

レーザー駆動中性子源を用いた 中性子共鳴透過非破壊分析法の実証



小泉 光生^{*1}
Koizumi Mitsuo



余語 覚文^{*2}
Yogo Akifumi

1 はじめに

ボリュームのある試料を非破壊で分析するには、透過力の高い放射線の利用が有効である。試料の構成が既知であれば、X線や中性子ビームの透過率から試料の厚さを推定することができる。また、中性子を照射して試料を放射化すれば、 γ 線のエネルギースペクトルから試料に含まれるさまざまな核種を分析することが可能である。中性子共鳴透過分析(neutron resonance transmission analysis (NRTA))法は、パルス状の熱～熱外中性子ビームを用い、時間分解された透過率スペクトルから、試料に含まれるさまざまな核種の面密度(単位面積当たりの粒子数)を測定することができる¹⁾。

図1に、NRTAの測定原理を示す。加速器等を用いてパルス状に発生させた中性子は、試料を通過して検出器に到達する。パルス中性子が発生してから検出器に到達するまで時間は、中性子の運動エネルギーと飛行距離によってほとんど決定される。中性子は図1(a)に示すように試料中の原子核と反応するが、その反応断面積は中性子の運動エネルギー及び核種に依存する。その結果、中性子透過率は図1(b)に示すような時間(エネルギー)依存性のあるスペクトルとして観測される。質量の大きな核種は、熱～熱外領域で中性子と共鳴反応を起こすものが多く、本手法による分析手法が有効である。

原子力の利用においては、核物質を厳密に管理する必要がある、ウランやプルトニウム等の核物質量

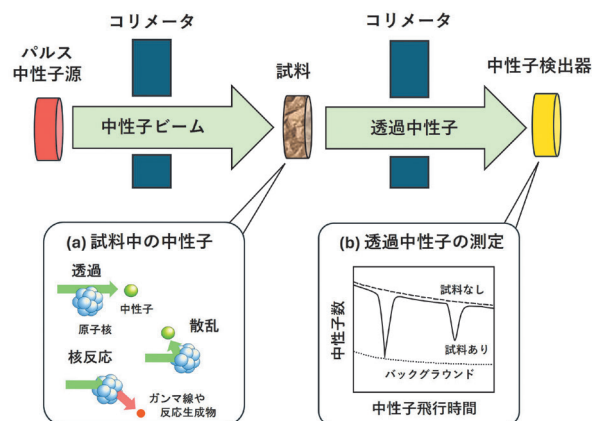


図1 中性子共鳴透過分析(NRTA)システム概念図

パルス中性子源で発生した中性子は試料を透過し、中性子検出器に到達する。中性子は試料中を透過する際に、その運動エネルギーに応じて、核種特有の反応を起こす(図中(a))。このため、図中(b)の試料ありに示すように、核反応の共鳴エネルギーに対応する飛行時間において、中性子の検出数が減少する

の計量には、破壊分析と非破壊分析を組み合わせた測定手法が用いられる。非破壊分析では、試料内の核物質から放出される放射線を受動的に測定する手法が一般的に用いられる。しかしながら、次世代原子力技術等では、核分裂生成物やマイナーアクチノイド等を含む放射能の高い核物質の計量も想定されており、このような強いバックグラウンドを有する試料に対しては、受動的な放射線測定では対応が困難となる。このため、中性子ビーム等を利用した能動的な測定技術の開発が進められている²⁾。NRTAは、そうした能動的な測定技術の1つであり、試料と検出器を離して配置できるため、放射能の高い試

料の測定にも有効と考えられる。

NRTA は、パルス中性子の発生から検出器への到達までの飛行時間 (Time of Flight (TOF)) を測定する。原理的には中性子源のパルス幅を短くし、飛行距離を長くすることで高いエネルギー分解能が得られる。しかしながら、実用化を目指すうえでは、装置全体の小型化が求められ、そのためには飛行距離を短縮する必要がある。これを実現するには、短パルス中性子源が不可欠である。レーザーショットによって中性子を生成するレーザー駆動中性子源 (LDNS) は、高強度でかつ短パルスな中性子ビームの生成が期待されている³⁾。加えて中性子源の各構成要素の小型化や高密度な配置が可能であるため、パルス中性子の発生源を小さくすることが可能となる。その結果、中性子ビームの飛行管を含めた装置全体の小型化が実現できる。飛行距離を短くできれば、同一強度の中性子源を用いた場合でも、検出器に到達する中性子強度が増加し、結果として測定時間の短縮が可能となる利点がある。運用面においても、レーザー発生装置を測定室の外に設置でき、レーザー光をミラーで測定装置に誘導する構成が可能であるため、装置の導入、運用、維持管理は比較的容易になると期待される。

