HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	パルス中性子共鳴吸収分光法を用いた核種定量分析に関する研究［論文内容及び審査の要旨］
Author(s)	長谷美, 宏幸
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第11888号
Issue Date	2015-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/58699
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/2.1/jp/
Type	doctoral thesis
File Information	Hiroyuki_Hasemi_abstract.pdf, 論文内容の要旨

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称　博士（工学）　氏名　長谷美 宏幸

学 位 論 文 題 名

パルス中性子共鳴吸収分光法を用いた核種定量分析に関する研究
(Study on quantitative estimation of nuclide using pulsed neutron resonance absorption spectroscopy)

中性子共鳴吸収分光法 (N-RAS:Neutron Resonance Absorption Spectroscopy) は中性子と原子核との共鳴現象を中性子の飛行時間法を用いて観測する手法であり、得られた共鳴スペクトルを解析することで物質内部の核種同定・密度分析・温度測定を非破壊・非接触で行うことが可能である。N-RAS は共鳴吸収時に発生する即発 γ 線を計数する即発 γ 線型 N-RAS と中性子の透過率測定を行う透過型 N-RAS がある。このうち、透過型 N-RAS は 2 次元画像検出器と組み合わせることで効率的に核種イメージングを行うことができる。透過型 N-RAS による核種分析は様々な分野への応用が期待されており、考古学資料・文化財に含まれる元素のイメージング、核燃料や燃料デブリに含まれる核燃料物質の同定・定量、または各種工業製品に対する温度測定・イメージングなどに関する研究が進められている。共鳴スペクトルは共鳴パラメータから計算されるスペクトルに分解能関数の一種である中性子のパルス関数が畳み込まれた形で観測される。大強度陽子加速器施設 J-PARC の物質・生命科学実験施設 MLF にあるビームライン 10 番 (BL10)「NOBORU」及び北海道大学 45MeV 電子線形加速器の中性子源 HUNS をはじめとしたパルス中性子イメージングを実施可能な装置における透過型 N-RAS に関するこれまでの研究では、このパルス関数を考慮したスペクトルフィッティングに基づく解析によるイメージングが行われていなかった。本研究では、透過型 N-RAS による狙った核種の原子数密度の定量を行うことを目的として、スペクトルフィッティングに基づく解析手法の開発及び実験手法の改良を行った。

第 2 章では、共鳴現象を説明する際に用いられる複合核モデルとその記述を行う R-Matrix 理論及び Doppler 効果のモデル化についてまとめた。R-Matrix の近似法の一種に Reich-Moore 近似があり、共鳴断面積の表式を行うための近似法として最も正確である。また、原子核の熱運動に起因する Doppler 効果のモデルとして理想ガスモデルがある。これらは共鳴解析において非常に重要であり、その具体的な表式及び計算例について示した。

第 3 章では、NOBORU 及び HUNS において定量的な N-RAS 解析を実施するために、それぞれの施設のパルス関数をモンテカルロシミュレーションで求めた結果について述べた。また、それらのパルス関数の共鳴解析コード REFIT への実装について、計算例と共に説明した。NOBORU における 1 eV から 10 keV の範囲のパルス関数をモンテカルロシミュレーションコード MCNP 及び PHITS を用いて計算し、その計算値に対していくつかの既存の関数を用いてフィッティングを行い最適な関数を求めた。その結果、NOBORU のパルス関数を再現する関数として Cole-Windsor 関数が最適であることがわかり、NOBORU の 1 eV から 10 keV の範囲のパルス関数を任意のエネルギーで再現することが可能となった。HUNS のパルス関数についても同様にモンテカルロシミュレーションによるパルス関数の導出を行い、Cole-Windsor 関数を用いて任意のエネルギーでパルス関数を再現できるようになった。これらの結果により得られたパルス関数を R-Matrix の Reich-Moore 近似に基づいた REFIT コードに実装し、NOBORU 及び HUNS で測定される共鳴ス

ペクトルの計算を可能にした。また、REFIT のオリジナルの機能を利用することで、J-PARC 加速器に特有の陽子ビームのダブルバンチを考慮した共鳴スペクトルの計算を行うことを初めて可能にした。

第 4 章では、第 3 章で説明した共鳴スペクトルの解析システムを利用した原子数密度分析について、また、定量性を悪化させる原因である試料からの散乱中性子の検出を低減するための実験手法の改良についても述べた。まず、試料からの散乱が少ない場合として、10 μm 厚 Ta 箔に対する透過型 N-RAS 実験を NOBORU において行い、測定された透過率スペクトル中の共鳴ディップに対して REFIT による解析を行った。Ta の 4.28 eV 及び 10.36 eV 共鳴に対する解析の結果、それぞれの共鳴ディップの形状を再現し、Ta の原子数密度を誤差 1% 程度で求めることに成功した。次に、試料からの散乱が無視できない場合として、mm オーダーの厚さを有する Ag 板及び Cu 板を試料として原子数密度分析を行った。試料からの散乱中性子の検出を低減するために、これまでの共鳴イメージングの実験においては用いられてこなかった試料と検出器の距離を離した測定を試みた。実験に先立ち、モンテカルロシミュレーションにより、試料と検出器の距離を変化させて透過率のシミュレーションを行った。その結果、20 cm 以上距離を離せば試料からの散乱中性子の影響に起因する透過率の変化が見られなくなることを明らかにした。シミュレーションで求めたこの体系で NOBORU において透過型 N-RAS 実験を行い、Ta と同様に Ag と Cu の原子数密度分析を行った。その結果、エネルギー 100 eV 以下の Ag の共鳴に対する解析では、誤差 1% 程度で原子数密度を求めることに成功した。一方、共鳴エネルギーが 100 eV 以上の領域では、陽子パルスのダブルバンチの誤差により誤差が増加したものの、誤差 5% 程度で密度を求めることができた。NOBORU のような中性子イメージングが可能な装置において、スペクトルフィッティングに基づく共鳴ディップの解析を行い、数 % 以内の誤差で原子数密度分析を成功させた例は他にない。モンテカルロシミュレーション計算により求めたパルス関数を実装した共鳴解析システムにより、定量的な原子数密度分析が可能であることを実証した。

第 5 章では、これまでに説明してきた解析システムや実験手法を実際に原子数密度イメージングに応用した結果について述べた。試料として Ag や Sn など複数の核種を含む鉛フリーはんだを選択し、それをアルミフレームに巻きつけて厚さの異なる領域を作り、それぞれの領域における狙った核種の密度を透過型 N-RAS によりイメージングすることを試みた。NOBORU において 2 次元画像検出器による透過型 N-RAS イメージング実験を行った。解析システムを用いて各検出器ピクセルにおける透過率スペクトルに対してフィッティングを行い、Ag 及び Sn の原子数密度を求めてマッピングを行った。その結果、統計が低いためにピクセルごとにばらつきはあるものの、全体の傾向としては試料の実効厚さの違いをイメージングすることに成功した。

以上のように、透過型 N-RAS を用いた定量的な原子数密度・温度イメージングに向けた解析システムの開発を行い、また、定量化のための実験手法の検討を行った。J-PARC/MLF/BL10 NOBORU において、透過型 N-RAS により求めた共鳴ディップに対してスペクトルフィッティングに基づいた解析を行い、原子数密度の定量に成功した。また、本研究で開発した解析システム及び実験手法を原子数密度分布のイメージングに適用し、その可能性や課題を明らかにした。