

(9) その他

熱中性子フルエンス標準の トランスファ技術の開発

利用者 ○原野英樹¹、松本哲郎¹、曾我部直希²
所属 ¹産業技術総合研究所、²名古屋大学

本課題におけるトライアルユースは、日本原子力研究開発機構（原子力機構）JRR3即発ガンマ線分析装置を用いて、5月11日～15日の4日間（準備1日、ビームタイム3日）にわたって行われた。

産業技術総合研究所（以下、産総研）では、外部に優れた熱中性子場を得ることで、国家標準にトレーサブルな熱中性子校正場の開発を目指している。JRR3即発ガンマ線分析装置（PGA）は、即発ガンマ線分析のために熱外中性子成分が極めて少ないかつ高強度の熱中性子ビームが得られるため、熱中性子校正場としての観点から大変魅力的である。PGAを国家標準にトレーサブルな熱中性子校正場として開発できれば、その技術は即発ガンマ線分析にもフィードバックされ、一層の信頼性向上に貢献できるものと考えられる。本トライアルユースでは、PGAの中性子場の特性評価による現状把握を行い、熱中性子校正場としての実現可能性と問題点について検討する。更に、産総研が所有する熱中性子フルエンス率標準とPGAにおける中性子場を関連付ける標準トランスファ技術を開発する上での基礎データを取得する。計3回のトライアルユースを予定しており、（1）中性子スペクトルの測定、（2）中性子場のバックグラウンドの評価、（3）フルエンス測定、の順に重点を置いた特性評価を行う。2006年11月のトライアルユースの際に（1）は実施され、今回は（2）を実施した。

実験では、中性子検出器として球状³He比例計数管2タイプ（ガス圧2気圧、0.2気圧）とそれぞれに75mmΦのポリエチレン減速材を取り付けたものを組み合わせて、全部で4種類の検出器について測定を行った。実験ジオメトリとして、分析室上流に20mm角コリメータ、0.5mmスリットと6LiF粉末（又は、酸化ガドリウム粉末）で作製されたビームチョッパーを設置し、その後6LiF+テフロン製の5.8mmΦ×50mmのピンホールコリメータを設置して、その後ろに中性子検出器を設置した。中性子モニタ検出器としては³He比例計数管を用い、分析室の端に設置し、散乱中性子を測定した。中性子検出器の設置位置は、3台のレーザー墨出器を用いることによって再現性を良くした。ビームのプロファイルは、中性子イメージングプレートを用いることによって測定し、ピンホールコリメータの設置位置もイメージングプレートの結果から決定された。



分析室内の様子とチョッパー

中性子飛行時間法によりTOFスペクトルを測定すると、時間依存のないバックグラウンドが現れることが前回のトライアルユースの結果から分かったため、その原因を探るために、（1）チョッパーがビームを遮る位置になるようにチョッパーをとめた状態で設置し測定、（2）ビームシャッターをすべて閉じた状態で測定、（3）ビームラインから5cm横に検出器を移動させて測定（オフライン測定）の3種類の測定をそれぞれの検出器について行った。

その結果、6LiFによるチョッパーとGdによるチョッパーのそれぞれを用いた場合の中性子場の特性やバックグラウンドの要因、時間変動に関する基礎データを取得することができた。



作業風景

本トライアルユースで得られた成果は、産総研が所有する熱中性子フルエンス率国家標準の高度化に大きく寄与すると共に、将来的にJRR3施設を利用した各種熱中性子検出器、モニタ類の感度校正を行う中性子校正場開発の可能性を検討できる重要なデータとなる。残る基礎試験を行うため今年度下期のトライアルユースも引き続き希望するものであり、その後標準導入の実用化に向けた技術開発を行うにあたっては、共同研究等を考えている。

最後に、本トライアルユースで多大な協力をいただいた原子力機構・松江秀明氏と瀬川麻里子氏、（財）放射線利用振興協会の皆様に感謝します。



ポリエチレン減速材付き³He比例計数管

熱中性子フルエンス率標準のトランスファ技術の開発

利用者 ○原野英樹¹、松本哲郎¹、下山徹也¹、瓜谷章²、曾我部直希²

所属 ¹(独)産業技術総合研究所、²名古屋大学

本課題におけるトライアルユースは、日本原子力研究開発機構（原子力機構）JRR3即発ガンマ線分析装置を用いて、11月3日～5日の3日間（準備1日、ビームタイム2日）にわたって行われた。

今回のトライアルユースの実験目的は、産総研が所有する熱中性子フルエンス率標準と任意の熱中性子場を関連付ける標準トランスファ技術の開発である。本研究では、産総研熱中性子標準場で特性評価がなされている中性子検出器を用いて任意の熱中性子場の測定を行い、中性子スペクトルの補正等を行い、任意の場に対して国家標準に対してトレーサブルな熱中性子フルエンス率を与えることを目指す。JRR3即発ガンマ線分析装置では、チョッパーを利用した中性子飛行時間法によるスペクトル測定が可能であり、かつ熱外中性子成分が少ない純粋な熱中性子場であるという特徴があることから、トランスファ技術開発を行うにあたり最良の熱中性子場であると考えられる。この技術は、現在産総研で開発中の遠隔校正システムの構築や熱中性子フルエンス率国際基幹比較にも大きく寄与するものである。

実験では、中性子検出器として球状³He比例計数管2タイプ（ガス圧2気圧、0.2気圧）とそれぞれに75mmΦのポリエチレン減速材を取り付けたものの組み合わせで、全部で4種類の検出器について測定を行った（図1、図2）。実験ジオメトリとして、分析室上流に20mm角コリメータとビームチョッパー（図3）を設置し、その後6LiF+テフロン製のピンホールコリメータ（図4）を設置して、その後ろに中性子検出器を設置した。ビームモニタ検出器として³He比例計数管を分析室に設置し、散乱中性子を計測することによってビーム強度をモニターした。中性子検出器の設置位置は、3台のレーザー墨出器を用いることによって再現性を良くし、ビームのプロファイルは、中性子イメージングプレートを用いることによって測定した。最後に金箔の放射化法による、熱中性子フルエンスの絶対測定を行った。また、10Bからの即発ガンマ線測定による中性子フルエンス測定を、即発ガンマ線分析装置の高純度Ge検出器を用いて行った。



図1：球状³He比例計数管

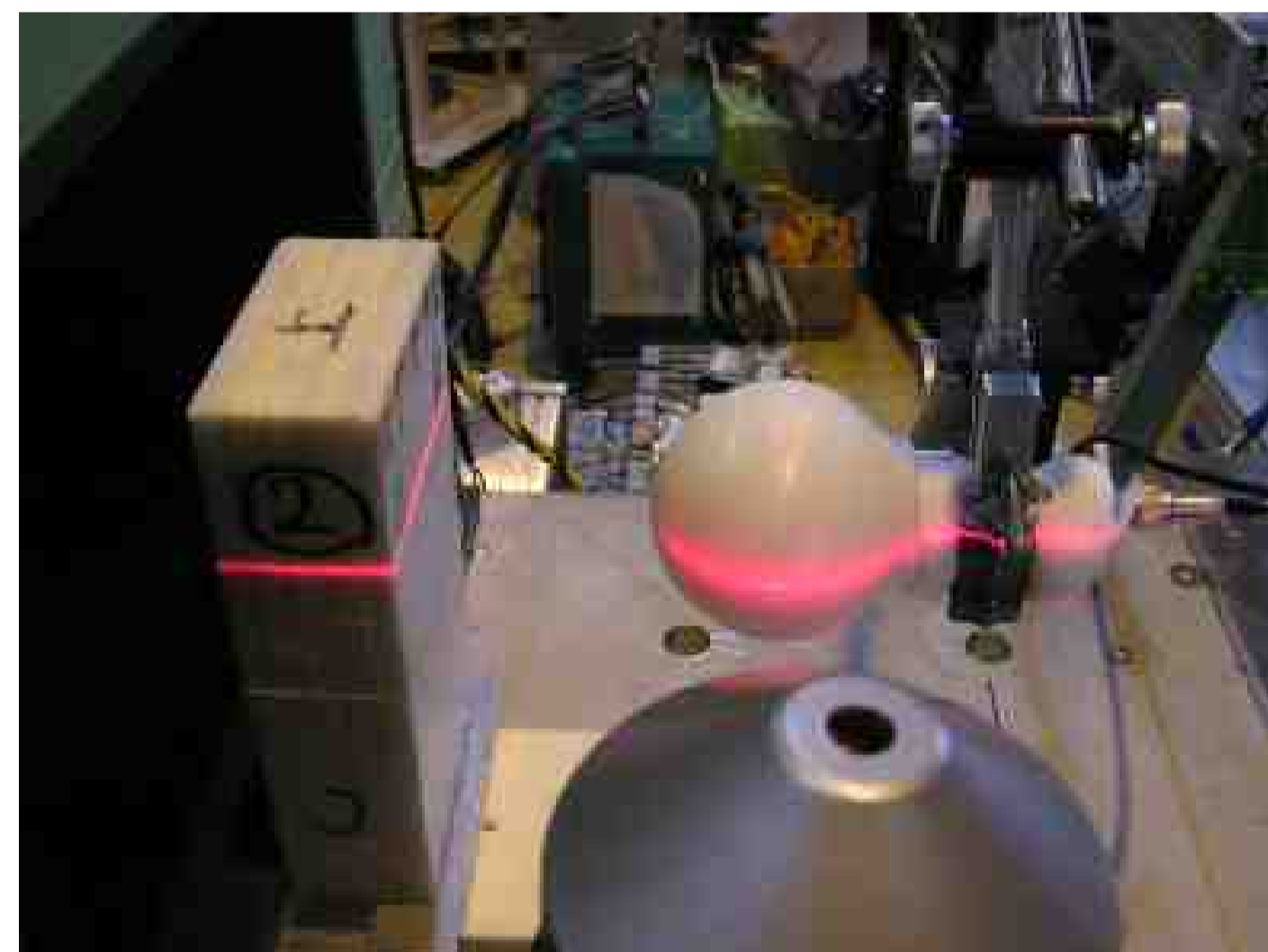


図2：ポリエチレン減速材つき³He比例計数管



図3：ビームチョッパー



図4：即発ガンマ線分析装置における熱中

本実験のデータ処理を現在行っている最中である。本研究にて得られた本トライアルユースの成果は、今後学会や論文誌での発表を予定しており、産総研が所有する熱中性子フルエンス率国家標準の高度化に大きく寄与する。また、将来的にJRR3施設を利用した各種熱中性子検出器、モニター類の校正業務を通じた中性子標準供給の可能性を探る上で重要なデータとなり、JRR3施設の利用分野を広げることにも貢献できるものと考えている。来年度以降の施設利用も引き続き希望するものである。

最後に、本トライアルユースで多大な協力をいただいた原子力機構・松江秀明氏と瀬川麻里子氏、（財）放射線利用振興協会の皆様に感謝します

国家標準にトレーサブルな熱中性子校正場としての利用に関わる基礎データ評価

利用者 ○原野英樹¹、松本哲郎¹、曾我部直希²

所属 ¹産業技術総合研究所、²名古屋大学

はじめに：

本課題におけるトライアルユースは、日本原子力研究開発機構（原子力機構）JRR3即発ガンマ線分析装置を用いて、9月1日～3日の2日間（ビームタイム2日）にわたって行われた。

産業技術総合研究所（以下、産総研）では、外部に優れた熱中性子場を得ることで、国家標準にトレーサブルな熱中性子校正場の開発を目指している。JRR3即発ガンマ線分析装置（PGA）は、即発ガンマ線分析のために熱外中性子成分が極めて少ないかつ高強度の熱中性子ビームが得られるため、熱中性子校正場としての観点から大変魅力的である。PGAを国家標準にトレーサブルな熱中性子校正場として開発できれば、その技術は即発ガンマ線分析にもフィードバックされ、一層の信頼性向上に貢献できるものと考えられる。本トライアルユースでは、PGAの中性子場の特性評価による現状把握を行い、熱中性子校正場としての実現可能性と問題点について検討する。更に、産総研が所有する熱中性子フルエンス率標準とPGAにおける中性子場を関連付ける標準トランスファ技術を開発する上での基礎データを取得する。今回で3回目のトライアルユースであり、これまでは（1）中性子スペクトルの測定、（2）中性子場のバックグラウンドの評価を行い、今回は現状において可能な範囲で高精度のフルエンス測定を実施した。

実験：

実験では、中性子検出器として球状³He比例計数管2タイプ（ガス圧2気圧、0.2気圧）とそれぞれに75mmφのポリエチレン減速材を取り付けたものを組み合わせて、全部で4種類の検出器について測定を行った。実験ジオメトリとして、分析室上流に20mm角コリメータ、1mmスリットと酸化ガドリウム粉末(Gd₂O₃)で作製されたビームチョッパーを設置し、その後⁶LiF+テフロン製の5.2mmφ×50mmのピンホールコリメータを設置して、その後ろに中性子検出器を設置した。中性子モニタ検出器としては分析室端に設置した³He比例計数管とピンホールコリメータ横に設置した小型中性子プローブを用いた。プローブは、1mmφ×1.5mmの⁶Li-glassシンチレータでプラスチック光ファイバーをライトガイドとして光電子増倍管に接続している。中性子検出器の設置位置は、イメージングプレートで最適な位置を決定し、2台のレーザー墨出器を用いることによって再現性を良くした。

比例計数管での測定は、中性子飛行時間と波高の2次元測定を行った。比例計数管は、産総研の黒鉛パイルによる熱中性子標準場において応答関数が測定されており、データ処理によって得られる結果は、国家標準にトレーサブルとなる。産総研熱中性子標準場とPGAの熱中性子場の違いによる比例計数管の感度特性の違いについては、MCNPモンテカルロシミュレーションによって補正を行う。

また、金箔の放射化法による中性子フルエンスの測定も行い、比例計数管の測定を検証するためのデータとした。現在、得られた実験データを詳細にデータ処理している段階である。図1に、本実験で得られた中性子スペクトルを示す。また、PGAにおいて中性子フラックスの変動についてモニタした結果（図2）、1～2%の変動があることが分かった。図3、4に比例計数管の測定、小型中性子プローブでの測定の際の写真を示す。

まとめ：

本トライアルユースで得られた成果は、産総研が所有する熱中性子フルエンス率国家標準の高度化に大きく寄与すると共に、PGAの信頼性向上に繋がるものと考えられる。今回のトライアルユースで、PGAを熱中性子場として利用するための現状把握は終了し、この経験を基に今後共同研究として国家標準にトレーサブルな中性子校正場開発を進め、場の詳細な分析を実施していきたいと考えている。

