

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：32667

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2015

課題番号：26800148

研究課題名(和文)新素材プラスチックシンチレータを用いた原子炉モニターの開発

研究課題名(英文)Reactor monitor development using new material plastic scintillator

研究代表者

小野 裕明(Ono, Hiroaki)

日本歯科大学・新潟生命歯学部・准教授

研究者番号：70453925

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,600,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、現在市販されていないガドリニウム含有プラスチックシンチレータを常温硬化型の樹脂を用いて開発し、安価に作成することで大型化し、原子炉で生成される大量のニュートリノを測定することで、原子炉内の状況をモニターする原子炉ニュートリノモニターの開発を目的としている。本研究期間内ではガドリニウム含有プラスチックシンチレータの開発に成功した他、樹脂選定による発光量の大幅向上が得られた。さらに中型サンプルを作成することで、ニュートリノの擬似信号の検出にも成功した。

研究成果の概要(英文)：We developed the gadolinium doped plastic scintillator cured at room temperature, which is not commercially available for now, and we try to develop the reactor neutrino monitor in order to scan the inside of reactor using the large amount of neutrinos generated in the reactor core. In this research period, we succeed to develop the new gadolinium loaded plastic scintillator and improve the light yield after selecting better resins.
We also succeed to detect the pseudo neutrino signal using new middle size scintillator sample.

研究分野：高エネルギー物理学

キーワード：プラスチックシンチレータ ガドリニウム 原子炉モニター

1. 研究開始当初の背景

研究開始当時、国際原子力機関(IAEA)は、核エネルギーの平和利用と原子炉燃料の安全保障措置として小型の原子炉ニュートリノモニターの開発に関心を持っており、国際的に幾つかの研究グループにより原子炉ニュートリノモニターの実証実験が行われていた。原子炉ニュートリノモニターは、炉心からウランの核分裂反応により発生する大量の反電子ニュートリノを原子炉近傍で観測することで、原子炉内の状況をモニターするものである。ニュートリノの検出は、検出器中での逆ベータ崩壊反応($\bar{\nu}_e + p \rightarrow e^+ + n$)から放出された陽電子と中性子を測定することで可能となる。

一般的に原子炉ニュートリノ検出には、中性子検出向上のために熱中性子断面積が非常に大きいガドリニウムを含有した液体シンチレータが用いられていた。より原子炉近傍に設置しつつ安全性を確保するために、可燃性液体をベースにした液体シンチレータではなく、固体プラスチックシンチレータを用いた原子炉ニュートリノモニターの開発が検討されていた。しかしながら、ガドリニウムを含有するプラスチックシンチレータは市販されていなかったため、先行研究(科研費 研究課題 23340063)において、企業と共同で新規にガドリニウム含有プラスチックシンチレータを開発し、試作シンチレータの作成に成功した。試作シンチレータの性能評価を行った結果、発光量は市販の標準的なシンチレータ(サンゴバン社製 BC408)と比較して15~20%程度と小さかった。また共同研究を行っている企業に試作品の作成を依頼していたため、測定結果のフィードバックによる改良などが迅速に進まなかった。開発速度をより加速させるため、新潟大学研究室内へ研究開発設備を構築し、シンチレータ性能向上のために、樹脂の再選定を行って添加剤の最適化などを行うことが急務であった。

2. 研究の目的

本研究では、先行研究で試作したガドリニウム含有プラスチックシンチレータの樹脂素材から見直し、新素材を用いたガドリニウム含有プラスチックシンチレータの性能向上と、原子炉ニュートリノモニターとして応用利用を目的とする。特に、先行研究で作成したシンチレータは発光量や透過率が市販のシンチレータと比較して低かったため、シンチレータの樹脂選定から再度行い、シンチレータ発光量の向上を目指す。また、今まで共同研究を行っている企業に試作シンチレータの作成を依頼していた点を改善し、新潟大学研究室内で作成できるように開発環境を整備して、開発・測定・性能評価のサイクルを作り、結果のフィードバックにより性能向上を目指す。

樹脂選定によってシンチレータの性能が向上した場合には、原子炉モニターの小型試

作モジュールを作成して、 ^{60}Co ガンマ線源を用いたエネルギー較正や Am/Be 中性子線源を用いたニュートリノ検出能力の検証を行う。

シンチレータに添加する物質については、ガドリニウムだけではなくホウ素化合物の添加についても検討し、中性子検出の別アプローチも目指す。

また、ガドリニウム含有プラスチックシンチレータ用いた1トンサイズの原子炉ニュートリノモニターでのニュートリノ検出能力や炉内状況のモニター性能について、Geant4シミュレーションを用いて性能評価を行う。

