

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 4 月 27 日現在

機関番号：12601

研究種目：基盤研究(A) (一般)

研究期間：2013～2015

課題番号：25249137

研究課題名(和文) 廃炉設置小型ライナック中性子源による核データ分析研究

研究課題名(英文) Nuclear Data Study by Compact Electron Linac Neutron Source at the Decommissioning Research Reactor Site

研究代表者

上坂 充 (Uesaka, Mitsuru)

東京大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：30232739

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,500,000円

研究成果の概要(和文)：東大弥生炉廃炉後に小型Xバンド電子ライナック中性子源を設置し、線ノイズ弁別型中性子検出器を活用した核データ測定・利用研究を推進するシステムを検討した。Xバンド(11.424GHz)30MeV電子ライナック中性子源を設計し6.6nsの短パルス、高い中性子強度 $1.3E+11$  n/sとなった。可搬型Xバンド(9.3GHz) 3.95MeVおよび6 MeV電子ライナック中性子源の設計ではパルス幅4us、強度 $1.8E+10$ および $4.15E+10$  n/sとなった。また中性子シンチレータCe:LiCAFと波長シフタによる線ノイズ弁別型検出器を開発し、京大中性子源で全断面積測定を行い高感度測定を実証した。

研究成果の概要(英文)：In order to promote the research of nuclear reaction data and its use, we developed a system composed of accelerator neutron sources and a gamma-ray noise discriminating neutron detector. To measure the data of many kinds of nuclear fuel materials, we considered to place a small size X-band electron linac based neutron source inside Yayoi reactor, which is now under decommission in Tokai campus of the University of Tokyo. We designed the 30 MeV X-band linac neutron source and estimated its pulse width as 6.6 ns and its power as  $1.3 E+11$  n/s. We also designed portable neutron sources based on the X-band 3.95 MeV and 6 MeV linac sources. The pulse width was 4 us for both and the powers were  $1.8 E+10$  and  $4.15 E+10$  n/s, respectively. We also developed a detector which discriminate neutron from gamma noise. The detector was composed of Ce:LiCAF scintillator with wavelength shifter coating. We successfully demonstrated the measurement of the total cross sections of Neptunium and Uranium.

研究分野：量子ビーム工学

キーワード：小型電子ライナック中性子源 Xバンド電子ライナック 中性子発生用Beターゲット 線識別中性子シンチレータ Ce:LiCAF 核データ 福島溶融燃料デブリ 核医学用放射性同位元素

## 1. 研究開始当初の背景

東京大学高速中性子源炉“ 弥生 ”はその 40 年の役割を完了し、現在監督官庁の承認を得て、廃炉措置を実施中である。弥生の長年の役目を完了させ、30 MeV X バンド電子ライナック中性子源を燃料搬出後の弥生炉本体中に挿入して、その施設をほぼ 100% 利用して、福島や他の商用原子炉の廃炉のための研究を立ち上げることは、原子力理工学の復旧・復興の象徴と言える。このような試みは世界で初めてである。電子ライナック中性子源は北海道大学、京都大学原子炉実験所にて、長年の活動の経験がある。北大では核燃料・核物質は取り扱わず、京大では微量の Pu 試料しか取り扱うことはできない。今回は、それを補うべき、北大・京大の経験を活かして、東大核燃料取り扱い施設で研究を行うことが重要な要素である。

## 2. 研究の目的

本研究の目的は、

- 1) 廃炉施設に小型加速器中性子源を挿入して、U, Pu を中心とした核燃料核データの高精度取得分析研究を実施すること
- 2) モバイル加速器中性子源の実証を弥生施設を活用して実施すること、の 2 つである。核燃料・核物質の試料作製・取り扱いには日本原子力研究機構 (JAEA) の知見や関連技術に他大学の協力を得る。

