

# 原子炉ニュートリノモニター開発 —PSD能力を有するGd入り液体シンチレータの発光量と透過率測定—

池山 佑太\* 中島 恭平\* 玉川 洋一\*

## The Development of Reactor Neutrino Monitor —Development of Liquid Scintillator Containing Gd with PSD Capability—

Yuta IKEYAMA\*, Kyohei NAKAJIMA\* and Yoichi TAMAGAWA\*

(Received September 24, 2019)

Reactor neutrino monitor is a technology that utilizes an anti-electron neutrino generated from a nuclear reactor to monitor the operational status inside the reactor. Currently, we are developing a liquid scintillator (LS) for a prototype detector. The performance required for LS is not inferior to that of commercial products, and the transmittance is 90% or more with an optical path difference of 9 cm. In this paper, we report the result of light yield and transmittance measurement with respect to the various amount of LS constituents.

**Key Words :** Reactor Neutrino Monitor, Liquid Scintillator, Background

### 1. 緒言

原子炉ニュートリノモニターは反電子ニュートリノが原子炉から発生する事象を用いて、原子炉内部の稼働状況等の監視を試みる技術である。反電子ニュートリノは相互作用がほとんど起きず、発現事象の頻度が低いため関心領域内のバックグラウンド (BG) 事象の削減が重要になる。

反電子ニュートリノを検出するためにシンチレータに Gd を含有させ、BG を削減するための波形弁別能力を有する必要がある。現在、原子炉ニュートリノモニターの試作機を作成しているが、この検出器に必要な性能として、発光量は既存の物と比較して大きく劣らず、透過率は 90%以上の物を目指している。

本論では、LS の構成物質である PP0、Bis-MSB、Gd、UltimaGold-F の量によるシンチレータの特性について発光量を後方散乱、透過率を分光光度計を用いて測定を行った。その結果について検討をする。

\*大学院工学研究科原子力・エネルギー安全工学専攻

\* Nuclear power and Energy Safety Engineering Course Graduate School of Engineering

### 2.1 研究背景

原子炉ニュートリノモニターはニュートリノの特性を生かした技術の一つであり、反電子ニュートリノを用いた原子炉燃料内部の組成をモニタリングする技術である。従来の方法では原子炉を停止した後燃料を取り出して、燃料を解体して調べることで内部がどのような組成になっているかを知ることができる。これは組成が判明するまでの時間がかかり放射能の観点からも危険を伴う。しかし、現在開発中の原子炉ニュートリノモニターで検出する反電子ニュートリノは、透過率が高いため原子炉建屋外から遠隔での監視が可能である。また、検出された反電子ニュートリノのイベント数とエネルギー分布から燃料内部の組成を割り出すことが出来る。これにより、リアルタイムで燃料内部の組成を知ることが出来る。

原子炉ニュートリノモニターという技術は、従来の時間と手間のかかる工程を省略するだけでなく、本来の運転計画に対して運転状況が正しいかを判断することができ、これにより原子炉の兵器転用防止や、原子力発電所の事故防止に役立つことが期待されている。

### 2.1.1 反電子ニュートリノ

ニュートリノは、素粒子の軽粒子（レプトン）の一種である。ニュートリノはフレーバーと質量で分類される。フレーバーでは電子ニュートリノ、ミューニュートリノ、タウニュートリノに分けられ、質量ではニュートリノ1、ニュートリノ2、ニュートリノ3に分類される。

ニュートリノは波の性質をもつためニュートリノの合成によって種類が変わる。これをニュートリノ振動という。

反電子ニュートリノは電子ニュートリノの反粒子である。反粒子とは、質量とスピンの等しく、電荷などが逆の性質の粒子のことをいう。反電子ニュートリノの発生は原子炉燃料の<sup>235</sup>Uの核分裂後のβ崩壊で発生する。核燃料の1核分裂当たり約6個発生し、熱出力3GWの場合毎秒約 $6 \times 10^{20}$ 個発生している。しかし、ニュートリノは電氣的に中性で弱い相互作用でしか反応しないので物質との相互作用をほとんど起こさない。したがって、検出器に検出されるイベント数が少ないため、関心領域のバックグラウンド削減が重要である。

