

## 研究課題名 新規開発シンチレータの高感度な中性子検出器への応用

研究代表者名  
広島大学・理学研究科・高橋弘充

研究分担者名  
なし

### 1. はじめに

我々（広島大学と東北大学の吉川研究室、株式会社トクヤマからなる研究チーム）は、これまでに中性子に感度の高いシンチレータ結晶  $\text{LiCaAlF}_6$  (LiCAF)を開発してきており、本課題ではこの LiCAF を実際の検出器として応用できるように研究を進めている。

世界中において、これまでは中性子検出器としてヘリウム3ガスを利用した検出器が主流であったが、最大の供給源であった米国がヘリウム3の生産を中止したことにより今後数年でヘリウム3の枯渇が予想されており、ヘリウム3ガスに代わる物質を利用した中性子検出器の開発に注目が集まっている。こうした中、我々は熱中性子と核捕獲反応を起こす反応断面積が大きいリチウム6を含んだ LiCAF 結晶シンチレータの開発に成功した。LiCAF は固体であることからガスに比べて密度が高いため、コンパクトでありながら高感度な検出器を作ることができる。また潮解性もなく安定した素材である。LiCAF だけでは中性子だけでなく荷電粒子や X 線・ガンマ線にも反応するが、周囲を BGO シンチレータで覆うフォスウィッチ構造とすることで、中性子のみを精度よく検出することもできる。

こうした LiCAF の特色を活かし、我々は中性子を高感度で計測できる検出器の開発を進めている。この検出器は一般向けには中性子にも感度がある線量計になるとともに、宇宙 X 線・ガンマ線検出器にとっては中性子バックグラウンドを計測する装置ともなる。

### 2. 研究経過

本研究の目的は以下の3点である。(1) LiCAF と BGO シンチレータを組み合わせたフォスウィッチ検出器を製作し、高感度な中性子計測を行えるようにすること、(2) 宇宙からの硬 X 線を検出しその偏光を観測する PoGOLite 気球実験に、開発した検出器を搭載して北極圏の上空での大気中性子のフラックスをリアルタイムで精度よく計測できることを実証すること、(3) BGO は原子番号が大きいが発光量が少ないため、BGO よりも光量が大きくかつ LiCAF と組み合わせられるシンチレータの新規開発、である。

昨年度までに(1)のため、5mm 厚の LiCAF の上下を 5cm 厚の BGO 2 個で覆い、そのシンチレーション光を 1 本の光電子増倍管で読み出すフォスウィッチ検出器、およびその読み出し回路を製作した。さらに(2)の前段階として、(1)の検出器を搭載した PoGOLino 気球実験をスウェーデン・キルナ市にある Esrange 気球実験場から 2013 年 3 月に放球し、30km 上空までの大気中性子のフラックスを実測した。

今年度は、PoGOLino 気球実験で得られた大気中性子の観測データを解析するとともに、7 月に PoGOLite 気球実験を Esrange 気球実験場から放球することに成功し、スウェーデンからグリーンランドまでの上空 40km での大気中性子フラックスを 3 日間にわたって実測することができた ((2)を達成)。

### 3. 研究成果

PoGOLino 気球実験に搭載された 2 台の LiCAF+BGO フォスウィッチ検出器は、地上から上空 30km までの全時間にわたって正常に動作し、このフライトの間に数 counts/s の熱中性子捕獲イベントを 5 分刻みで精度良く検出することができた (2 台のうち 1 台は、中性子を熱化させる 7cm 厚のポリエチレン内部に入れられている)。これにより、今回開発した我々の検出器で大気中性子を計測できることが実証された。また、ポリエチレンの内部に入れた検出器とそうでない検出器のフラックス比から、大気中性子の大きなエネルギースペクトルも推定した。航空機の飛行高度 10km では、ポリエチレン内部の検出器は大気中性子を約  $7.3 \pm 0.3$  counts/秒で検出していた (5 分間の測定時間)。これは 1000km/時で飛行する航空機でも、80km/5 分の位置精度で搭乗者の放射線環境をモニターできる性能を示している。こうした成果は、IEEE 国際学会や日本物理学会、日本天文学会の年会で口頭発表した。

このフォスウィッチ検出器 1 台を搭載した PoGOLite 気球実験のデータ解析は現在進行中である。

### 4. まとめ

開発した LiCAF+BGO フォスウィッチ検出器を PoGOLino および PoGOLite 気球実験に搭載し、荷電粒子やガンマ線のフラックスが高い環境下においても中性子を高感度で計測できることを実証した。今後はシンチレータや回路の性能向上により、よりコンパクトで高精度な中性子検出器の実現を目指す。

## チタン中における希土類酸化物の溶解/析出挙動

東北大学・工学研究科・上田 恭介  
東北大学・金属材料研究所・新家光雄、趙研

## 1. はじめに

チタン(Ti)は高温安定相であるβ相域において優れた加工性を有するが、β相の粒成長が著しいため製造プロセス上の制約になることもある。Ti のβ粒微細化の手法として、希土類元素添加により生成する希土類酸化物によるピンニングが知られている。(1)式に示すように、添加した希土類元素(RE)がTi中に固溶している酸素(O)と反応し、希土類酸化物(RE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)として析出する。