最後に、本トライアルユースで多大な協力をいただいた原子力機構・松江秀明氏、（財）放射線利用振興協会の皆様に感謝します。

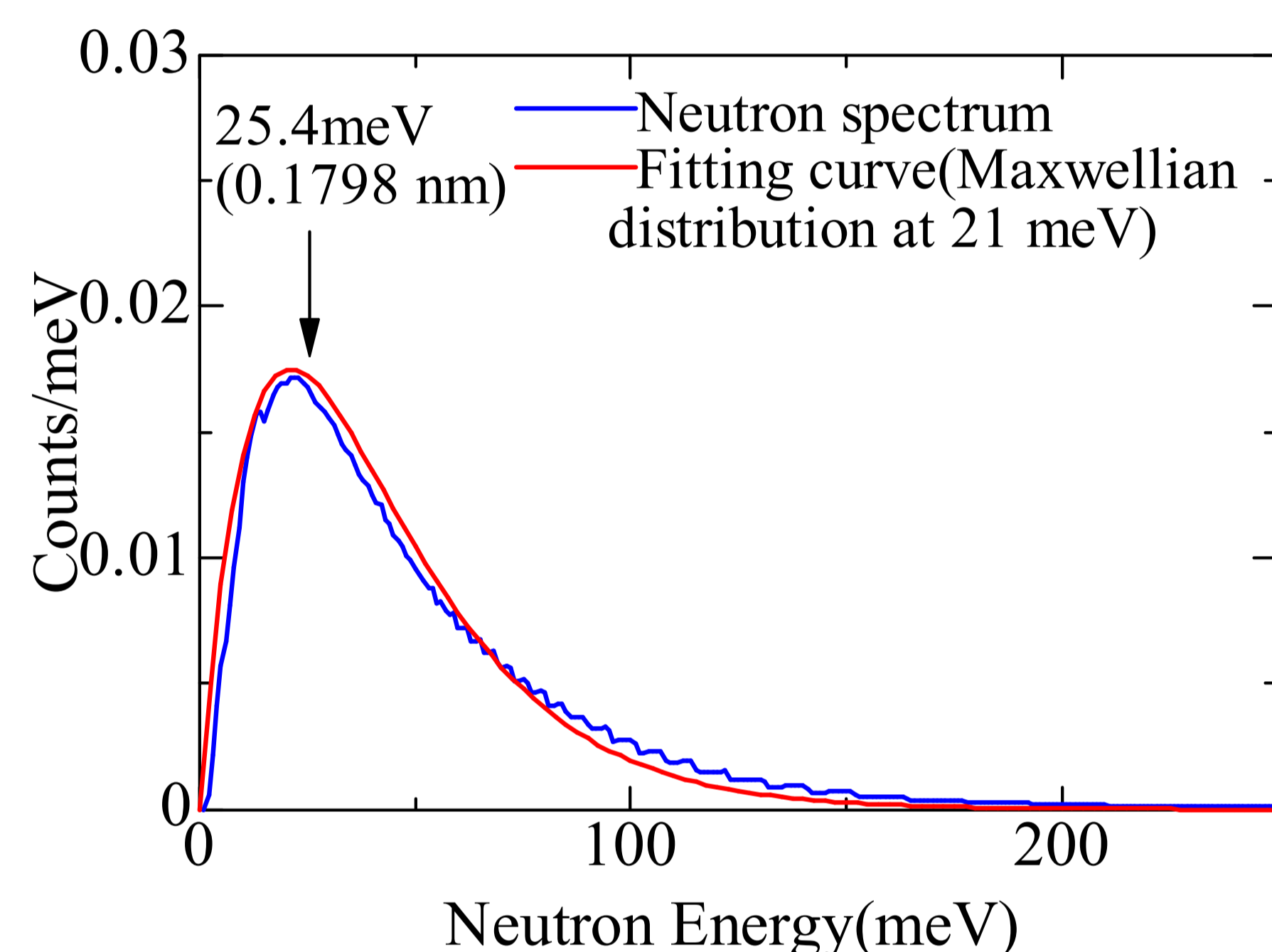


図1：測定で得られた中性子スペクトル

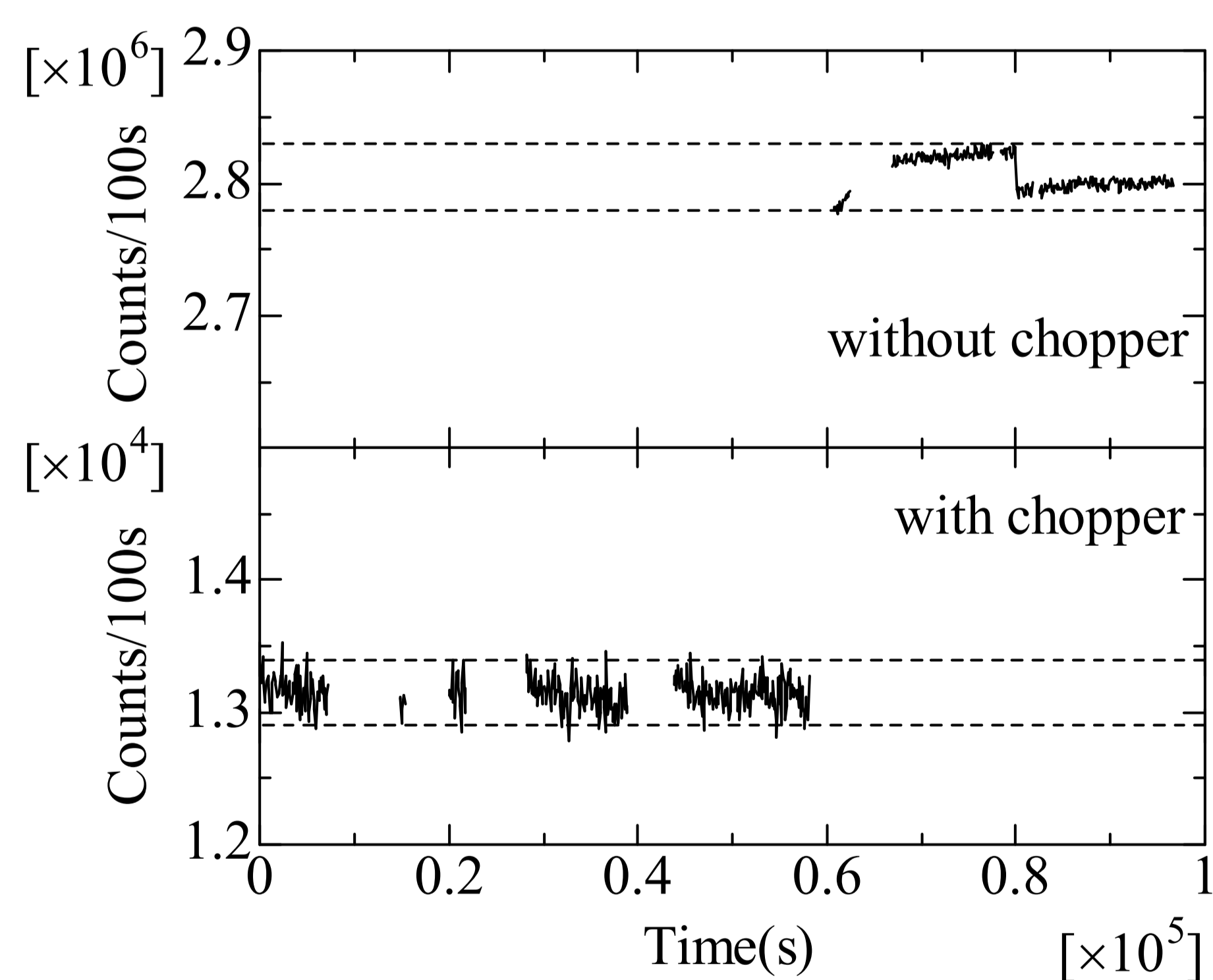


図2：中性子フラックスの変動



図3：比例計数管による測定

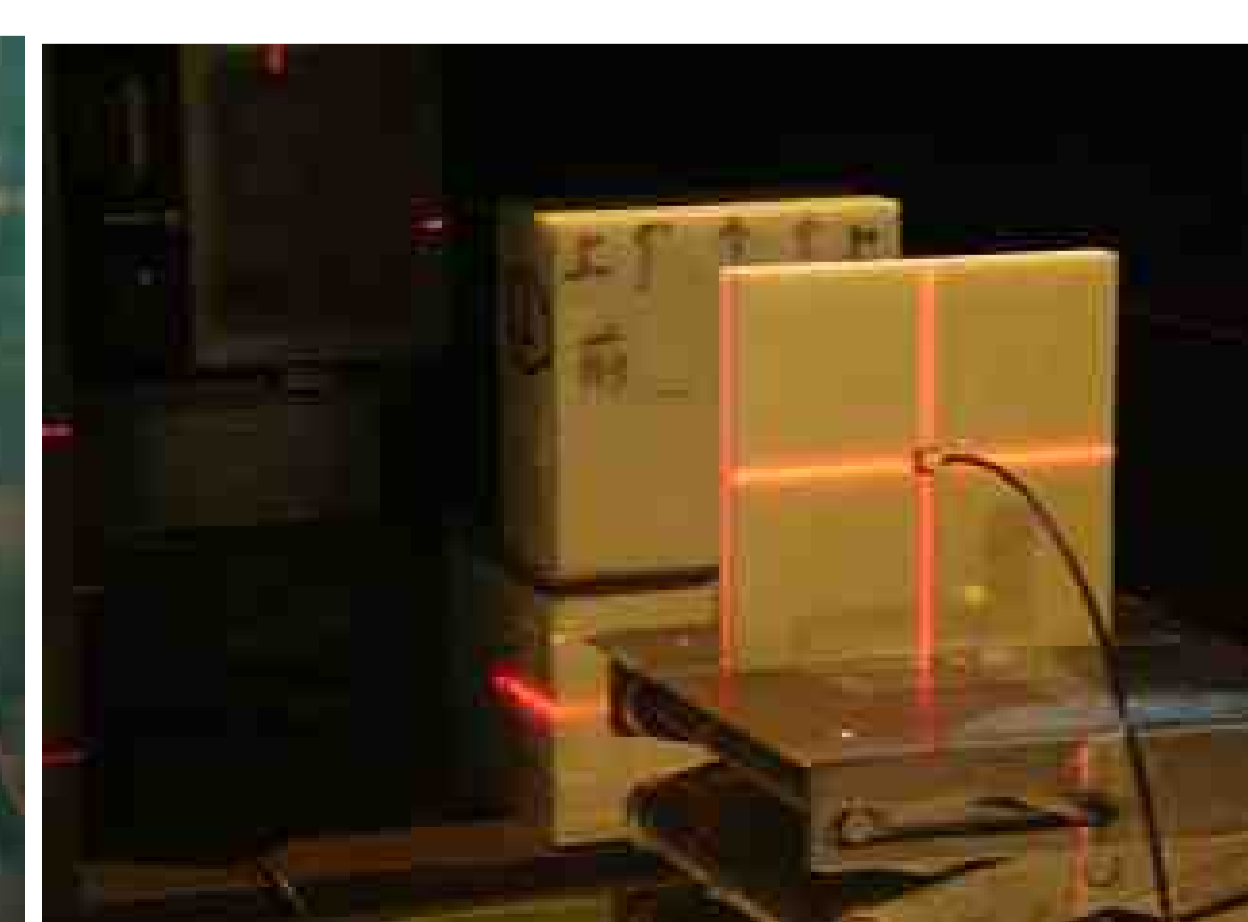


図4：小型中性子プローブの測定

PGAを標準化手法とする 環境モニタリング法の開発

利用者 辻 正道¹、川村 光生²、秋元 武²、新関 隆³、○今瀬肇⁴
所属 ¹E&Eソリューションズ(株)、²巽工業(株)、³東京家政大、⁴茨城県

1. はじめに

世界の休止金鉱山跡地周辺で採取した河川水、底質、周辺樹木などのPIXE分析により、水銀などの重金属が環境基準を大きく超えて蓄積している事が明らかになってきている。また発展途上国では、日本がかつて経験した重金属等による水質汚濁問題に直面している。これら環境試料の実態把握には試料の前処理が不要の分析法やビーム照射中の成分蒸散のない非破壊分析が望ましい。分析手法としてPIXEは高真空下で荷電粒子照射を行うため局部過熱による試料中成分の化学形によっては蒸散が起こるため、分析値の評価には不確定さが残ることが課題となっている。

即発 γ 線分析法(PGA)は、①試料の化学的前処理が不要であること、②常温・常圧下で分析可能であること、③比較標準試料を必要としないこと、④PIXE法と比較して試料の自己吸収が格段に少ないこと、⑤マトリックスの影響を受けにくいこと、⑥多元素同時分析法であること、などの特長を有している。そのため採取した状態に近い条件で、B、Cd、Hg等の揮発性有害元素を高確度で定量が可能である。平成18年度後期の実験で、1. モンゴル・ボロー川流域、2. コピアポ(チリ北部の小都市)郊外の金精錬所、3. 日本の金鉱山周辺、で収集した地質・底質試料から水銀濃度の高いものが見出された。引き続き、平成19年度前期で、4. フィリピン・ルソン島北部、5. カンボジアで採取した河川底質試料等の環境試料を即発 γ 線測定した。

本申請課題では、発展途上国(アルジェリア)の底質環境試料のPGA分析と汎用型エネルギー分散型蛍光X線分析法(XRF)、真空PIXE法との比較分析に基づく、環境汚染の実態把握に適用可能な新しい環境モニタリング管理手法の確立を目指している。

2. 実験方法

PGA: 採取した試料は、加熱や粉碎等の前処理はせず、粉末部分約150mgをフッ素樹脂フィルム袋に封入し、室温で測定した。今回の実験では、検討測定対象元素として、汎用性蛍光X線分析法で容易に定量できる元素である不揮発性のCa、Feを選んだ。

XRF: パナリティカル社製MiniPal4型を使用した。

PIXE: (独)放射線医学総合研究所コンベンショナルPIXEポートを使用した。

3. 実験結果およびまとめ

地下資源、特に鉱物資源の探鉱・開発に伴い、多数の試料中の重金属含有量を求める市場ニーズが発生する。その数はラボ当たり数千乃至数万試料に達し、そのニーズに応えるには採用されている分析手法の精確度を把握しておく事がカスタマの信頼に応える上で極めて重要である。一方、原石に随伴する有害な副成分や抽出用化学物質の環境への排出・取り扱いに、注意が払われるようになってきつつあるが、途上国では教育訓練や技術知識の欠如、分析値の評価能力の不足などから、正確な分析値を取得できないため、環境配慮活動は必ずしも効果を挙げているとは言いがたい状況にある。

一般河川環境等に排出された汚染物質の広がりを把握し、行政施策に反映させるには信頼できる濃度データ等の情報を収集する必要がある。その場合にも分析試料数、分析項目数とも多数となるので、対策立案には精度管理が重要となってくる。

