

# 日本原子力学会「2018 秋の大会」

合同セッション 核データ部会、加速器・ビーム科学部会 「「シグマ」特別専門委員会共催〕

「小型加速器中性子源と核データのニーズ」

2018年9月6日13:00~14:30 岡山大学 津島キャンパス

東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所 片渕 竜也 <u>buchi@lane.iir.titech.ac.jp</u> 林崎 規託 hayashizaki.n.aa@m.titech.ac.jp

# 1. はじめに

日本原子力学会「2018年秋の大会」において、「小型加速器中性子源と核データのニーズ」と題し、核データ部会、加速器・ビーム科学部会合同、「シグマ」特別専門委員会共催で企画セッションを開催した。本企画セッションは以下に述べる観点から、核データ部会と加速器・ビーム科学部会が合同で開催するに至った。

現在、J-PARCに代表される大型中性子源施設での中性子利用が活発に展開される一方で小型加速器中性子源の需要も同時に高まっている。大型施設は、世界トップクラスの高強度、高品質な中性子ビームを用いることでチャンピオンデータの計測が可能な一方、施設が大規模で柔軟性に欠け、ビームタイムの占有時間にも限りがある。さらに中性子ビームの使用用途によっては大型施設の利用がそもそもできない場合もある。特に産業利用においては、経済性が重視され、コンパクトで小回りの利く利便性・可搬性や常時占有する必要性などから小型加速器中性子源がより適している場合も多い。したがって、現在、様々な分野で小型加速器中性子源を用いた中性子利用研究が進められている。

このような状況の中、小型加速器中性子源を開発・利用する上で、必要とされる加速

器や核データに対する新たなニーズが生じている。応用用途に応じて必要とされる中性子ビームの性質、具体的には中性子エネルギー、中性子強度、中性子ビームの時間構造などが異なるため、それらの要求を満たす加速器の開発が必要になる。また、核データに対しては、中性子を発生させるための核反応断面積や散乱角度分布、発生中性子を利用する際には中性子反応断面積や放出粒子スペクトルが必要となる。

そこで、本企画セッションでは、非破壊分析、核燃料物質分析、医療応用といった3つの異なる分野からトピックスを選び、各分野で活躍する専門家に小型加速器中性子源の利用の現状を報告してもらった。講演を通して、小型加速器中性子源の利用で生じる加速器や核データに対する新たなニーズを把握し、今後の加速器開発研究や核データ研究につなげることを目的とした。

講演は、非破壊分析分野から理化学研究所の若林泰生氏に、核燃料物質分析分野から 日本原子力研究開発機構の藤暢輔氏に、医療分野から日立製作所の田所孝広氏に講演を 依頼した。以下、各講演の内容について報告する。

#### 2. 理研小型中性子源システム RANS を用いた非破壊分析研究 (理研 若林泰生)

理化学研究所の若林泰生氏の講演では、「小型中性子源のための p-Be 中性子スペクトル関数及び応用利用から核データに対するニーズ例」と題し、理研の小型中性子源 RANS (RIKEN Accelerator-driven compact Neutron Source) [1]を用いた非破壊分析技術開発に関連した研究が紹介された。RANS は、ライナックからの 7 MeV 陽子パルスを Be 標的に入射し、 ${}^9{\rm Be}({\rm p,n}){}^9{\rm B}$  反応によりパルス中性子を発生させる。RANS では減速されない連続高速中性子成分と、モデレーターで熱領域まで減速した熱中性子成分が混在した中性子ビームを用いる。

講演では、まず  $^9$ Be(p,n) $^9$ B 反応の核データは中性子源開発に必須でありながら、現状の  $^9$ Be(p,n) $^9$ B 反応の中性子スペクトル評価データは低エネルギー陽子領域で不十分、あるいは適切に計算コードに組み込まれていないため、中性子輸送計算では大きな不確定性が生じることが指摘された。そこで、RANS の中性子スペクトル評価の精度向上のために理研グループ独自の p-Be 中性子発生関数の作成が行われた。独自関数の作成は、EXFORライブラリーから収集した、入射陽子エネルギー20 MeV 以下の薄い Be 標的測定データ(全断面積、角度分布、エネルギースペクトル)に基づいて行われた。実験データに対し入射陽子エネルギー( $E_p$ )の関数としてフィッティングを行うことで、12 MeV 以下の  $E_p$ について発生中性子を再現する独自関数を完成させた。独自関数の妥当性確認のために厚い標的実験データ( $E_p=4$  MeV, 12 MeV)および従来コードを用いた結果、並びに、RANSでの  $E_p$ Cの  $E_p$ 