LDNS で用いられるレーザー装置は、現時点では非常に大規模な装置であるが、その大強度化、小型化、高繰り返し化が進められており、将来的には卓上サイズでの運用が可能になることが期待されている⁴⁾。LDNS を用いた透過スペクトルの測定については、既にいくつか報告があり^{3,5,6)}、試料の厚さ分析への応用可能性が示唆されている。

本稿では、大阪大学レーザー科学研究所 (ILE) のニュークリアフォトニクス (NP) グループが開発した、高速点火実験レーザー装置 LFEX⁷⁾ 及び LDNS^{3,6)} を用いて行った、NRTA による面密度測定実証実験の概要とその結果を紹介する^{8,9)}。

2 LDNS-NRTA 面密度測定実証実験

LDNS の概念図を図 2 に示す。実験では、イオン生成ターゲットに厚さ $5\mu\text{m}$ の重水素化ポリスチレン (CD)、中性子生成ターゲットに棒状 Be ターゲット (直径 0.5 cm, 高さ 1 cm) 2 本、中性子減速材に厚さ 4 cm の円錐台型ポリエチレンを用いた。レー

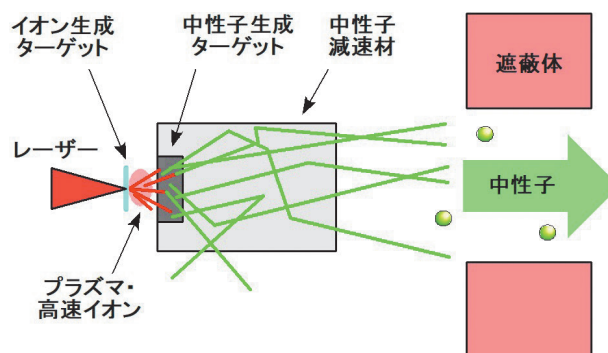


図 2 レーザー駆動中性子源 (LDNS) 概念図

イオン生成ターゲットに高強度パルスレーザーを照射することで、高密度プラズマが生成され、そこでイオンが加速される。加速されたイオンは中性子生成ターゲットに衝突し、中性子を発生させる。生成された中性子は、減速材中での散乱によりエネルギーを失う。結果として、幅広いエネルギー (速度) 分布を持つパルス状中性子が中性子減速材より得られる。

ザーには、LFEX (パルス幅約 1.5 ps, 総エネルギー約 1000 J, 集光強度約 $10^{19}\text{W}/\text{cm}^2$) を使用した。レーザー照射によりターゲットは瞬時にプラズマ化され、その中で加速された陽子と重陽子が Be ターゲットに衝突し、高速中性子を生成する。生成された中性子は、中性子減速材内の原子核 (主に水素) との散乱によりエネルギーを失い、エネルギー分布を持つパルス中性子となる。

LDNS のモデレータで散乱されたパルス中性子は、 $5\text{cm} \times 5\text{cm}$ の開口を有するボロン入りポリエチレンと鉛のコリメータを通過し、約 3.6 m 離れた位置にある中性子検出器に到達する。中性子検出器には、信号の飽和を避けるため、厚みを抑えた ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータ (厚さ 1 mm) とゲート回路付き光電子増倍管 (PMT) を組み合わせたものを使用し、シンチレータは中性子ビーム軸上に、PMT はシールド内となるように設置した。これは、中性子源からの中性子・ γ 線が PMT に直接入射することで生じるノイズを低減するためである。

中性子検出器で得られた出力信号は、デジタルオシロスコープにより連続的な波形データとして記録された。測定には、インジウム (In) と銀 (Ag) の薄膜試料 (それぞれ厚さ 0.2 mm と 0.8 mm) を使用し、3 回分のレーザーショットで得られた波形データをオフラインで解析した。

解析においては、波形データに対して 2 種類の移動平均処理を行い、ベースラインの変動及びノイズ信号を除去した。その後、リーディングエッジ法により中性子信号を抽出・計数して、TOF スペクト