本研究は、その能力不足のために、比較標準試料を用いて分析値の精確度を確保するというラボ管理のあり方を踏襲できない途上国での地質環境試料分析サービス業務への精度管理手法として提案するものである。精度管理に必要な標準化手法として、比較標準試料に依存しない極めて高精度の分析手法である即発 γ 線分析法が重要な役割を果たすと期待される。

光ファイバー検出器の高度化と分析

利用者 ○今瀬肇¹、渡辺裕夫^{2,3}、久保謙哉⁴、杉原寛⁵、岡田要⁶
 所属 ¹茨城県企画部、²サンゴバン株式会社、³大同工業大学、⁴国際基督教大学、
⁵ワイヤードジャパン株式会社、⁶旭硝子株式会社

1. はじめに

前年度に引き続き、申請者らは、新規のアイデアに基づく中性子計測用ファイバー素子の開発に関連した課題の実施を行った。本素子は、ファイバーの先端側面に発光体としてシンチレータを付着させたものである。開発には、実際に中性子ビームを用いた実証実験及び、PGAによる定性・定量分析が不可欠であり、これらの確認を行うために即発 γ 線分析装置で実験を行った。

2. 実験方法

検出部は、グラスファイバーの先端部分に発光層としてBGO($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$)の結晶粒を塗布し、その先端・周囲を幾重にも覆い、外来光及び、外来ノイズの低減を図った。BGO結晶は、発光強度がNaI(Tl)の20%とあまり大きくなく、減衰時間も小さくないが、密度が比較的大きく、屈折率も大きく、また潮解性を待たないため、今回の実験にはたいへん適していると言える。

検出部に引き続いて光ファイバーを数m繋ぎ、その先の光電子増倍管に得られたシンチレーション光の導波を行った。光電子増倍管及び、信号ケーブル・高電圧ケーブルについても、遮光・電磁シールドを慎重に行い、ORTEC575A型アンプで増幅の後、PHAにより波高スペクトルを観測した。

印可高電圧は、同様にノイズ低減の目的でこれまでの-1,000Vから-800Vとした。

上記実験条件により5/23から1日間及び、7/1から1日間、即発 γ 線分析装置を用いた実験を行った。

3 実験結果

通常ライトガイドとして用いられている光ファイバーを素子として用いることにより、放射線により得られた発光を遠方まで効率よく導波することが可能であるが、一方で光ファイバーは変形・移動等が可能な素子であるため、遮光性を保つのは非常に困難である。今回は、光ファイバー導波部についても独自の遮光方法を用いることによって、外来光起因と考えられるパルスの多くを抑えることが可能となった。また、光ファイバーは本来電磁ノイズの影響を受けないことが大きな優位点であるが、光電子増倍管以降は極力距離を短くするように心がけ、電磁シールドを行うと同時にアース点に配慮することによってノイズ低減を行った。

以上のような外来光・外来ノイズの低減に努めた結果、中性子照射の有無によるスペクトルの明確な差異を観測することが出来、この差が光ファイバー+BGO結晶粒子検出器により観測された中性子起因の事象であると考えられた。下図に実験結果のスペクトルを示す。

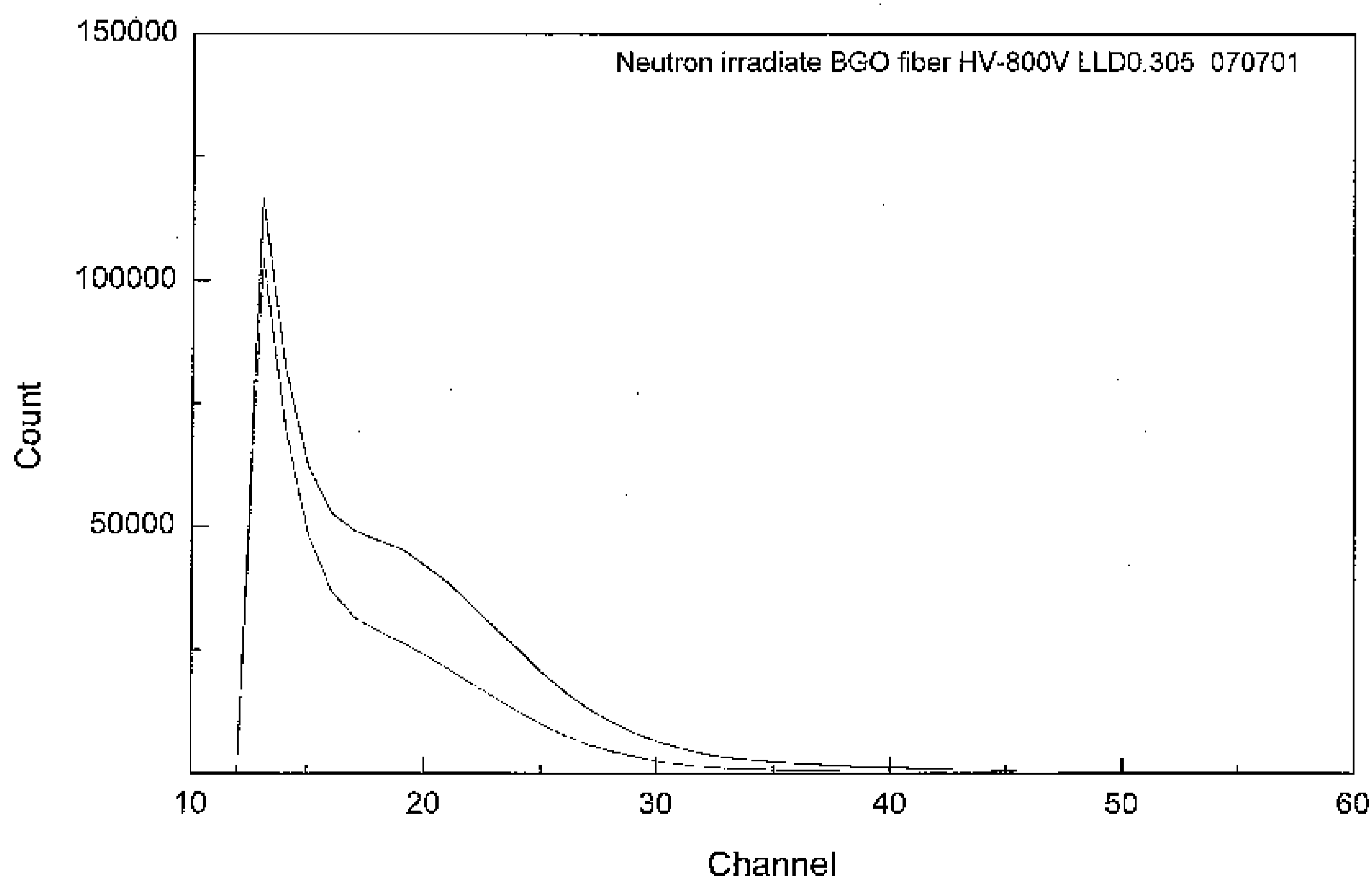


図. 得られた、光ファイバー+BGO結晶検出部によるスペクトル。中性子照射の有無により大きな差異が見られる。この差は中性子照射起因事象によると考えられる。

4. 今後の計画

今回で、光ファイバーの先端部にシンチレータ結晶を塗布した検出部による中性子検出の基本的な可能性を示すことが出来た。今後はさらに検出部の改良を進めると共に、発光量・減衰時間の面でBGOよりも優れた特性を持つLYSO ($\text{Lu}_{1.8}\text{YO}_{2.2}\text{SiO}_5:\text{Ce}$)等を用いた検出部を製作し、発光量や減衰時間の違いによる優劣の比較、時間ファクターの保存性、入射中性子のエネルギー依存性、入射粒子依存性等について比較・検討を進めて行くことにより定量化を行う必要があり、貴機構の施設共用制度を利用させて頂きたいと考えている。

ライトガイドと付随する計測装置の検討

利用者 ○今瀬肇¹、山田正規²、渡辺裕夫³、杉原寛⁴、中村友哉⁴

所属 ¹茨城県、²岩通計測（株）、³サンゴバン（株）、⁴ワイヤードジャパン

1. はじめに

前年度に引き続き、申請者らは、新規のアイデアに基づく中性子計測用ファイバー素子の開発に関連した課題の実施を行った。本素子は、ファイバーの先端部に発光体としてシンチレータを取り付け、ここで得られた放射線照射によるシンチレーション光を光ファイバーで高効率に導波させることを目的としたものである。開発には、実際に中性子ビームを用いた実証実験及び、PGAによる定性・定量分析が不可欠であり、これらの確認を行うために即発 γ 線分析装置で実験を行った。

2. 実験方法

検出部は、プラスチックファイバーの先端部分を発光部としてBGO($\text{Bi}_4\text{Ge}_3\text{O}_{12}$)の結晶で覆いBGO結晶のシンチレーション光を光ファイバーにより離れた場所に設置した光電子増倍管まで導波した。本実験に適している結晶は、密度が比較的大きく、屈折率も大きく、また潮解性を待たないものとして、LYSO($\text{Lu}_{1.8}\text{Y}_{0.2}\text{SiO}_5:\text{Ce}$)、YAG:Ce($\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}:\text{Ce}$)及び、BGOが考えられるが、今回はBGO結晶を選んだ。BGO結晶は発光強度がNaI(Tl)の20%とあまり大きくなく、減衰時間も小さくないが、加工も比較的容易であり今回の実験にはたいへん適していると言える。検出部のプラスチックファイバーに引き続いて、光減衰率の小さな石英光ファイバーを数m繋ぎ、その先の光電子増倍管により多くのシンチレーション光を導くようにした。前回までの実験で、外来光及び、外来電磁ノイズの混入のため、S/Nが悪く、特に本装置で検出される中性子に起因するシンチレーション光は、低パルス波高領域（スペクトルで低ch側）であると予測されるが、その領域には外光及び、外来電磁ノイズの寄与するバックグラウンドが非常に多く、被測定成分の弁別がたいへん困難であり、またデッドタイムの悪化ともなっていた。そこで今回は、検出部のみならず光電子増倍管及び、信号ケーブル・高電圧ケーブルについても、遮光・電磁シールドを慎重に行い、S/Nの向上に努め、プリアンプ及び、ORTEC575A型アンプで増幅の後、PHAにより波高スペクトルを観測した。

3. 実験結果

これまでに得られた下図のスペクトルに於いて、低波高値側のノイズ成分を低減し、中性子起因のシンチレータからの光成分とのS/Nを向上させることを目的としたが、実験途中で光電子増倍管部に故障が生じ、これを交換することは短時間では困難であったため、今回の実験は断念せざるをえないこととなった。

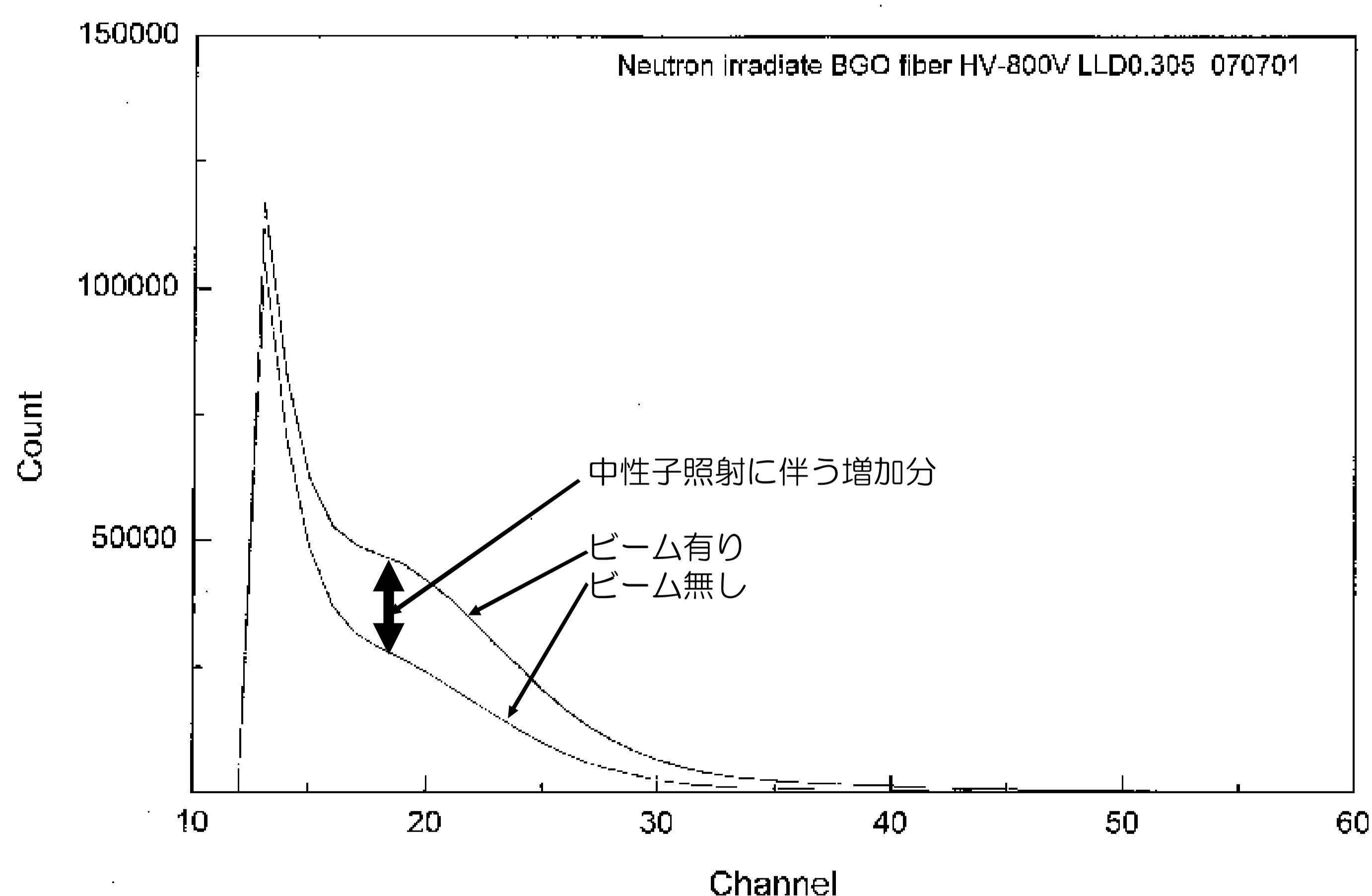


図. 得られた、光ファイバー+BGO結晶検出部によるスペクトル。
(中性子照射の有無により大きな差異が見られ、この差は中性子照射起因事象によると考えられる。)

