

# 液体および固体中の環境中性子深度分布及びエネルギー分布

著者	濱島 靖典
著者別名	Hamajima, Yasunori
雑誌名	博士学位論文要旨 論文内容の要旨および論文審査結果の要旨 / 金沢大学大学院自然科学研究科
巻	平成20年6月
ページ	616-620
発行年	2008-06-01
URL	<a href="http://hdl.handle.net/2297/26895">http://hdl.handle.net/2297/26895</a>

氏名	濱島 靖典
学位の種類	博士(理学)
学位記番号	博乙第318号
学位授与の日付	平成19年9月28日
学位授与の要件	論文博士(学位規則第4条第2項)
学位授与の題目	液体および固体中の環境中性子深度分布及びエネルギー分布
論文審査委員(主査)	奥野 正幸(自然科学研究科・教授)
論文審査委員(副査)	山本 政儀(自然科学研究科・教授), 天野 良平(医学系研究科・教授), 中西 孝(自然科学研究科・教授), 横山 明彦(自然科学研究科・准教授)

Depth profiles of environmental neutron fluxes in freshwater, seawater, concrete, iron and lead have been measured by the activation method of gold foils. Eleven targets of 16 to 33 g gold foils (40 x 300 x 0.1 mm) were irradiated for roughly 20 days. The photo peak of Au-198 was measured for 4 - 5 days by Ge detectors in the OUL at the same time. The neutron fluxes in freshwater and seawater were decreased exponentially, while those in iron and lead were not decreased with depth deeper than 17 g cm<sup>-2</sup>. A maximum has not been found in shallow depth. That in concrete had a maximum at 30 g cm<sup>-2</sup> and then decreases exponentially. Depth profiles of gold activity and neutron flux were simulated, by using two Monte Carlo neutron transport codes (MCNP4C and MCNPX240) and the results were compared. The simulated depth profiles were well reproduced in all the experimental results. MCNPX is able to estimate environmental neutron induced activities in materials. Our results are, for example, useful for the erosion and dating study in geo-science field, for the low-level radioactivity measurements, and for the design of detector and its shield. Anticoincidence system with plastic scintillator (PS) attached to wavelength shifting fiber has been tested to reduce cosmic ray (CR) induced background. Energy spectra of PSs, coincidence count rate, and angular distribution of CR were measured.

## 1. 研究概要

環境中性子の起源は、主に1次宇宙線と大気との核破砕反応による2次宇宙線成分の一つとして、また一部は放射性壊変による事が知られている。環境中性子誘導核種は、地球科学分野で年代測定や浸食の研究に有用に用いられている。一方、極低レベル放射能測定の際には妨害となることがある。いずれの場合も、物質中の環境中性子誘導核種分布、或いは中性子束分布(中性子エネルギーの関数として)を知ることが重要である。しかし、1970年代以後、カウンターを用いた大気中の高度分布は報告されているが、固体や水中深度分布の詳細な報告例は少なく、計算により推定されていた。

本研究では、

1. 金箔を環境中性子で照射し<sup>197</sup>Au(n, γ)<sup>198</sup>Au放射化反応で生成したAu-198のガンマ線を測定することにより、淡水、海水、コンクリート、鉄及び鉛中の環境中性子束分布を深度分解能、中性子束共に精度よく測定した。

2. 更に、この実験結果をよく再現するように、中性子輸送の MCNPX計算のパラメータを決定し、各物質中の中性子束分布を中性子エネルギーの関数として求め、環境中性子のエネルギー分布が物質表面から深くなるにつれてどのように変化するかを明らかにした。

3. 本研究の測定は、旧尾小屋鉱山トンネル内の地下測定室(水深換算 270m)に設置した計 11 台の高分解能・高効率・極低 BG の Ge 検出器を同時に用いる事で可能となった。さらに 1 桁BGを下げると、Cd比などから環境中性子のエネルギー分布が実験的に測定できる可能性がある。このためBGの要因の 1 つである宇宙線成分を除去する事を目的として、プラスチックシンチレータによる逆同時計数装置の開発を行った。このプラスチックシンチレータは、薄型で光ガイドにファイバーを用いる事により、BGを悪化させずにPb遮へい内に組み込む事を目指した。

