

レーザー加速器駆動の中性子源を用いた中性子共鳴透過分析法の開発

DEVELOPMENT OF NEUTRON RESONANCE TRANSMISSION ANALYSIS USING A LASER ACCELERATOR DRIVEN NEUTRON SOURCE

伊藤史哲^{#, A), B)}, 李在洪^{B)}, 弘中浩太^{B)}, 小泉光生^{B)}, 余語覚文^{C)}

Fumiaki Ito^{#, A), B)}, Jaehong Lee^{B)}, Kota Hironaka^{B)}, Mitsuo Koizumi^{B)}, Akifumi Yogo^{C)}

^{A)} High Energy Accelerator Research Organization

^{B)} Japan Atomic Energy Agency

^{C)} Institute of Laser Engineering, Osaka University

Abstract

To guarantee the peaceful use of nuclear materials, nuclear materials are subject to accountancy and verification by the IAEA. To improve the efficiency of the verification process, the development and advancement of nondestructive analysis (NDA) methods for nuclear materials are required. Neutron transmission resonance analysis (NRTA) is one of the promising active NDA methods to quantify nuclear materials by irradiating pulsed neutrons to nuclear materials and measuring the transmitted neutron energy spectrum with the time-of-flight (TOF) method. In recent years, research and development of compact neutron sources has been conducted, and the hurdle for applying NRTA to various facilities where nuclear material accountancy and control are required has been gradually lowered. For high resolution TOF measurements in a compact NRTA system, a short-pulse neutron source is required. As a relatively new type of a neutron source, the laser accelerator-driven neutron source (LDNS) can generate extremely short pulses of neutrons. In addition, the laser system itself can be installed outside of a radiation-controlled area, giving it an advantage in terms of operation and maintenance. We have focused on these characteristics of the LDNS and have been developing the technology for the NRTA system using the LDNS. In this presentation, we will report on the development status of the NRTA system using the LDNS and its demonstration experiment.

1. はじめに

核物質の平和利用を保障するため、原子力施設等において核物質は計量管理され、IAEA 等により検認が行われている。発展途上国を中心に年々増加する原子力施設数に伴い、その検認業務にかかる予算は増え続けており、検認業務効率化のための技術開発が求められている。核物質の非破壊分析 (NDA) は、化学分析を伴う破壊分析と比較し、精度は劣るものの、事前処理が少ないため測定に時間を要さないことから、IAEA は NDA 手法の開発・高度化を求めており、各国で研究が進められている。中性子透過共鳴分析 (NRTA) [1] は、核物質にパルス中性子を照射し、透過中性子エネルギースペクトルを飛行時間 (TOF) 法を用いて測定することにより、核物質を定量するアクティブ NDA 手法の一つである。本手法は、試料から自発的に放出される中性子やガンマ線を測定するパッシブ NDA 手法では測定することが困難な、強い放射線が放出される使用済み燃料などにも有効な手法である。一方、大強度のパルス中性子源を要することから、研究用などの限定的な用途に用いられてきた。しかし、近年は小型中性子源の研究開発が進められており、NRTA を核物質の計量管理が必要な様々な施設に適用させるためのハードルは徐々に下がっている。コンパクトな NRTA システムを設計するに当たり、中性子源の他に、TOF 測定のための中性子飛行距離を短くすることも、遮蔽のコストや専有面積といった点から重要で

ある。飛行距離を短くすると、TOF の精度には不利であるから、高精度な TOF 測定を行うためには、より短パルスの中性子源が必要になる。レーザー加速器駆動の中性子源 (LDNS) [2] はレーザーパルスがピコ秒以下であることから、極短パルスの中性子を発生させることができる。また、レーザー装置自体は放射線管理区域外に設置することができるため、運用・維持管理の面においても優位性がある。加速器駆動の中性子源と比較すると、単位時間当たりの中性子発生数は劣るものの、近年のレーザー技術の著しい発展による将来性に着目し、我々は LDNS を用いた NRTA システムの技術開発を行ってきた。本発表では、これまでの LDNS を用いた NRTA システム開発状況及び実証実験について報告する。