4. 今後の計画

今回の経験から、光ファイバーでシンチレータ結晶からの放射線起因のシンチレーション光を導波する場合、光電子増倍管及び、光ファイバーと光電子増倍管との取り付け部に大きなストレスがかかることが判明した。今後は、それらの機械的冗長性についても検討し、改良して行く方針である。今回は、上記の理由で実験を中断したが、今後はさらに検出部及び、光電子増倍管部の改良を進めると共に、発光量・減衰時間の面でBGOよりも優れた特性を持つLYSO($\text{Lu}_{1.8}\text{Y}_{0.2}\text{SiO}_5:\text{Ce}$)等を用いた検出部を製作し、発光量や減衰時間の違いによる優劣の比較、時間ファクターの保存性、入射中性子のエネルギー依存性、入射粒子依存性等について比較・検討を進めて行くことにより定量化を行う必要があり、貴機構の施設共用制度を利用させて頂きたいと考えている。

パナソニックグラフアイトの 中性子線による評価

利用者 ○森 貴広¹、大内 浩美¹、西木直巳²、後藤 俊宏²、田中 恵²

所属 ¹株式会社アールデック、²松下電器産業株式会社

1. 意義・目的

バイロリティック・グラフアイトは、X線・中性子線の分光用デバイスとして広く使用されている。評価は通常、X線を用いるが、浸透力が小さいX線では表面しか解析できず、浸透力の大きな中性子線を用いた場合と異なることが知られていた。

- (1) 中性子線測定によるグラフアイトの厚さ影響確認。
- (2) 中性子線評価とX線評価の比較

2. 測定方法

測定条件：

中性子線 13.5meV PGフィルター 20 ‘-40’

X線 装置：リガク RINT2200

X線源：Cu-20kV-20mA

スリット系：0.5-Si-0.1+h5mm-Sample-Open-Open

9点測定の平均値

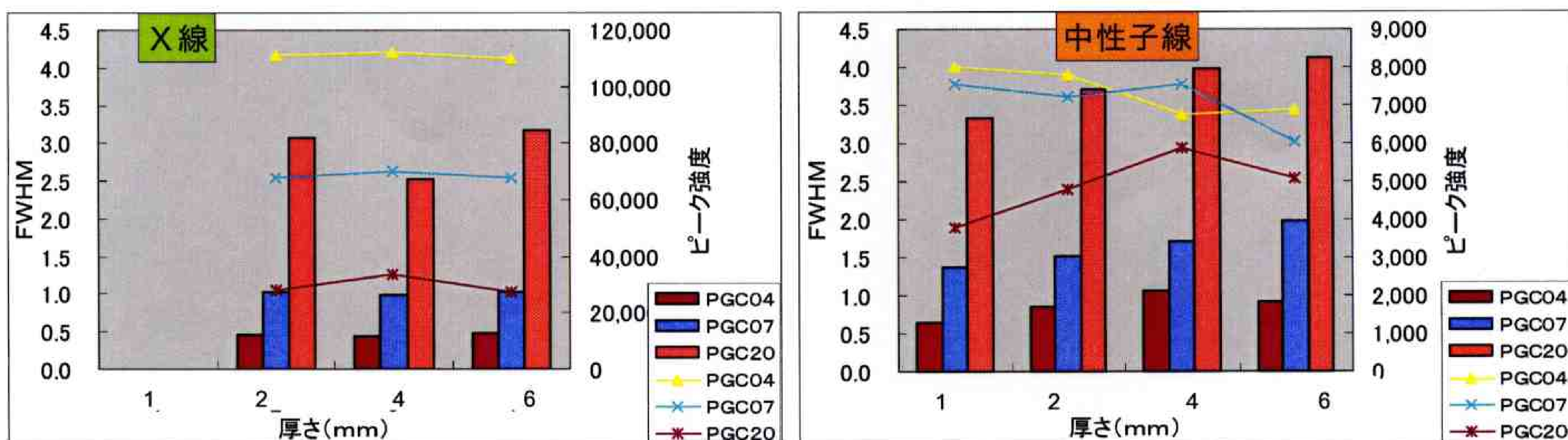
測定試料：

サイズ：30mm×20mm

松下電器産業（株）製：PGCX04（厚2, 4, 6（mm））、PGCX05（厚2（mm））、PGCX07（厚2, 4, 6（mm））、PGCX10（厚2（mm））、PGCX20（厚2, 4, 6（mm））

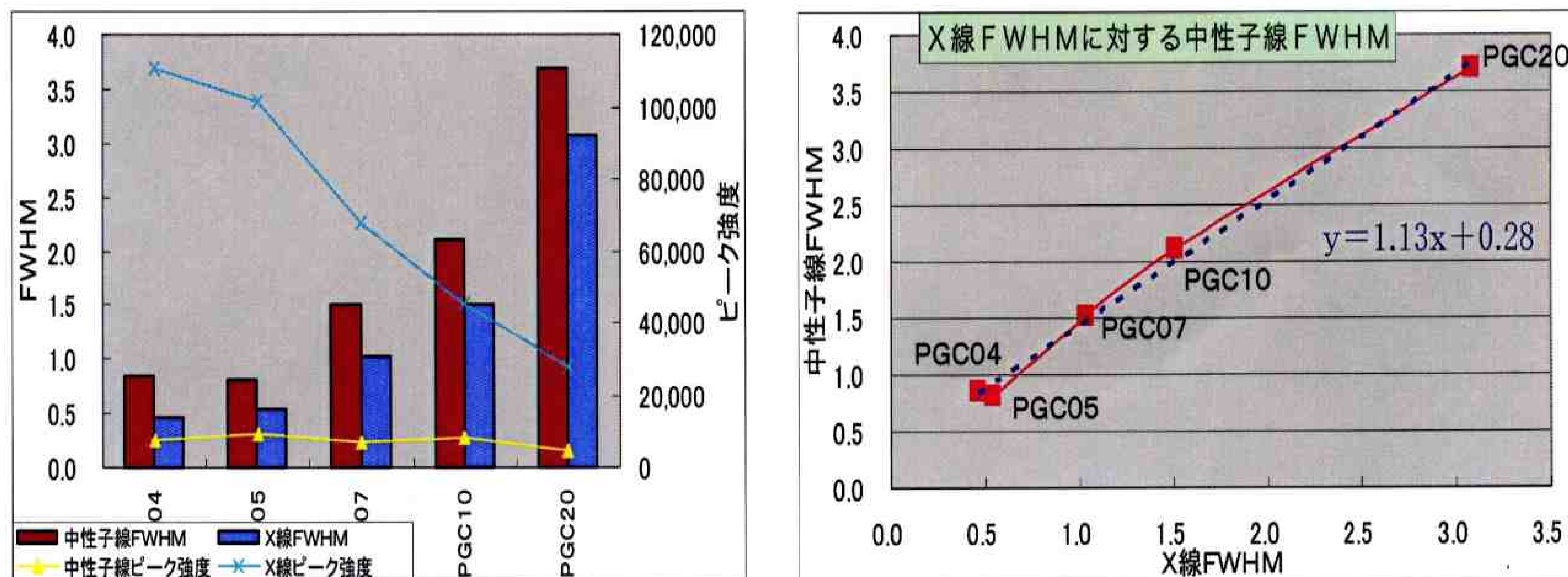
3. 測定結果

(1) 中性子線測定による厚さ影響確認



- ・ X線では厚さが変わっても、FWHM、ピーク強度ともに変化が無い。表面でしか回折しないことが裏付けられている。
- ・ 中性子線でのFWHMは、厚くなると悪くなるが、グレードが高いほど厚さの影響が小さい。
- ・ 中性子線でのピーク強度は、グレードの高いものと低いものでは逆の傾向になる。

(2) 中性子線評価とX線評価の比較



- ・ X線FWHMに対する中性子線FWHMは、 $y = 1.13x + 0.28$ で近似できる。

中性子による検出器測定評価と測定回路検討

利用者 ○今瀬肇¹、松本 哲郎²、山田正規³

所属 ¹茨城県企画部、²独立行政法人 産業技術総合研究所、³ 岩通計測株式会社

1 はじめに

これまでの中性子測定はPu-Be線源を使用した熱中性子測定にて行われてきたが、検出器の校正には、 γ 線の少ない、そして、本来利用される状況に近い環境で実施されるべきである。今回の課題では、強度がコントロールされた中性子フラックスを入射し、フラックス強度が変化したときの自社製の検出回路の特性変化を調べ、J-PARCの実験装置の大幅な高速化、高性能化が可能な検出回路の開発に役立てたい。これらの作業を発展させ、今後も自社製品の性能向上のために中性子を利用し、メーカーが国際的な技術力・競争力をつけ、世界市場で標準仕様を獲得することをめざす。また、茨城県中性子利用促進研究会の中性子標準研究会の一テーマとして中性子標準測定方法の検討を進める。これは、装置の設計、信頼性及び再現性の向上、の観点から重要である。

2 実験方法

MUSASIビームラインはモノクロメータを使用し、単色13.5meV 2.41614Å程度の波長の中性子を使用できる。モノクロメータによるが、全体で107cps程度あると思われる。配置は図1のとおりである。強度を低くするためアクリル板にて減退させLow Angle側で測定した。図2に測定構成を示す。測定する検出器を電荷有感型プリアンプで増幅し、波形整形アンプで電圧パルスにすると同時に増幅する。

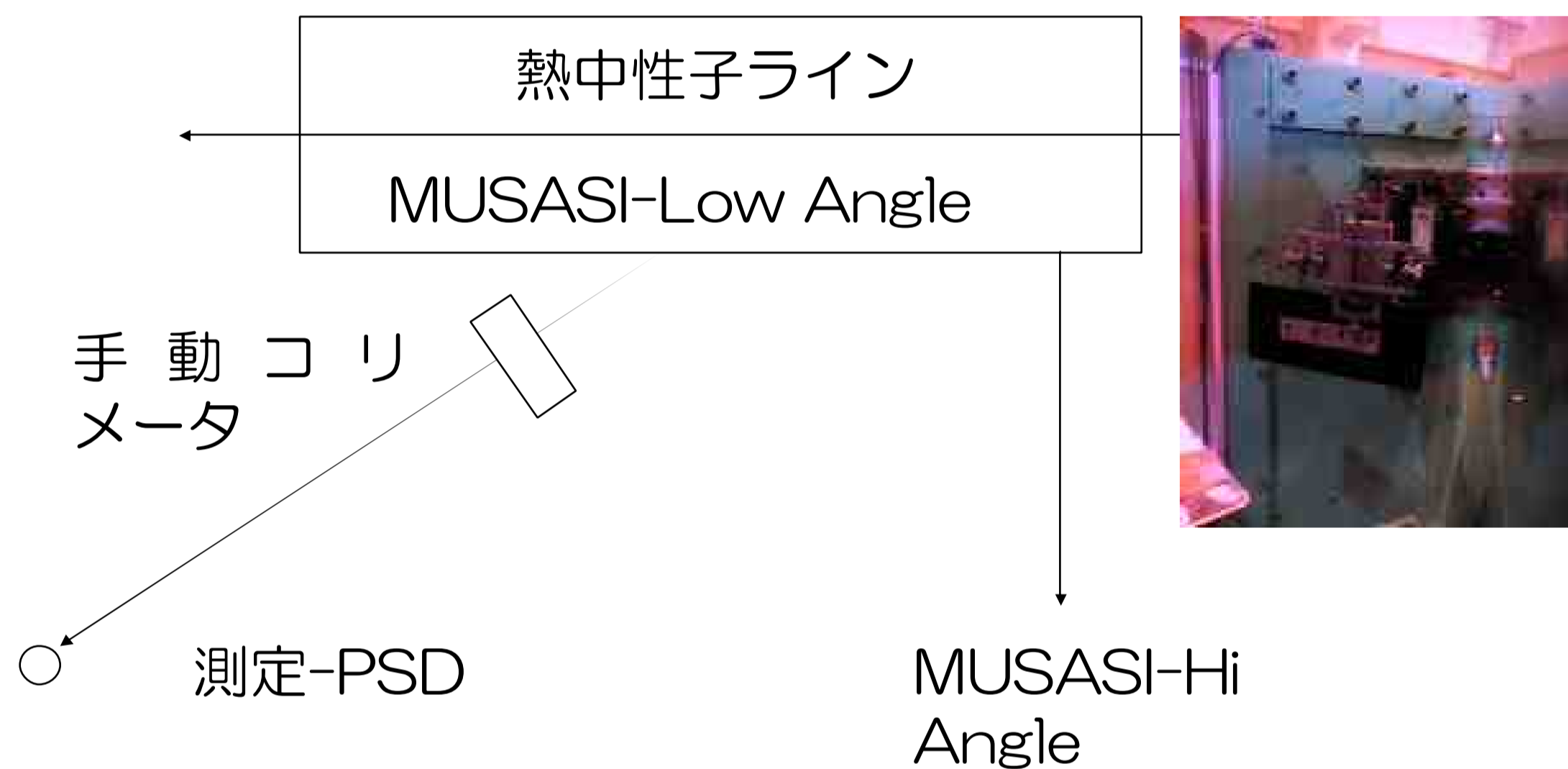


図1 JRR3-MUSASIビームラインでの測定配置

比例計数管 プリアンプ アンプ・高圧電源 A3100 収集画面



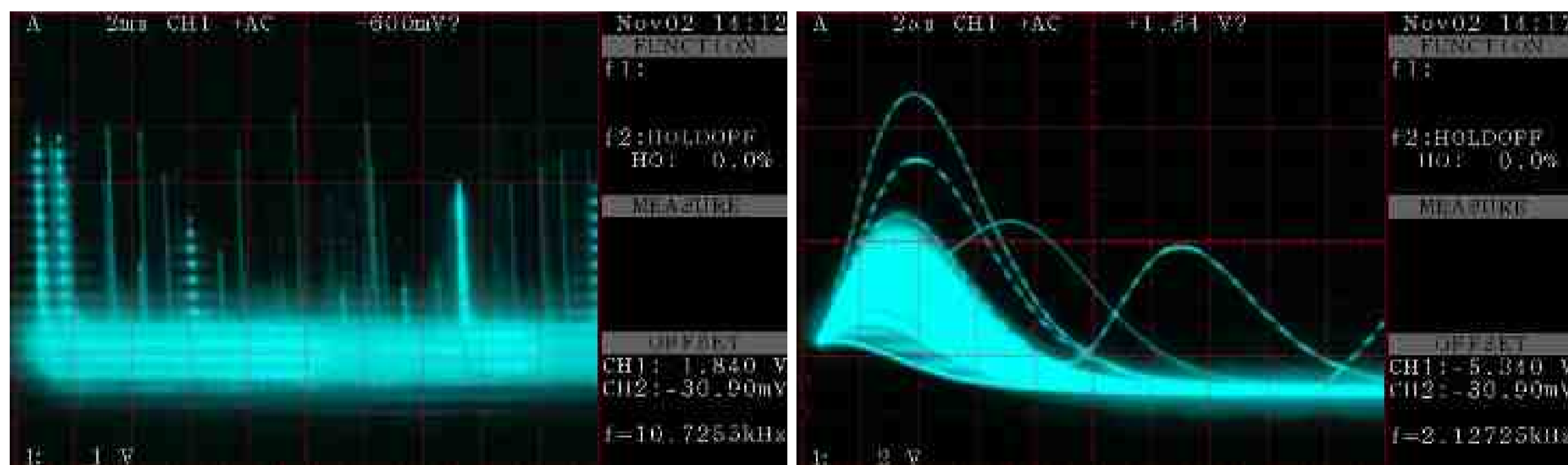
R/S PC ORTEC142PC ORTEC570,556 A3100システム
信号確認に使用したアナログ・オシロスコープ TS-80600 600MHz



