

令和 6 年 6 月 21 日現在

機関番号：14301

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2021～2023

課題番号：21H01859

研究課題名（和文）F-LCSレーザーコンプトン散乱線による同位体イメージングの高度化に関する研究

研究課題名（英文）Study on Isotope Imaging by using F-LCS gamma-rays

研究代表者

大垣 英明（Ohgaki, Hideaki）

京都大学・エネルギー理工学研究所・教授

研究者番号：10335226

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 13,900,000円

研究成果の概要（和文）：核共鳴蛍光散乱とLCS線を用いて、試料中の複数の同位体の同時検出とイメージング、更に定量評価を目標に研究を行った。このためにUVSORのBL1UのLCSガンマ線ビームラインにて、今回考案したF-LCSガンマ線発生手法の実証実験を行い、スペクトル測定の結果、シミュレーションと一致するスペクトルを得た。更に、このF-LCSガンマ線を用いて206Pb、207Pbと208Pbの高濃縮試料のNRF測定を行い、本手法の有効性を確認し、207Pbと208Pbの同時1Dイメージングに成功した。また天然鉛の試料に対して208Pbの同位体比の測定を行い、5%の誤差で定量評価に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究は、透過力の高い高エネルギー光子ビーム（ガンマ線）を用いて、使用済み核燃料のような遮蔽された物体に対して、その内容物に含まれる同位体の検出と定量分析及び分布状態の可視化を非破壊で可能にする技術の開発を目指している。このために準単色でエネルギー可変のガンマ線が得られるレーザーコンプトン散乱ガンマ線を用い、あらゆる同位体検出が原理的に可能な光核共鳴散乱を利用する研究を行って来ており、本研究プログラムでは、複数の同位体の同時計測を、独自に提案したフラットレーザーコンプトン散乱ガンマ線を用いて行い、鉛の2つの同位体の同時検出及びイメージング画像の取得に成功した。

研究成果の概要（英文）：Using nuclear resonance fluorescence scattering and LCS gamma-rays, we have been conducting research aiming at the simultaneous detection and imaging of multiple isotopes in a sample, and quantitative evaluation of the isotopes. To this end, we conducted a demonstration experiment of the F-LCS gamma-ray generation proposed for this program at the LCS gamma-ray beamline at BL1U in UVSOR. As a result, we obtained a spectrum that matched the EGS5 simulation. Furthermore, we performed NRF measurements of highly enriched isotope samples of 206Pb, 207Pb, and 208Pb using this F-LCS gamma-ray, confirmed the effectiveness of the F-LCS gamma-ray to measure low energy region of the LCS beam, and succeeded in simultaneous 1D imaging of 207Pb and 208Pb. We also measured the isotope concentration ratio of 208Pb on a natural lead sample and succeeded in quantitative evaluation with an error of 5%.

研究分野：原子力工学

キーワード：LCSガンマ線 NRFイメージング 非破壊検知・検出 複数同位体 定量分析

### 1. 研究開始当初の背景

21世紀に入り、LCS線の照射と、これによっておこる光核共鳴蛍光散乱(NRF)による核種の非破壊測定法が、ローレンスリバモア研究所(LLNL)及び、京大と原子力機構等の共同研究グループによって開始された。このような技術は、現在はローレンスバークレー研究所やマサチューセッツ工科大(MIT)等でも研究が進められている。これらの研究では、厚さ数cm程度の金属遮蔽を透過して特定の核種を非破壊で計測可能という特徴から、主に原子力燃料等の保証措置技術及び、核物質不拡散のための核セキュリティ技術として研究が進められている。一方で、研究代表者は1990年代より、産業技術総合研究所のLCS線装置を使い、デューク大と同時にLCS線の利用研究を開始し、LCS線の単色性を用いた線CT技術の開発を行ってきた。2000年以降、LLNLや、我々の研究グループによって、LCS線とNRFを用いた、物質の非破壊分析法の研究が開始され、さらに分析技術の一環としてNRFを用いたCTがLLNL等によって提案され、我々のグループで実証した。本手法では、入射線のエネルギー幅の中に、測定対象となる複数の同位体の励起エネルギーが含まれる場合、同時にそれらの同位体のCT画像の計測が原理的には可能である。そのためには、通常準単色のLCS線のエネルギー幅を、ある程度広げる必要がある。コリメータ径を広げることでLCS線の幅を広げられるが、イメージング分解能は当然劣化する。更に、LCS線のエネルギーは散乱角度に依存するため、通常のLCS線ビームの照射面内では、位置によってエネルギーが異なる事になり、定量評価は困難とされている。

