

(1) PHITS による原子炉炉心に設置された箔放射化測定用カドミウムフィルタの影響評価と実測値との比較

徳島大学大学院医歯薬学研究部 松本(川口)絵里佳, 阪間稔, 井原智也, 井本尚吾
徳島大学放射線総合センター 桑原義典
近畿大学原子力研究所 若林源一郎, 堀口哲男, 稲垣昌代

1. 緒言

当該年度の共同用研究では, これまで小規模医療用加速器施設における漏洩中性子線の中性子束密度評価を研究目的として, 同程度である近畿大学原子炉の中性子場を活用した金属箔, 主に金箔による箔放射化法を用いた放射化実験を行ってきた。この系統研究において, 原子炉炉心の中性子場にて放射化用金箔の設置に伴う金箔用カドミウムフィルタの存在が, 原子炉出力 1 ワット運転の定常運転維持に対して影響を与えていることが確認できていた。すなわち, カドミウムの吸収断面積が 0.4 eV 以下の中性子エネルギーに対して, 数千 barn と非常に大きく(1), ほとんどの中性子, 特に, 近畿大学原子炉のような熱中性子(0.025 eV)発生を主体としている状況では, カドミウムの過剰な存在により極端に熱中性子が吸収され, 1 ワットを維持するための減速材制御棒(シューティングロッド)の閾値が越えてしまい, 定常運転まで達することができない。

そこで, 従来の金箔による箔放射化法で使用されるカドミウムフィルタ量での環境と, 全くカドミウムフィルタを使用しない状況とを再現させ, 金箔の放射化により導出される中性子束密度を比較すること, さらに, その状況を放射線輸送モンテカルロシミュレーション計算コード PHITS による計算実行を進め, その影響を模擬することが当該年度での研究目的である。しかしながら, 諸事情により当該年度の研究計画において当初予定の原子炉利用日数の半数のみしか行うことができなかつたので, これまでと同様の金箔及び金箔のカドミウムフィルタ併用による中性子束密度測定実験(カドミウムフィルタ無しの照射実験は行わず)と, それに関連した中性子発生による中性子輸送計算を簡易的な原子炉炉心の照射場を設定したモンテカルロシミュレーション計算を行い, その計算結果と実測値との相互比較を行った。当該年度は原子炉運転停止から3年以上の時間経過からの再開ということもあり, 改めて金箔による箔放射化法での熱中性子束密度の再評価の要素も含む実験である。

2. 実験方法

2-1 金箔の箔放射化法実験(カドミウムフィルタ差分法による熱及び熱外中性子の束密度測定に関する放射化実験)

照射用の金箔は, $1 \times 1 \text{ cm}^2$ 角, 厚さは $100 \mu\text{m}$ の計 8 枚を, カドミウムフィルタには, 金箔を両面から挟み覆うことが出来る程度の大きさにカットして, 厚さは $500 \mu\text{m}$ のもの(計 4 枚)を用意した。これら金属箔は全てニラコ社製で, 金箔の純度は 99.95%, カドミウムの純度は 99.99%である。照射用

1セット構成は、ポリエチレン製支持体(横 2 cm, 縦 3.5 cm, 厚さ 0.025 cm)の中央に小さな両面テープを貼付, 下部に金箔(識別番号及びその重量: R2-a・0.18413 g, R2-c・0.17906 g, R2-e・0.17116 g, R2-g・0.18744 g)を, 上部にカドミウムフィルタで覆った金箔(識別番号及びその重量: R2-b・0.18989 g, R2-d・0.17273 g, R2-f・0.18090 g, R2-h・0.19590 g)の組み合わせとし, 合計4セット(R2-a-b, R2-c-d, R2-e-f, R2-g-hの組み合わせで, 計4セット)を準備して, 照射用アルミ製アングルに設置した。 図1に, 照射用1組の構成写真を表している。照射用アルミ製アングルは, 近畿大学原子炉の炉心中央の照射孔に対して確実に設置できる構成となっており, その幾何学的な配置構成は, 高さ 66 cm, 縦横共に 9.5 cm の直方体で, 中間地点の 33 cm 高さを基準として, 図2のように金箔照射セットを設置した。近畿大学原子炉は, 炉心に直方体の長尺方向からアングルを設置すると, 直方体断面の正方形, それぞれの辺面が東西南北に直角に分かれており, 南北面側のそれぞれに原子炉燃料板が装填されているエリアがある。図2に示しているように, 照射用金箔セットをそれぞれ東西南北面に向けて配置した。ここで述べている幾何学的な配置体系は, 後述する PHITS 計算のシミュレーション計算にジオメトリ設定の形式で流用している。