### 2.1.2 シンチレーション検出器

シンチレータとは、荷電粒子が通過するとき発生する物質の総称で、そこから出てくる光をシンチレーション光と言う。シンチレーション検出器には主に有機シンチレータと無機シンチレータがある。

無機シンチレータは炭素の含まない検出器であり、代表的にはNaI(Tl)シンチレータ等がある。無機シンチレータの特徴としては、γ線の全吸収ピークが検出されやすく、高い発光量を得られる。

有機シンチレータは、炭素を含む検出器で有機物で構成される。アントラセンやスチルベンなどの結晶やプラスチック、液体など多くの種類が存在する。主な構成元素が、炭素、水素等原子番号が小さいため、γ線に対してほとんどコンプトン散乱を起こすので、全吸収ピークを形成しない。無機シンチレータと異なり減衰時間が数nsであるため高い計数率で使用できるのが特徴である。

本研究では、反電子ニュートリノを検出するために逆β崩壊反応を用いるため、陽子（水素）が多く含まれる有機シンチレータを使用する。有機シンチレータには主に液体シンチレータ（LS）とプラスチックシンチレータ（PS）があるが、本研究ではLSを使用する。メリットとしては、液体なので添加物が付与しやすく必要な性能のものが作りやすいのと、PSに比べて安価である点である、しかし、使用する溶媒は油なので扱いに注意が必要なのがデメリット

である。

### 2.1.3 液体シンチレータの構成物質

液体シンチレータは、主に溶媒、溶質、添加物で構成されている。

溶媒はπ電子を有しており、エネルギーの移行が溶媒間で起いやすく、溶質の溶解度大で、引火点が高い必要がある。代表的なものに、リニアアルキルベンゼン（LAB）、プソイドクメン（PC）、フェニルキシリルエタン（PXE）がある。本研究ではこの中でも引火点が150℃と高い値を持つLABを使用する。

溶質は、蛍光体とも呼ばれている。溶媒からエネルギーが移行し、励起され蛍光を放出する。蛍光効率や溶解度が重要で代表的なものにPPOやbutyl-PBD、Bis-MSBなどが存在する。本研究ではPPOとBis-MSBを使用する。

添加物は、反電子ニュートリノを検出可能で波形弁別が出来る必要がある。反電子ニュートリノの検出に重要なのは、中性子捕獲断面積である。代表的なものにGdやLiがある。本研究では物質内で一番中性子捕獲断面積(48890barn)が高いGdを使用する。また、波形弁別を行うための代表的な添加物として、ナフタレンやUltima Gold-F(UG-F)がある。本研究ではUG-Fを使用する。

### 2.1.4 物質との相互作用

光子とシンチレータの相互作用には、光電効果とコンプトン散乱と電子対生成の3種類が存在する。

<sup>1)</sup> 図1にシンチレータで観測されるスペクトルの模式図を示す。

光電効果とは、光子が軌道電子のエネルギーを与え、軌道電子化が原子から飛び出す現象である。この時の運動エネルギーはシンチレータ内ですぐ止まるため、図1のようなピークが見られる。

