

An interrogation method for radioactive waste by using an ERL-based high-flux gamma-ray source

Nobuhiro Kikuzawa^{1, A)}, Ryoichi Hajima^{A)}, Takehito Hayakawa^{B)}, Eisuke Minehara^{C)}

^{A)} Energy Recovery Linac Development Group, Japan Atomic Energy Agency

2-4 Shirakata-Shirane, Tokai-mura, Ibaraki, 319-1195

^{B)} Laser Accelerator Group, Japan Atomic Energy Agency

8-1 Umemidai, Kizu-cho, Souraku-gun, Kyoto 619-0215

^{C)} Advanced Photon Source Development Unit, Japan Atomic Energy Agency

2-4 Shirakata-Shirane, Tokai-mura, Ibaraki, 319-1195

Abstract

Laser-Compton-backscattered photons from an energy-recovery linac (ERL) and a high power laser realize a high-efficiency, high-flux and tunable monochromatic gamma-ray source. A non-destructive interrogation method by using nuclear resonance fluorescence (NRF) make possible to measure the discrimination of clearance levels of a concrete solidification radioactive waste. The purpose of our work is to design and evaluation of the NRF-based detection system. For this evaluation, we are developing a GEANT4-based Monte Carlo simulation code. Some simulations have been performed with simple models of a concrete solidification radioactive waste cask and detectors. We present a recent result of the simulation.

ERL型大強度 γ 線源による放射性廃棄物中の核種検出

1. はじめに

放射性廃棄物の処理処分は原子力の最優先課題であり、原子力機構が保有する廃棄物の処理処分には2兆円の費用と80年の期間が必要であると試算されている。その処理処分のための放射性核種濃度の測定法として、着目する放射性核種またはその娘核種について、化学処理等を行って放射性核種の抽出等を行い、放射性核種濃度を分析する破壊測定法も用いられるが、分析に時間と費用がかかるという欠点がある。一方、非破壊分析としてスケーリングファクター法も用いられる。これは、代表的なサンプルの核種分析を行い、放射能測定が難しい核種（難測定核種）と代表的な核種の相関関係を求めておき、これを基に個々の廃棄物中の代表的な核種の非破壊測定データから、難測定核種の放射性核種濃度を推定する方法である。しかしながら、あらかじめ内容物についての詳細なデータが必要であり、不確かさが残る。

我々はKEK、東大物性研、UVSOR、SPring-8と共同でエネルギー回収型リニアック(ERL)に関する開発研究を進めている^[1]。このERL技術を応用した大強度準単色 γ 線源による放射性核種の非破壊検出法を提案し、この γ 線を使った光核共鳴散乱(NRF)による核種検出法を放射性廃棄物の処理処分へ応用することを提案している^[2]。この応用可能性の評価を行うために、GEANT4^[3]をベースにして光核反応を計算できるシミュレーションコードを開発し、簡単なモデルについて計算を行った。その結果について報告する。

2. 大強度 γ 線源

我々が提案しているERL型 γ 線源を図1に示し、表1にそのパラメータの例を示す^[4]。350MeVのエネルギーは、超伝導空洞の加速勾配を約20MV/mとした時に18台の9-cell空洞で実現できる。9-cell空洞6台を1モジュールとし、モジュール間にQ磁石を配置す