## 3. 研究の方法

東大原子力専攻所有の X バンド (11.424 GHz) 30 MeV 電子ライナック (文部科学省先進小型加速器要素技術開発プログラムで開発したコンプトン散乱 X 線源) に W 製中性子発生ターゲットを取り付け、廃炉の弥生の炉心内部に移設し、中性子源として利用する。電子パルスとして、電荷量 2 nC、マイクロパルス幅 3 ps、マクロパルス幅 1-200 ns、中性子強度は最大で  $10^{12}$  n/sec となる。またさらに小型システムの可能性として 3.95/6MeV X バンド (9.3GHz) 電子ライナック中性子源も検討する。電子ライナック型中性子源の特徴である短パルス中性子を利用して、核燃料・核物質の試料を作成し、TOF (Time Of Flight) 技術で、Pu, U, Cm, Am などの核データを高精度で取得する。必ずしも大きくない中性子強度を補うため、高収率大面積固体中性子シンチレータを開発する。東電福島第 1 発電所および商用炉の廃炉に不可欠な核物質濃度非破壊分析技術の高精度化を図る。小型システム源システムの強度でも 5m の TOF で高精度核物質分析を可能にする、Self Indication 法との組み合わせも検討する。また核データの将来の加速器駆

動炉への利用や、高出力化による核医学用 RI 製作の展開も検討する。

## 4. 研究成果

### 4-1. X バンド (11.424GHz) 30 MeV 電子ライナック中性子源の設計および、TOF 測定システムにおける核データ測定精度計算

弥生炉内に設置することを目的として、X バンド (11.424 GHz) 30 MeV 電子ライナック中性子源の設計を行った。この X バンド電子ライナックは一般的な S バンド電子ライナックと比較すると加速周波数が 4 倍であるため、装置全体を 1/4 程度にコンパクト化することができる。これによって弥生炉内にシステム全体を導入することが可能となる。

一方で、加速器のビーム出力が逆に 1/2 程度に下がってしまうため、実験時間が長くなるというデメリットがある。これについては、中性子束が距離の 2 乗に比例して減衰することから、TOF のラインを短くすることで高い中性子束を保つことにした。

このような中性子源を実現するために、本設計では X バンド電子ライナック中性子源について以下の項目を検討した。

#### 入射系の検討

入射型では安定した出力が得られる DC 熱電子銃 (20 kV) を採用した。

#### バンチャー加速管の設計

電子銃から得られる 20 keV の電子ビームを 5 MeV まで加速するプリバンチャーの設計を行った。加速管には進行波の  $2/3\pi$  モードのものを採用した。

#### ターゲットの設計

X バンドではビーム出力が低いというデメリットを解消するために、劣化ウランを用いた高効率な中性子発生ターゲットの検討を行った。モンテカルロ・シミュレーションコードである PHITS コードの計算によって、劣化ウランを用いることで一般的な電子ライナックのターゲット金属に比べて 2 倍高い中性子束が期待できることが明らかになった。しかしながら今回は Fission Product の取扱いを考慮し、ターゲット素材としてはタングステンを使用することに留めている。

#### 短パルス化のための減速材設計

電子ビームとターゲット素材の光核反応によって中性子が発生するが、中性子が減速材を通過して出てくる間にパルス幅は大きく広がってしまう。そこで短パルス化のために小型減速材を検討し PHITS コードの計算によって、軽水が減速材として最適であると判断した。

#### ターゲットの遮蔽計算

中性子の遮蔽にはホウ素入りポリエチレンからなる遮蔽材を設計した。また制動放射 X 線の遮蔽には鉛を使用した。

以上の設計によって、X バンド (11.424 GHz)

電子ライナック中性子源は、0.375 kW, パルス幅 6.6 ns、最大で  $1.3 \times 10^{11}$  n/s という性能を得られることが期待できる。