コンプトン散乱とは、光子と電子の衝突で電子と散乱光子が生じる現象いう。衝突前後の光子のエネルギーを $E_r$ 、 $E_r'$ とし、電子の質量を $m$ 、光速を $c$ とすると、散乱された電子のエネルギー $E_e$ は、

$$E_e = E_r - E_r' = \frac{E_r}{1 + \frac{mc^2}{E_r(1 - \cos\phi)}} \quad (1)$$

となる。シンチレータ内では散乱する $\phi$ に依存するため図1のようにコンプトンエッジを形成する。

電子対生成とは、光子が原子核の強い電場に吸収され、電子と陽電子を生み出す反応である。

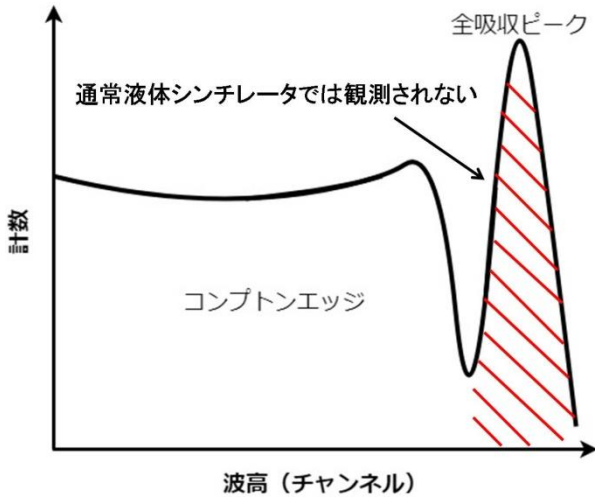


図1. シンチレータ内で観測される波高分布

2.1.5 反電子ニュートリノの検出方法

反電子ニュートリノは逆β崩壊を用いて検出する。逆β崩壊は反電子ニュートリノと陽子が反応し、陽電子と中性子を発生させる反応である。検出器には陽子を多く含む物質が必要で、主に有機シンチレータが用いられる。

この反応で陽電子は電子と対消滅し、511keVのエネルギーのγ線を2本放出する(先発信号)。中性子は、電氣的に中性であるため検出器で検出されにくい。したがって、シンチレータにGdを含ませることにより検出器内で熱化された熱中性子を捕獲して合計エネルギーが8MeVとなる複数のγ線を放出させる(後発事象)。(図2)

先発事象と後発事象との時間差は約数十μsありこの時間相関を利用してニュートリノ事象を同定する。この時間差を用いて本事象に対してBGを削減する方法を遅延同時計数という。この先発事象と後発事象の時間差は中に含まれるGdの含有量によって変化する。

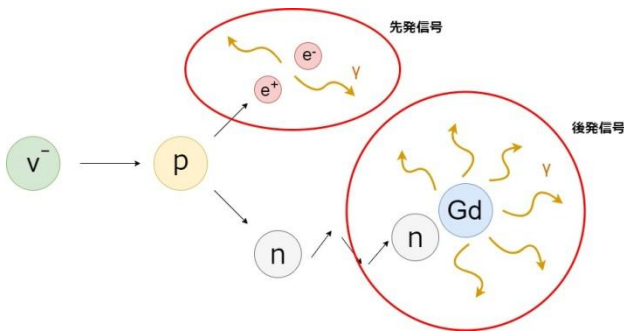


図2. 逆β崩壊を用いた反電子ニュートリノの検出原理

2.1.6 原子炉ニュートリノモニターの主なBG

原子炉ニュートリノモニターは、遅延同時計数を

用いることによりBGを2桁程度落とすことが出来る。しかし、時間相関があり落とすことのできないBGが存在する。それは、時間相関のある高速中性子によるイベントである。高速中性子が検出器内で陽子を反跳させて偽の先発信号を発生させて、先発信号のあと数十μs後に検出器内で熱化した中性子がGdに捕獲されγ線を出す場合である。これは、反電子ニュートリノによる逆β崩壊イベントの先発信号がγ線であるのに対して、この高速中性子によるイベントは先発信号が中性子によるものなので、波形弁別によるn/γ弁別を用いることで落とすことができる。これについてはまた後述する。

2.1.7 n/γ弁別

2.1.6で示したように、原子炉ニュートリノモニターのBGを削減するためには、入射粒子がγ線と中性子かを識別する必要がある。波形弁別は出力波形の後半部分がγ線と中性子で異なるのでn/γ弁別を行うことが出来る。これをPulse Shape Discrimination (PSD)と言う。