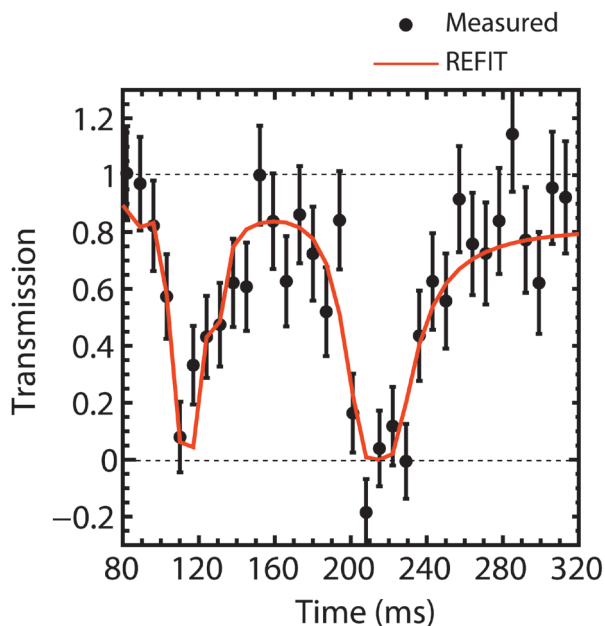


図3 中性子透過率スペクトル

黒い点は実験により得られた透過率データを示し、赤線はREFITによるフィッティングの結果である。実験データの誤差は、測定された中性子数の統計誤差に起因するものである。透過率の減少（スペクトルの凹み）は、試料中に含まれる ^{109}Ag （左側）と ^{115}In （右側）原子核の共鳴によるものであり、それぞれの共鳴エネルギーは5.19 eVと1.46 eVに対応する

ルとした。実際のNRTAによる分析では、図1(b)に示すように、バックグラウンド測定及び試料なしでのビーム強度測定を個別に行う必要がある。しかし、本実験ではレーザーショットの回数に制限があったため、シミュレーションコードPHITS¹⁰⁾を用いて、中性子ビーム量及びバックグラウンドの評価を行った。図3は、最終的に得られた透過率の時間変化（黒点）を示したものである。赤線は、得られた透過率スペクトルを共鳴解析プログラムREFIT¹¹⁾を用いて得られた結果である。

REFITによるフィッティングで求めたパラメータは、 ^{109}Ag 及び ^{115}In の面密度、飛行距離、中性子生成とトリガー信号の遅延時間の4つである。試料に含まれる ^{107}Ag と ^{113}In は中性子との反応断面積が小さいため、 ^{109}Ag と ^{115}In との同位体存在比（ ^{107}Ag ： ^{109}Ag =51.8%：48.2%， ^{113}In ： ^{115}In =4.3%：95.7%）から面密度を固定し、複数回フィッティングを行い、 ^{109}Ag と ^{115}In の面密度が誤差範囲で安定したことを確認して、最終値とした。表1にREFITによって得られた各パラメータ値を示す。飛行距離は実験条件と一致している。トリガー遅延については、時間スペクトル作成時に7 μs を時間単位としたことから

表1 REFITで得られた結果

パラメータ	値
^{109}Ag の面密度 [10^{-3} at/b]	3.0 ± 0.8
^{115}In の面密度 [10^{-3} at/b]	0.9 ± 0.2
飛行距離 [m]	3.57 ± 0.06
トリガー遅延 [μs]	-5.4 ± 2.2

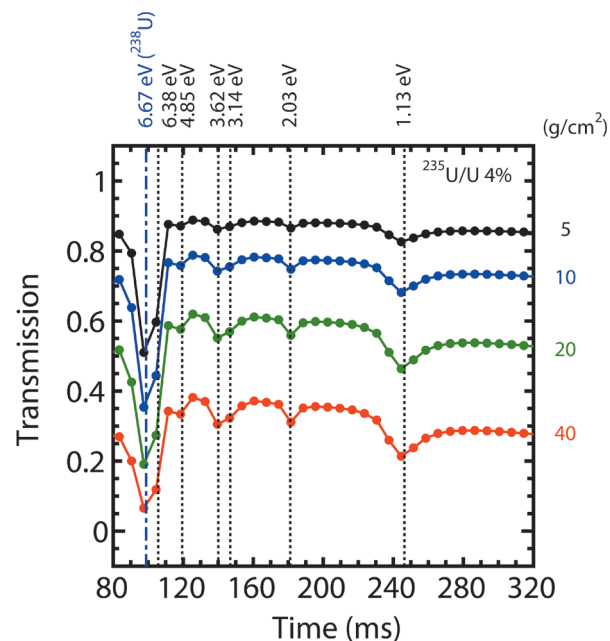


図4 ウラン試料の厚さの違いによる透過スペクトル

^{235}U の含有率は4%で、右にウランの厚さを示す。図の上部の青字及び黒字は、 ^{238}U と ^{235}U の共鳴エネルギーである

ら、スペクトルの原点からおおよそ3.5 μs の位置に実際のトリガーが存在すると見積もられる。これは、本解析で得られた値と誤差範囲内で一致している。 Ag 及び In 試料の厚さから計算される面密度は、 ^{109}Ag で $2.25 \times 10^{-3} \text{ at/b}$ 、 ^{115}In で $0.734 \times 10^{-3} \text{ at/b}$ であり、これらも解析結果と誤差範囲で一致している（なお、at/bはatom/barnを意味し、1b= 10^{-28} m^2 である）。以上の結果から、LDNSを用いた試料分析において、3回のレーザーショットにより、約25%の誤差で面密度を測定することに成功したといえる。

