結果の精度を向上させるために、計算に依存している部分を減らすことなどいくつかの課題があり、今後の研究で反映させていく予定である。以下に本研究で得られた主な課題を示す。

- ・NaI(Tl)検出器の検出効率の不確かさを低減するため、847 keV ガンマ線に対する NaI(Tl) 検出器の検出効率を 4 同時計数装置による ^{56}Mn 放射能絶対測定から導出する。

- ・マンガン合金中に生成される ^{56}Mn は分布を持つので、その分布を結果に反映させるように補正する。

- ・多層型マンガンバスの内部構造を、線源を設置する位置を中心に対称性を良くし、検出器上辺のマンガン合金板の測定で得られる各層で生成される ^{56}Mn 量の相対分布を、NaI(Tl)測定に反映させる。

上記の課題に加え、 $^{241}\text{AmBe}$ 線源による測

定など、複数種類の線源測定を行い、不確かさも 1~2%程度に低減することを目指す。

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. T. Matsumoto, H. Harano, A. Masuda, J. Hori, Development of a new type of manganese bath for determination of neutron emission rate of a neutron source, Conference record of IEEE 2014 Nuclear Science Symposium (2014).

2. T. Matsumoto, A. Masuda, H. Harano, H. Tomita, K. Ito, J. Kawarabayashi, T. Iguchi, A. Uritani, K. Watanabe, J. Hori, Y. Sakurai, Development of absolute measurement method for epi-thermal neutrons using a LGB scintillator, KURRI PROGRESS REPORT 2013 (2014).

[学会発表](計 6 件)

1. T. Matsumoto, H. Harano, A. Masuda, Recent Activities in Neutron Standardization at NMIJ/AIST, CCRI(III) 21th meeting, BIPM, France (2015).

2. 松本哲郎、原野英樹、増田明彦、多層型マンガンバスによる中性子放出率導出法の確立、2014 年度計量標準成果発表会、茨城 (2015)

3. T. Matsumoto, H. Harano, A. Masuda, J. Hori, Development of a new type of manganese bath for determination of neutron emission rate of a neutron source, IEEE 2014 Nuclear Science Symposium, US (2014).

4. 松本哲郎、原野英樹、増田明彦、堀順一、多層型マンガンバスを用いた中性子放出率測定法の開発、日本原子力学会 2014 年秋の大会、京都(2014)

5. 松本哲郎、原野英樹、増田明彦、中性子放出率絶対測定用多層型マンガンバスの開発、2013 年度 NMIJ 成果発表会、茨城 (2014)

6. 松本哲郎、原野英樹、増田明彦、中性子放出率測定のための多層型マンガンバス法の開発、第 50 回アイソトープ・放射線研究発表会、東京(2013)

[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：
出願年月日：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

<http://www.nmij.jp/~quant-rad/neutron/newhp.html>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松本 哲郎 (MATSUMOTO TETSURO)

独立行政法人産業技術総合研究所・計測標準研究部門・主任研究員

研究者番号：70415793