次に, 照射条件については, 2017年10月26日午前11時31分に1ワット運転に到達し, 同日午後5時に出力ゼロとして照射を停止した。ストップウォッチでの総照射時間は, 5時間28分12秒であった。照射終了後, 一定時間を置いて17時16分より各金箔の放射化生成による Au-198 のガンマ線, $E_{\gamma} = 412 \text{ keV}$ のガンマ線スペクトロメトリーにおける測定対象ピークとして, データ取得ならびにガンマ線スペクトル解析を行った。今回, これまで使用していた近畿大学原子力研究所の原子炉建屋に附設するゲルマニウム半導体検出器の交換に伴い, 新たな検出器に対してガンマ線エネルギー校正及び効率校正の整備作業を実施した。更新後の新たな検出器における検出面形状(外観の検出面)は, 8.0 cm ϕ で, 高電圧は positive +3200 V で, 本学所有の Eu-152 面線源を使用することで校正データの取得を, エネルギー較正直線 $\text{Energy (keV)} = 6.380\text{e-}2 + 5.0195\text{e-}1 \times \text{channel (ch)}$, 半値幅 FWHM $\text{channel (ch)} = 2.4188 + 3.0416\text{e-}2 \times \sqrt{[\text{energy (keV)}]}$ の較正データで取得した。線源位置とゲルマニウム半導体検出器の検出面との各種距離間の検出効率は, 検出面から 0 cm (密着), 5.5 cm (中間位置), 10.0 cm (最も遠い位置)で, Eu-152, Ba-133, Co-60 の校正線源による検出効率較正データ取得を行った。図3は, Eu-152 面線源による較正データ取得の線源-検出面間距離 10.0 cm でのガンマ線測定の様子を示している。ガンマ線スペクトル解析用マルチチャンネルアナライザー(MCA)には, SEIKO EG&G 製の MCA7700 を使用した。この MCA 装備品は, メインアンプと高電圧電源を一体型で内蔵しており, PC 上のソフトウェアで SEIKO 社製 GAMMA Studio による機器制御, 信号調整, MCA データ取得まで統合的にガンマ線スペクトロメトリー測定を行うことができる。今回の信号調整では, ADC ゼロ調整 0.178223%, コースゲイン:80, ファインゲイン:0.8156(実ゲイン:65.24)のもと, 新しいゲルマニウム半導体検出器の調整項目として設定した。新たなゲルマニウム半導体検出器の遮蔽体には, 検出面ヘッド周辺の下方向については鉛 5 cm 厚さ, 上方向では鉛及びビスマス(必要量の鉛ブロックが無かったので, ビスマスの小ブロックを使用した。)の 5 cm 厚さ, 側面方向は鉛 10 cm 厚さで組み上げた。

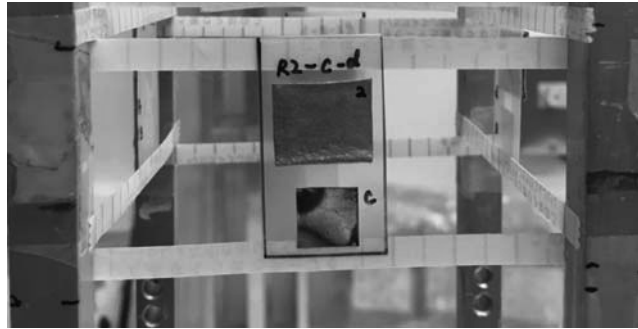


図1 炉心中央部の水平面の位置合わせした照射用金箔セット(カドミウムフィルタ有無の金箔組み合わせとポリエチレン支持体)