3. 研究の方法

先行研究において得られた知見を十分に生かしながら、プラスチックシンチレータの性能を向上させていく。特に新潟大学物理学科高エネルギー研究室における開発環境を整備して、企業で作成していたプラスチックシンチレータを、作成手法を踏襲しながら研究室内で開発できるようにする。また、小型サンプルを大量に作成して効率よく測定できるように、ベータ線を用いたデータ取得システムに用いる読み出し用の光電子増倍管や VME ADC モジュールを複数準備し、効率的に試作シンチレータの測定・計測・評価を行えるようにしていく。

先行研究ではプラスチックシンチレータの発光量が市販のシンチレータと比較して小さかったため、共同研究企業から化学的な組成に関するアドバイスを受けながらシンチレータ樹脂材料の再選定を行い、樹脂配合の最適化などにより発光量の向上を目指す。また、蛍光剤の割合の最適化や添加する機能性物質の選定などによっても発光量の向上が出来ないか検討する。

樹脂選定や添加剤の検討により発光量が増加した場合には、10 cm 角 2 cm 厚さ程度の試作シンチレータを作成して、エネルギー較正に必要なガンマ線検出能力の検証を、コンプトンエッジの測定で行う。最も良い性能が得られた樹脂については、さらに 5 kg サイズ程度の中型試作シンチレータを作成して、 ^{60}Co ガンマ線源を用いてエネルギー較正を行い、Am/Be 線源を用いたニュートリノ擬似信号の遅延同時計測法による測定を試みる。

中性子の検出にはガドリニウムだけではなく、ホウ素なども一般的に使われるため、ホウ素を添加した新素材プラスチックシンチレータの開発も進めていく。特に一般に市販されているホウ素含有プラスチックシンチレータは大変高価であり、用途やサイズが限定されてしまっているため、本研究で使用している常温硬化樹脂を使用し安価に作成できれば、中性子検出器の幅を広げる意味でメリットは大きい。本研究では樹脂に溶解するホウ素添加材料の選定などを行い、白濁などが起きない程度に添加できる濃度の最適化などを行っていく。

1 トンサイズ程度の大型化については、本研究予算では足りないためシミュレーションを用いて検証を行う。ガドリニウム含有プラスチックシンチレータを用いた場合の原子炉ニュートリノの検出効率や炉内状況モニターとしての性能評価については、先行研究のシミュレーションプログラムを踏襲しながら、より精密に検証して評価していく。また、含有する物質についてもガドリニウム以外にもホウ素含有プラスチックシンチレータの場合についてもシミュレーションを用いて検出方法の検討を行っていく。ホウ素含有の場合には中性子吸収プロセスは、プラスチックシンチレータでの検出が難しい線やリチウムが放出されるため、検出方法の検討も含めて同様の大型検出器におけるシミュレーションを行い評価する。

4. 研究成果

今回の研究費を使用して、新潟大学理学部物理学科 高エネルギー物理学研修室内にVMEの測定システムと、試作シンチレータ開発のための作成セットアップを構築出来た。研究室に専用の金型や樹脂製型を準備することで、常温で硬化するシンチレータの試作品を開発できるようになり、性能評価とフィードバックまでが迅速に行えるようになった。

樹脂の発光量については、4 cm×7.5 cm×3 mm 厚の試作シンチレータを作成して⁹⁰Sr線源のベータ線を用いて測定を行った。発光量の比較として市販のプラスチックシンチレータ(サンゴパン社製 BC408)も同時に測定を行い、市販品との比を測定した。今回小型の型を多量に準備したことで、研究室内で種類かの異なる樹脂を使ったシンチレータを同時並行で作成することが出来るようになり、スムーズに結果を確認して結果をフィードバックすることができた。