## 2. 実験

### 2.1 中性子束分布測定

16 から 33g の金箔を、淡水、海水中に水平に吊るした。また重ねたコンクリート板、鉄板、鉛板の間に挿入した。約 20 日照射後、尾小屋地下測定室で、生成した Au-198 の 412keV $\gamma$  線を約 4 日間同時に測定した。金標的中の放射能は全て熱中性子によると仮定し、各深度の中性子束を求めた。中性子自己遮へい、輸送中の照射、 $\gamma$  線の自己吸収、計数効率等の補正の検討も行った。

### 2.2 中性子輸送計算

計算コードは MCNP4C, MCNPX2.4.0 を用い実験結果の再現性を検討した。3 種類の中性子エネルギースペクトル源を仮定してそれぞれ各物質中の深度分布を計算し、金の励起関数と積分し生成放射能を求め、実験値と直接比較した。

### 2.3 逆同時計数装置の開発

プラスチックシンチレータ(PS)を現状の遮へい上部に設置して CR を検出し、通常 BG への寄与を検討した。基礎実験として通常的光ガイド接続のプラスチックシンチレータで、厚みの検討、宇宙線エネルギー分布、計数効率、宇宙線の角度分布測定、出力パルスの時間分布測定等を行い、それぞれの場合について宇宙線の寄与をどれだけ除去できるか検討した。また光ガイドにファイバーを用いて有効性の検討を行った。

## 3. 結果と考察

### 3.1 中性子束分布測定

標的の金は、熱中性子反応断面積が大きく中性子自己遮へいを考慮しなければならない。これを補正するため、放射性の中性子線源による熱中性子場を作り、減弱係数を実測し、標的両面から熱中性子が入射した時の補正係数を求めた。0.1mm 厚の Au 中では中性子の減弱(自己遮へい)は無視できるが、0.7mm では 7%の補正が必要となる。照射後の標的輸送中の環境中性子照射の寄与も検討し、1mm の Cd 板で標

的を包み、10cm程度のパラフィンブロックで遮蔽する事で影響は無視できることが分かった。測定時の $\gamma$ 線の自己吸収と計数効率等の補正は412keVの $\gamma$ 線実測値から求めた。

物質境界での環境中性子束は、季節などにより変動はあるが、いずれの実験でもほぼ $1 \times 10^{-3} \text{cm}^{-2} \text{sec}^{-1}$ であった。

水中の環境中性子束は、全体的には、指数関数的に減少していた。淡水と海水を比較すると、0から50g/cm<sup>2</sup>間が若干異なるが、大きな差は見られなかった。20から30g/cm<sup>2</sup>付近に不連続があるようにも見られる。複数回実験を行ったところ、深度5g/cm<sup>2</sup>付近にピークが見られる場合があった。この結果の傾向はKastnerらの計算値にも見られる。

コンクリート中では30g/cm<sup>2</sup>から40g/cm<sup>2</sup>まで増加後、実験を行った70g/cm<sup>2</sup>まで減少した。この結果はただ1例報告されているLiuらの結果と同じ傾向を示した。

鉄中の分布は0g/cm<sup>2</sup>から26g/cm<sup>2</sup>までは減少し、その後216g/cm<sup>2</sup>までの範囲ではほぼ一定であった。極大は見られなかった。鉛中の分布は鉄の分布とほぼ同じ傾向であった。鉄及び鉛中の分布はそれぞれ26, 17g/cm<sup>2</sup>より深い深度では減少せず、水中の分布(指数関数的に減少)とは異なっていた。