当グループではこれまで、工業用純Ti (CP Ti)中へのY添加により析出するY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に着目し、その電解抽出によるTiマトリクスからの分離・回収方法を確立した。更に、電解抽出後の電解液中のY濃度を測定することにより、Ti中における固溶Y濃度測定に成功し、1173 KにおけるY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の溶解度積を算出した。しかし、固溶Y濃度の温度依存性は不明である。さらに、CeやErといったその他の希土類元素に関しては電解抽出法による析出物の分離・回収は報告が無い。

本研究では、CP Tiへの添加希土類元素としてY, Er, Ceに着目し、Ti-RE二元系合金における希土類酸化物の溶解/析出挙動の把握を目的とした。

## 2. 実験方法

CP Ti (2種 Q = 950 mass ppm)をベース材に用い、添加希土類元素としてY, Er, Ceを0.1および0.5 mass%添加したTi-RE二元系合金をアーク溶解法にて作製した。なお、添加した添加REが全てRE<sub>2</sub>O<sub>3</sub>となったと仮定した場合においても酸素を過剰とした。インゴットは1373 Kでの粗鍛造および1073 Kでの仕上げ鍛造によって直径10 mmの丸棒とした。試料は石英管内にAr封入し、1173 K~1573 K、保持時間0.6~86.4 ks、水冷の条件にて熱処理を行った。析出物のマトリクスからの分離は電解抽出法にて行った。電解液として10%アセチルアセトン-1%テトラメチルアンモニウムクロライド-メタノール混合液(10%AA系電解液)を用い、電解液量80 mL、電解電圧0.5 V、電解時間7.2 ksの条件にて抽出を行った。抽出後の残渣は濾過回収し、XRDにより相同定した。濾液は5% HNO<sub>3</sub>にて20倍に希釈後、ICP-MSにて溶液中Y濃度を測定した。電解液中のYは全て合金中に固溶していたものと仮定し、Ti合金中の固溶Y濃度を算出した。

## 3. 研究成果

YおよびErを添加した鍛造材の電解抽出後、得られた残渣のXRDパターンからはそれぞれY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>およびEr<sub>2</sub>O<sub>3</sub>のピークが検出され、数百nm程度の球状の析出物であることが分かった。ただし、Ce添加合金からは残渣を得ることができず、電解抽出条件の検討が必要である。

Fig. 1に0.1mass%Y添加材の1573 Kにおける熱処理時間と固溶Y濃度の関係を示す。なお、図中には熱処理後の合金中酸素濃度およびそこから算出したY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の溶解度積を示した。熱処理時間の増加に伴い固溶Y濃度は減少したが、合金中酸素濃度は増加していた。本研究において熱処理はAr封入雰囲気下で行ったが、高温であったため残留酸素もしくはSiO<sub>2</sub>と合金が反応し、合金中酸素濃度が増加したと予想される。ただし、いずれの条件においても溶解度積はほぼ一定の値を示した。なお、他の温度においては熱処理時間に対して固溶Y濃度は一定であった。Fig. 2にY<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の溶解度積と熱処理温度の関係を示す。図から1173~1573 Kにおいては(2)式の関係が得られる。

$$\log([\text{mass}\%Y]^2 \cdot [\text{mass}\%O]^3) = 2.9 - 14000/T \quad (2)$$

よって、(1)式の標準自由エネルギー変化ΔG°は(3)式となる。

$$\begin{aligned} \Delta G^\circ &= RT \ln([\text{mass}\%Y]^2 \cdot [\text{mass}\%O]^3) \\ &= -268000 + 56T \text{ (J) (at 1173 to 1573 K)} \end{aligned} \quad (3)$$

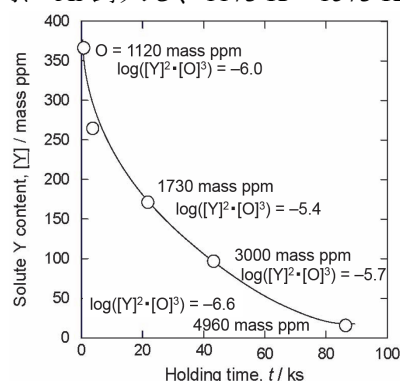


Fig. 1 Time dependence of solute Y content in the matrix of 0.1mass%Y alloy heat treated at 1573 K.

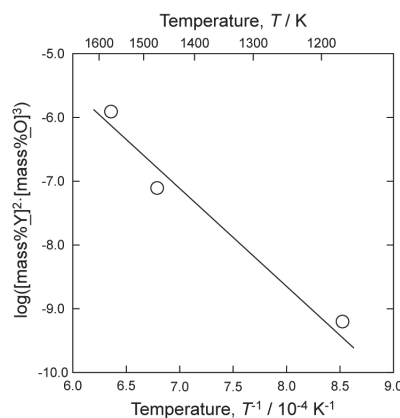


Fig. 2 Change in solubility products of Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub> in Ti alloy with heat treatment temperature.