T2R2 東京科学大学 リサーチリポジトリ
Science Tokyo Research Repository

論文 / 著書情報
Article / Book Information

題目(和文)	Pd-107の中性子捕獲反応に関する研究
Title(English)	
著者(和文)	中野秀仁
Author(English)	Hideto Nakano
出典(和文)	学位:博士(工学), 学位授与機関:東京工業大学, 報告番号:甲第12458号, 授与年月日:2023年3月26日, 学位の種別:課程博士, 審査員:片渕 竜也,小栗 慶之,千葉 敏,赤塚 洋,長谷川 純
Citation(English)	Degree:Doctor (Engineering), Conferring organization: Tokyo Institute of Technology, Report number:甲第12458号, Conferred date:2023/3/26, Degree Type:Course doctor, Examiner:,,,,
学位種別(和文)	博士論文
Category(English)	Doctoral Thesis
種別(和文)	要約
Type(English)	Outline

Powered by T2R2 (Science Tokyo Research Repository)

論文の要約

原子力産業において原子炉から生成される高レベル放射性廃棄物の処理が大きな問題となっている。特に有害度の高い長寿命放射性物質を中性子核反応によって短寿命化、無害化する研究が行われている。核変換研究の対象核種はマイナーアクチノイド（MA）や長寿命核分裂生成物（LLFP）などであるが、技術的な問題から中性子核反応データの精度が不足している核種がある。LLFP の中性子核データは LLFP 自身の核変換で当然必要となるが、MA の加速器駆動システムや高速炉を用いた核分裂による核変換でも重要となる。本研究では LLFP の中でも測定例が少なく核データの不確かさが大きい ^{107}Pd の中性子捕獲断面積を測定した。大強度陽子加速器施設（J-PARC）の物質・生命科学実験施設（MLF）の中性子核反応測定装置（ANNRI）で実験を行った。

第 2 章では、核データ測定実験にあたり、これまで ANNRI に設置されていなかった入射中性子検出器の開発を行った。中性子核データ測定におい入射中性子を測定する理由は大きく 2 つある。1 つ目は各測定のカウントを時間ではなく入射中性子数で規格化して比較するためである。2 つ目は断面積を導出するために中性子エネルギースペクトルが必要であるためである。J-PARC の ANNRI では核破砕中性子源からの高強度中性子ビームに既存の検出器が対応できず設置されていなかった。入射中性子測定の目的の 1 つ目である各測定の規格化には、入射中性子数は中性子源に入射する陽子パルス数に比例するという仮定のもと入射陽子パルス数を用いてきた。目的の 2 つ目である中性子スペクトルはホウ素試料での ^{10}B(n,αγ)^{7}Li 反応だけを用いて決定しており、信頼性を向上するための他の手法での測定が行われていない。そこで ANNRI での核データ測定研究の信頼性向上のため入射中性子検出器を開発した。高係数率に対応する為に中性子変換膜とプラスチックシンチレータを組み合わせた時間応答の速い検出器を設計した。中性子変換膜で中性子を検出し荷電粒子を生成する。生成された荷電粒子はプラスチックシンチレータで捕捉されシンチレーション光を発する。シンチレータから発せられた光は光電子増倍管で電気信号に変換される。中性子変換膜には ^{6}Li を用いて ^{6}Li(n,t)^{4}He 反応で中性子を検出した。膜厚はモンテカルロシミュレーションコード PHITS を用いた計算により 500 μg/cm^{2} と決定した。真空蒸着法で ^{6}LiF の薄膜を作製した。薄膜とプラスチックシンチレータをアルミケースに格納し光電子増倍管を装着して検出器を製作した。アルミケースは遮光テープで遮光して実験を行った。J-PARC/ANNRI で性能実験を行い、J-PARC 加速器はダブルバンチモードで運転された。ダブルパルスモードは幅 100 ns の陽子パルスが 600 ns の時間間隔で 2 発、25 Hz 周期で核破砕標的に入射する運転モードである。陽子ビームパワーは 615 kW であった。検出器システムは中性子源から中性子の飛行距離 28.59 m の位置に設置された。^{6}LiF 試料を用いた本測定以外にも、飛行距離校正のためのブラッグレゾナンスフィルタを用いた測定と ^{nat}LiF 試料を用いたバックグラウンド測定を行った。検出器からの信号は信号の波高（PH）と飛行時間（TOF）の 2 元データとして取り込まれる。TOF のスタート信号は陽子パルス