波形弁別は、粒子に対する光電子増倍管の出力の波形の形が異なることを利用して、波形の全積分Qと波形の後半部分の積分Qtailの比Qtail/Qを用いて弁別する。図3にγ線と中性子の波形の模式図と部分積分の波形の積分区間を示す。

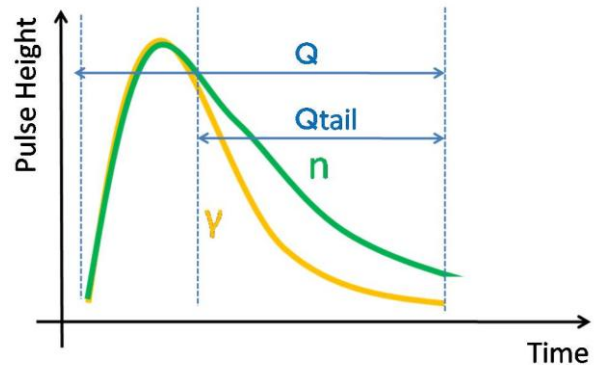


図3. γ線と中性子の波形の模式図と部分積分の波形の積分区間

2.2 先行研究

原子炉ニュートリノモニターの代表的な先行研究として、アメリカのSan Onofre Nuclear Generating Station(以後SONGS)実験<sup>2)</sup>、日本のPlastic Scintillator Anti-Neutrino Detector Array(以後PANDA)実験<sup>3)</sup>の例を示す。

2.2.1 SONGS実験

アメリカで2005年6月~2006年11月に行われていたSONGS実験は、Gdを含む0.64tの液

体シンチレータと、宇宙線遮蔽のプラスチックシンチレータ、中性子線を熱化させるためのポリエチレンと水の遮蔽が使用されている。Gd を含ませることにより、中性子捕獲の時間を  $28 \mu\text{s}$  に短縮することができる。

この検出器は地下 10m、原子炉から 25m の位置に設置された。この研究により、ニュートリノの検出率は原子炉の稼働時で  $564 \pm 13$  [count/day]、停止時は  $105 \pm 9$  [count/day] となり、原子炉の on/off が確認された。また、原子炉の燃料の交換前後で反電子ニュートリノの観測量が 10% 変化することがわかった。これは、原子炉の燃料の核分裂による反電子ニュートリノの放出量の時間推移のシミュレーション結果と傾向が一致しているため、燃料内部の組成変化によるものだと考えられる。

### 2.2.2 PANDA 実験

日本では、主に北里大学が行っているプラスチックシンチレータを用いた PANDA (Plastic Anti - Neutrino Detection Array) 実験がある。一本プラスチックシンチレータは  $10\text{cm} \times 10\text{cm} \times 100\text{cm}$  であり、周りには Gd のフィルムが巻かれている。

両端は 2 インチの光電子増倍管があり、プラスチックシンチレータと光電子増倍管の間はアクリルのライトガイドがある。これらが 1 つのモジュールであり、全体として  $10 \times 10$  の 100 個のモジュールから検出器が構築されている。プラスチックシンチレータを用いる利点として、難燃性であるため安全であること、加工がしやすく持ち運びに便利であることがあげられる。<sup>2)</sup>

現在、大飯原子力 4 号機傍約 45m 位置において PANDA100 の反電子ニュートリノイベントと BG イベントの比(S/N)は 1/100 となっている。

## 3. 本研究の目的

先行研究では、地下で実験が行われていた。地下で行うことにより、岩盤が宇宙線を遮蔽することが出来る。これにより、宇宙線起因の放射線と宇宙線イベントを軽減することができる。しかし、実際の原子炉ニュートリノモニターは地上での測定を想定しているため、地下に比べて地上では環境放射線である  $\gamma$  線、中性子、宇宙線が増える。反電子ニュートリノは逆  $\beta$  崩壊を用いて検出する。原子炉ニュートリノモニターは先発信号と