図 1 は X バンド (11.424 GHz) 電子ライナック中性子源の全体設計像である。また表 1 はそれによって得られる中性子ビームのパラメータである。

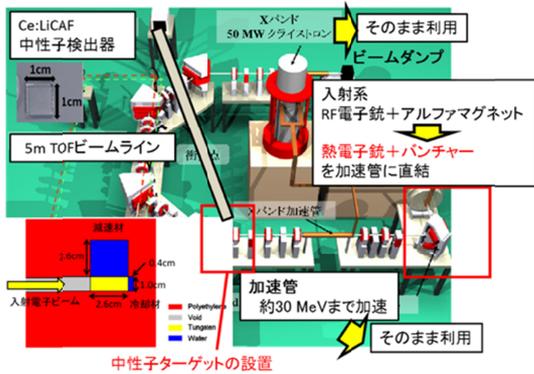


図 1. 30 MeV X バンド (11.424 GHz) 電子ライナック中性子源の全体設計像

電子ビームエネルギー	30 MeV
ピーク電流値	250 mA
パルス幅 (最大)	1 $\mu$ sec
繰り返し	50 pps
ビーム出力 (最大)	0.375 kW
ターゲット強度 (最大)	$1.3 \times 10^{11}$ n/s
中性子束 (5mTOF)	$1.1 \times 10^3$ n/cm <sup>2</sup> /s
パルス幅 (10-100keV)	6.6 ns

表 1. 出力の設計値

またこの中性子源によって、高い時間分解能を持つ Ce:LiCAF 検出器と組み合わせた場合の TOF によるエネルギー分解能の見積もりを行ったところ、<sup>241</sup>Am の核種について、その 67.4-24.8 keV における中性子反応断面積を誤差 4.9%で測定できる見込みとなり、現在の 8.0%を改善することが期待できることとなった。

しかしながら、この X バンド (11.424 GHz) 電子ライナック中性子源は加速管・ターゲットを小型にすることができたものの、50 MW クライストロンと電源系が大型である。そこで、可搬型を見据えて、X バンド (9.3 GHz) 3.95 MeV/6 MeV 電子ライナック中性子源の設計も行った。

#### 4-2. X バンド (9.3 GHz) 3.95 MeV/6 MeV 電子ライナック中性子源の設計

可搬型の加速器中性子源に関して、前述の電子ライナックよりも加速エネルギーが低いコンパクトな電子ライナック X 線源を用いてこれを実現することを目指し、まずターゲット材の設計を行った。

ここでは、ターゲット材の中で光核反応による中性子発生閾値が最も小さい Be をターゲットとし電子ライナック X 線源と組み合わ

せることを考案した。電子ライナックとしては、X バンド (9.3 GHz) で 3.95 MeV あるいは 6 MeV のものを用いることを想定した。

まず 3.95 MeV 電子ライナック X 線源中性子源に関しての設計を行った。ターゲット材である Be の最適な厚さを PHITS を用いて計算したところ、約 5 cm の厚さで中性子束がプラトーに達することがわかった。また中性子強度は  $1.82 \times 10^{10}$  n/s であった (図 2)。また、この計算結果に基づき、実際に可搬型の加速器中性子源を製作した (図 3)。

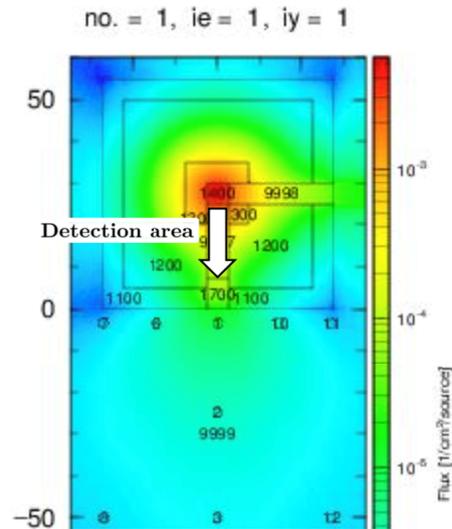
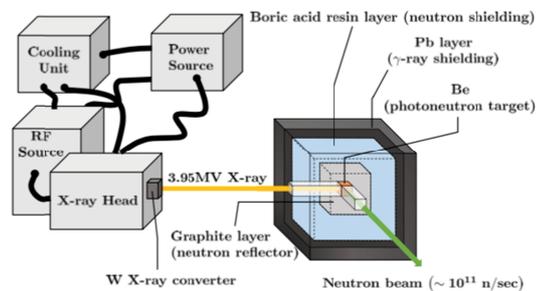