### 3.2 中性子輸送計算と実験値の比較

MCNP4C, MCNPX2.4.0 中性子輸送計算では、計算させる空間の設定と、中性子の初期条件が重要である。大気中の環境中性子のエネルギー分布は近年報告された結果をもとに作成した模擬スペクトルを用いた。角度分布は報告値が無いので、初期値は標的直上9mから鉛直方向としたが、標的までの大気空間で散乱しある程度の角度分布を持つよう考慮した。大気と物質境界の変動も再現できるように計算する空間を設定した。

環境中性子のエネルギー分布は、熱中性子から数100MeVまで及ぶため、MCNPX2.4.0が適している事が分かった。MCNPX2.4.0に用いる元素の核データにはNa, Clが無いので、海水の計算は行っていない。淡水、コンクリート、鉄、鉛中の金の放射化法とMCNPX2.4.0計算で求めた環境中性子束深度分布を比較する事が出来た。

深度0g/cm<sup>2</sup>の絶対値の差は、照射期間中の空気中環境中性子束強度と環境中性子のエネルギー模擬スペクトルの差に由来するが、スケーリングは行わず結果を直接比較した。

いずれの物質も計算結果は実験結果をよく再現できた。

淡水中の分布は実験結果では、ほぼ指数関数的に減少したが、計算では10-20g/cm<sup>2</sup>に大きな極大が見られた。50g/cm<sup>2</sup>から200g/cm<sup>2</sup>までの範囲ではよく一致した。

コンクリート中では30g/cm<sup>2</sup>から40g/cm<sup>2</sup>まで増加後減少の実験結果を計算結果はよく再現した。Liuらの報告値とも同じ傾向を示した。

鉄及び鉛中では表面付近で減少は計算では見られなかった。その後227g/cm<sup>2</sup>までの範囲ではほぼ一定で、極大は見られなかった。この表面以外の計算結果は絶対値、傾向とも実験結果をよく再現した。

物質によって中性子束深度分布は大きく異なるが、金中の生成放射能分布は MCNPX2.4.0 計算で分布、絶対値ともよく再現された。

MCNPX2.4.0 計算では各物質中の熱中性子、熱外中性子、速中性子の深度分布も求めることができる。金の放射化から求めた環境中性子束深度分布に大きく寄与する環境中性子エネルギー成分は、淡水では熱中性子、コンクリートでは熱中性子と速中性子、鉄では速中性子、鉛では速中性子であることが分かった。コンクリート中では水分含有率が深度分布に大きく影響する事、鉄中では熱中性子は急激に減少することが分かった。Z が大きい元素組成の物質は、速中性子の寄与が大きい傾向にあることが分かった。

更に検討を要する点は、淡水中の実験では見られない極大が計算で現れる原因の追求、鉄及び鉛表面での減少が計算で再現できない点が上げられる。

今後の展開として、他の物質中の環境中性子束分布の推定、特に複雑な元素組成の物質中の分布の推定が可能となる。また、低レベル放射能測定の際妨害となる、試料中や検出器自身の環境中性子放射化物の推定が可能となる。

### 3.3 逆同時計数装置の開発

#### 3.3.1 計数率

PS は 0.5mm 厚でも 5cm 厚と同等の宇宙線の検出効率があることが分かった。0.5mm 厚の PS の計数率は、大面積にもかかわらずかなり少なかった。これはガンマ線に対する感度が低いためと考えられる。従って、Ge 検出器の  $2\pi$  sr をカバーするように 5 台の PS の和事象 (OR) を作っても、Ge の BG との偶然の同時計数はほぼ無視でき、逆同時の不感時間の補正は 0.1% 以下となる事がわかった。しかし、他施設のように 5 台とも 5cm 厚の PS を用いる場合は、計数率が 2k cps 以上になり、無視できないと思われる。また、計数率が 1k cps 以上となるような試料の場合も、同様に無視できないと思われる。

#### 3.3.2 時間差スペクトル

0 から  $10\mu$  sec の間に 2 つのピークが見られた。従って、逆同時計数の resolving time は  $10\mu$  sec 程度必要であると思われる。