次に小型中性子源を用いた非破壊分析技術の開発について紹介した。RANS を用いた非破壊分析技術開発は多岐に渡っており、中性子回折やイメージング実験技術を適用した鉄鋼集合組織の研究、鉄鋼材料錆の状態可視化などの研究、コンクリート構造物の内部状態の直接および反射イメージング、非破壊元素分布分析の開発が行われている。その中から特にコンクリート中の塩分濃度分布の測定手法開発が紹介された。この手法は中性子をコンクリートに照射することで、中性子誘起反応(捕獲反応、非弾性散乱等)によって放出されるガンマ線を計測し、目的とする元素の濃度を計測する。中性子・ガンマ線ともに物質中の透過性が高いことを利用した応用である。実際に RANS を用いたテスト実験の結果が示された。この分析技術は将来的には橋などのコンクリート構造物を現場で測定することを目指している。分析の観点から様々な物質の核データが必要不可欠であることが述べられた。

#### 3. 核燃料物質の非破壊測定技術開発(原子力機構 藤暢輔)

日本原子力研究開発機構の藤暢輔氏の講演では、「アクティブ中性子非破壊測定装置開発における中性子源と核データのニーズ」と題し、核燃料物質の非破壊測定技術の開発についての紹介がなされた。この研究は、文部科学省核セキュリティ補助金事業「アクティブ中性子非破壊測定技術の開発」の一環であり、原子力機構と欧州委員会 - 共同研究センター(EC-JRC)との共同研究として進められているものである。この共同研究ではこれまでの非破壊測定技術を適用できない高線量核燃料物質のための非破壊測定技術開発を実施している[3]。

講演では、まず小型中性子源を用いた 4 つのアクティブ中性子法、すなわちダイアウェイ時間差分析法 (DDA)、中性子共鳴透過分析法 (NRTA)、即発ガンマ線分析法 (PGA)、遅発ガンマ線分析法 (DGA)の原理・特徴に関する説明がなされた。これらの手法を組み合わせ、それぞれの特長を生かすことによって高線量核燃料物質に対応できる非破壊測定法の確立を目指している。開発は 2 つのフェーズに分けられており、 $2015\sim2017$  年度までが低線量核燃料物質を対象にしたフェーズ I、2018 年からは高線量核燃料物質を対象にしたフェーズ I

フェーズ II では、4 つのアクティブ中性子法の高度化を行うとともに、原子力機構燃料サイクル安全工学研究施設において、3 つの分析手法(DDA,PGA,NRTA)を組み合わせた総合非破壊測定装置を開発する。3 つの分析手法は中性子を用いるという点では共通しているが、DDA はパルス化された高速中性子、PGA は連続の熱中性子、NRTA はパルス化された白色中性子と、通常はそれぞれ異なる性質の中性子を用いている。

加速器に対するニーズとして、アクティブ中性子法による非破壊分析で必要とされる 小型中性子源のニーズが提示された。4つの手法それぞれに要求される小型中性子源の性 能(中性子強度、パルス幅、繰り返し、エネルギー、安定性、メンテナンス性)の比較 が示された。また、さらに将来ニーズとして、イメージングのための中性子飛来方向の特定や広範な核セキュリティに対応するための可搬性についても言及された。現在開発中の総合非破壊測定装置は中性子源として DT 中性子源を採用している。しかし、装置性能をさらに向上させるためには、 $10^9$  neutrons/s 以上の中性子強度、1  $\mu$ s 以下のパルス幅を持つ小型中性子源の開発が望まれる。