2. NRTA システムの開発

LDNS を使用すると、前述したように、パルス幅が短いことから精度を保ったまま、飛行距離を短く設計できる。またレーザーの光学素子の熱問題から、レーザーショット当たりの強度と繰り返し頻度はトレードオフの関係にあるが、LDNS の特徴として、レーザーのピーク強度が大きいほど中性子の発生効率が高くなるため、エネルギー効率的には、繰り返し頻度が低く、パルス当たりの中性子数が大きな中性子源になると予想される。レーザーのピーク強度が大きくなると、放出される中子の平均エネルギーも大きくなる。また実用化のためには NRTA システムにコンパクトさ、測定時間の短さ、精度が求められ

[#] fumiaki.ito@kek.jp

ウランやプルトニウム等の定量を想定し、これらの核種の共鳴エネルギー領域を精度よく測定することを目標としながら、検出器、モデレータ、データ取得 (DAQ) システムの開発を行った。

2.1 検出器の開発

中性子検出器には、検出効率の高さが要求される。しかし、一般的には検出効率を高めると、TOF 測定時の主要な背景事象 (BG) であるガンマ線の感度も高めてしまう。またガンマ線は、中性子発生時から指数関数的に減衰していく時間依存 BG 源である。そのため、コンパクトな NRTA システムを設計するに当たり、TOF 測定のため中性子飛行距離を短くするほど、BG が減衰する前に中性子が飛来することになり、BG が飛行距離の逆数に対して指数関数的に増加することとなる。また、前途のように、ピーク時の中性子数は大きくなり、さらに飛行距離が短くなるほど、中性子の飛来間隔も狭まるため、検出器は、高計数に対応しなければならない。

以上のような背景から、熱外中性子に高い感度を持ち、比較的減衰時間の短いリチウムガラスシンチレータを基にした検出器の開発を開始した。試作品を用いた実験において、実際の TOF 測定時に中性子の検出効率を下げることなく、ガンマ線の感度のみを下げることに成功した。この検出器については現在特許出願中のため、詳細については割愛する。現在は、ガンマ線の感度を従来の検出器の 1/10 とすることを目指している。

2.2 モデレータの開発

LDNS から放出される短パルスの中性子は高エネルギーであるため、熱外中性子領域までモデレータで減速させる必要がある。しかし、減速過程で中性子パルス幅はどうしても広がってしまうため、短パルス中性子源であるという LDNS の特性を活かすためには、中性子の減速効率だけでなく、パルス幅の広がりも含めて最適化する必要がある。また、LDNS のエネルギーを考慮すると、(n,xn) 反応を利用することが、有効であると予想される。我々はモンテカルロ・シミュレーション・コード PHITS[3] を用いてモデレータの素材、形状及び構造を変化させながらモデレータの性能を調査した。

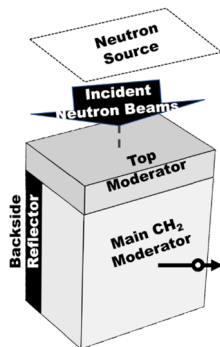


Figure 1: Conceptual design of neutron moderator [4].

Figure 1 はモデレータの概念図である。図の上部に中性子源を置き、中性子源から発生する X 線やガンマ線フラッシュから検出器を保護するため、90° 回転した方向 (図の手前面) に検出器を設置することとした。(n,xn)

反応断面積の大きい素材でできた上部モデレータと、4π 方向に放出される中性子を望んだ方向に指向性を持たせるための反射体、数 MeV 以下のエネルギー領域において、最も減速効率のよい水素原子核を多く含むメインモデレータという3つの要素によって構成されている。メインモデレータには、工作性の良さから、ポリエチレンを用いることとした。

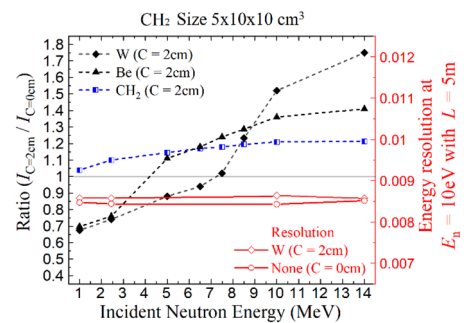


Figure 2: Comparison of neutron intensity gains (black and blue) of each top moderator for each incident neutron energy [4].

