

(PJ1) B-2 照射孔を利用したユニークな中性子照射実験の創出

(京大原子炉) ○高宮幸一

1. はじめに

2012 年に京都大学研究用原子炉(KUR)に導入された B-2 実験孔照射装置は、KUR に設置されている圧気輸送管照射設備、水圧輸送管照射設備、傾斜照射孔といった既存の中性子照射設備では照射することができない、大きな試料、溶液試料などへの広いダイナミックレンジでの中性子の照射や、中性子を照射しながらのリアルタイムでの測定を可能にすることを目的として設置された。本プロジェクト研究では、放射化学、基礎化学、生物学、医学、物理学、環境科学といった多様な分野の研究者により、B-2 実験孔照射装置を用いたユニークな中性子照射実験を創出することを目的として研究を行った。

プロジェクト研究期間の初年度は、それぞれの照射実験を行うための実験手法を検討し、必要な基礎データの取得を行った。2 年目以降は、それらの基礎データをもとに照射実験を行い、各実験手法の有効性の検証を行うことを計画していたが、プロジェクト研究期間の 2-3 年目にかけて十分なマシンタイムを確保することができなかったため、最終的な照射実験を完了するには至らなかった。しかし、それぞれの基礎実験により今後本装置を用いて新たな中性子照射実験を行うための有用な結果が得られたので報告する。

2. B-2 実験孔照射装置の概要

B-2 実験孔照射装置の全体図を Fig. 1 に示す。B-2 実験孔は KUR の生体遮へいの床上約 90 cm の位置に、炉心に向けて水平に貫通している実験孔である。実験孔内は炉心に近い側で狭くなっており、内径が 15 cm となっている。このような構造の実験孔において、炉心からの中性子線やガンマ線の装置外部への漏洩

を抑制しつつ照射試料の出し入れをするために、試料の取り付け位置から照射位置までの運搬経路はクランク状となっている。

B-2 実験孔内への試料の運搬にはポリエチレン製の試料輸送台を用いる。試料輸送台に設置できる試料の大きさは、最大で 60 mm×60 mm×300 mm となっており、最大 10 kg までの試料を照射位置まで運搬可能である。輸送台の底面には 6 個の PEEK 製のコマが設置されており、クランク状に設置されているレールとコマが噛み合って装置内を移動する。B-2 実験孔内での輸送台の停止位置（照射位置）は、炉心に最も近い場所から約 3.7 m の間で任意に設定することができる。照射位置によって中性子線束が変化するため、実験に適した中性子照射を行うことができる。また、試料輸送台と測定室をチューブや信号線で接続することにより、試料を循環させながら中性子を照射したり、試料に中性子を照射しながらその物性の変化をリアルタイムに測定したりすることもできる。

3. 実験と結果

3-1. 照射特性評価

B-2 実験孔照射装置での中性子照射条件を明確にするために、実験孔内における中性子線束およびスペクトルの測定を行った。まず、金線を用いた放射化法を用いて、B-2 実験孔内の最も炉心に近い位置から 300 cm まで 50 cm ごとの照射位置において熱中性子線束の測定を行った。その結果、 $10^8 \sim 10^{12}$ n/cm²/s の広いレンジの熱中性子線束での中性子照射が可能であることがわかった。次に、照射される中性子スペクトルの評価を行うために、カドミウムで被覆した金線の照射実験も行い、各照射位置での金

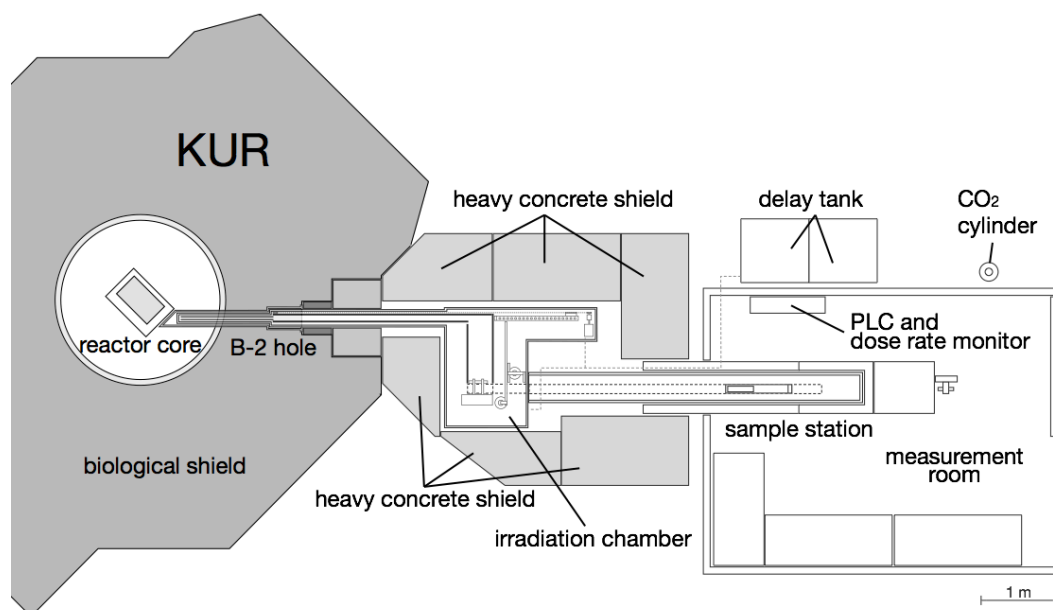


Fig. 1. Overview of B-2 hole irradiation apparatus.