### 2. 研究の目的

核共鳴蛍光散乱(NRF)とLCS線を用いて、試料中の複数の同位体の同時検出と高空間分解能でのイメージング、更には定量評価を目標とし、(1)空間的に1~2mm程度の狭いビーム径と、そのビーム径内で線のエネルギー分布がフラット(Flat)なF-LCS線を生成する手法を実験的に実証する。その手法としては、電子をらせん運動させ、これにレーザーを照射する方法を提案する。電子ビームのらせん運動は蓄積リングにインストールされている、偏光可変アンジュレータを用いる。一方、シミュレーションコードを開発し、実験結果との比較を行い、提案手法の妥当性を検証する。(2)発生したF-LCS線を用いて試料中の複数の同位体の同時検出と、高空間分解能でのNRFイメージングを行い、通常のLCS線での結果と比較する。また、NRF測定の結果を用いた同位体の定量評価を試みる。

### 3. 研究の方法

我々のグループではUVSOR-IIIのBL-1Uに波長2μmの波長の50Wファイバーレーザーを導入し、約5.5MeVのエネルギーのLCS線ビームラインを、分子研の協力を得て整備している。本研究では、このビームラインを用いて実験を行う。

#### (1) F-LCS線の生成

UVSOR-IIIに設置されているApple-II型の偏光可変アンジュレータを用いて、電子ビームをらせん運動させ、上記レーザーとの散乱でF-LCS線を生成する。アンジュレータの磁場強度を変化させLCS線のエネルギースペクトルをGe半導体検出器にて計測し、実際にエネルギー分布が広がっているかを確認する。更に発生させたF-LCS線のエネルギーの空間依存性を、ビームライン下流のコリメータを移動させてエネルギースペクトルを計測する事で得る。これらの計測結果をシミュレーション結果と比較する。

#### (2) <sup>206</sup>Pbと<sup>208</sup>Pbの2同位体同時NRFイメージング

透過法(ウィットネス法)を用いて鉛の同位体サンプルに対してNRFイメージングを取得するとともに、天然鉛の同位体比を測定する事で、同位体の定量評価を試みる。

### 4. 研究成果

分子研のUVSOR-IIIのBL1Uビームラインを用いて、F-LCS線発生実験を行った。アンジュレータの磁場をK=0からK=0.4まで、0.1ステップで変化させてエネルギースペクトルを、大型Ge検出器及び高分解能LaBr<sub>3</sub>(Ce)検出器を用いて測定した。また、F-LCS線発生に関するシミュレーションコードをEGS5をベースに開発し、UVSOR-IIIでの実験結果との比較を行った。

図1には、開発したシミュレーションコードを用いてF-LCSのエネルギースペクトルのK値に対する依存性を計算した結果を示す。これより、アンジュレータK値を大きくすれば、F-LCS線のピークエネルギーが低エネルギー側にシフト