3 核物質分析への適用

NRTAで得られる透過スペクトルは、核データ¹²⁾に基づいてあらかじめ評価できる。一例として、ウラン試料に対する透過スペクトルを図4に示す。線の色は右軸に示す面密度に対応する。統計を増やす

ことでエネルギー分解能を高めることも可能であるが、本計算では、図3のスペクトルに合わせ、時間ビン幅を7 μ sにした。試料は $^{235,238}\text{U}$ で、 ^{235}U の含有率を軽水炉燃料に相当する4%とした。なお、軽水炉燃料で使われる酸化ウラン UO_2 ($\rho \sim 11 \text{ g/cm}^3$)に含まれる ^{16}O は、中性子との反応断面積が小さいため、透過スペクトルへの影響は無視できる。

図4に示す透過スペクトルのベースラインは、主に ^{238}U の厚さ(面密度)によって決定される。スペクトル中の凹みは、 ^{238}U の6.67 eV、 ^{235}U の複数の共鳴エネルギーに対応している。試料の厚さや同位体の含有比率が変化すると、それに伴い、スペクトルのベースライン、凹みの深さや形状が変化する。この透過スペクトルを分析することにより、試料中の面密度(ウランの厚さ及び同位体組成)を定量的に求めることができる。なお、試料の厚さが更に厚く又は薄くなる場合、TOFスペクトルに現れる共鳴の観測は困難になってゆくが、そのような場合でも、統計精度を高めることで、ある程度までは測定は可能である。

4 まとめ

本研究では、LDNSを用いたNRTAで、試料中の原子核の面密度が測定可能であることを実証した。LDNSとNRTAを組み合わせた手法では、レーザーのシングルショットによる核種同定や試料温度の瞬時測定も実証されており^{7,8)}、面密度測定やイメージング等、科学研究や工学応用といった幅広い展開が期待される。原子力分野においては、核不拡散における高放射能を伴う使用済み燃料の非破壊分析や、核セキュリティにおける不審物中の核物質検知等への適用が期待される。LDNSを利用した分析技術の開発は、現時点ではまだ初期段階にある。レー

ザー装置の小型化、大強度化、高繰り返し化が進められており、これに対応するLDNSの実現に向けた研究も進められている(例えば文献4,13))。今後、LDNSがより容易に利用できる技術として確立され、本研究で実証した分析手法が様々な分野に応用されるようになることを期待している。

謝辞

本技術開発の一部は、文部科学省「核セキュリティ強化等推進事業費補助金」の一環で進められた。また、シミュレーション計算では、日本原子力研究開発機構のスーパーコンピュータ HPE SGI8600 を使用した。

参考文献

- 1) P. Schillebeeckx, *et al.*, *JINST*, **7**, C03009 (2012)
- 2) M. Koizumi, *Proc. INMM & ESARDA Joint Virtual Annual Meeting* (2021)
- 3) A. Yogo, *et al.*, *Phys. Rev.*, **X 13**, 011011 (2023)
- 4) CellMark, *et al.*, *High Power Laser Sci. and Eng.*, **9**, e53 (2021)
- 5) M. Zimmer, *et al.*, *Nat. Commun.*, **13**, 1173 (2022)
- 6) Z. Lan, *et al.*, *Nature Comm.*, **15**, 5365 (2024)
- 7) N. Miyanaga, *et al.*, *J. De Physique. IV France*, **133**, 81-87 (2006)
- 8) M. Koizumi, *et al.*, *Sci. Rep.*, **14**, 21916 (2024)
- 9) K. Koizumi, *et al.*, *Proc. of the 45th INMM-J Ann. Meeting*, #4504, in Japanese (2021)
- 10) T. Sato, *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **55**, 684-690 (2018)
- 11) M.C. Moxon, *et al.*, *User's guide for REFIT-2009-10, report UKNSF*, **243**, UK Nuclear Science Forum (2010)
- 12) K. Shibata, *et al.*, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1-30 (2011)
- 13) I. Prencipe, *et al.*, *High Power Laser Sci. and Eng.*, **5**, e17 (2017)

(*¹(国研)日本原子力研究開発機構 原子力人材育成・核不拡散・核セキュリティ総合支援センター、

*² 国立大学法人 大阪大学 レーザー科学研究所)