図2 照射用アルミニウムアングルの全体と中央部に設置している照射用金箔セット

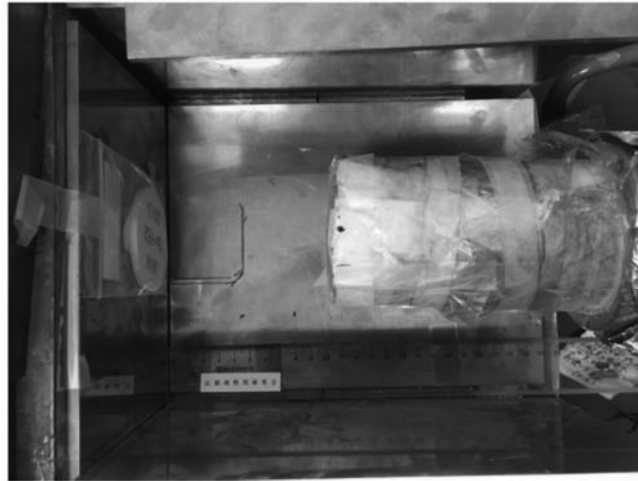


図3 原子炉室の計測室に整備されている今年度新たな利用となるゲルマニウム半導体検出器 (Eu-152 校正線源によるエネルギー較正測定)

2-2 簡易ジオメトリー体系で再現した炉心照射場での金箔カドミウムフィルタ有無による中性子輸送の PHITS 計算評価

本研究で精力的に利用研究を実践している粒子・放射線輸送計算コード PHITS (Particle and Heavy Ion Transport code System) は、任意形状の 3 次元体系空間内に設定した放射線や粒子を乱数概念の数理的な概念に従って、それら挙動を再現し、かつ様々な物理量を提供し解析可能な汎用モンテカルロシミュレーション計算コードである。現在、PHITS の適用範囲は拡大しており、これまでの原子力分野での中性子や光子の輸送にのみならず、医学物理分野や宇宙開発における陽子や重イオン、電子などさまざまな粒子・放射線を対象とすることができ、工学・医学・理学の多方面で活用されている。本研究室でも、2013 年度後半の PHITS version 2.65 の使用からその習得も含め、利用研究に精励恪勤し医学物理分野を中心に研究を進めている。

本研究では、PHITS version 3.05 の最新版(2018 年 3 月時点)を用いて、モンテカルロシミュレーション計算を行った。図4に、近畿大学原子炉実習テキストに掲載されている原子炉本体垂直断面図及び、本研究における簡易原子炉ジオメトリー作成した図の炉心全体から、金箔照射セット(金箔・金箔カドミウムフィルタ有無のセット及びその周辺タリー領域)付近までフォーカスした一連図を示す。今回は、長尺側の直方体照射孔形状(照射セットを配置するアルミアングル)の上部と下部を記述せず、金箔照射セットの4つが全ておさまる領域の立方体($9.6 \times 9.6 \times 9.6 \text{ cm}^3$)を記述するのみとしてシミュレーション計算のジオメトリー設定として概略的な計算体系に留めた。計算環境は、インテルフオートラン ver. 17.0.5 でコンパイル記述した PHITS version 3.05 とし、MacPro 3.5 GHz 6 core Intel Xeon E5, スコア性能 141 GFlops の MPI(Message Passing Interface)メモリ分散型並列計算マシンのもと、総ヒストリー数 4.62×10^5 で計算実行した。