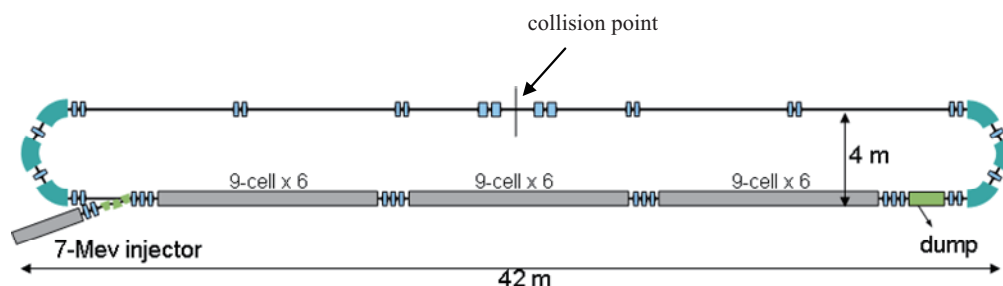


図1 : 350MeV ERL の概念図

¹ E-mail: kikuzawa.nobuhiro@jaea.go.jp

る。アーク部は軌道半径1.2mのTBAラティスである。

表1. ERL型 γ 線源のパラメータの例

| Electron beam | |
|--------------------------------------|-------------------|
| Repetition | 130 MHz |
| Energy | 350 MeV |
| Bunch charge | 100 pC |
| Normalized RMS emittance (x/y) | 2.5 / 1.0 mm-mrad |
| RMS beam size at the collision (x/y) | 37 / 24 μ m |
| Pulse length (RMS) | 3 ps |
| Energy spread (RMS) | 0.03 % |
| Laser | |
| Repetition | 130 MHz |
| Wave length | 1064 |
| pulse energy | 1.8 μ J |
| RMS size at the collision | 30 μ m |
| pulse length | 2 ps (rms) |
| Enhancement of supercavity | 3000 |

ERLで加速した電子とレーザー光を用い逆コンプトン散乱により γ 線を発生させることで、高効率・大強度の準単色 γ 線を発生させることができる。電子とレーザーがhead-on衝突する場合に発生する γ 線フラックスを表1で与えられるパラメータを使って計算すると、 $F=2.8 \times 10^{10}$ ph/secとなる^[4,5]。

現実には、スーパーキャビティの配置などから衝突角度を持ち、電子ビームのエミッタンスやエネルギー広がりなども考慮する必要がある。このため、モンテカルロシミュレーションコードであるCAIN^[6]によって計算を行った結果を図2に示す。この結果、衝突角度 3.5° の場合、 γ 線の最大エネルギー付近で $F=6.8 \times 10^9$ ph/sec/keVとなる^[4]。350MeV-ERL、モードロックファイバーレーザ、スーパーキャビティの技術を組み合わせることで、既存の γ 線源を6-8桁上回るフラックスが実現できることがわかつた。

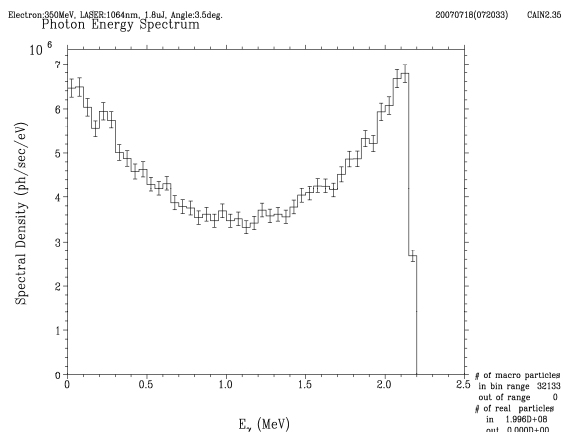


図2: CAINによる計算結果

3. 光核共鳴散乱による核種検出

3.1 光核共鳴散乱検出の原理

近年、NRFによる核種検出のアイデアが提案されている^[7,8]。NRFによる核種検出の例として、コンクリート中にSe-79が含まれている場合を図3に示す。Se-79の励起準位である1257keVのエネルギーの γ 線を照射することによってSe-79のみが選択的に励起され、同じエネルギーの γ 線を放出する。このとき放出される γ 線は、入射方向とは異なる方向に放出されるため、その γ 線を検出器で検出することによってSe-79の存在を検知できる。準単色のレーザー逆コンプトン散乱 γ 線を使うことによって、任意の核種のみを低バックグラウンドで検出できるといった利点がある。