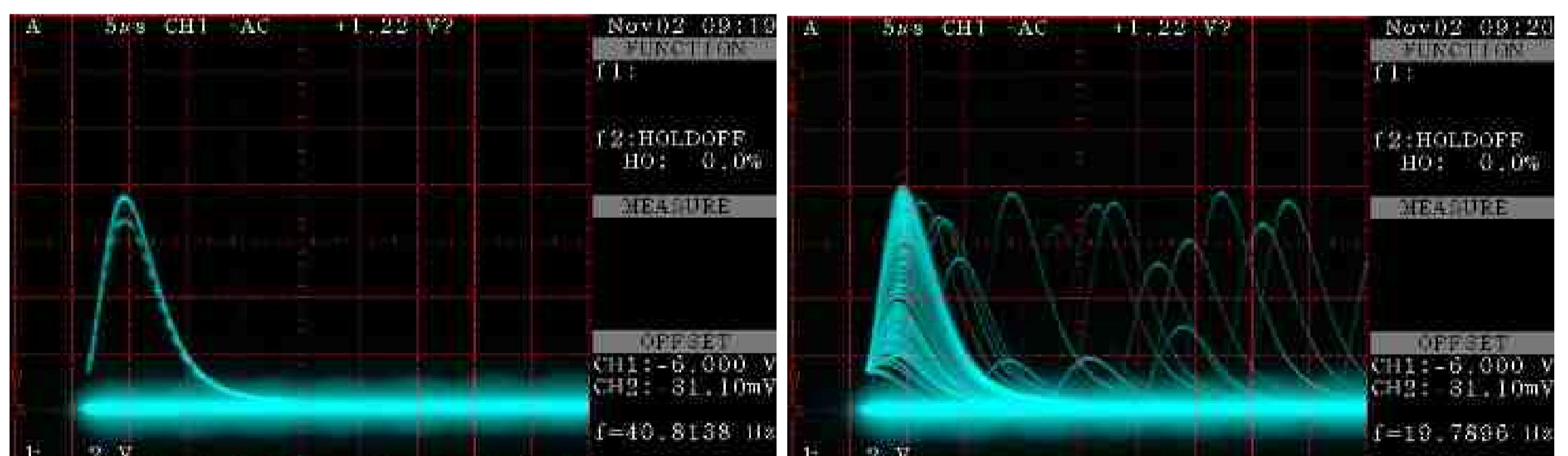
図2 基本的な測定構成

3 実験結果

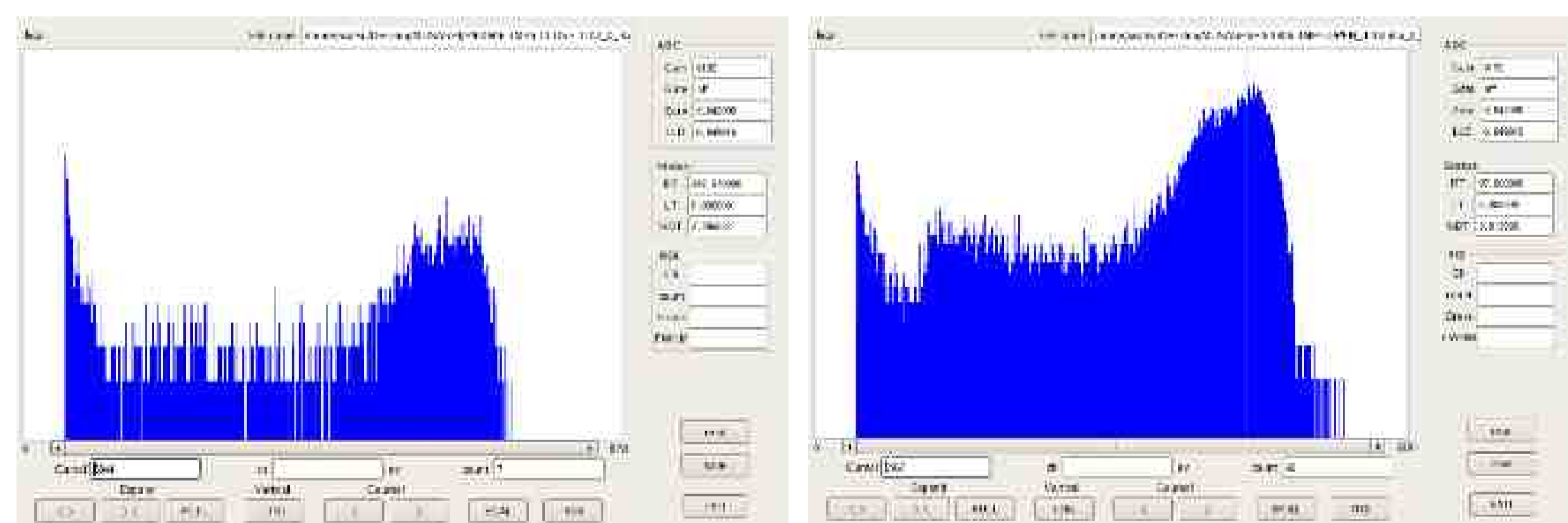
測定データ：プリアンプ、アンプ出力波形と波高スペクトル



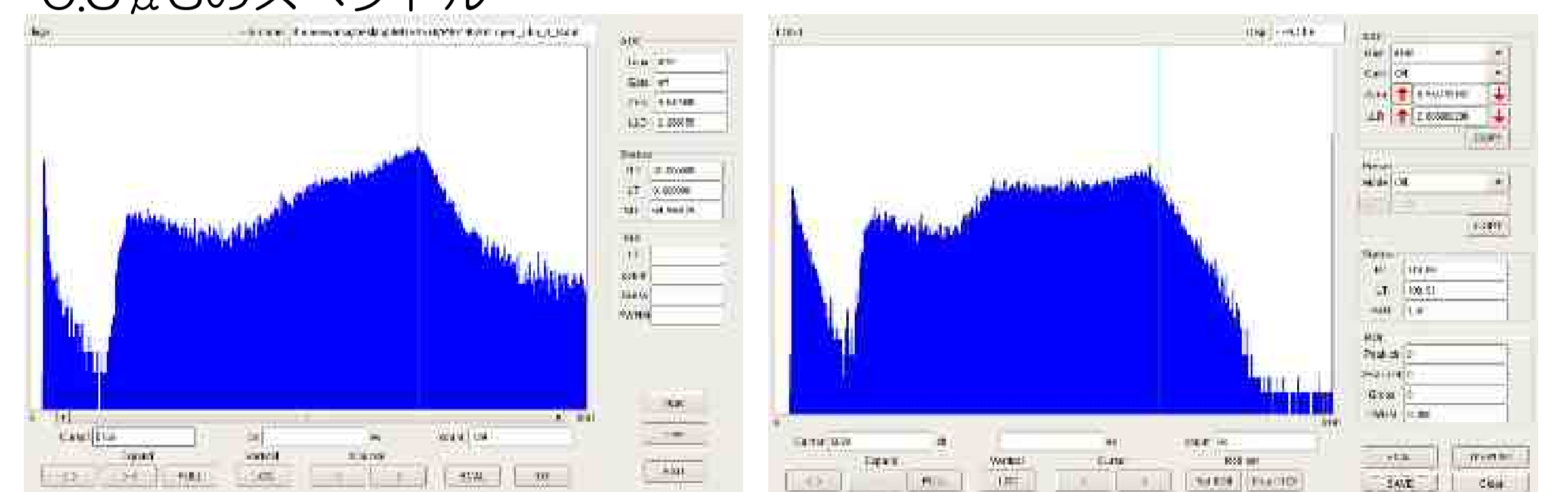
シャッター閉じた時と開けたときの出力波形



その時のPHAスペクトル



1/2インチφ 1 m、2.02MPaのPSD測定（高速型）今回位置検出測定は行わず、片方の出力を取る方法で行った。時定数2μSと0.5μSのスペクトル



※シャッター閉時でもJRR3ガイドホール内は実験中であり、中性子出力信号は確認できました。

4 まとめ

波形整形時間により、スペクトル形状が変化していることが確認出来た。中性子測定に関し、ガンマー線ノイズが低エネルギー側に無視できないくらい発生するため、ADCのLLDでは除去できないくらいなので高計数率測定時には専用の回路を必要とすることが判明。測定に関してはJRR3で予想よりも簡単に行えることが判り、安心しました。

今回の比例計数管測定実験を踏まえ今後位置検出回路の検討及び測定実験を行うことを検討いたします。

今回のトライアルユース実験にあたり機器借用頂きましたAIST 松本様、多くのアドバイスを頂きましたコーディネータのJAEA先端研 目時様、(財)放射線利用振興協会 東海事業所 中性子利用推進部の皆様へ感謝いたします。

中性子非弾性散乱を用いたSOFC用電解質の酸素拡散挙動の観察

利用者 ○今瀬肇¹、高野佳樹¹、佐久間隆²、高橋東之²、伊藤孝憲³

所属 ¹茨城県企画部、²茨城大学、³AGCセイミケミカル(株)

1. はじめに

現在、固体酸化物型燃料電池（SOFC）の重要課題の一つとして低温作動化がある。低温化としてのボトルネックは電解質のイオン拡散となっている。現状のイットリウム安定化ジルコニアは作動温度1000℃であり、コーシエネレーションを考慮しても作動温度が高すぎる。また、作動温度が高温であると構成部材は全てセラミックスとなり、コスト、耐久性に問題がある。そこで低温作動可能な電解質を開発することが重要となっている。しかし、現状はイオン拡散の詳細な原因が解明されておらず、明確な材料設計指針がない状況である。SOFCはセルでの電気化学的な評価が多く、材料設計に活かせるようなデータは皆無である。そこで本研究はSOFC用電解質において低温作動型電解質として期待されているリン酸スズ（SnPO）（構造を図1に示す。）のプロトン拡散挙動をダイレクトに観察するために中性子非弾性散乱測定を行った。更にQ依存性を測定することで、プロトンの拡散経路などを考察できる可能性がある。可能であれば準弾性散乱によって低エネルギーフォノンの温度依存性を観察、考察し、プロトン拡散との関係を調べる。これらの実験を行うことによって、プロトン拡散の原因を解明することができ、SOFC用電解質の低温作動化への材料設計の方向付けを明確にする。

2. 実験方法

合成したリン酸スズ粉末をバブリングしたArガスを用いて200℃、3時間アニールし、プロトン化を行った。バナジウムのサンプルホルダーに粉末試料を入れ、室温にて中性子非弾性散乱の測定を行った。測定条件は $Q=0.60, 1.00, 1.53, 1.85 \text{ \AA}^{-1}$ 、 $\Delta E=-1 \sim 3 \text{ meV}$ 。

3. 実験結果

図2に室温における中性子非弾性散乱のスペクトルを示す。 $Q=0.6 \sim 1.85 \text{ \AA}^{-1}$ 全てのスペクトルがほぼローレンツ型の非弾性散乱によってFittingされる。装置の分解能を除いたスペクトルの半値幅はQに依存せずほぼ一定の値となり、単純な連続的拡散でないことがわかる。また、Qが大きくなることによってスペクトルのピーク強度が小さくなることから、連続拡散に振動的な拡散を加え、振動部分のデバイワラー温度因子が影響したと考えられる。1振動的拡散を考慮した跳躍拡散モデルから自己拡散係数を求めると、 $Q=0.60$ 、 $D=2.56 \times 10^{-5} \text{ cm}^2/\text{s}$ となりK.S.Singwiら²が報告している水の拡散係数に近い。よってアニールの際に試料に含まれた水を検出している可能性がある。しかし、 $Q=1.5$ 以上では、デバイワラー因子の効果がみられピーク強度が低下し、 $D=4.0 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ となり結晶中の水素が観測できている可能性がある。B.Grobら³はBaZr_{0.85}In_{0.15}O_{2.925}（BaZrInO）を試料に非弾性散乱から同様に拡散係数を算出しており、 $D=2 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{s}$ としている。³ SnPOはBaZrInOに比べ倍以上の導電率を示すことから、算出した拡散係数は妥当な値であると考えられる。しかし、本実験で結晶中の水素であるか、粒子の表面の水素が観測されているかは判断できない。今後は非弾性散乱の温度変化を測定し、アーレニウスプロットにより活性化エネルギーを見積もることで、結晶内または粒子表面の水素であるか判断する。また、試料を重水によってアニールし、中性子回折によって重水素が結晶内に存在することを確認する必要がある。

4. まとめ

プロトン伝導体であるリン酸スズをプロトン化し、中性子非弾性散乱測定を行った。プロトン伝導は単なる連続拡散ではなく、跳躍拡散モデルで説明することができる。今後は温度変化の測定により活性化エネルギー、中性子回折測定によって結晶内の水素の存在位置に関して考察する予定である。

参考文献

- 1.星埜禎男著編集「中性子回折」（共立出版、1971）第13章
- 2.K.S.Singwi et al. Phys. Rev., 119 (1960) 863.
3. B.Grob et al. Solid State Ionics 145 (2001) 325.