Figure 2 は上部モデレータにタングステン、ベリリウム及びポリエチレンを取り付けた時のそれぞれの中性子相対強度であり、上部モデレータを取り付けない場合の中性子強度で規格化している。入射中性子のエネルギーが高くなると、タングステンやベリリウムとの(n,2n)反応閾値を超え、ポリエチレンだけの構造よりも中性子強度が高くなり、複数素材モデレータの有効性が確認された。

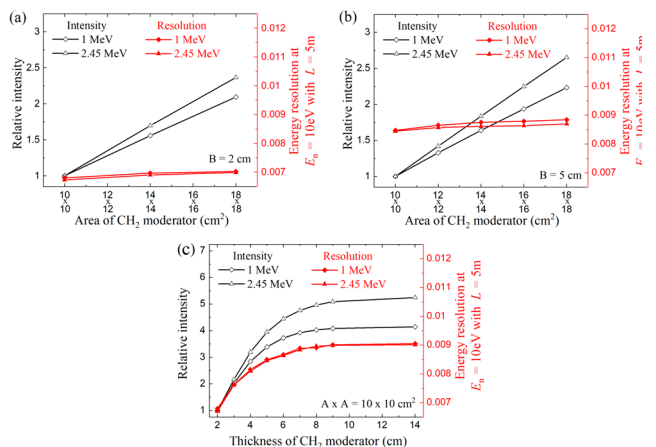


Figure 3: Comparison of relative intensities (black) of neutron fluences (1–100 eV) as functions of polyethylene area (a and b) and thickness (c) [4]. (a) is 2 cm thick polyethylene and (b) is 5 cm thick.

パルス幅の広がりを抑えるためには、モデレータを小さくすればよいが、一方減速された中性子の取り出し量は小さくなってしまふ。Figure 3 はモデレータの大きさを変化させたときの、減速された中性子の強度とエネルギー分解能をプロットしたものである。エネルギー分解能は中性子飛行距離 5 m を想定して計算している。複合核種を精度よく定量するためには、中性子のエネルギー分解能を 0.008 以下とすることが望ましいと考えられている[5]。TOF 測定時の中性子飛行経路方向とは垂直方向にモ

デレータを大きくすることで、パルス幅の広がりを抑え、エネルギー分解能を小さく保ったまま中性子を多く取り出せることが分かった。

また反射体による中性子の減速効率と中性子パルス幅の両者を考慮してモデレータを最適化するために、以下の指標(FOM)を用いた。

$$\text{FOM} = \frac{I}{\Delta T^2} \quad (1)$$

ここで I は減速後の中性子強度であり、 ΔT は減速後のパルス幅である。高エネルギーの中性子源に対しては、ポリエチレンを薄くし、タングステン等の反射体を厚くすることが有効であることが分かった。

2.3 DAQ システムの開発

前述したように、LDNS は中性子発生の繰り返し頻度は小さく、一回当たりの中性子の数が大きいこと、また中性子飛行距離を短くすることから、ピーク時の計数率は非常に高くなる。そのような場合、広く用いられているパルスを整形してパルス波高を計数するデータ収集システムではデータの取得効率が低下する。また、レーザー照射直後の X 線、ガンマ線、高速中性子によるシンチレータからの過剰な光の入力は後段の検出器システムに悪影響を与え、一時的にノイズが増加するといったことも問題になる。大きな残光や、PMT のベースラインシフト等の影響により、ベースラインが 0 V に落ち着かず、しばらく浮いたままになるような現象も確認された。そこで、高速波形デジタイザと大容量の半導体メモリを用いて、一時的に波形を全て記録し、ソフトウェアでデータ処理する手法を用いることとした。LDNS の繰り返し頻度が小さいことから、ソフトウェアでの処理は十分可能であり、またファームウェア等を開発する必要もなく、コスト的にも優れている。