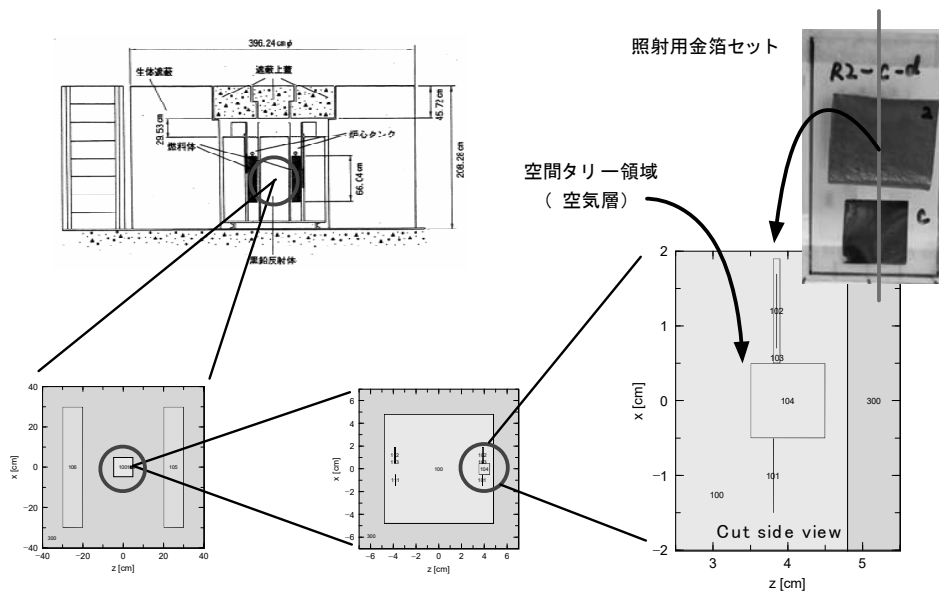


図4 近畿大学原子炉実習テキストに掲載されている原子炉本体垂直断面図及び、本研究における簡易原子炉ジオメトリ作成した図の炉心全体から、金箔照射セット（金箔・金箔カドミウムフィルタ有無のセット及びその周辺空気タリー領域）付近のPHITS計算に関わるジオメトリ設定図

3. 実験結果と考察

3-1 金箔の箔放射化法実験（カドミウムフィルタ差分法による熱及び熱外中性子の束密度測定に関する放射化実験）の結果

今回、共同利用研究で行った金箔の放射化実験から照射用金箔セットした中性子場（アルミアングルのセンター部分で、東西南北面の4箇所）における熱及び熱外中性子束密度（ $\text{cm}^{-2} \text{s}^{-1}$ ）、カドミウム比、各々金箔の比放射能値を、表1に示す。この表から炉心中央の水平面で、9.5 cm 正方形エリアの熱中性子束密度は、ほぼ平坦な中性子場とみなすことができ、カドミウムフィルタ4枚程度では、それほど大きな変動影響を与えないことが確認できた。すなわち着目する照射場（空間）内に、熱中性子を吸収しやすいカドミウムの本実験レベルでの存在量は、マクロレベルでの観測である金箔の放射化という観点（相互の金箔照射セットの存在影響も含めた観点）からは、照射場としての乱れは大きな影響を与えないことが示唆される。カドミウム比は熱中性子場としてはやや低めであるが、通常原子炉のように照射場自体が水中に存在しない近畿大学原子炉特有の軽水減速黒鉛反射非均質型であることが寄与していることが推察される。これまでの共同利用研究実験では、照射用アルミアングル内、上部と下部を含めた計21枚（炉心中央部の水平面では、14枚）のカドミウムフィルタで原子炉制御の閾値レベルを超えていることが明らかになっている。そこで、金箔を設置している炉心中央部の水平面に完全にカドミウムフィルタを取り除いた状況下での金箔照射及び、前述の14枚のカドミウムフィルタを設置したときの条件での照射・放射化実験の確認実験が必要であると考えている。