図 2. 中性子束の計算結果

この中性子源を用いて、コンクリート中の水を検出する実験を行った。中性子が水によって後方へ散乱されたものを、<sup>3</sup>He 中性子検出器を用いてその数をカウントする。水の有無によって検出器での計数の差に有意な違いが認められるかを確認したところ、3 $\sigma$  の有意度で水分の存在を検出することができた。以上の実験より、X バンド (9.3 GHz) 3.95 MeV 電子ライナックとベリリウムターゲットを組み合わせた小型可搬型中性子源の開発に成功した。



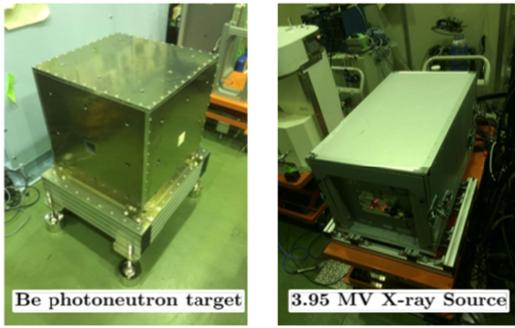


図 3. 3.95 MeV X バンド電子ライナックによる小型可搬型中性子源

また、本研究課題の主目的である核データ測定においては、中性子束の向上による実験時間の短縮化が必要である。そこで X バンド (9.3 GHz) 6 MeV 電子ライナック X 線源とベリリウムターゲットを組み合わせた小型可搬型中性子源の検討も行った。

6 MeV 電子ライナック X 線源に対しては、PHITS を用いた解析によって 6 cm 厚の Be ターゲットが最大の中性子束をもたらすことが分かった。3.95 MeV では  $1.82 \times 10^{10}$  n/s に対して 6 MeV では計算で現在  $4.15 \times 10^{10}$  n/s が得られると試算されている。また、3.95 MeV 電子ライナック X 線源については、橋梁検査に関して法令による屋外使用の規制もクリアし、橋梁検査の現場での使用実績もあり、それは将来的な小型可搬型中性子源としての実用化への足がかりとなると考えられる。表 2 に 3.95 MeV / 6 MeV 電子ライナック中性子源の設計値を表示する。

電子エネルギー	3.95 MeV	6 MeV
ビーム出力	0.4 kW	0.6 kW
中性子強度	$1.82 \times 10^{10}$ n/s	$4.15 \times 10^{10}$ n/s
パルス幅	4 $\mu$ s	4 $\mu$ s

表 2. 3.95 / 6 MeV X バンド電子ライナック中性子源設計値

#### 4-3. $\gamma$ 線ノイズ識別型中性子シンチレータ Ce:LiCAF を用いた中性子検出システムの開発および、核データの測定

加速器中性子源では 線フラッシュによるノイズが問題となる。この 線ノイズによって核データ測定の精度が損なわれる。そのため中性子検出器には 線フラッシュによるノイズと中性子の信号を識別することのできる検出器が必要である。また、 線フラッシュが生じると検出器に不感時間が生じ、それによって測定できる中性子のエネルギーが制限されてしまう。