ソフトウェアでのデータ処理の手順は、ノイズ除去、ベースライン制御、及び、中性子信号の選別に分けられる。以下にその概要を示す。

- ノイズ除去
ノイズは高周波であるため、ノイズを低減するために適当な時間幅で移動平均線を計算し、これを移動平均波形データとして以降の手順において使用した。
- ベースライン制御
一定幅の時間区間における移動平均波形データ(数千点)の電圧値でヒストグラムを作成した。ヒストグラムは、時間区間を 1 点ずつスライドさせ、逐次作成していく。次に、各ヒストグラムの中での最頻値を、その時間区間の中心値でのベース電圧とし、最頻値から成る線をベースラインとした。
- 中性子信号の選別
電圧値がベースラインから大きく外れたときに、一定時間幅で電圧積分の計算を行う。計算した積分値が適切な範囲に収まる信号を中性子信号として選別した。

Figure 4 は生データと上記オフラインデータ処理後の波形と、選別された中性子信号の例である。また Figure 5 はこのデータ処理法を用いた場合と、市販のファームウェアを用いた場合の TOF スペクトルを比較したものである。これらのスペクトルは電子加速器駆動中性子源を

用いた TOF 測定施設にて中性子源から 12 m 離れた測定室で測定された。計数(縦軸)は中性子パルス照射回数で規格化されており、オフライン処理データ処理により中性子検出効率が大きく向上していることが分かる。短い飛行距離の測定等、ノイズなどの大きな測定条件においては、両者の差は更に大きくなることも予想される。

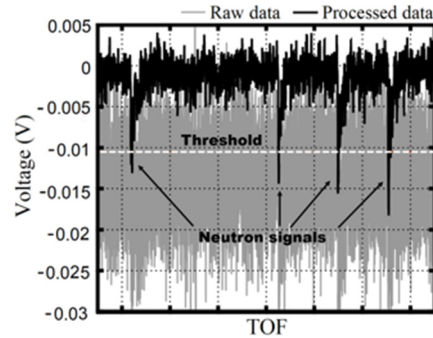


Figure 4: Examples of waveform raw data and processed waveform data.

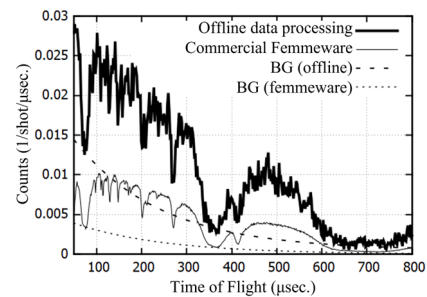


Figure 5: Comparison of TOF spectra using the prototype data processing method and using commercial firmware.

3. 実証実験

3.1 実験手順

NRTA を行うための TOF 測定実験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)グループによって開発された LFEX レーザー[6]を用いたレーザー加速駆動の熱外中性子源を用いて行った。本実験において、LFEX レーザーは、半値全幅約 1.5 ps の強度時間分布を持ち、約 1000 J の総エネルギー、約 10^{19} W/cm² の集光強度で照射された。

実験の概要図を Fig. 6 に示す。中性子源から 4π 方向に放出されるパルス中性子は、ボロン入りポリエチレンブロックと鉛ブロックの 5 x 5 cm² コリメータで構成される約 3.6 m のビームラインにより検出器へ導いた。模擬核試料として、核物質と同様に熱～熱外エネルギー領域に共鳴構造を有し、かつ、入手が容易なインジウム(In)と銀(Ag)の薄膜(それぞれ厚さ 0.2 mm と 0.8 mm)を用いた。中性子検出器の周囲には、散乱中性子とガンマ線のバックグラウンドを低減するため、20%ボロン入りポリエチ

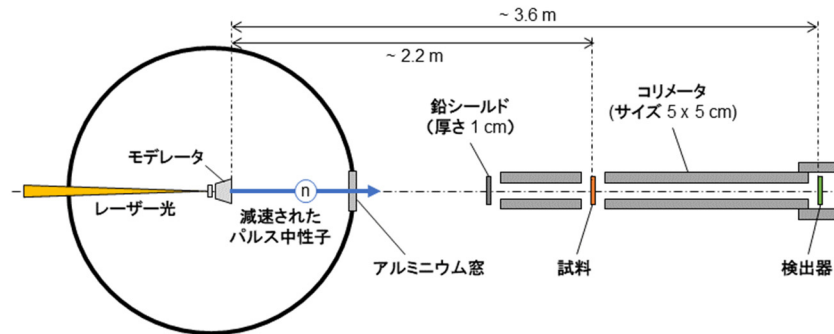


Figure 6: Layout for TOF measurement.