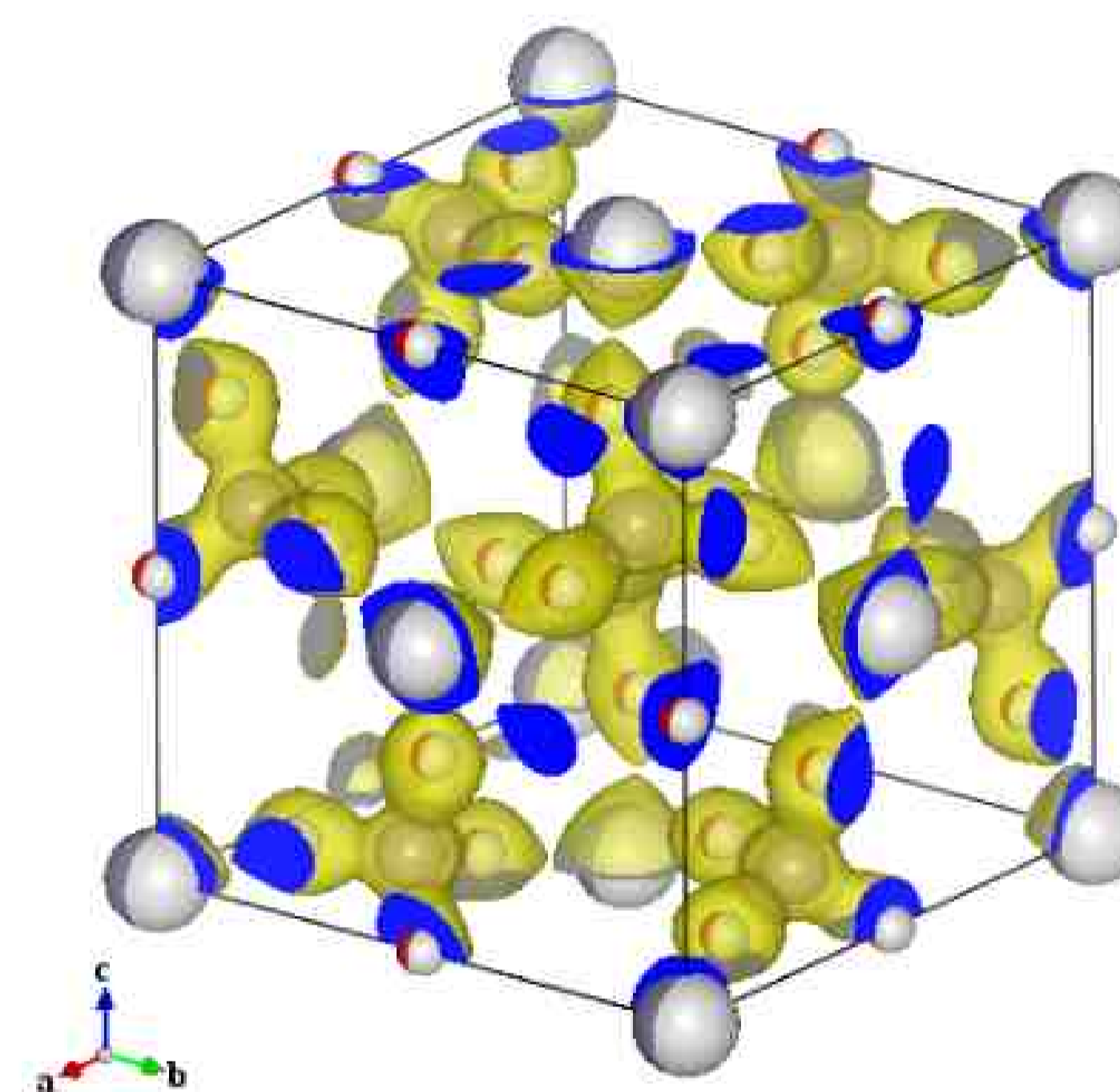


図1 リン酸スズの結晶構造

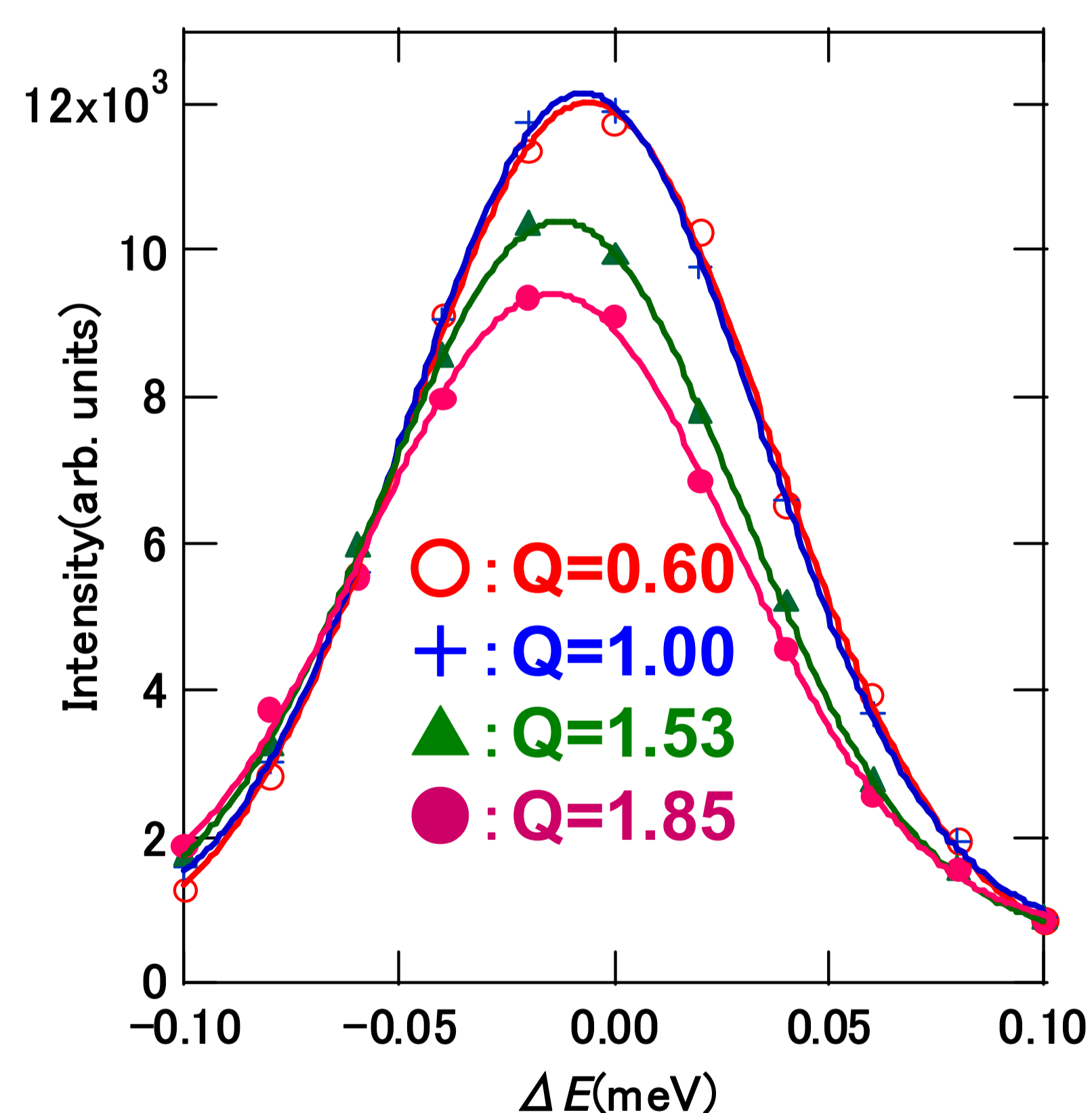


図2 非弾性散乱のスペクトル

古文化財の非破壊可視化観察

利用者 ○今瀬肇¹、増澤文武²、(松浦宥一郎³)

所属 ¹茨城県企画部、²(財)元興寺文化財研究所、(³東京国立博物館)

1. 青銅鏡の状態

直径は8.7cm、表面は全面が緑青色の錆で覆われ、布が付着していた¹⁾。さらに、鈕付近に付着した紐状物質も観察されていた²⁾。報告書には記述がないが、鏡背の一部に丸い凸部があり青白色の粉状錆と布で覆われていたが真珠と推定されていた。また、一部に縁が欠けたと思われる部分に青白色の粉状の錆が見られた。

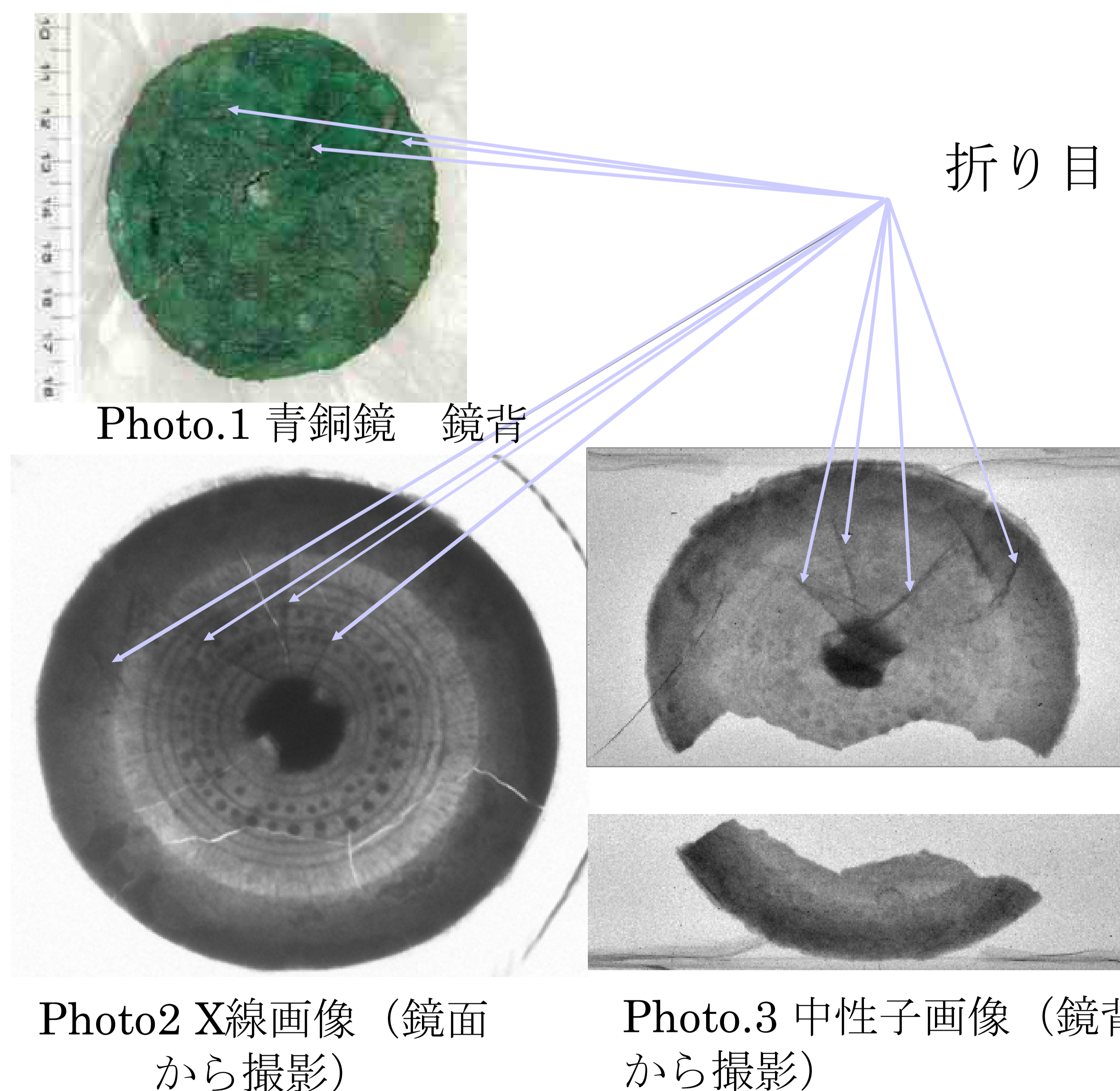
なお、中性子ラジオグラフィ撮影を実施した青銅鏡は、発掘後に青銅鏡などの強化と錆の進行を防ぐために布及び錆表面からアクリル系合成樹脂：Paraloid B-72 (Rohm and Haas Corp.) 溶液を浸透して強化・防錆処置が取られていた。しかし、その表面については、考古学・博物館の分野では表面の艶を嫌うため、表面の樹脂膜を除去していた³⁾。

2. 青銅鏡の中性子ラジオグラフィによる観察

2.1 繊維について：布は、鏡背において粗い目と少し細かい目があり、向かって右上は、表面の布が折りたたまれ浮いた状態または二重で、粗い目が下層、少し細かい目が上層または折りたたまれ浮いた部分にあるように思われる。一方、鏡面の側にも布があり、折りたたまれた状況である (Photo.1)。ただし、人為的に折りたたまれたのではなく、覆われた際に皺が出来たものと推定される。中性子画像では比較的大きい目の繊維の画像が確認され、折りたたまれたと思われる部分には、はっきりはしないが錯綜する織り目と思われる画像が確認された (Photo.2)。あわせて折り目部分の画像が中性子画像では幅広く現れ (Photo.3)、X線画像では細かい画像 (Photo.2) で現れている。これは、折り目部分の繊維の重なりが中性子ラジオグラフィでは詳細に、X線のそれでは繊維内に浸透、ないしは付着している緑青の錆が画像として現れ布の折り目を表しているものと考えられる。

2.2 真珠について：真珠と思われる部分の画像は真円に近い細い線が確認できたが、その内側はその外側に比べ、画像濃度に大きな差がなく、むしろ繊維の織りの画像が確認されることから真珠の芯まで詰まっているCaCO₃ないしはタンパク質の層を考えると、真珠であるとの判断は難しい (Photo.3)。

2.3 緑青錆・アクリル樹脂溶液浸透による繊維の中性子ラジオグラフィ観察について：緑青 (CuCO₃ · Cu(OH)₂、CuSO₄ · 3Cu(OH)₂またはCuCl₂ · 3Cu(OH)₂など) の酸素・炭素、水素のように中性子の質量減衰係数の比較的高い元素中にある有機質繊維 (炭素、水素、酸素と窒素：ただし繊維の同定結果を見ていないため正確な元素は掴めていない) 中に埋没した形で存在する繊維の画像が得られるかどうかは大きな課題であった。あわせて、本件ではアクリル樹脂を浸透しており、この元素は正しく繊維と同元素を含むため、その画像により織り目の画像が曖昧となり、確認できないことが懸念された。しかし、上述の結果からこのように緑青の錆ならびにある程度の樹脂が含まれていても中性子ラジオグラフィによる画像が得られることが明らかにすることが出来た。



引用文献

- 1) 鈴木文雄、吉田陽一、桜井古墳群上茨佐支群7号墳発掘調査報告書、p51、(2001) 原町市教育委員会
- 2) 松田隆嗣、同上、pp122-124
- 3) 松田隆嗣氏私信

新規フッ化物中性子シンチレーター を用いた中性子検出実験

利用者 ○河口範明¹、福田健太郎¹、吉川彰²、柳田健之²、藤本裕²、戸塚大輔³、渡辺賢⁴
所属 ¹(株)トクヤマ、²東北大学、³日本結晶光学(株)、⁴名古屋大学

1. はじめに

2001年頃から、熱中性子検出に用いる³Heガスは需給のアンバランスに伴う枯渇が問題視されており、³He型熱中性子検出器の代替となるシンチレーター検出器の開発が望まれている。本プログラムでは、近年開発された国産中性子シンチレーター中性子検出器の材料であるEu添加⁶LiCaAlF₆単結晶の応用試験として中性子透過像の撮像を行った。