そこで本研究課題では、Ce:LiCAF シンチレータを用いた中性子検出器を開発し、さら

に高感度化のために波長シフト 2 層コーティング型のものを開発した。Ce:LiCAF シンチレータは Li が中性子に対する反応断面積が高く、中性子を検出することができる。その半面 Li は低元素であり密度が小さく、 線に対する感度が低いため、容易に中性子信号と 線ノイズを識別することができる。また Ce:LiCAF シンチレータは時間分解能に優れており、そのため TOF 測定において優れたエネルギー分解能を持つと考えられる。

本検出器を用いて、京都大学の電子ライナック中性子源を用いて核データの測定を行った。まず、図 4 が中性子と 線のカウント数を示したものである。前述したように本検出器は 線ノイズの影響が小さいため、中性子信号と十分に分離し中性子のみを高感度に測定できるということが実証できた。

また、TOF によって  $^{237}\text{Np}$ 、天然ウランの核データの測定を行った。試料サイズが小さく、試料を通過せずに直接検出器に入射した中性子が存在したと考えられ、また統計数が不足していたため、現状の核データの精度を越える測定結果は得られなかったものの、ネプツニウム 237 の共鳴領域における全断面積の測定を行うことができ (図 5) また天然ウランに関しては 100 eV の中性子の 2 本の共鳴ピークを明確に弁別し、エネルギー分解能にして約 3% と優れた値をもつことが分かった (図 5)。

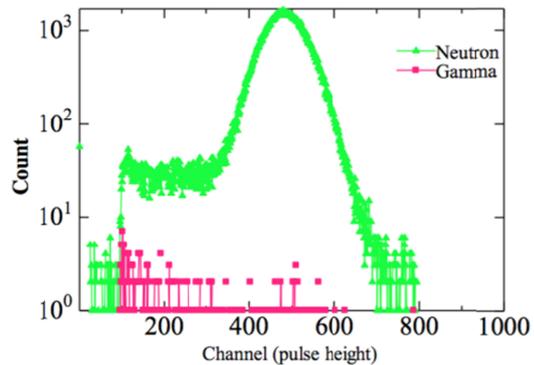


図 4. 中性子信号と 線ノイズの波高弁別

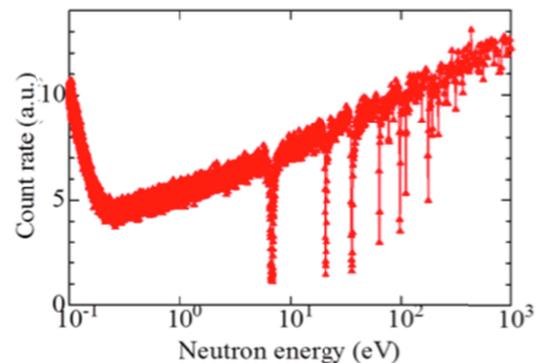


図 5. 天然ウランの透過中性子計数

#### 4-4. 核データ活用核物質濃度推定実験

京大炉電子ライナック施設においては、核データ活用核物質濃度推定実験を実施するための TOF ビームラインの整備を行い、中性子飛行距離 5m での測定を可能にした。中性子源には水冷式 Ta ターゲットから成る光中性子源を用い、ターゲット周りに軽水モデレータを配置することによって熱～熱外中性子領域の白色中性子スペクトルを生成した。

新設した TOF ビームラインにおいて、BF<sub>3</sub> 比例計数管を用いた透過中性子の TOF 測定試験を実施した。透過中性子 TOF スペクトルの一例を図 6 に示す。天然ウラン中の <sup>238</sup>U の主要な共鳴による dip を観測することができた。