表1 炉心中央部の水平面位置に設置した各面位置での照射用金箔による熱中性子束密度, 放射化に伴う金箔の比放射能値, カドミウム比

| 設置場所 | 東 | | 西 | | 南 (燃料板側) | | 北 (燃料板側) | |
|---|------------|----------|------------|----------|------------|----------|------------|----------|
| 識別番号 | R2-e | R2-f | R2-a | R2-b | R2-g | R2-h | R2-c | R2-d |
| カドミウムフィルタ | - | + | - | + | - | + | - | + |
| 比放射能値 ×10 ⁵ (Bq/g) | 2.107(8) | 0.339(3) | 2.086(8) | 0.333(2) | 2.097(8) | 0.334(3) | 2.124(8) | 0.331(3) |
| 熱中性子束密度 ×10 ⁷ (cm ⁻² s ⁻¹) | 1.0274(52) | | 1.0185(48) | | 1.0248(50) | | 1.0420(51) | |
| カドミウム比 | 5.88(6) | | 6.07(4) | | 6.01(6) | | 6.65(7) | |

3-2 簡易ジオメトリー体系で再現した炉心照射場での金箔カドミウムフィルタ有無による中性子輸送における PHITS 計算の評価

図5は、今回の PHITS モンテカルロシミュレーション計算におけるタリー対象領域である 100 番と 104 番、それぞれ 100 番は、炉心照射孔の空間全体、104 番についてはその空間の東西南北の側面に照射用金箔セット(4セット)を配置させ、そのうち一セットに対してカドミウムフィルタありとカドミウムフィルタなし(無しの場合は、元々のカドミウムエリアを空気に置換させることで、カドミウムフィルタなしを設定する。総計の金箔数はカドミウムフィルタありとなしで変化しない。)の間の微小空間(空気)としてこの図では、タリー対象とする放射線は、光子(photon)、中性子(neutron)、それらを合算した(all)とし、対象エネルギーは、10⁻¹⁰ eV ~ 1 MeV とし、得られる物理量はフラックス(中性子に対しては特に中性子束密度) (1/cm²/source) である。この結果から、双方領域で発生する光子についてはカドミウムフィルタの有無により、カドミウム元素期限の放射化生成の少ないカドミウムフィルタなしの場合で、200 keV 前後の光子ピークが減少していることが確認できる。中性子については、双方領域で顕著な熱中性子成分の存在(総中性子フラックス量の大半を占める)が確認され、1 MeV 領域までフラットなフラックス量で分布していることが確認できる。明らかに、熱中性子成分を吸収するカドミウムの存在はフラックスへの影響に寄与していることが示唆され、実際、定量的な解析から、カドミウムフィルタなしで、タリー対象エネルギー領域(100 番の領域)の総中性子フラックスは、4.3912E-01 (1/cm²/source)で、カドミウムフィルタありの場合のそれは、4.1392E-01 (1/cm²/source)であり、5.74% 減少していることが確認できた。同様に、微小空間タリー領域、104 番については、カドミウムフィルタなしの総中性子フラックス(総中性子束密度)は、5.0364E-04 (1/cm²/source)で、カドミウムフィルタありのそれは、4.4953E-04 (1/cm²/source)となり、10.74% と減少していることがわかり、全空間領域では見られない微小空間、すなわち照射用金箔セットでの箔放射化法で測定対象とする中性子束密度への影響が示唆される。今回の箔放射化実験でのカドミウムフィルタ使用量とカドミウムフィルタ無しの状況を設定した実測実験を行っていないので、この約 10% 割合の変動が、実測される熱中性子束密度に対してどの程度影響が現れるか、さらなる系統的な実測実験と詳細なシミュレーション計算及び解