2. 実験目的

³Heガスの代替候補となる国産の新規中性子シンチレーターとして、生産性に優れ、直径4インチ以上の大型のバルク単結晶が得られるEu添加⁶LiCaAlF₆が報告されており^[1]、²⁵²Cf密封線源を用いた基礎特性の評価がなされている。本プログラムではその応用検討の一環として、熱中性子照射場であるJRR-3 MUSASIポートを用い、熱中性子イメージングへの適用性を調べることを目的とした。

3. 実験方法

フォトンカウンティング方式による熱中性子イメージングを次に示すような方法で行った。チョクラルスキー法によって得られたEu添加⁶LiCaAlF₆単結晶(図1)を直径2インチ、厚み0.5mmの円板状に加工し、位置敏感型光電子増倍管(PHOTONIS XP85012)の受光面に光学グリースを用いて光学接着した。被写体として、図2に示す形状の、直径1,2,3,5mmの穴を備えた厚み1mmのカドミウム板と、直径1mmのカドミウムのワイヤーを用い、受光面に接着した結晶上にマスクとして固定した。この状態でJRR-3 MUSASIポートで熱中性子を10分間照射し、位置敏感型光電子増倍管からの信号を取得した後に、電荷重心演算によって画像化した。

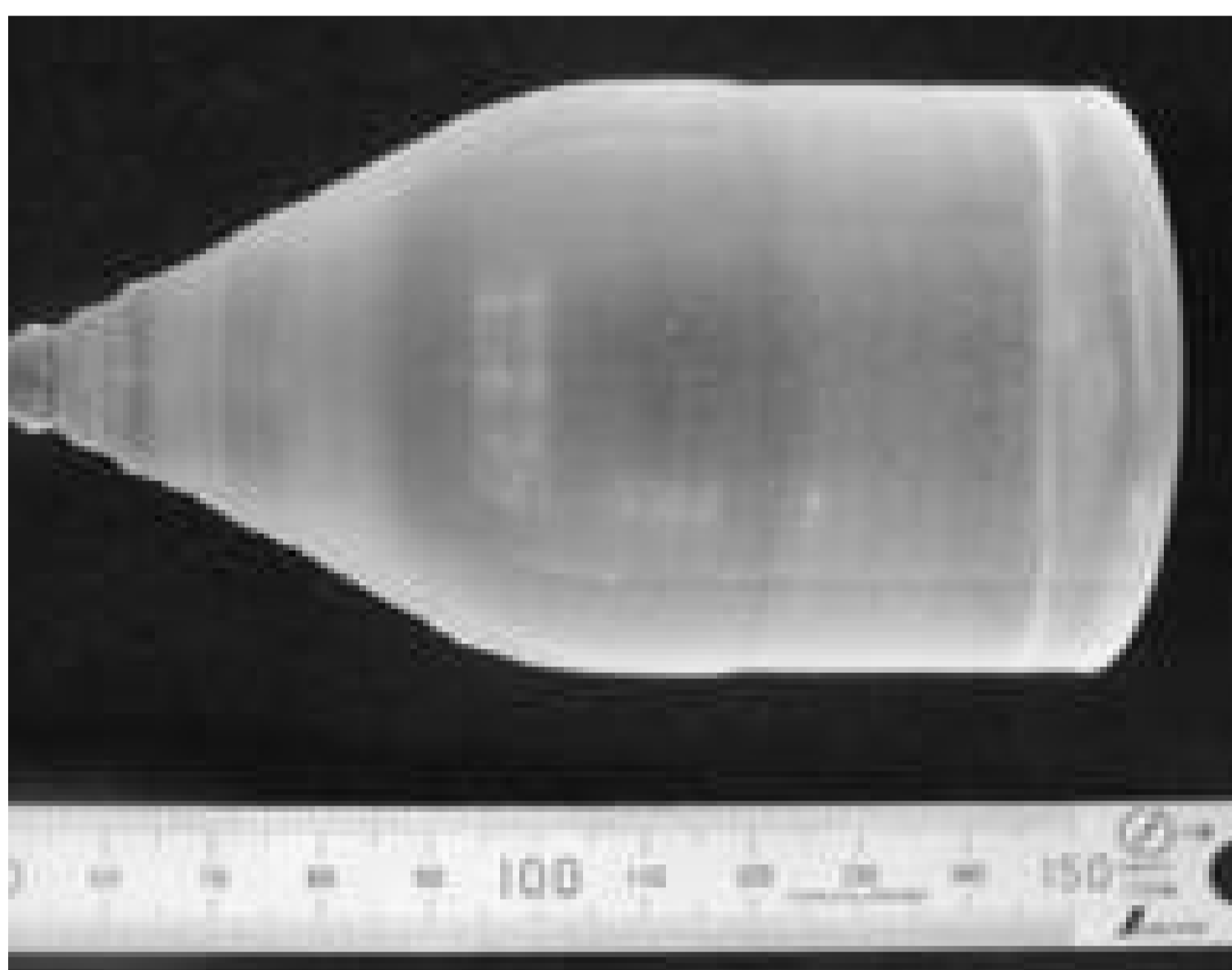


図1. Eu添加⁶LiCaAlF₆単結晶の外観。

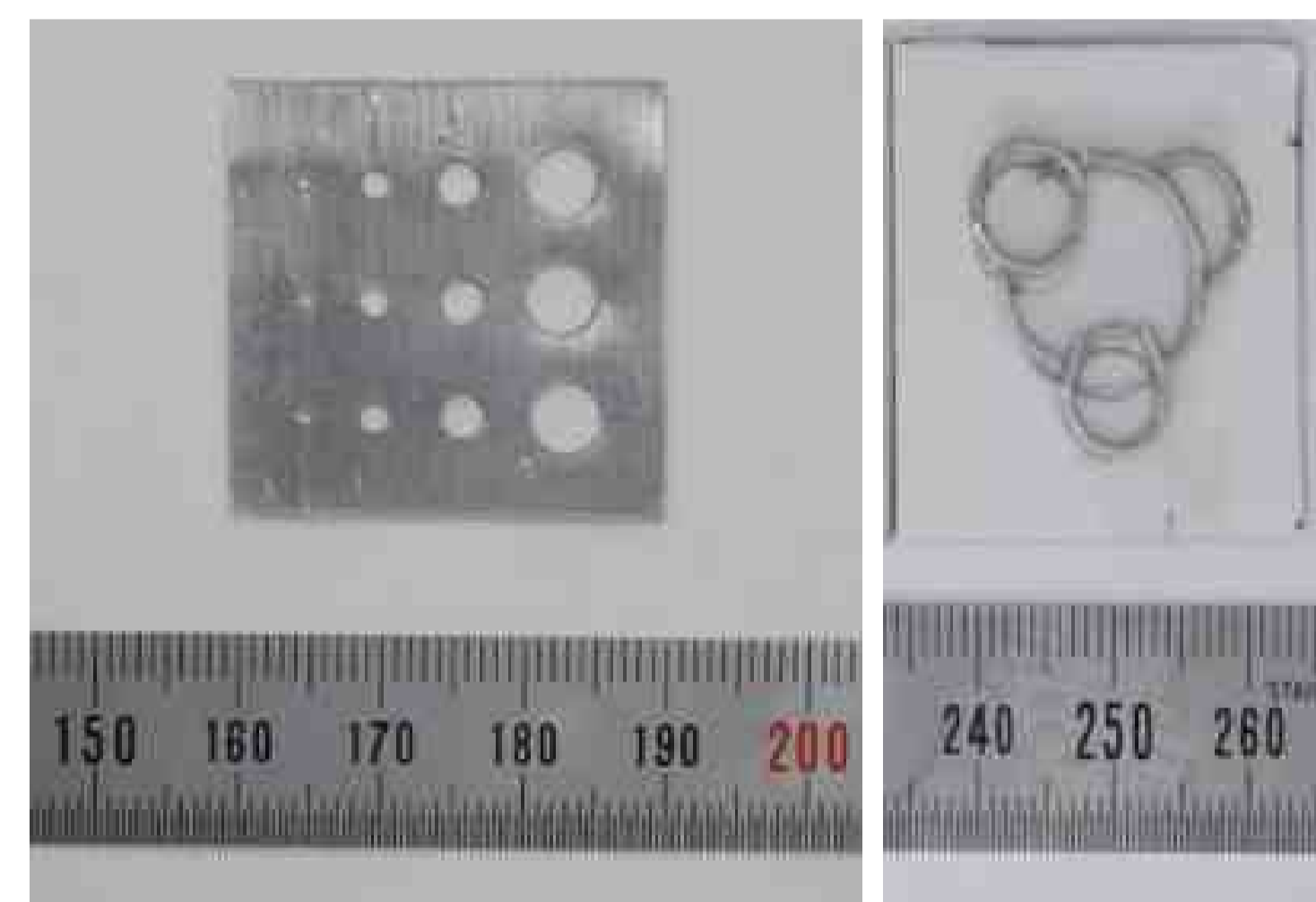


図2. カドミウムマスクの外観

4. 研究成果

今回使用した位置敏感型光電子増倍管は電極数が8×8=64チャンネルであり、1イベントに対して64個の信号が得られる。熱中性子照射時に得られた波高をイベントごとに合計し、全イベントの波高分布を図3に示した。明瞭な熱中性子ピークが得られ、Eu添加⁶LiCaAlF₆により熱中性子の検出に成功していることがわかる。図3の500チャンネル以上のイベントについて、電荷重心演算により画像化した結果を図4に示す。一見して図2に示した被写体の形状の熱中性子透過像を得るにことに成功していることがわかる。