後発信号の時間差を利用することで、時間相関のないイベントを排除することが出来る。しかし、時間相関のある高速中性子イベントは排除することが出来ない。2.1.6 で述べたように逆  $\beta$  崩壊と高速中性子イベントの違いは先発信号が  $\gamma$  線か中性子かである。したがって、先発信号の入射粒子を  $\gamma$  線か中性子か識別することにより更に BG 低減が可能である。しかし、既存の既製品の LS は PSD 能を持つものは存在するが Gd が含有しているものは存在しない。したがって、PSD 能を有する Gd 入り LS を自作する必要がある。本研究の当面の目的は原子炉ニュートリノモニター開発のための PSD 能を有する Gd 含有液体シンチレータを開発することである。本論文では、Gd 入り LS の作成方法と LS を構成する各物質に対しての量に依存する発光量と透過率に関する実験結果について述べる。

## 4. Gd 含有液体シンチレータ作成方法と濃度測定

### 4.1 作成方法

Gd は金属であり、 $\text{Gd}^{3+}$  の状態で安定となる。したがって、LAB のような無極性である液体シンチレータに溶かしこむことは困難であるので錯体を形成して LAB に溶かしこむ。また、市販で売られているものは水和物である。なので、水と油のように分離する性質を持つ物に対して行う液液抽出法を用いて作成する。<sup>4) 5)</sup>

### 4.2 Gd 濃度測定

作成した Gd 含有シンチレータ中の濃度測定には方法が 2 つある。キレート滴定と Gd の中性子捕獲時間測定である。中性子捕獲時間は 10L 程度のシンチレータを作成する必要があるが、キレート滴定は数 mL あれば十分である。なので、今回はキレート滴定を用いての Gd 濃度測定を行った。

キレート滴定は金属イオンの定量に用いる滴定法である。エネレンジアミン四酢酸二水素ナトリウム (EDTA) 標準液を用いることで金属と 1:1 で結合するという特徴がある。さらに、指示薬もある程度金属と結合するものを用いる。指示薬が発する色は金属と結合している時と遊離している時で色が異なる。この色の違いにより滴定の終点を判断する。図 4 に EDTA を入れて攪拌時の色の变化の様子を示す。



図 4. EDTA を入れて攪拌してる時の色の変化の様子

## 5. 発光量測定

### 5.1 測定方法

ここでは、PSD 能力を持つ Gd 含有液体シンチレータ作成に必要な構成物質決定のための、 $\gamma$ 線源を用いた後方散乱ピークを使った発光量測定方法とその実験結果について示す。発光量はコンプトン散乱で得られるコンプトンエッジを用いることでも測定することは可能であるが、コンプトンエッジは明確な定義がないため測定精度が悪い。なので、後方散乱法を用いて測定を行う。LS は 2.1.4 に示したコンプトン散乱が起き、全エネルギーピークが見えないので逆方向に NaI シンチレータを置くことにより、ある一方向のみに散乱したイベントを取得することが出来る。これにより、単一ピークを形成する。また、NaI シンチレータに落ちるエネルギーも分かるため、そのエネルギー値の $\pm 1\sigma$ の範囲のイベントを選定することにより、偶発的に二つのシンチレータが同時に反応したイベントを排除することが出来る。

コンプトン散乱時の散乱された電子のエネルギーは式(1)である。 $\phi=180^\circ$ の時最大で、単一のエネルギーとなる。 $^{137}\text{Cs}$ 線源を用いた時の NaI に落ちるエネルギーは 185keV である。この時の LS の積分値で比較を行う。測定結果については後述する透過率測定と一緒に後述する。図 5 に $\gamma$ 線源を用いた後方散乱ピークを用いた発光量測定の配置図を示す。