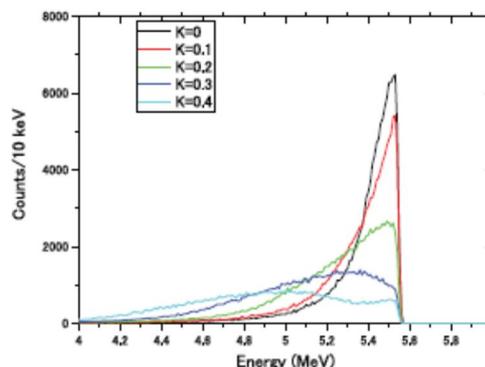


図1 F-LCS線のK値依存性

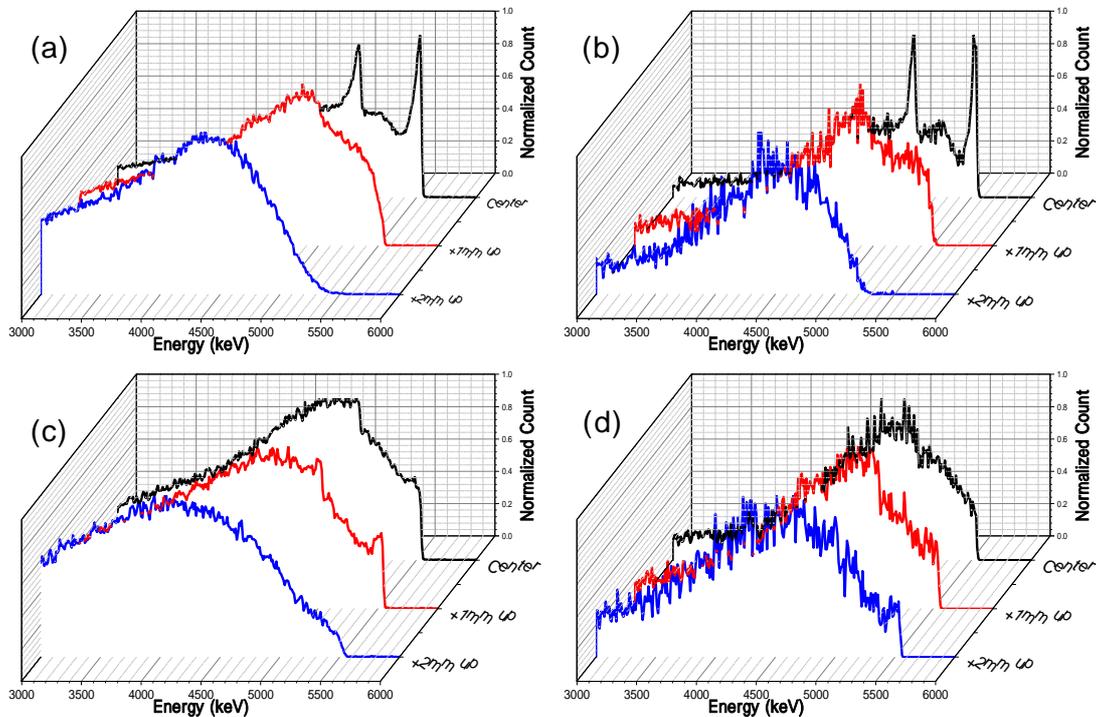


図2 F-LCS 線のエネルギースペクトルの空間位置依存性。黒線はコリメータをビーム軸上に置いた場合で、赤線はビーム軸上から垂直方向に1 mm 上方、青線は2 mm 上方に移動させた場合。(a) K=0 の実験値、(b)K=0 のシミュレーション結果、(c)K=0.2 の実験値、(d)K=0.2 のシミュレーション結果

するとともに、エネルギー広がりが大きくなっている事が分かる。一方で、線の収量はK 値の増大とともに徐々に減少する事が分かる。シミュレーションでは、実験と直接比較できるように Ge 検出器の応答を考慮に入れた計算を行い、実験でのスペクトルと良い一致を得た。この結果、2 mmφのビーム径の場合、LCS 線では2.7%のエネルギー幅(半値幅)のものが、F-LCS 線では、7.2%にまで拡大させる事に成功した。またF-LCS 線のエネルギースペクトルの空間分布の測定を行った結果を図2に示す。これより、LCS 線、F-LCS 線ともにシミュレーションは実験を良く再現し、LCS 線の場合では、1 mm 上方へコリメータを移動させると、ピーク成分が大きく減少する事が分かる。一方F-LCS 線の場合、1 mm 上方へのコリメータの移動では、スペクトルに大きな影響は見られない事が分かる。

このF-LCS 線ビームを用いて3つの同位体( $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$  と  $^{208}\text{Pb}$ )の同時 NRF 測定を、 $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  と大型 Ge 検出器からなるハイブリッド検出器システムを構築して行った。この結果、 $^{207}\text{Pb}$  と  $^{208}\text{Pb}$  の NRF ピークの同時測定に成功したものの、NRF 反応断面積が小さい  $^{206}\text{Pb}$  の NRF ピークの測定には  $\text{LaBr}_3(\text{Ce})$  では困難であることが判明した。なお図3のように大型 Ge 検出器のデータから、5512 keV( $^{208}\text{Pb}$ )、5488 keV( $^{207}\text{Pb}$ )、5471 keV( $^{206}\text{Pb}$ ) 5037 keV ( $^{206}\text{Pb}$ )のピークを確認し、LCS 線での結果との比較から F-LCS 線のエネルギー分布の拡大が、低エネルギー側の NRF ピークの測定に有利な事を示した。