が中性子源に入射した時間、ストップ信号は検出器が中性子を検出した時間にそれぞれデータ収集系に取り込まれ、その差分を飛行時間データとして利用する。各検出イベントの波高と TOF は逐次的に時系列データとして記録された。ヒストグラムの作成をはじめとする解析はオフラインで行われた。PH スペクトルの三重陽子のピークの領域のカウントの TOF スペクトルを作成し中性子スペクトルを導出した。不感時間補正を行いオーバーラップ中性子によるバックグラウンドを除去した。^{6}LiF 試料の測定と ^{nat}LiF 試料の測定の差分をとることで ^{6}Li(n,t)^{4}He 反応の正味の TOF スペクトルを導出した。JENDL-4.0 の断面積と原子数面密度から計算した検出効率を用いて中性子スペクトルを求めた。校正した飛行距離の値を使用して TOF を中性子エネルギーに変換し中性子エネルギースペクトルを導出した。数え落としは中性子検出に有効な飛行時間領域で最大約 1%であった。また、中性子スペクトルのエネルギー依存性を過去の測定データと比較したところよく一致した。十分使用可能な性能を有していることが確認されたので第 3 章で記述する断面積測定実験で使用することとした。

第 3 章では、^{107}Pd の中性子捕獲断面積測定実験を NaI(Tl)スペクトロメータを用いて飛行時間法で実験を行った。加速器のビーム出力は 730 kW、繰り返し周波数 25 Hz、ダブルバンチモードで運転された。第 2 章で開発した中性子検出器を入射中性子検出器として設置し、実験期間中は常時入射中性子を計測した。計測した入射中性子数を各試料の測定データの規格化に使用した。また、1 陽子パルス数当たりの入射中性子数の変動を調べたところ中性子数の変動は他の誤差に埋もれるほど小さいことが分かった。1 陽子パルス数当たりの入射中性子数の変動はこれまで調べてこられなかったデータであり、新しい知見が得られた。捕獲ガンマ線は中性子ビームに対して 90 度の位置に設置された NaI(Tl)スペクトロメータで計測した。波高と飛行時間の 2 次元データを事象毎に記録した。^{107}Pd 試料は金属粉末の試料を圧縮成形して金属ペレットに加工したものであり、寸法は直径 4.523 mm、厚さ 0.917 mm であった。^{107}Pd 試料の同位体組成は ^{107}Pd が 15.3%、正味の重量は 21.0 mg である。^{105}Pd が 48%含まれているため同位体不純物のバックグラウンド評価が重要である。放射能は 398 kBq であり、法律上の放射性同位体としての下限数量を下回っている。得られた波高スペクトルに波高重み法を適用し捕獲反応数を計算した。重み積分をした係数の飛行時間スペクトルについて不感時間補正を行い数え落としによる効果を補正した。オーバーラップ中性子バックグラウンドを指数関数によるフィッティングで導出し除去した。その他のバックグラウンドとして、試料に依存しない成分や散乱中性子、^{107}Pd 試料の同位体不純物の成分を評価し除去した。また、^{107}Pd 試料はアルミケースに封入されているため、ダミーケースを用いてアルミケース由来のバックグラウンドを見積もり除去した。バックグランドを除去した正味の捕獲反応数について、波高スペクトルの外挿補正と多重散乱・自己遮蔽の補正を行った。中性子のエネルギー分布はホウ素試料の ^{10}B(n, αγ)^{7}Li 反応のイベントを計測して導出した。断面積の絶対値は ^{108}Pd の熱中性子捕獲断面積を基準にして決定した。

第 4 章では、導出した中性子捕獲断面積の結果、及び共鳴解析の結果について報告した。^{107}Pd の中性子捕獲断面積は熱中性子エネルギーで 19.0±1.7 b となり、過去の測定データや評価値は著しく過小評価していることが分かった。keV 領域は過去の測定値及び評価値と一致した。共鳴領域については REFIT を用いて共鳴解析を行い、共鳴パラメータを導出した。共鳴解析は様々な同位体を込みで解析するのが一般的であるため、同位体不純物の反応数を含んだデータを REFIT の入力とした。解析で使用する分解能関数は、J-PARC のダブルバンチモードのビーム構造を考慮したものを使用した。1-500 eV の領域でフィッティングを行った。フィッティングを行った共鳴は 17 個だった。放射幅の平均は 0.181±0.009 eV であった。

第 5 章では、以上の各章で得られた成果を総括し、結論を述べている。本論文は LLFP 核種の一つである ^{107}Pd の中性子捕獲断面積を熱中性子エネルギーから keV 領域の広いエネルギー範囲にわたって決定した。核変換システム開発で必要とされる ^{107}Pd の中性子捕獲断面積データの高精度化に大きく寄与し、核変換研究の更なる発展を可能とする。