析が今後、必要であると察する。

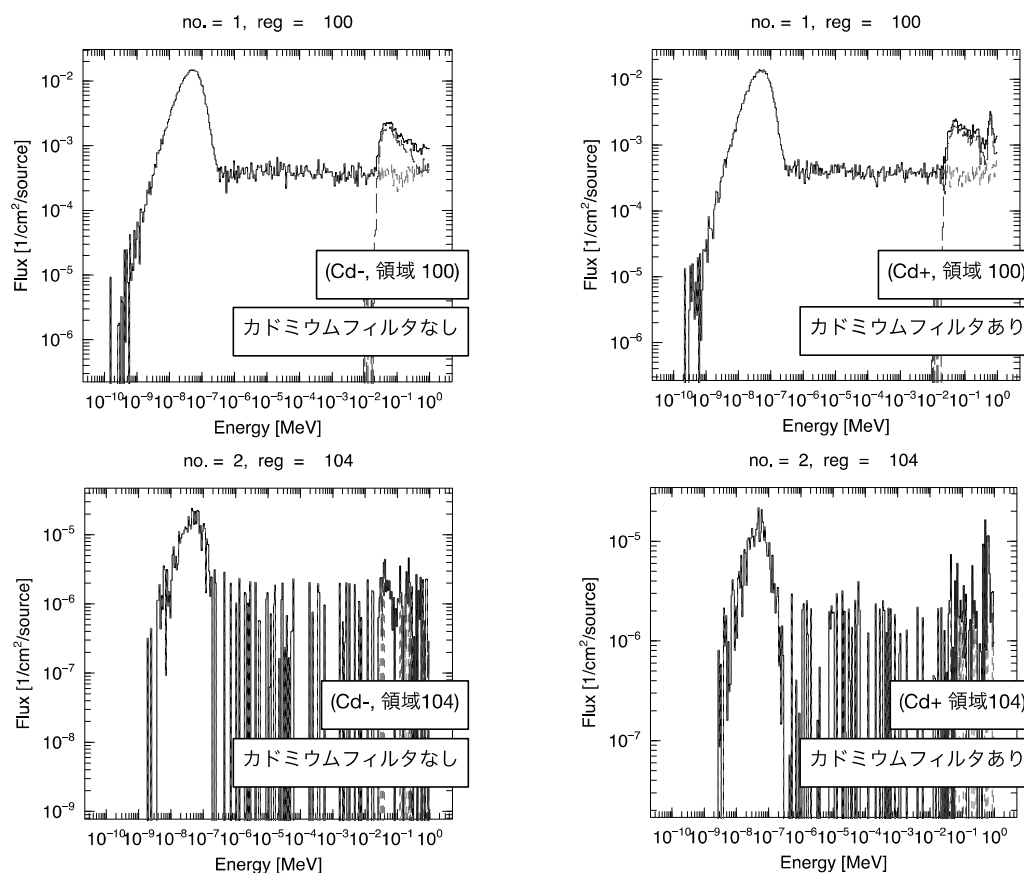


図5 炉心照射孔空間内を想定した全体領域（領域 100 番）と、その空間内に照射用金箔セットを配置させたときの同レベルの微小空間領域（領域 104 番）における中性子フラックス（中性子束密度）、光子フラックス、それらの合算したフラックスの 10^{-10} eV ~ 1 MeV 領域での分布割合

謝辞

本研究の中性子線源の取扱い準備や必要備品の貸出しに際し、多大なるご協力ならびに便宜を図って下さいました近畿大学原子力研究所のスタッフの皆様、大阪大学工学系研究科担当事務の皆様、に厚く御礼を申し上げます。今後ともどうかよろしくお願い致します。

参考文献

[1] Lehman, R.L., The Origin of Neutron Groups in Be(α , n) Sources, *Nucl. Instr. and Meth.* 60, 253-260 1968.

[2] 近畿大学原子炉実習テキスト.

[3] Sato, T., et al., Particle and Heavy Ion Transport Code System PHITS, Version 2.52, *J. Nucl. Sci. Technol.* 50(9), 913-923, 2013.

[4] Wu, Y., FDS Team., CAD-based Interface Programs for Fusion Neutron Transport Simulation., *Fusion Engineering and Design* 84, 1987–1992, 2009.