更にサンプル中の同位体の分布の1次元イメージを取得するために98%以上同位体濃縮された  $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$  の8 mmφの鉛ロッドを吸収サンプルにし、これを4 mm ステップで移動させて、ビーム軸下流に設置した高濃縮  $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$  のウィットネスタターゲットからの NRF を2台の Ge 検出器にて測定した。この結果、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$  の位置で大きく、5512 keV( $^{208}\text{Pb}$ )、5488 keV( $^{207}\text{Pb}$ ) の NRF ピークがそれぞれ減少する事を確認し、これにより1次元の NRF イメージングに成功した。更に、天然鉛の試料に対して  $^{208}\text{Pb}$  の同位体比の評価を試みた。天然鉛の位置での NRF ピークの減少を高濃縮の  $^{208}\text{Pb}$  でのピークの減少と比較する事で、濃縮度  $56 \pm 5\%$  という結果を得た。

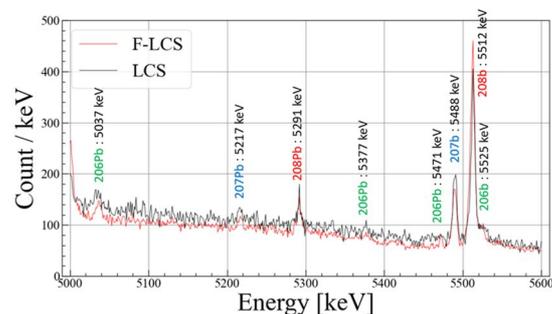


図3 LCS 線(黒線)とF-LCS 線(赤線)を  $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$  に照射し、NRF 測定を行った結果

天然鉛の  $^{208}\text{Pb}$  同位体比は 52.4% であるので、誤差の範囲で一致を見た。

以上のように、本研究では ( 1 ) 空間的に 1~2 mm 程度の狭いビーム径と、そのビーム径内で線のエネルギー分布がフラットな F-LCS 線を生成する手法を UVSOR-III の Apple-II アンジュレータを用いて発生する事に成功した。一方、EGS5 を用いたシミュレーションコードを開発し、F-LCS 線のエネルギースペクトルのアンジュレータ磁場強度に対する変化や、エネルギースペクトルの空間分布に関して、実験データを再現する結果を得た。次に ( 2 ) 発生した F-LCS 線を用いて試料中の複数の同位体 ( $^{206}\text{Pb}$ 、 $^{207}\text{Pb}$ 、 $^{208}\text{Pb}$ ) の同時検出を行い、5512 keV ( $^{208}\text{Pb}$ )、5488 keV ( $^{207}\text{Pb}$ )、5471 keV ( $^{206}\text{Pb}$ )、5037 keV ( $^{206}\text{Pb}$ ) までの NRF ピークの同時測定に成功した。LCS 線の場合との比較を行い、低エネルギー側での NRF 励起に対して F-LCS 線の優位性を確認した。一方で、高エネルギー側での NRF ピークの減少も確認され、アンジュレータ磁場強度の適切な選択が重要な事が明らかとなった。更に F-LCS 線を用いて 4 mm 空間分解能での 1 次元 NRF イメージングを行い、 $^{208}\text{Pb}$  と  $^{207}\text{Pb}$  の同時イメージングに成功した。また、天然鉛の試料中の  $^{208}\text{Pb}$  の同位体比の定量評価を試み、 $56 \pm 5\%$  という、誤差の範囲で、期待される天然鉛の同位体比との一致を見た。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 H. Negm, H. Zen, H. Ohgaki	4. 巻 59
2. 論文標題 Comprehensive simulation study on CT isotope imaging beyond the experiment on the 208Pb based on nuclear resonance fluorescence	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 Journal of Nuclear Science and Technology	6. 最初と最後の頁 875,887
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1080/00223131.2021.2016511	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 H. Ohgaki, K. Ali, T. Kii, H. Zen, M. Fujimoto, Y. Taira, T. Hayakawa, T. Shizuma	4. 巻 0
2. 論文標題 Generation of Flat-Laser Compton Scattering Gamma-ray Beam in UVSOR	5. 発行年 2022年
3. 雑誌名 IPAC2022 - Proceedings	6. 最初と最後の頁 TUPOPT030
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.18429/JACoW-IPAC2022-THPOMS046	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 A. Khaled, H. Zen, H. Ohgaki, T. Kii, T. Hayakawa, T. Shizuma, M. Katoh, Y. Taira, M. Fujimoto, H. Toyoka-wa	4. 巻 11, 24
2. 論文標題 Fusion Visualization Technique to Improve a Three-Dimensional Isotope-Selective CT Image Based on Nuclear Resonance Fluorescence with a Gamma-CT Image,	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 11866
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/app112411866	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -
1. 著者名 A. Khaled, H. Zen, H. Ohgaki, T. Kii, T. Hayakawa, T. Shizuma, H. Toyokawa, M. Fujimoto, Y. Taira, M. Katoh	4. 巻 11, 8
2. 論文標題 Three-Dimensional Nondestructive Isotope-Selective Tomographic Imaging of 208Pb Distribution via Nuclear Resonance Fluorescence	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Applied Sciences	6. 最初と最後の頁 3415
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.3390/app11083415	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Ohgaki Hideaki, Ali Khaled, Kii Toshiteru, Zen Heishun, Hayakawa Takehito, Shizuma Toshiyuki, Fujimoto Masaki, Taira Yoshitaka	4. 巻 26
2. 論文標題 Generation of flat-laser Compton scattering Gamma-ray beam	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Physical Review Accelerators and Beams	6. 最初と最後の頁 093402-1-6
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1103/PhysRevAccelBeams.26.093402	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 -