アクティブ中性子法における核データのニーズについても触れられた。アクティブ中性子法の研究開発においては PHITS 等を用いたシミュレーションによる検討が不可欠である。しかし、一部の計算値において実験値との乖離が大きくなることが分かっている。例えば、DDA では問いかけ中性子として高速中性子を用い、試料自身やモデレーターで高速中性子を減速させて熱化し、核物質に核分裂反応を起こさせる。単純な体系においても DDA 実験の結果と計算が食い違うことが報告された。この乖離の主な原因は、シミュレーションに用いる熱中性子散乱則 S(α,β)にあると考えられている。また、NRTA では、実験で得られる中性子透過スペクトルに対し、共鳴パラメータから得られるデータを用いてフィッティングすることで分析値を得るが、一部の核種で、その共鳴パラメータに起因すると思われる測定精度の悪化が見られる。今後の中性子を用いた非破壊分析法開発や、その高精度化のための研究開発等においては、それらの核データの誤差の低減が強く望まれる。

### 4. 医療応用を中心とした小型加速器の産業応用(日立製作所 田所孝広)

日立製作所の田所孝広氏からは、「医療応用を中心とした小型加速器の産業応用と核データ」と題し、医療分野における小型中性子源の利用についての講演がなされた。さらに医療分野以外での小型中性子源を用いた応用についても触れられた。

医療応用として特に医療用放射性核種の製造についての現状と日立製作所が進めている小型加速器を用いた <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc の製造の報告がなされた。診断用核種として広く使用されている <sup>99m</sup>Tc は、親核の <sup>99</sup>Mo からの分離精製により製造されている。現在、<sup>99</sup>Mo の 9 割以上は、世界に 6 カ所ある研究用原子炉で製造されており、日本は、その 100%を輸入に依存している。また、海外研究炉のうち 3 カ所が建設から 50 年以上、2 カ所が 40 年以上経っており、近年、老朽化が問題となっている。このような状況から、複数の研究グループが各種小型加速器を用いた <sup>99</sup>Mo の製造システムを検討している。日立製作所では、京都大学と協力して、小型で低製造コストが期待される電子線形加速器を用いた <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc の製造システムについて研究を行っている。

日立製作所が進める <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc 製造システムはガンマ線と原子核の反応である光核反応を用いる。一般に光核反応は、比較的低エネルギーの光子において、巨大共鳴領域と呼ばれる反応断面積が大きい領域があり、核種製造反応として利用可能である。電子線形加速器を利用した <sup>99</sup>Mo の製造には、電子が重い元素に衝突した際に生成する制動放射

線と $^{100}$ Mo との反応である $^{100}$ Mo( $\gamma$ ,n) $^{99}$ Mo を用いる。京都大学の電子線形加速器を用いて製造基礎試験を行った。基礎試験の結果、目的とする $^{99}$ Mo と $^{99m}$ Tc 以外に不純物が製造されない非常にクリーンな製造方法であることが示された。検討の結果、加速エネルギー35 MeV、加速電流値 1 mA のシステムにおいて、1340 GBq の $^{99}$ Mo を製造でき、3 システムで国内需要を賄うことが可能であることが示された。また、照射試料である $^{100}$ Mo の部分を他の元素に交換することで、他の医療用核種の製造が可能となる。これまでに診断と治療を同時に可能な $^{67}$ Cu や PET 診断用核種であるゲルマニウム $^{68}$ Ge/ $^{68}$ Ga 等の医療用核種に関して、実験とシミュレーションを合わせた製造量評価を進めている[4]。

小型加速器中性子源を用いた医療応用としてホウ素中性子捕捉療法(BNCT)についても述べられた。BNCT は、悪性腫瘍に選択的に集積したホウ素化合物に中性子を照射し、 $^{10}$ B( $\mathbf{n},\alpha$ ) $^{7}$ Li 反応で生成するアルファ線とリチウムによって細胞レベルで悪性腫瘍を死滅させる治療法である。従来は原子炉中性子源が必要であったため普及が容易ではなかったが、病院に設置可能なサイクロトロンを利用した装置が開発されており、近年、治療適用の広がりを見せている。現在、BNCT においては、患者が BNCT を適用できるかどうかを判定するために、ホウ素薬剤に陽電子放出核種である  $^{18}$ Fを付加した薬剤を用いて、PET 診断によりホウ素薬剤濃度の患部への集積特性を事前に評価している。そこで、日立製作所では、PET 用放射性核種製造と BNCT 用中性子発生との共用が可能なシステムを検討した。加速器としては、PET 用薬剤製造に適した比較的低エネルギーである  $^{11}$  MeVの陽子線形加速器を検討に採用した[5]。BNCT のための中性子は  $^{9}$ Be( $\mathbf{p},\mathbf{n}$ ) $^{9}$ B 反応により発生させる。検討の結果、 $^{3}$  mA の加速電流値において、原子炉中性子源と同等の治療が可能であることが分かった。