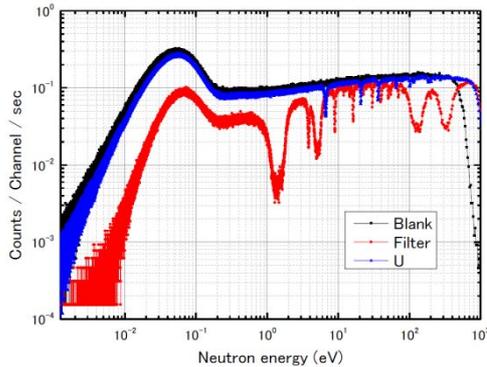


図 6. 天然ウランの透過中性子 TOF スペクトルの一例 (Blank: 試料なし、Filter: 共鳴フィルター (Co, Mn, Ag, In) を置いた場合の TOF スペクトルも併せて表示)

更に、被検体中の微量な核分裂性核種を高感度に検出する方法として、self-indication法の適用を検討した。Self-indication法とは、測定対象とする核種から成る indicator を被検体より下流側に配置し、被検体を透過した中性子を indicator に照射し、反応生成物を測定することにより、透過中性子スペクトルを間接的に測定する手法である。本手法では測定対象核種の共鳴に対してのみ高い検出効率を持つため、他の不純物核種の影響を受けにくく、被検体からの放射能の影響を受けることが無いのが特徴である。検討はモンテカルロ・シュミレーション粒子輸送計算コード MCNP-5 を用いて行った。計算では <sup>239</sup>Pu を indicator とした場合の透過中性子の TOF スペクトルを概算した(図 7)。計算結果から、<sup>239</sup>Pu の試料については実効厚さ 10<sup>-4</sup> ~ 10<sup>-2</sup>(b) の範囲で有意な計数率の変化が観測されることが分かった。

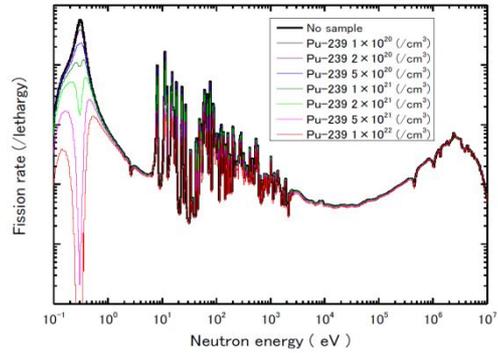


図 7. <sup>239</sup>Pu 含有量に対する TOF の変化

#### 4-5. 核データ分析と応用の調査

本研究課題では、国際的な核データのデータベースである EXFOR の検索によって、過去 5 年間の中性子実験の状況と調査し、核種ごとに実験者・実験条件別に比較を行った。以下に一例として <sup>241</sup>Am の核データを示す(図 8, 9)。これらのデータは、今後の核データ測定のパベンチマークとして重要なデータとなる。