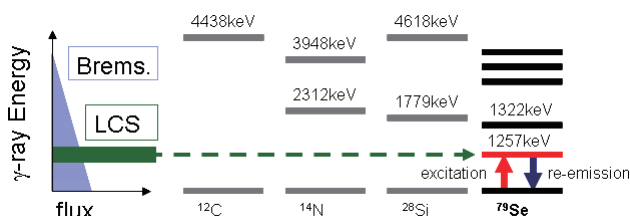


図3: NRFによる核種検出の原理

3.2 U-238検出シミュレーション

NRFによる核種検出の可能性の評価を行うために、GEANT4をベースにして光核反応を計算できるコードを開発し、計算を行った。

放射性廃棄物容器をモデル化した直径56.4cm、高さ80cm、かさ密度 2g/cm^3 の円筒状のコンクリート中に、 1000Bq/g に相当する量のU-238が均一に含まれている被測定対象に γ 線を照射した場合のシミュレーション計算を行った^[9]。そのモデルを図4に示す。容器の周囲には、容器の中心から50cmの距離に18個のGe検出器を配置している。ここで、U-238の光核共鳴散乱断面積は 2.176MeV の励起準位にお

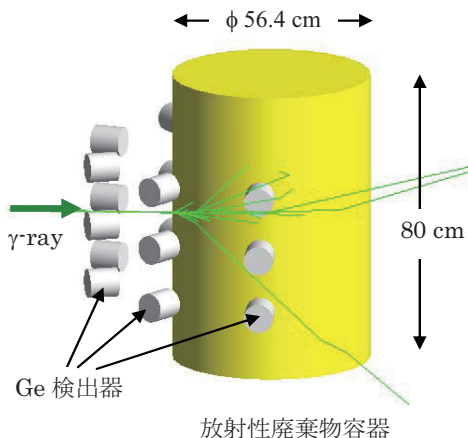


図4: シミュレーションモデル

いて1keV幅で28mbを仮定し、中心エネルギー2.176MeVで1keV幅の γ 線を 1×10^9 個照射した場合について計算を行った。これは、我々の提案している γ 線源ではおよそ0.15secに相当する照射時間である。また、光核共鳴散乱 γ 線は等方的に散乱されると仮定している。このとき、検出器の領域に入射した γ 線のエネルギースペクトルを図5に示す。ただし、ここではGe検出器内部の反応は考慮していない。

この結果では、U-238の励起準位に相当するエネルギーの γ 線を検出することは可能であり、検出可能な γ 線の個数は1200個であることがわかった。これは、U-238の濃度や反応断面積、検出器の幾何学的効率から予想される γ 線の個数(2×10^4)と比較すると、この数の違いは容器中での非弾性散乱などによる減衰で説明できる範囲であると考えられる^[9]。

このシミュレーションでは1000Bq/gの検出に約0.1秒の照射時間が必要であることから、U-238のクリアランスレベルである1Bq/gの検出には、100-1000秒の照射時間が必要であると考えられる。しかしながら、現在の計算にはPC(PentiumM 1.7GHz)で30時間以上の時間がかかっており、このシミュレーションを行うためには、並列化などを含めた高速化が必要である。