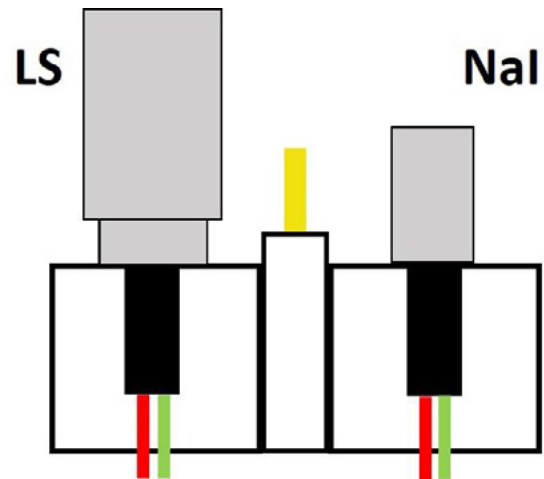


図 5.  $\gamma$ 線源を用いた後方散乱ピークを使った発光量測定配置図

### 5.2 使用サンプル

発光量測定に使用した LS の構成物質は、溶媒の LAB、溶質に PPO と Bis-MSB、添加物に Gd と UltimaGold-F (UG-F) を含有させた。

PPO が変化させた場合は、LAB と PPO と Bis-MSB で構成している。Bis-MSB を変化させた場合は、LAB と PPO と Bis-MSB で構成している。Gd が変化させた場合は、LAB と PPO と Bis-MSB と Gd で構成している。UG-F が変化させた場合は、LAB と PPO と Bis-MSB と UG-F で構成している。

## 6. 透過率測定

### 6.1 測定の原理と方法

透過率を測定する意義として、1t 級の LS を作成した時はシンチレータ全体の大きさが 1m 程度になることを想定している。そのためシンチレーション光の減衰長は 1m 以上必要である。減衰長 $\lambda$ と透過率 T と光路差 x との関係式は以下ようになる。

$$\lambda = -\frac{x}{\ln T} \quad (2)$$

減衰長 1m は透過率 90%程度に値する。

一般的に LS に物質を混合すると透過率は減少する。したがって、LS の組成を決定する上で各物質の量の依存性を確認することは重要である。

今回の測定では本来はベースラインにはシクロヘキササンや光学用の純水を使用するが、本研究ではベースラインに LAB を使用する。また、測定ではリファレンス置き場に 1cm セルとサンプル置き場に 10cm セルを置いて測定をしている。これにより光路差 9cm の時の透過率を測定することが出来る。

## 6.2 使用機材と使用サンプル

図6に今回透過率測定で使用した機材（HITACHIのU-3900）を示す。透過率の簡単な原理として、まず任意の波長領域において基準となるベースラインの光の透過度を測定する。次に、測定したいサンプルを測定しベースラインとの割合で透過率を測定することが出来る。使用サンプルは発光量を同じ物を使用している。

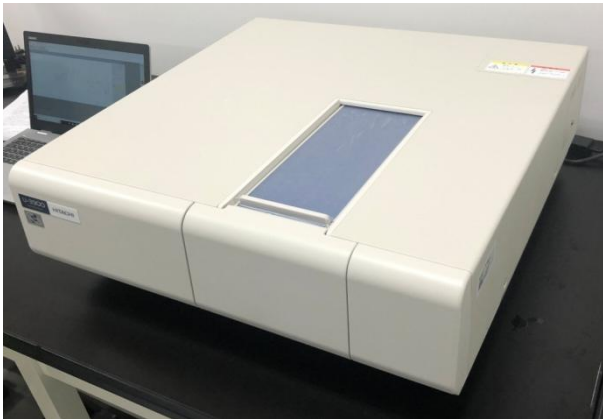


図6. 透過率測定で使用した分光光度計  
(HITACHI U-3900)