レンブロックと鉛ブロックを設置した。検出器からのアナログ電気信号は、Tektronix 社製デジタルオシロスコープ (MSO58) により、1.25 GHz でアナログデジタル変換し、レーザー照射直前から 1 ms 間の連続した波形データとして記録した。

3.2 実験結果

Figure 7 に In と Ag を透過させて得た中性子スペクトルと、シミュレーション計算により求めた透過中性子スペクトルを示す。実験データは、3 回分のレーザーショットから得られた測定結果を足し合わせている。比較用のシミュレーションは、モンテカルロ・シミュレーション・コード PHITS (Ver. 3.12) [3]と核データライブラリ JENDL-4.0 [7] を使用して計算した。そこから指数関数的なバックグラウンド、及び、検出器の検出効率で補正している。図の通り、実験で In と Ag を透過させて得た中性子スペクトルは、シミュレーション計算により求めた透過中性子スペクトルと類似の傾向を示している。これは、 ^{115}In (1.46 eV) と ^{109}Ag (5.19 eV) の共鳴ピークを 3 回分のレーザーショットから観測できたことを示唆している。

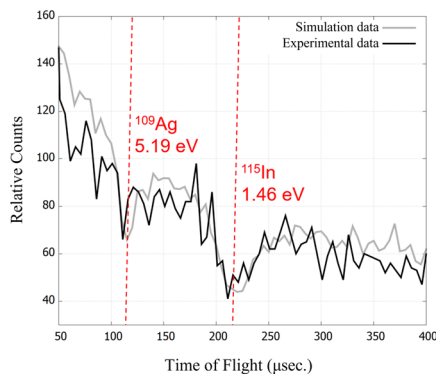


Figure 7: Comparison of transmission neutron spectra obtained experimentally and obtained by simulation calculation.

4. まとめ

増大する核物質の検認業務効率化のため、NDA 法の高度化が求められている。我々は将来性が期待される

LDNS を用いた NRTA システム開発に着手した。LDNS を用いたコンパクトな NRTA システムの特性を考慮し、検出器やモデレータ、DAQ システム等を開発した。更に LDNS を用いた TOF 測定実験により、 ^{115}In (1.46 eV) と ^{109}Ag (5.19 eV) の共鳴ピークを 3 回分のレーザーショットから観測できたことを示唆する結果が得られた。本結果は LDNS の NRTA 適用可能性を示している。今後は更に試料の厚さの定量が可能ということを実証する計画である。

謝辞

本技術開発は、文部科学省「核セキュリティ強化等推進事業費補助金」の一環として行ったものである。また、本技術開発のシミュレーション計算は、日本原子力研究開発機構のスーパーコンピュータ HPE SGI8600 を使用して実施された。

参考文献

- [1] P. Schillebeeckx *et al.*, JINST, 7, C03009 (2012).
- [2] S. R. Mirfayzi *et al.*, Nature Scientific Reports, 10, 20157 (2020).
- [3] T. Sato *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., 55, 684-690 (2018).
- [4] Jaehong Lee *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., (2022); <https://doi.org/10.1080/00223131.2022.2077259>
- [5] Parabela C *et al.*, EUR 28239 EN., (2016); [https://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/bitstream/JRC103484/jrc103484_report_nd_517_2016_v06\(3\).pdf](https://publications.jrc.ec.europa.eu/repository/bitstream/JRC103484/jrc103484_report_nd_517_2016_v06(3).pdf)
- [6] N. Miyanaga *et al.*, J. De Physique. IV France, 133, 81-87 (2006).
- [7] K. Shibata *et al.*, J. Nucl. Sci. Technol., 48, 1-30 (2011).