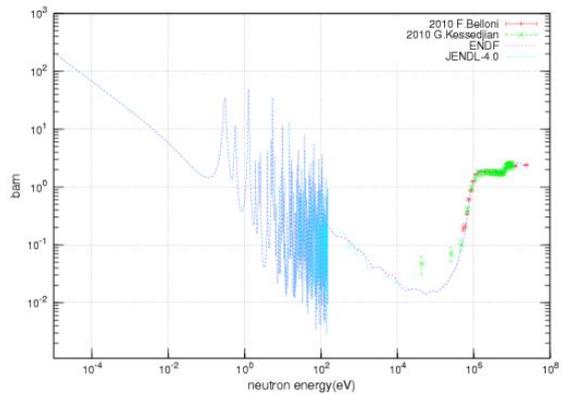


図 8. <sup>241</sup>Am 核分裂反応の実験データと評価値

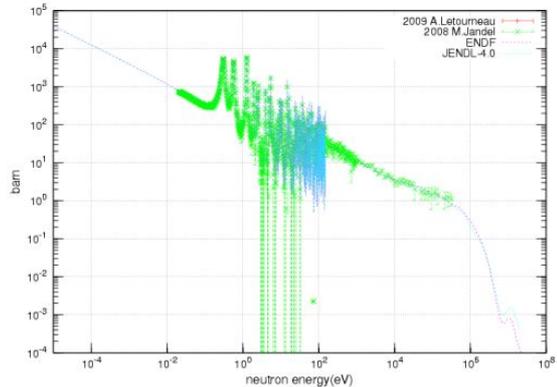


図 9. <sup>241</sup>Am(n, )反応の実験データと評価値

#### 4-6. 結論

以上より、本研究課題では 30 MeV X バンド(11.424 GHz)、3.95 / 6 MeV X バンド(9.3 GHz)の3種類のXバンド電子ライナック中性子源を設計し、基礎試験を行った。中性子強度・短パルス性・サイズ・コスト・操作性等を総合的に判断して、3.95 MeV 電子ライナック中性子源が最適と判断した。また、線弁別可能な中性子検出器を開発し、核データ測定を実証した。今後は、東大東海キャンパスで、3.95 MeV 電子ライナック中性子源を整備し、核データ研究、Self Indication 法(5mTOF)による高精度核物質分析、福島溶融燃料デブリ分析、核物質検出の基礎研究を展開する。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 4 件)

Mitsuru Uesaka and Hitoshi Kobayashi, Compact Neutron Sources for Energy and Security, Accelerator applications in Energy and Security, Volume 8, Reviews of Accelerator Science and Technology" (RAST), World Scientific, pp. 181–207, 2015, 査読有  
DOI: 10.1142/S1793626815300108

Mitsuru Uesaka, Katsuhiro Dobashi, Takeshi Fujiwara, Cuixiang Pei, Wenjing Wu, Joichi Kusano, Naoki Nakamura, Masashi Yamamoto, Eiji Tanabe, Seiji Ohya, Yukiya Hattori, Itaru Miura, Hidetaka Honma, "On-site nondestructive inspection by upgraded portable 950keV/3.95MeV X-band linac x-ray sources", Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics, 47, 2014, 査読有  
DOI:10.1088/0953-4075/47/23/234008

M.Uesaka, K.Tagi, D.Matsuyama, T.Fujiwara, K.Dobashi, M.Yamamoto, H.Harada, Compact Short-Pulsed Electron Linac Based Neutron Sources for Precise Nuclear Material Analysis, Proceedings of the International Symposium, Nuclear Physics and Gamma-Ray Sources for Nuclear Security and Nonproliferation, Ricotti,Tokai-mura,Japan, 28-30 January 2014, World Scientific, pp. 67-76, 査読有

DOI: 10.1142/9789814635455\_0009

[学会発表](計 36 件)

M. Uesaka, Mobile X-band Electron Linac Neutron Sources for Fukushima(1F) Accident Analysis, International Workshop on Breakdown Science and High Gradient Technology (HG2015), 2015年6月16日~2015年6月19日, 上海(中国)

M. Uesaka, Compact short-pulsed X-band linac based neutron source, CLIC (Compact Linear Collider) Workshop, ジュネーブ(スイス)

M. Uesaka, Compact Short-Pulsed Electron Linac Based Neutron Sources for Precise Nuclear Material Analysis, International Workshop on Nuclear Physics and Gamma-ray sources for Nuclear Security and Nonproliferation (NPNSNP), リコッティ(茨城県那珂郡)

#### 6. 研究組織

##### (1)研究代表者

上坂 充 (UESAKA, Mitsuru)  
東京大学・工学(系)研究科(研究院)・教授  
研究者番号: 30232739

##### (2)研究分担者

井頭 政之 (IGASHIRA, Masayuki)  
東京工業大学・原子炉工学研究所・教授  
研究者番号: 10114852

堀 順一 (HORI, Junichi)  
京都大学・原子炉実験所・助教  
研究者番号: 30362411

古坂 道弘 (FURUSAKA, Michihiro)  
北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・教授  
研究者番号: 60156966

藤原 健 (FUJIWARA, Takeshi)  
国立研究開発法人産業技術総合研究所・その他部局等・研究員  
研究者番号: 90552175