## 7. 発光量と透過率測定の実験結果と考察

以下に発光量と透過率のLSの構成物資の量に依存する測定結果を示す。図の左縦軸は最大発光量に対する相対発光量で、右縦軸は透過率、横軸はLSの構成物質の各量である。

図7にPPOの量を変化させた時の発光量と透過率の測定結果を示す。発光量に関して3g/Lで平衡状態に達し、透過率はすべての量で90%以上を満たす。したがって、LSに含有させるPPOの量は3g/Lに決定した。

図8にBis-MSBの量を変化させた時の発光量と透過率の測定結果を示す。発光量に関して10mg/Lで平衡状態に達し、透過率はすべての量で90%以上を満たす。したがって、LSに含有させるBis-MSBの量は20mg/Lに決定した。

図9にGdの量を変化させた時の発光量と透過率の測定結果を示す。発光量に関しては量を増やしていくと30%程度減少していく。透過率に関しては量を増やしていくと25%程度悪くなる。他にも中性子捕獲時間の観点からも制限をかけていく必要がある。

図10にUG-Fの量を変化させた時の発光量と透過率の測定結果を示す。発光量に関しては量を増やしていくと10%程度増加していく。透過率はすべての量で90%以上を満たす。他にもn/γ弁別の観点からも制限をかけていく必要がある。