のカドミウム比の測定も行った¹⁾。さらに、中性子線束分布を測定するために PET フィルムを照射し、イメージングプレートを用いてフィルム中に生成した放射能の分布を測定した²⁾。その結果、実験孔内の各照射位置における試料輸送台内部での中性子線束の垂直分布はほぼ均一であることがわかった。

また、本照射装置では大きな試料を運搬できることを利用して、試料輸送台にポリエチレン製の減速材を設置し、その中に照射試料を設置することにより、減速させた中性子を照射する環境の構築を試みた。この結果、5 cm × 5 cm × 20 cm のポリエチレン製の減速材を用いることで、100 cm の照射位置におけるカドミウム比を 10 から 20 まで変化させ得ることが明らかとなった。このことは、スペクトルの異なる中性子による照射が一度の照射実験で可能であることを示しており、照射条件の再現性が重要となる核データ測定などにおいて非常に有用な照射手法となることを示している。また、PHITS³⁾を用いて実験孔内の中性子輸送計算を行い、この照射方法のより定量的な検討も行った⁴⁾。

3-2. 大量試料・液体試料の照射実験

本照射装置を用いることで、圧気輸送管照射設備 (Pn) では照射することができない大きな試料や液体試料の照射を行うことができる。そこで、通常は Pn において数 mg～数 g の固体試料を用いて行う中性子放射化分析を、数十 g の固体試料および液体試料に対して行うことを試みた。

中性子放射化分析ではわずかな試料であっても高感度で定量できることがひとつの特徴である。しかし、環境試料のように不均一な試料を分析する際に、照射に供する試料が全体のごくわずかな一部である場合においては、照射試料が試料全体の元素組成を代表しているかが問題となる。そこで、十分な量の試料を用いて分析を行うことで、代表性を保證することができると考えた。実験では 1.0, 10, 40 g の石英砂をポリエチレン容器に封入したものを B-2 実験孔照射装置で 2 分間照射し、Pn-2 においても 138 mg の同試料を 30 分照射した後に、それぞれ Ge 半導体検出器を用いてガンマ線分光分析を行い、得られるガンマ線スペクトルの比較を行い考察した⁵⁾。

一般的な化学実験において溶液中に微量に存在する元素を非破壊分析によって定量する場合には、イオン交換法や沈殿法によって目的元素を回収し、蒸発乾固を行うことで分析試料として調製する必要がある。しかし、B-2 実験孔照射装置を用いれば、分析を行うための試料調製を行うことなく、溶液に含まれる元素に対して直接中性子放射化分析法による定量が可能となる。しかし、中性子は水素を大量に含む水溶液もしくは有機溶媒中で散乱、減速されるため、定量的に放射化分析を行うためには試料中の中性子の散乱による減衰などを考慮する必要がある。そこで、溶液試料の中性子放射化分析を行うための基礎実験として、水を封入したポリエチレン容器を試料輸送台上に 6 個 (2×3) 設置し、それぞれの

容器の周囲に金箔を配置して照射を行うことで、試料中での中性子の減衰の効果を評価した。この結果、炉心から 150 cm の位置での照射においては、最も炉心に近い試料容器の上流側に比べ、最も炉心に遠い容器の下流側では中性子線量が約 1/10 に減衰することがわかった⁶⁾。また、容器の周囲に金線を環状に配置することで、より詳細に中性子の分布を得ることが可能となり、液体試料中に存在する微量元素の定量を行う際の中性子モニターとして有効であることがわかった。

3-3. オンライン照射実験

溶液や気体状の試料を循環させながら中性子を照射したり、試料に中性子を照射しながら物性の変化をリアルタイムに観測したりといった、B-2 実験孔照射装置を用いたオンライン実験の有効性についての検証を行った。