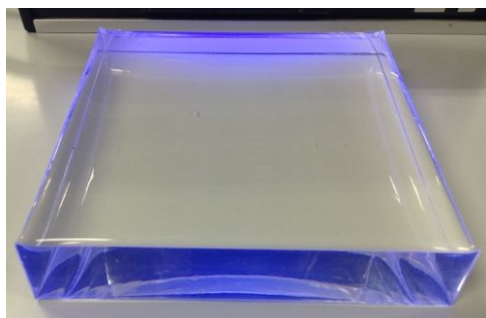


図 1 10cm 角試作シンチレータの紫外線発光

共同研究を行う企業からもアドバイスをもらいながら進めることができたため、先行研究で使用していた樹脂から色づきが低下した新しい樹脂を用いて作成することができた。黄変が少ない樹脂を再選定して、シンチレータ樹脂を変更したことによって、市販シンチレータ BC408 と比較して発光量が、先

行研究では 20% (BC408 比)程度の発光量しか到達できていなかったものが 50%程度まで到達出来るようになった。ガドリニウムを含有した場合は、BC408 比で 35%程度の発光量が得られるようになり、原子炉ニュートリノモニターへの応用利用が期待出来るようになってきた。

発光量が BC408 比で 50%に到達した新型の樹脂を用いて、さらに 10cm 角程度の小型ブロックを作成してガンマ線によるエネルギー較正を行った。新型樹脂を用いることで、先行研究でははっきりと見ることが出来なかったガンマ線信号によるコンプトンエッジがフィッティング出来るようになり、エネルギー分解能が向上し、エネルギー較正值の測定精度が向上した。

また、性能の向上したシンチレータ樹脂にガドリニウムを添加して、5 kg サイズの中型シンチレータを作成して、ニュートリノ擬似信号の検出能力を検証した。ニュートリノの擬似信号としては Am/Be 線源を用いて、 $\alpha + \text{Be} \rightarrow \text{C}^* + n \rightarrow \gamma + n$ の反応で放出される線 (4.43 MeV) と、中性子がシンチレータ中のガドリニウムに吸収されて放出される合計 8 MeV の線の信号を、遅延同時計測法を用いて測定を試みる。ガドリニウムは熱中性子に対する吸収断面積が大きく、シンチレータ中で中性子が熱化してガドリニウムに吸収されるまでに 30 μs 程度かかるため、線信号を先発、中性子信号を後発信号として同期のとれた信号のみを遅延同時計測法で測定することで、バックグラウンド事象を低減することができる。本研究では、5 kg サイズの試作シンチレータと先行研究で作成したシンチレータで 20 kg 分の 1 モジュールを使用して⁶⁰Co 線によるエネルギー較正から、Am/Be 擬似ニュートリノ線源での遅延同時計測まで一連の流れで測定を行った。

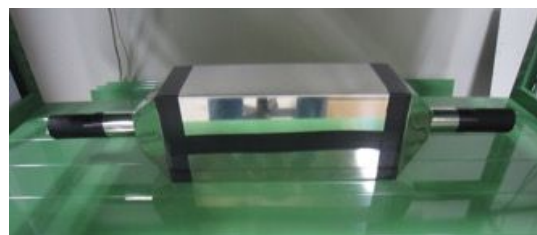


図 2 20 kg シンチレータモジュール

20 kg モジュールを用いた擬似信号の遅延同時計測により 4.43 MeV 付近の線によるコンプトンエッジが確認できた。先行研究と比較して発光量が大きくなったため、光電子増倍管の印加電圧を低下させて信号増幅器を使用せずに測定できるようになり、飛躍的に性能が向上した。一方、中性子のガドリニウム捕獲による信号は、線が複数本出のたいては検出器が全てを吸収するだけのサイズがないため、明確な中性子吸収信号は

得られなかった。しかしながら、中性子捕獲までの先発信号と後発信号の時間差分布を測定したところ、25 μ s 程度の平均中性子捕獲時間が得られ、同型サイズでのシミュレーションによる検証結果とも一致が見られた。ガドリニウムを含有しない場合、水素捕獲により 200 μ s 程度の平均捕獲時間となるため、中性子がガドリニウムに捕獲された信号を検出できたと考えられる。