#### 3.3.3 宇宙線の角度分布

地上では入射 CR の角度分布は天頂角  $\theta$  の関数でほぼ  $\cos^2\theta$  となる事が分かった。尾小屋では南方向に 50-60 度に極大が見られた。地図上ではトンネル上のこの方向に谷があるためと推定される。

#### 3.3.4 逆同時 BG 積分計数率

Ge singles と逆同時についてエネルギー範囲ごとの BG 計数率を見ると、1.5 から 2.0MeV では逆同時計数を行っても BG は約 55% しか減少しない。この範囲には TI-208 のコンプトン散乱の寄与が大きいと考えられる。1.5MeV 以下ではさらに K-40 のコンプトン散乱が加わる。この K-40 や TI-208 の由来は、大部分は遮へいによるもの、一部は検出器自身によるものと思われる。よって、地上設置の Ge であっても、逆同時計数で CR を除去し、2MeV 以下の測定を行う場合は、できるだけ低 BG の Ge

と、遮へいを用いないとその効果は現れない事が分かる。3.0 から 4.0MeV, 6.0 から 7.0MeV, 7.2MeV 以上では、逆同時計数によりそれぞれ BG が, 80%, 85%, 90%減少している。7.2MeV 以上は $\mu$  粒子自身のみの寄与によるものと思われるので, 90%の $\mu$  粒子は除去できていることが分かった。BG に見られる K-40 と Tl-208 のピーク面積の計数率は逆同時をかけても誤差の範囲で一致しており, 宇宙線のみ除去できている事が確認できた。

### 3.3.5 光ファイバー接続 PS の検討

3mm厚のPSに1mm $\phi$  の光ファイバーを埋め込み1本の小型光電子増倍管で複数のPS出力を検出できるように設計した。検出効率は正確に求めていないが, 上記結果と同等である。集光と, 光遮蔽に検討の余地があるが, 充分実用になると思われる。

今後の展開は, 実用化に向けて強度の確保や, ファイバーの取り回しなどである。測定にLISTモードを用いる事により回路の簡略化も可能であり, 多くの測定器に応用できる。

## 学位論文審査結果の要旨

本論文は, 液体および固体中の環境中性子深度分布及びエネルギー分布測定と, 測定に必要なガンマ線検出器の更なる低バックグラウンド化のため, 新しい構想の逆同時計数装置開発の2点から成る。

1) 液体および固体中の環境中性子深度分布及びエネルギー分布測定では, 厚さ 0.1mm の金を標的に用い, カウンター実験では測定不可能な過酷な環境(水中)や, 小さな空間(コンクリート, 鉄, 鉛金属中)の中性子束の精密な分布測定を行った。また実験結果と照合しつつ, 中性子輸送モンテカルロ計算を行い, 中性子場の空間サイズ, 標的核の励起関数, 構成物質の元素組成, 入射環境中性子のエネルギースペクトルを検討し, 上記物質中の中性子束強度変化を再現しエネルギースペクトル変化を明らかにした。本研究により, さまざまな物質深度中の環境中性子誘導放射能を予測可能となった。

2) ガンマ線測定を妨害する宇宙線除去のための逆同時計数装置の開発では, 宇宙線の時間変化, 角度分布, 逆同時計数タイミング等, ガンマ線測定の効率を落とさず宇宙線を除去するために必要な基礎的条件を明らかにするとともに, 従来より1桁薄いプラスチックシンチレーションカウンターと光ファイバー接続により効率よく宇宙線を除去できる事を見いだした。リストモードによるデータ記録法も検討し, 簡便かつ効率的な極低バックグラウンド測定に大きく寄与する成果を得た。以上の研究成果を骨子とする当該学位論文に関し, 審査委員全員による予備審査を経て, 8月3日の口頭発表, 質疑応答後に審査委員会を開催して協議を行った。その結果, 本論文は核・放射化学, 地球化学, 環境科学分野の進展に寄与する一般性に富む新知見を提供しており, 博士(理学)の学位を授与するに値するものと判定した。