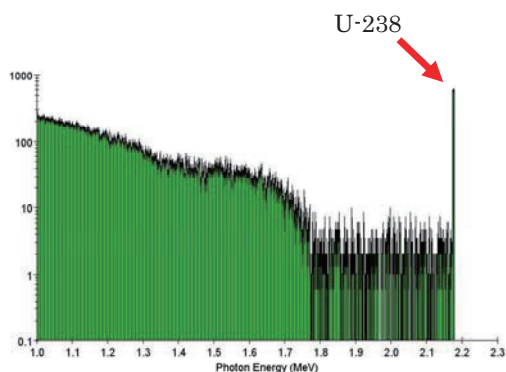


図5：U-238 検出シミュレーションの結果

3.3 核種同定シミュレーション

核種同定のシミュレーションとして、放射性廃棄物容器中にU-238とTh-232がそれぞれ1000Bq/g含まれている場合を仮定し、シミュレーションを行った。U-238の2.176MeVとTh-232の2.043MeVの励起準位について、それぞれのNRF反応断面積を100mb \cdot keVと仮定し、2.0-2.2MeVのエネルギー幅の γ 線を照射した場合のスペクトルを図6に示す。これは、我々の提案している γ 線源ではおよそ1.5msecに相当する照射時間である。この結果から、ある適当なエネルギー広がりを持った γ 線を照射することによって、一度に複数の核種を検出可能であることがわかる。

このシミュレーションでは、U-238とTh-232の存在比はそれぞれ8wt%と25wt%であるが、検出可能な γ 線の個数はそれぞれ26個と123個であり、Th-232のほうがその存在比に比べて検出可能な γ 線の個数は多い。これは、高いエネルギーの γ 線が散乱によってエネルギーを失うことによって、よりエネルギーの低いTh-232の励起準位と同じエネルギーの γ 線が

多くなるためだと考えられる。

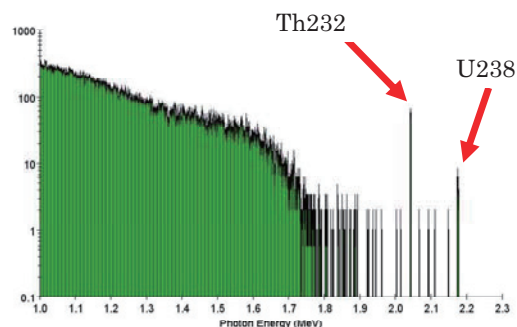


図6：核種検出シミュレーションの結果

4. まとめ

γ 線源の概念設計を行い、発生する γ 線量の推定を行った。得られるフラックスは 10^{10} ph/sec/keVとなり、既存の γ 線源を6-8桁上回るフラックスが実現できることがわかった。

GEANT4でシミュレーションを行った。この結果、NRFによる核種検出は十分可能であることがわかった。

今後、検出システムの設計を進め、検出限界の評価などを進めるためには、より多数の γ 線で計算を行う必要がある。しかしながら、現在の計算にはPCで30時間以上の時間がかかっており、今後は並列化を含めた高速化について検討していく予定である。

参考文献

- [1] 河田洋、他、” E R L計画の現状”、本論文集。
- [2] R. Hajima et. al., “Nondestructive assay of radionuclides using a high-flux gamma-ray source and nuclear resonance fluorescence”, J. Nucl. Sci. and Technol., (submitted).
- [3] S. Agostinelli et. al., “GEANT4 – a simulation toolkit,” Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 506, 250 (2003).
- [4] R. Hajima et. al., “Energy-Recovery Linac for a High-Flux Quasi-Monochromatic Gamma-ray Source”, Proc. the Eighth International Topical Meeting on Nuclear Applications and utilization of Accelerators (AccApp07), Pocatello, Idaho, Jul. 30- Aug. 2, 2007.
- [5] H. Ohgaki et. al., “Generation and application of Laser-Compton gamma-ray at ETL,” Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 455, 54 (2000).
- [6] P. Chen et. al., “CAIN: Conglomerat d’ABEL et d’Interactions Non-linéaires”, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. A 355, 107(1995).
- [7] J. Pruet et. al., “Detecting clandestine material with nuclear resonance fluorescence,” J. Appl. Phys., 99, 123102 (2006).
- [8] W. Bertozzi and R. J. Ledoux, “Nuclear resonance fluorescence imaging in non-intrusive cargo inspection,” Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B 241, 820 (2005).
- [9] N. Kikuzawa et. al., “Simulation of an interrogation method for radioactive waste by using nuclear resonance fluorescence”, Proc. the Eighth International Topical Meeting on Nuclear Applications and utilization of Accelerators (AccApp07), Pocatello, Idaho, Jul. 30- Aug. 2, 2007.