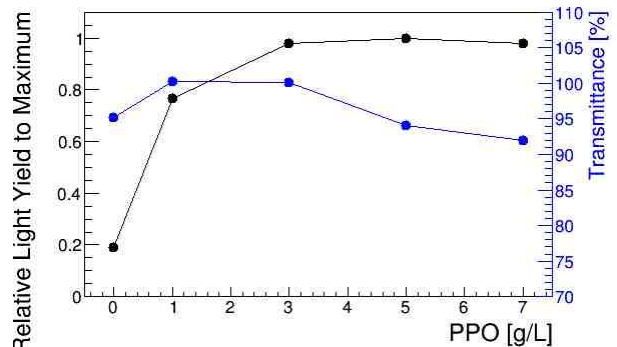


図7. PPOの量を変化させた時の発光量（左軸）と透過率（右軸）の実験結果

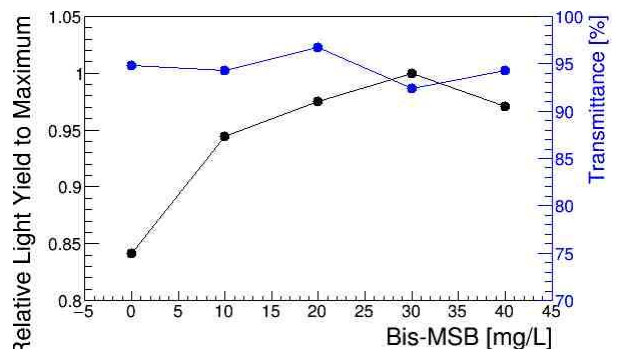


図8. Bis-MSBの量を変化させた時の発光量（左軸）と透過率（右軸）の実験結果

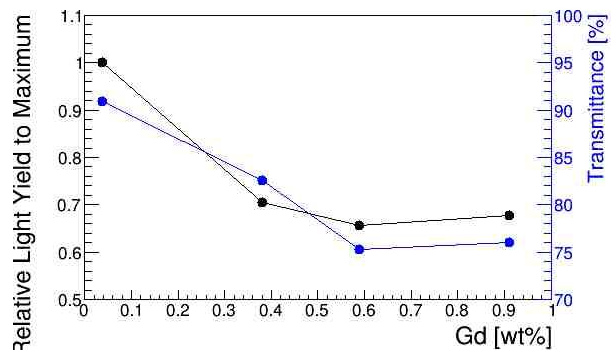


図9. Gdの量を変化させた時の発光量（左軸）と透過率（右軸）の実験結果

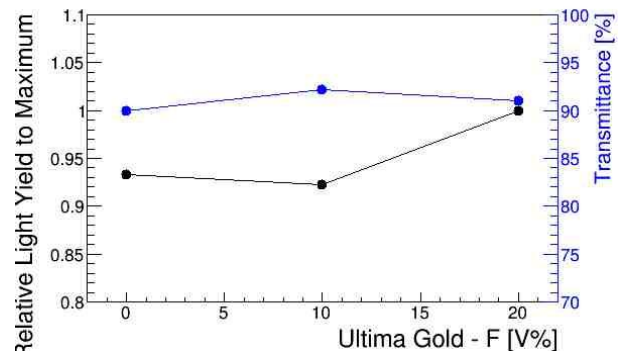


図10. UltimaGold-Fの量を変化させた時の発光量（左軸）と透過率（右軸）の実験結果

## 8. 結論

福井大学では、原子炉ニュートリノモニターの開発を進めている。反電子ニュートリノは、原子炉で燃料が核分裂し娘核が $\beta$ 崩壊する時に発生する。この反電子ニュートリノを検出することにより、燃料内部の組成を監視するという技術である。

反電子ニュートリノモニターは逆 $\beta$ 崩壊で検出される。この時、先発信号として検出器内では陽電子の運動量と対消滅時に発生する511keV2本分のエネルギーが検出される。数10 $\mu$ s後に後発事象として検出器内で熱化した中性子がGdに捕獲され、合計エネルギーが8MeVとなる複数の $\gamma$ 線が検出される。この時間差を利用して、時間相関のないBGイベントを削減する。この方法を遅延同時計数という。

原子炉ニュートリノモニターのBGは遅延同時計数で落としきれないイベントがある。主に時間相関のある中性子イベントである。逆 $\beta$ 崩壊と中性子イベントの違いは先発信号である。逆 $\beta$ 崩壊は $\gamma$ 線で中性子イベントは中性子なので、入射粒子を識別することで更なるBGを削減することが出来る。

現在、波形弁別能を持つGd含有LSベースの試作機を作成している。この試作機の目的は遅延同時計数と波形弁別を用いることでBG低減効果を確認することである。

一般的に、LSに混合物を混ぜると発光量と透過率が減少する。発光量を後方散乱、透過率を分光光度計を用いて測定を行った。

LSを構成する物質であるPPOは発光量が3g/Lで平衡に達し、透過率が90%達しているため3g/Lで決定した。Bis-MSBは発光量が10mg/Lで平衡に達し、透過率が90%達しているため20mg/Lで決定した。Gdは量を増やしていくと発光量が30%程度減少していき、透過率は25%程度悪くなる。他にも中性子捕獲時間の観点からも制限をかけていく必要がある。UG-Fは量を増やしていくと発光量が10%程度増加し、透過率はすべての量で90%以上を満たした。他にもn/ $\gamma$ 弁別の観点からも制限をかけていく必要がある。

今回の測定でLSの構成物質であるPPOは3g/L、Bis-MSBは20mg/Lに決定した。今後はGdとUG-Fの量を決定するために、中性子捕獲時間とn/ $\gamma$ 弁別測定を行っていく予定である。

## 参考文献

- 1) 飯田博美「放射線概論」
- 2) N. S. Bowden et al., "Observation of the isotopic evolution of pressurized water reactor fuel using an

antineutrino detector", Journal of Applied Physics 105, 064902 (2009)

- 3) S. Oguri, Reactor antineutrino monitoring with a plastic scintillator array as a new safeguards method : Nucl. Phys. A757, (2014) 33-39
- 4) 赤間健 「原子炉由来の反電子ニュートリノ観測のためのGd含有液体シンチレータの開発」 福井大学工学部 2018年卒業論文
- 5) 檜崎哲也 「反電子ニュートリノ検出に用いる波形弁別能力が高いガドリニウム入り液体シンチレータの開発」 東北大学大学院 理学研究科 物理学専攻 平成27年 修士論文