最後に医療応用以外の小型中性子源の産業利用について述べられた。特に日立製作所で検討している中性子発生管を用いた中性子水分計及び危険物検知装置について述べられた。中性子発生管は、トリチウムと重陽子、または、重陽子と重陽子との核融合反応によって中性子を発生させる装置である。海外では、主に油田探査用として使用されている。小型で安価であることから、様々な産業応用が考えられ、日立製作所では、これまで化学プラントの外面腐食検査用水分計や、危険物検知装置への適用を検討してきた。化学プラントの塔(反応塔、蒸留塔、抽出塔等)及び配管類は保温材で断熱されている。屋外設備のため、一部隙間からの雨水侵入等により保温材下の配管材外表面の腐食が進行する。そのため、直接外部から錆の状態を調べるための点検と補修作業を計画的に実施し、設備の安全確保に努めなければならない。しかし、カバー及び保温材の撤去作業に手間がかかり検査補修費用が大きく、また検査補修時間も長くなってしまうことから、プラント稼働状態での非破壊診断技術の開発が望まれている。腐食は水分が無いところでは起こっていないことから、プラント稼働状態でこれらの水分を非破壊で検知できれば、点検補修に関する費用を大幅に低減できる。しかし、プラント稼働中は、塔及び配

管内容物からのバックグラウンドが大きいという課題があった。その解決法の一つとして、日立パワーソリューションズと協力して、パルス中性子発生管の適用を検討してきた。パルス中性子発生時刻を基準とする後方散乱中性子の時刻分布を測定することで、S/N 比を向上することができ、水分検知性能を向上させることが可能である[6]。

爆発物、薬物等の危険物は、荷物などに隠ぺいされて運搬されることが多いことから、その検知のための各種手法が開発されている。荷物を開けずに検査する手法として、空港及び税関等に導入されている X 線透過及び CT 装置が代表的なものである。中性子は、透過能力が高く、また元素分析が可能という性質をもっていることから、熱中性子放射化法、高速中性子放射化法等の様々な検知法が研究開発されている。日立製作所では、元素の種類と位置を同定可能な随伴粒子イメージング(API)法を適用した爆発物の検知装置を開発してきた。API 法では、2H(d,n)4He 反応において発生するアルファ粒子と高速中性子が 180 度逆方向に放出されることを利用し、中性子の飛来方向を特定する手法である。中性子と分析対象元素との反応で発生した即発ガンマ線を中性子源で発生したアルファ線と同時計測することで中性子の飛来方向を特定する。試作装置を用いて性能評価をした結果、爆発物検知に必要な炭素、酸素及び窒素計測の S/N 比が、ガンマ線のみの計測と比較して 40 倍以上になることを確認した。

#### 5. おわりに

以上、今回の合同企画セッションでは 3 つの異なる分野における小型加速器中性子源を用いた応用を概観し、加速器および核データに関するニーズを掴むことができた。当日は、60 人程度の聴衆を迎え、質疑で活発な議論を行うことができた。また、核データ部会と加速器・ビーム科学部会の研究者間で連携研究を進める上で有意義なものとなった。

## 参考文献

- [1] Y. Otake, et al., J. Dis. Res. vol.12, No.3, pp.585-592 (2017).
- [2] Y. Wakabayashi et al., J. Nucl. Sci. Technol., vol.55, No.8, pp.859-867, (2018).
- [3] M. Kureta 他、Proc. 37th ESARDA Symposium, Manchester, UK, 111-120, (2015).
- [4] T.Tadokoro, et al. Examination of a Ge-68/Ga-68 production amount in a medical radionuclides production system using an electron linear accelerator. Atomic Energy Society of Japan, 2017 Fall meeting.
- [5] T.Tadokoro, et al. Feasibility study on a common use accelerator system of neutron production for BNCT and radionuclide production for PET. Proc ICNCT-12. 2006;304-307.
- [6] T.Tadokoro, et al. Development of a neutron moisture meter for moisture under heat insulation of tower and pipe (2) Basic study for a moisture meter using time measurement methods. Atomic Energy Society of Japan, 2009 Fall meeting.