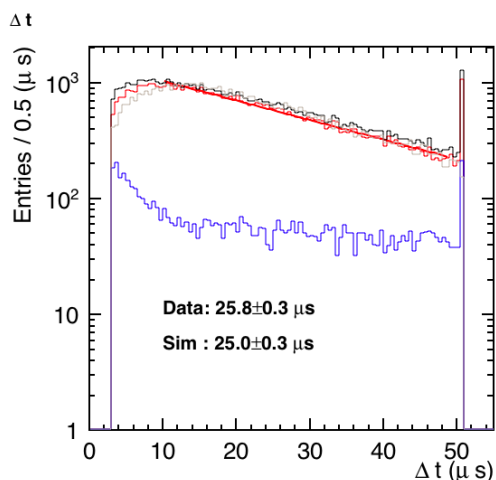


図 3 中性子捕獲時間の分布

さらに中性子捕獲のための別なアプローチとして、ホウ素を含有したプラスチックシンチレータの開発も進めてきた。シンチレータ樹脂に溶解できるホウ素化合物をいくつか選定し、白濁などせずに混合できる化合物が見つかったため試作品を作成した。発光量はガドリニウム含有シンチレータと同程度の発光量が得られたため、10cm 角サイズのシンチレータを作成して中性子信号の検出を試みた。ホウ素の場合中性子の捕獲反応では、 $n + {}^{10}\text{B} \rightarrow \alpha + {}^7\text{Li}$ の反応により飛程の短い線とリチウムが放出されるため、クエンチ効果によってシンチレータの発光量は非常に小さくなる。明確な信号が検出されないと考えられるため、Am/Be 線源を使用した場合、線源を設置しない場合のデータとの差分をとる方法で中性子信号の検出を試みた。測定の結果、中性子信号と思われる余剰が測定されたため、ホウ素による中性子の捕獲信号が観測されたと考えられる。これにより、市販のホウ素含有プラスチックシンチレータと比較して安価に作成することができるようになった。

今後はシンチレータ性能のさらなる向上のために、発光量や透過率の向上、長期安定性の測定などを行い、現実的な使用に耐えるプラスチックシンチレータの開発を行っていく。

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 件)

〔学会発表〕(計 8 件)

小野裕明、斎藤栄輔、田村正明、松井達滉、宮田等、渡辺みのり、Gd 含有プラスチックシンチレータを用いた原子炉ニュートリノ検出器の開発、日本物理学会、2016 年 3 月、東北学院大学

松井達滉、斎藤栄輔、宮田等、小野裕明、田村正明、渡辺みのり、新型プラスチックシンチレータを用いた原子炉モニターの研究、日本物理学会新潟支部例会、2015 年 12 月、新潟大学

E.Saito, H.Ono, M.Tamura, M.Katsumata, T.Matsui, H.Miyata, T.Suzuki, Y. Yamaguchi, M. Watanabe New cold setting plastic scintillator for radiation detection, SPVM フィリピン中南部物理学会、2015 年 10 月、フィリピンカピテ州立大学

H.Ono, H.Miyata, M.Katsumata, T.Matsui, E.Saito, T.Suzuki, M.Tamura, M.Watanabe, Y.Yamaguchi, Reactor Neutrino Detector using Gd loaded Plastic Scintillator, フィリピン中南部物理学会、2015 年 10 月、フィリピンカピテ州立大学

小野裕明、伊藤祐介、斎藤栄輔、宮田等、渡辺みのり、鈴木崇民、田村正明、山口容史、原子炉ニュートリノ検出器のためのガドリニウム含有プラスチックシンチレータの開発、日本物理学会、2015 年 3 月、早稲田大学

渡辺みのり、宮田等、伊藤祐介、小野裕明、勝亦正明、斎藤栄輔、鈴木崇民、田村正明、山口容史、プラスチックシンチレータを用いた原子炉ニュートリノ検出器の開発 2、日本物理学会、2015 年 3 月、早稲田大学

斎藤栄輔、伊藤祐介、小野裕明、勝亦正明、渡辺みのり、宮田等、鈴木崇民、田村正明、山口容史、原子炉ニュートリノ検出器のためのプラスチックシンチレータ開発、日本物理学会新潟支部例会、2014 年 12 月、新潟大学

伊藤祐介、宮田等、小野裕明、勝亦正明、鈴木崇民、田村正明、山口容史、渡辺みのり、プラスチックシンチレータを用いた原子炉ニュートリノ検出器の開発、日本物理学会、2014 年 9 月、佐賀大学

〔図書〕(計 件)

〔産業財産権〕
出願状況(計 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 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〕

ホームページ等

<http://www.hep.sc.niigata-u.ac.jp/~vnd/>

<http://ml.ngt.ndu.ac.jp/~ono/research/>

6. 研究組織

(1) 研究代表者

小野裕明 (ONO, Hiroaki)

日本歯科大学・新潟生命歯学部・准教授

研究者番号：70453925

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：