ひとつは短寿命の放射性核種を生成する元素を含んだ溶液を循環させながら中性子を行い、その半減期の測定を行う Fig. 2 のような照射装置⁷⁾を想定し、試料を循環させるためのチューブや溶液を効率的に照射するための照射セルの材質の検討を行った。試料を循環させるためのチューブの材質は試料輸送装置の運搬経路の構造を考慮して柔軟な PFA を選択し、照射セルには PTFE、ETFE、PEEK を選択して中性子照射に対する耐性試験を行った。PFA については Pn-2 による中性子照射後、引張試験機を用いて劣化の程度を測定し、PTFE、ETFE、PEEK については同様に Pn-2 による中性子照射後に折り曲げ試験を行った。その結果、PFA は溶液の輸送チューブとして適していることがわかり⁸⁾、照射セルの材質には PTFE は不適であり ETFE と PEEK が適していることがわかった⁷⁾。今後、これらの材質の照射装置を作成し、純水を用いた循環照射試験を行い、安全性を確認した後に目的元素を用いた実験を行う予定である。

もうひとつは中性子を照射しながら試料の物性変化を観察する実験として、永久磁石に中性子を照射しながら磁力の変化を観測する実験を試みた。B-2 実験孔内において試料輸送台に固定された永久磁石に中性子照射を行い、試料輸送台と測定室内の測定器を信号線で接続し、Vibration wire 法によって磁力

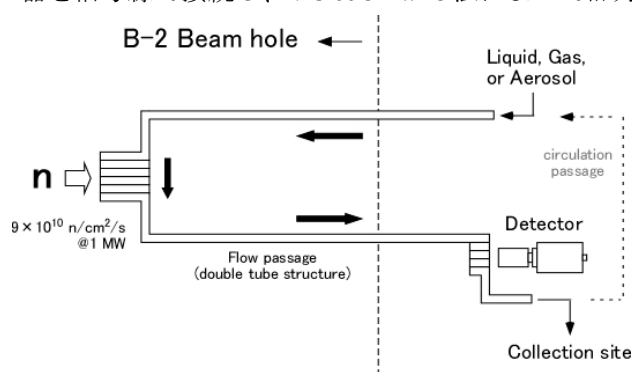


Fig. 2 Schematic diagram of on-line irradiation apparatus at B-2 hole.

の変化を観測した。その結果、わずかではあるが磁力が減衰していく様子をリアルタイムで観測することに成功した。

3-4. 生物試料の照射実験

B-2 実験孔照射装置の生物学への適用のひとつとして、細胞内に取り込まれたホウ素の分布をアルファオートラジオグラフィによって測定する試みを行った。まず、高速中性子成分が Pn と比べて少ない TC- Pn を用いた照射実験によってその有効性を確認し⁹⁾、この手法をより大きな試料にも適用するために、本装置を用いた際の照射条件について検討した。その結果、炉心に最も近い照射位置において中性子減速材を用いることで TC- Pn と同様に細胞内のホウ素分布の測定が可能であることがわかった。¹⁰⁾

4. まとめ

本プロジェクト研究では上記の研究以外にも、医学への応用として、生きたままの生物に対して中性子照射を行うための環境構築を試みる研究、基礎化学への応用として、溶液中に存在する金属ナノ粒子に中性子照射を行い物性の変化を調べる研究、生物学への応用として、植物組織におけるホウ素の *in situ* 可視化法の開発、放射化学および核データ測定への応用として、銅の高速中性子誘起核反応の励起関数の測定実験なども計画していたが、いずれも十分なマシンタイムを確保することができなかったため実施することができなかった。しかし、本プロジェクト研究で得られた成果をもとに、これらの研究を実施する際に必要な多くの基礎データが得られた。今後は本プロジェクト研究で実施もしくは計画してい

た研究テーマのみならず、多くの研究分野において B-2 実験孔照射装置の特徴を活かした研究を実施できるように、さらなる基礎データの蓄積や装置の改良を行っていく予定である。

謝辞

本プロジェクト研究を進めるにあたっては、B-2 実験孔照射装置の導入、運用、保守において、実験設備管理部および研究炉部をはじめとする多くのみなさんのご協力をいただいた。本装置およびプロジェクト研究に関わっていただいたすべての皆様に感謝の意を表したい。

参考文献

- [1] K. Takamiya et al., KURRI Progress Report 2012, PR10-1 (2013).
- [2] K. Takamiya, et al, Proc. Radiochim. Act. **1** (2011) 63-66.
- [3] K. Takamiya et al., KURRI Progress Report 2013, PR10-1 (2014).
- [4] T. Sato et al. J. Nucl. Sci. Technol., **50**, 913 (2013).
- [5] S. Fukutani et al., KURRI Progress Report 2012, PR10-4 (2013).
- [6] T. Fujii et al., KURRI Progress Report 2013, PR10-4 (2014).
- [7] H. Kikunaga et al., KURRI Progress Report 2013, PR10-3(2014).
- [8] H. Kikunaga et al., KURRI Progress Report 2012, PR10-3 (2013).
- [9] H. Tanaka et al., KURRI Progress Report 2012, PR10-2 (2013).
- [10] H. Tanaka et al., KURRI Progress Report 2013, PR10-2 (2014).