〔学会発表〕 計19件 (うち招待講演 2件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 H. Ohgaki, K. Ali, T. Kii, H. Zen, T. Hayakawa, T. Shizuma, Y. Taira
2. 発表標題 Generation and NRF application of flat-laser Compton scattering gamma-ray beam in UVSOR
3. 学会等名 14th International Particle Accelerator Conference, IPAC'23 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 谷崎進也, 大垣英明, 紀井俊輝, 全炳俊, 早川岳人, 静間俊行, 平義隆
2. 発表標題 UVSORにおけるF-LCSガンマ線ビーム発生に関する研究: 実験
3. 学会等名 日本原子力学会2023年秋の大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Tanizaki, H. Ohgaki, T. Kii, H. Zen, T. Hayakawa, T. Shizuma, Y. Taira
2. 発表標題 FLAT-LASER Compton Scattering GAMMA-RAY Beam for MULTI-ISOTOPE Imaging in UVSOR-
3. 学会等名 Nuclear Phonics2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 谷崎進也
2. 発表標題 UVSORにおける複数同位体イメージングに関する研究
3. 学会等名 第30回FELとHigh-Power Radiation研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hideaki Ohgaki, Heishun Zen, Toshiteru Kii, Takehito Hayakawa, Toshiyuki Shizuma, Yoshitaka Taira, Shinya Tanizaki
2. 発表標題 Experimental Study on Multi-Isotope Imaging in UVSOR BL1U LCS Beamline
3. 学会等名 日本原子力学会 2024年春の年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 H. Ohgaki, K. Ali, T. Kii, H. Zen, T. Hayakawa, T. Shizuma, Y. Taira
2. 発表標題 Generation and NRF application of flat-laser Compton scattering gamma-ray beam in UVSOR
3. 学会等名 14th International Particle Accelerator Conference, IPAC'23 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 谷崎進也, 大垣英明, 紀井俊輝, 全炳俊, 早川岳人, 静間俊行, 平義隆
2. 発表標題 UVSORにおけるF-LCSガンマ線ビーム発生に関する研究: 実験
3. 学会等名 日本原子力学会2023年秋の大会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 S. Tanizaki, H. Ohgaki, T. Kii, H. Zen, T. Hayakawa, T. Shizuma, Y. Taira
2. 発表標題 FLAT-LASER Compton Scattering GAMMA-RAY Beam for MULTI-ISOTOPE Imaging in UVSOR-
3. 学会等名 Nuclear Phonics2023 (国際学会)
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 谷崎進也
2. 発表標題 UVSORにおける複数同位体イメージングに関する研究
3. 学会等名 第30回FELとHigh-Power Radiation研究会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 Hideaki Ohgaki, Heishun Zen, Toshiteru Kii, Takehito Hayakawa, Toshiyuki Shizuma, Yoshitaka Taira, Shinya Tanizaki
2. 発表標題 Experimental Study on Multi-Isotope Imaging in UVSOR BL1U LCS Beamline
3. 学会等名 日本原子力学会 2024年春の年会
4. 発表年 2024年