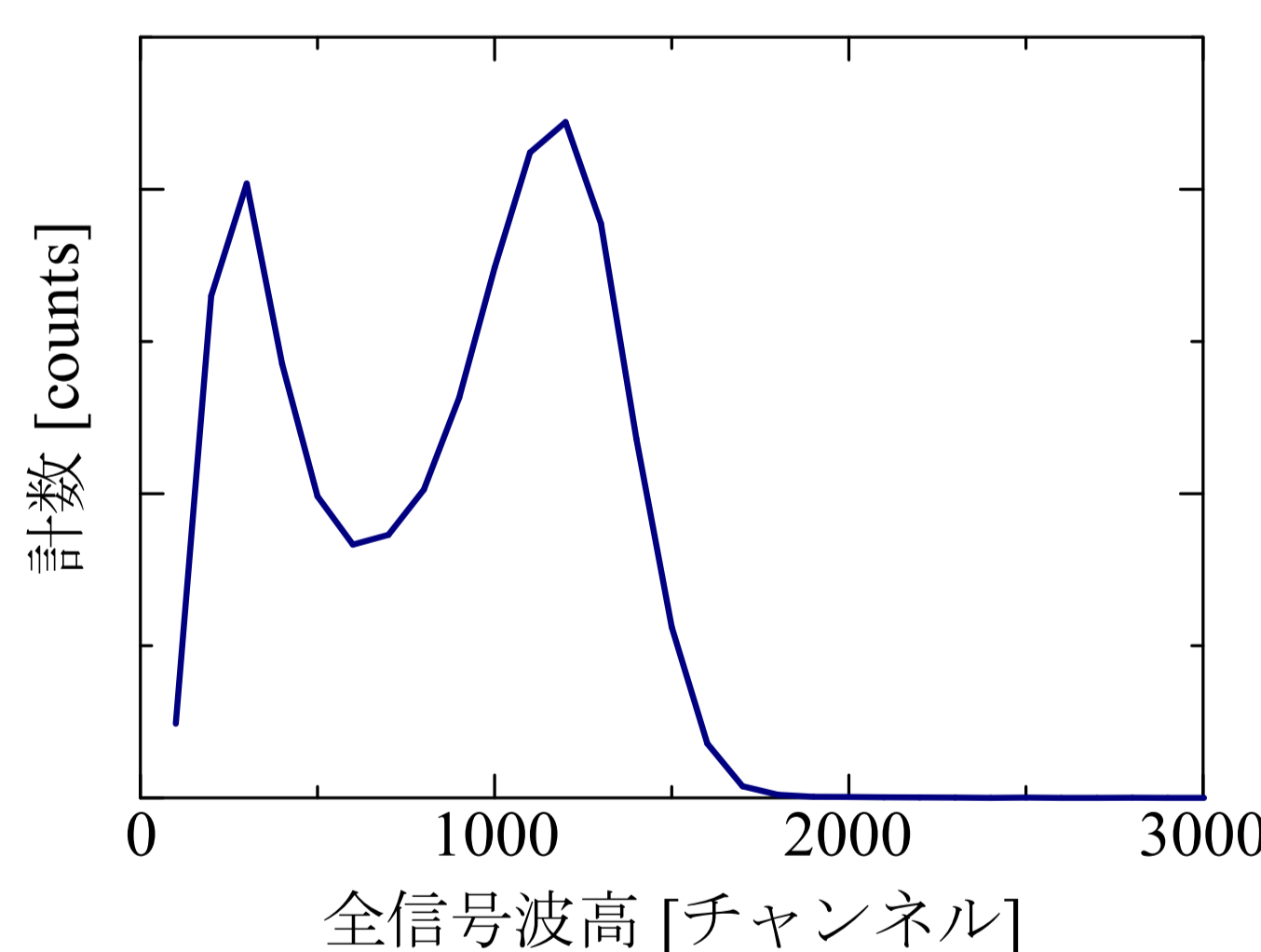


図3. 位置敏感型光電子増倍管の全イベント積算した際の波高値スペクトル。

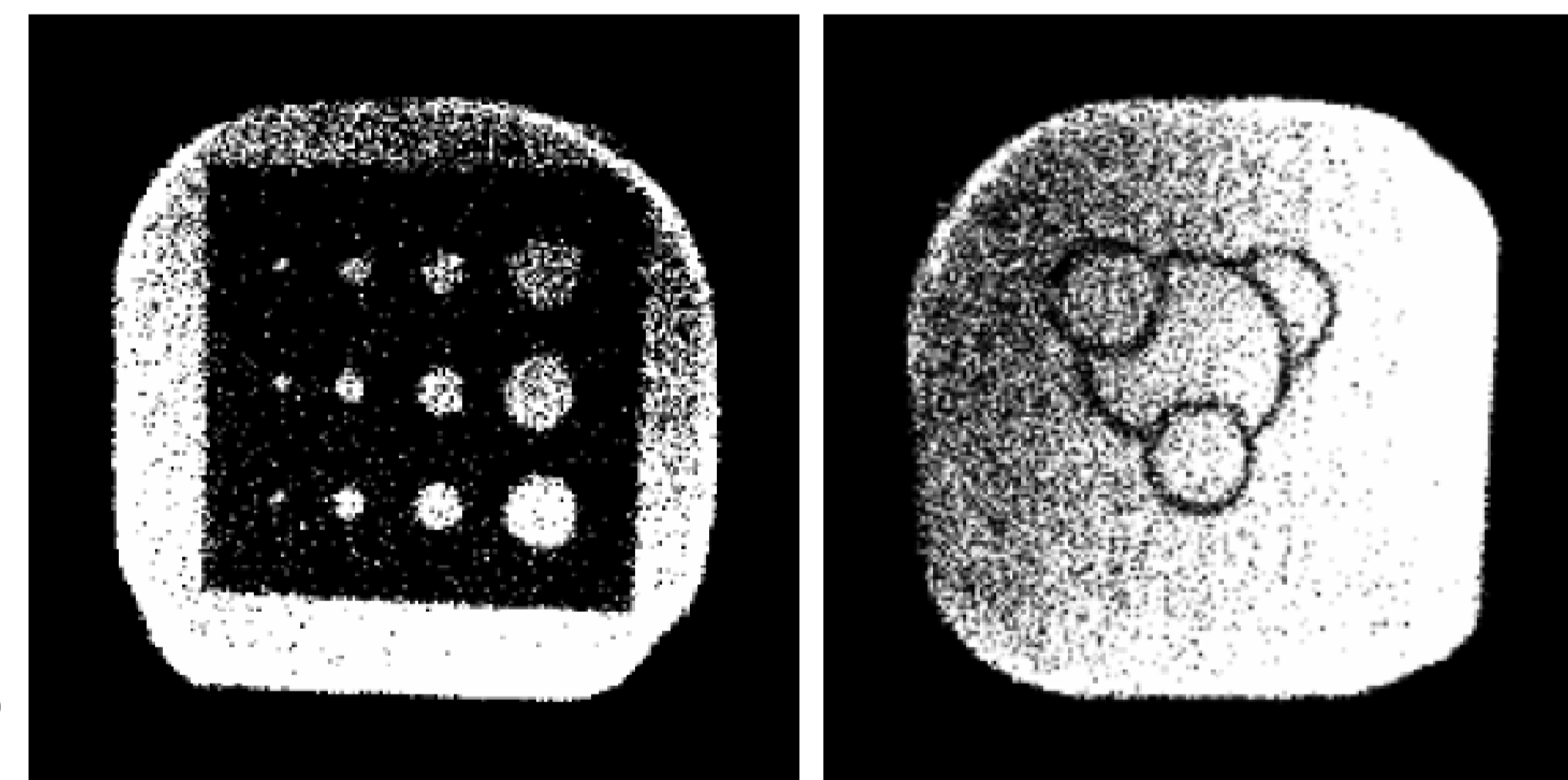


図4. Eu添加⁶LiCaAlF₆を用いた熱中性子透過像。

5. 結論・考察

今回のEu添加⁶LiCaAlF₆を用いて得られた熱中性子透過像は、厚み1mmのカドミウムに対して十分なコントラストを持ち、1 mm径のピンホールや1 mm径のワイヤーによる複雑な図形を撮像するのに十分な位置分解能を有した。これによりEu添加⁶LiCaAlF₆は、³Heガス検出器の主要な応用の一つである熱中性子透過像の撮像に用いることが可能である事が分かった。基礎研究レベルにおいて、現状最高の解像度を示しているMSGCを用いた³He検出器でもサブミリ前後の解像度であることが知られているおり、本成果はそれらと同等の解像度であることから、当該材料が極めて有望であることが示された。

6. 引用(参照)文献等

[1] N. Kawaguchi, T. Yanagida, A. Novoselov, K. J. Kim, K. Fukuda, A. Yoshikawa, M. Miyake, and M. Baba, Nuclear Science Symposium Conference Record, IEEE NSS/MIC (2008) 1174-1176

低損失光ファイバ母材の構造解析

利用者 ○齋藤 吉広

所属 住友電気工業（株）

1. はじめに

光ファイバ用SiO₂ガラス母材の構造解析を目指し、中性子散乱スペクトルを測定した。試料には直径15mm程度の円柱状ロッドを用いた。結果として、添加元素あり/なしの2種類の試料に対し、充分強度の大きなスペクトルを得ることができた。

2. 実験目的

光ファイバはSiO₂を主成分とするガラス(非晶質)材料であり、結晶のように構造を一義的に決めることはできない。しかし、X線散乱などの測定とコンピュータシミュレーションを組み合わせることで、光ファイバの原子レベルでの構造把握と物性予測が可能になると期待できる。今後、ファイバ材料の効率的な開発には、このような材料設計の技術が不可欠になると予想される。弊社では、これら材料設計に必要な測定とシミュレーションの技術開発を進めている。X線分析については、これまでSPring-8の放射光を用いたX線散乱及びXAFSの測定技術を確立してきた。また、シミュレーションに関しては、経験的パラメータを用いた分子動力学法により、X線分析の結果と整合する構造モデルが得られるようになってきた。構造解析の精度を上げるには、X線散乱と中性子散乱を組み合わせることが有効である。即ち、X線と中性子では各原子の散乱能が異なるので、同じ材料から2種類の散乱スペクトルあるいは動径分布関数が得ることができる。その両方に整合するような構造モデルをシミュレーションで作製できれば、X線単独に比べ更に信憑性の高い構造モデルとなる。非晶質の中性子散乱測定については、弊社では全く経験がなかった。今回、光ファイバ母材の中性子散乱測定を実施し、測定と解析技術を習得することを目指した。

3. 実験方法

測定試料は、合成石英の光ファイバ母材から円柱状に切り出したガラスロッドである。ロッドサイズは、直径約15 mm、長さは300 mm以上となっている。また、試料組成としては、添加物なしの純SiO₂、及び、1%以下の微量添加元素を含むSiO₂の2種を用意した。また、測定中に試料を垂直に保持するためのスタンドも自作した。図1 SiO₂ガラスの中性子散乱測定図1に中性子散乱測定系の写真を示す。測定にはJRR-3の三軸型中性子分光器(TAS-1)を用い、中性子波長は0.1 nmに設定した。また、検出器のゴニオメータのスキャン範囲は5~100°、スキャンのステップは0.2°、積算時間20秒/ステップとして、1試料当たり3回のスキャンを行った。参考までに、1回のスキャンに要する時間は、ゴニオメータの移動を含め、3時間程度であった。



図1 SiO₂ガラスの中性子散乱測定図

4. 研究成果

図2にSiO₂ガラス(添加元素なし)の散乱スペクトルを示す(cf. 縦軸単位はcounts/sで表示)。3回のスキャンの平均(=合計の積算時間は60秒/ステップ)を見ると、充分明瞭なスペクトルが得られることが分かる。なお、同図には、1回目のスキャンのスペクトルも併記してある。データにややばらつきがみられるものの、3回平均のものとはほぼ同様のスペクトルとなっていた。即ち、今回の試料のサイズなら、20秒/ステップ程度の積算時間でも、かなり強度の大きなスペクトルが得られると考えられる。図3は、2種類のSiO₂の散乱スペクトルを、重ねて描画したものである(いずれも、3回のスキャンの平均)。なお、比較のため、「添加元素あり」の実測値を1.3倍し、第一ピークが「添加元素なし」のものと同程度になるようにしている。結果として、第3ピーク以降では、2種類のSiO₂のスペクトルに若干の差異がみられた。

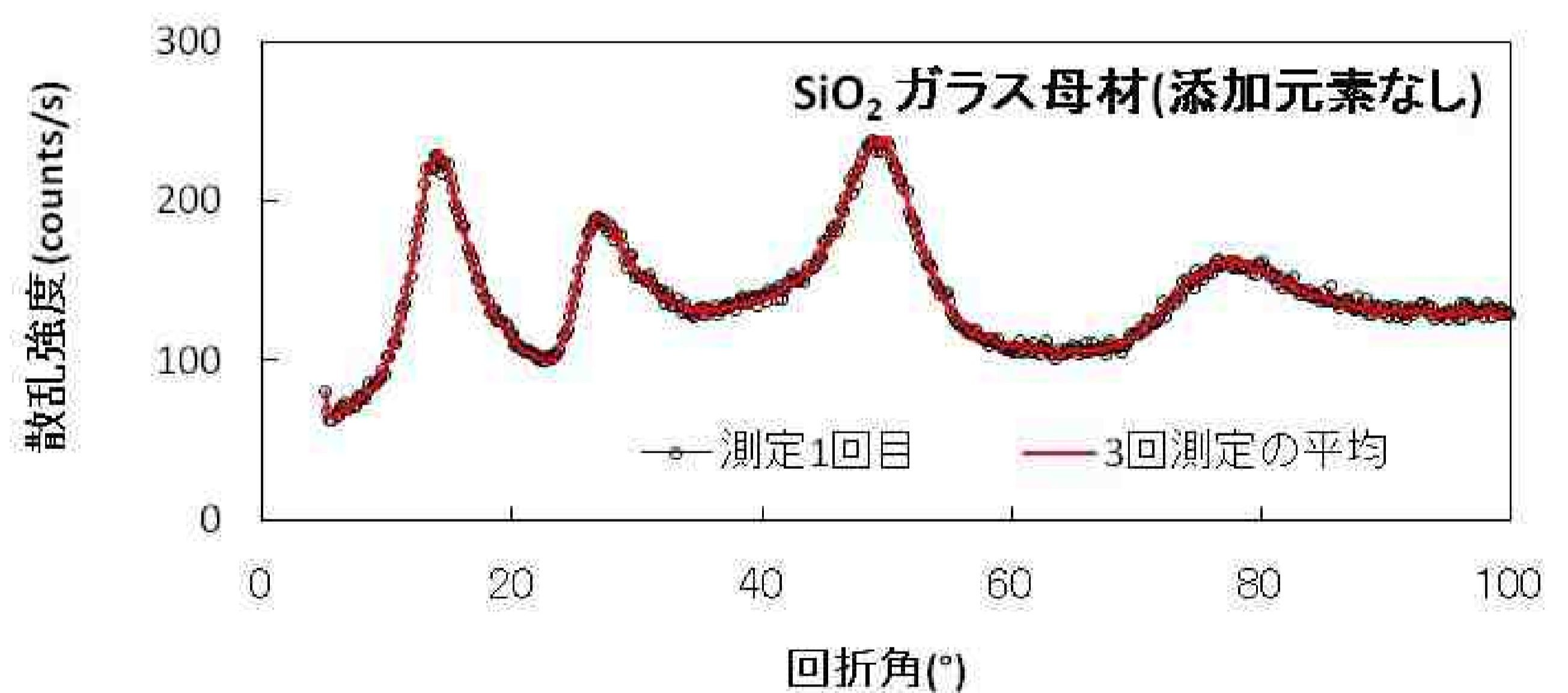


図2 SiO₂ガラス(添加元素なし)の中性子散乱スペクトル

5. 結論・考察

今回の結果から、直径15mm程度の円柱状試料であれば、数時間程度の測定により、充分な強度の中性子散乱スペクトルを得ることが可能と考えられる。また、添加元素あり/なしの2種類の試料間でスペクトルに若干の差異が見られたが、構造の違いを反映したものであるかどうかは、今後詳しく解析する必要がある。具体的には、試料による吸収の効果を検討した補正を行った上で、動径分布関数を算出し、有意差かどうか検討する予定である。

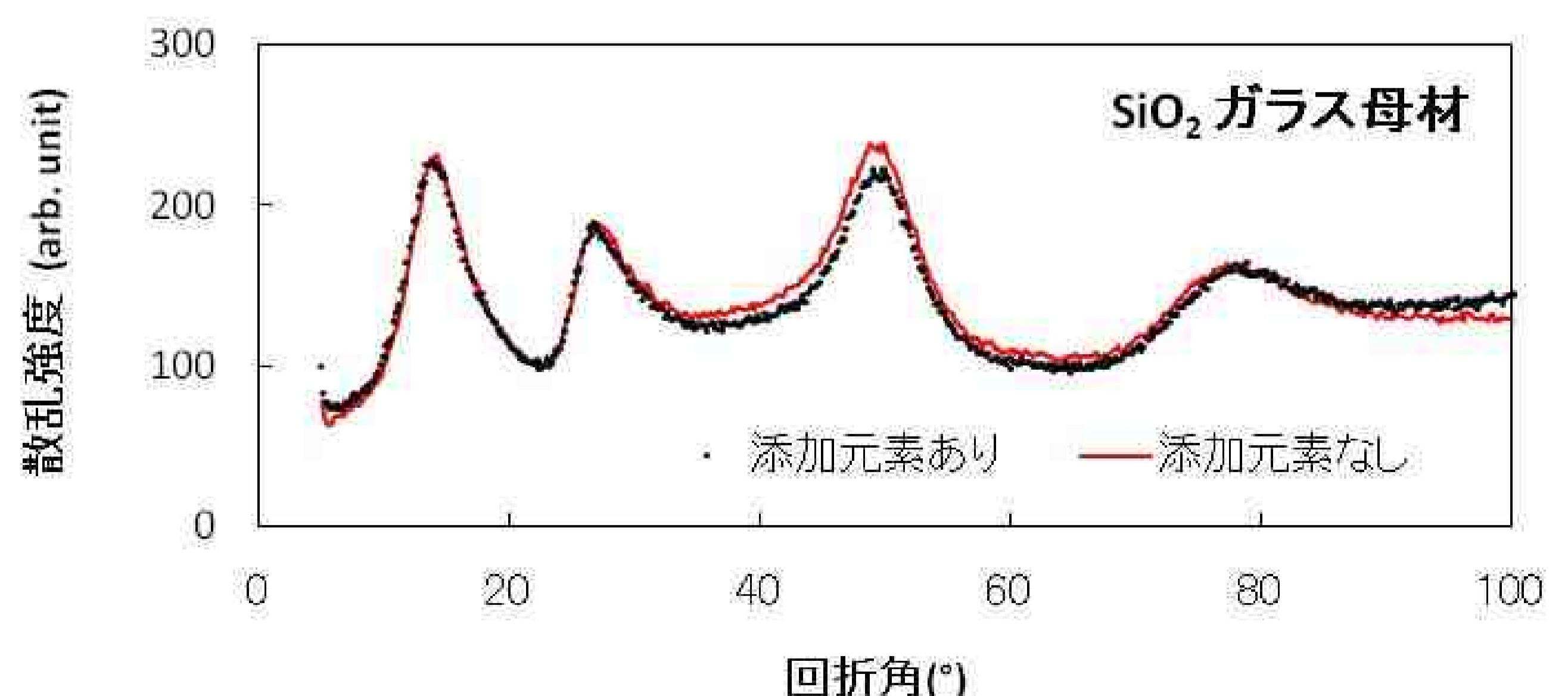


図3 2種類のSiO₂ガラスの中性子散乱スペクトル

6. 引用(参照)文献等

非晶質シリカ材料応用ハンドブック(リアライズ社) pp331-339.