1. 発表者名 大垣英明, 全炳俊, 紀井俊輝, 早川岳人, 静間俊行, 平義隆, 藤本将輝, アリ カレット
2. 発表標題 UVSORにおけるF-LCSガンマ線ビーム発生に関する研究: 実験
3. 学会等名 日本原子力学会2023年春の年会
4. 発表年 2023年

1. 発表者名 大垣英明, Khaled Ali, 紀井俊輝, 全炳俊, 早川岳人, 静間俊行, 藤本将輝, 平義孝
2. 発表標題 Generation of Flat-Laser Compton Scattering Gamma-Ray Beam in UVSOR: Simulation Study
3. 学会等名 日本原子力学会 2022年秋の大会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大垣英明
2. 発表標題 ガンマ線を用いた原子核物理実験とその応用
3. 学会等名 UVSOR-IIIにおける多様な量子ビームの発生と先端利用に関する研究会（招待講演）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 Hideaki OHGAKI
2. 発表標題 Flat Laser Compton Gamma-ray Beam Generation in UVSOR
3. 学会等名 15th Eco-Energy and Materials Science and Engineering Symposium（招待講演）（国際学会）
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 大垣英明, 全炳俊, 紀井俊輝, 早川岳人, 静間俊行, 平義隆, 藤本将輝, アリ カレット
2. 発表標題 UVSORにおけるF-LCSガンマ線ビーム発生に関する研究：実験
3. 学会等名 日本原子力学会2023年春の年会
4. 発表年 2023年

1 . 発表者名 H. Ohgaki, K. Ali, T. Kii, H. Zen, M. Fujimoto, Y. Taira, T. Hayakawa, T. Shizuma
2 . 発表標題 Generation of Flat-Laser Compton Scattering Gamma-ray Beam in UVSOR
3 . 学会等名 13th International Particle Accelerator Conference ( 国際学会 )
4 . 発表年 2022年

1 . 発表者名 K. Ali, H. Ohgaki, H. Zen, T. Kii, T. Hayakawa, T. Shi-zuma, H. Toyokawa, Y. Taira, M. Fujimoto, M. Katoh
2 . 発表標題 Proposal study for the fused visualization technique of 3D NRF-CT and a high-resolution gamma-CT image
3 . 学会等名 3rd International Conference on Nuclear Photonics (NP2020) ( 国際学会 )
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 K. Ali, H. Ohgaki, H. Zen, T. Kii, T. Hayakawa, T. Shi-zuma, H. Toyokawa, M. Katoh, M. Fujimoto, Y. Taira
2 . 発表標題 Fused CT imaging technique to improve 3D iso-tope-selective NRF-CT image
3 . 学会等名 日本原子力学会2021年秋の大会
4 . 発表年 2021年

1 . 発表者名 K. Ali
2 . 発表標題 Non-destructive Inspection for the hidden isotopes using Laser Compton scattering gamma rays
3 . 学会等名 2021 Ajou-Kyoto-Zhejiang Joint Symposium on Energy Science ( 国際学会 )
4 . 発表年 2021年

〔図書〕 計1件

1. 著者名 大垣英明	4. 発行年 2023年
2. 出版社 放射光：日本放射光学会誌	5. 総ページ数 193
3. 書名 UVSOR BL-1UIにおけるレーザコンプトンガンマ線を用いた非破壊同位体識別イメージング技術の基礎研究	

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	静岡 俊行 (Shizuma Toshiyuki) (50282299)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光子科学研究所 光子ビーム科学研究部・上席研究員  (82502)	
研究分担者	早川 岳人 (Hayakawa Takehito) (70343944)	国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・関西光子科学研究所 光子ビーム科学研究部・上席研究員  (82502)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	全 炳俊 (Zen Heishun)	京都大学・エネルギー理工学研究所・准教授  (14301)	
研究協力者	平 義孝 (Taira Yoshitaka)	分子科学研究所・准教授	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------