

DEVELOPMENT OF HIGH-BRILLIANCS ERL X/ γ -RAY SOURCE FOR NON-DESTRUCTIVE ISOTOPE MEASUREMENT

R. Hajima *, M. Sawamura, R. Nagai, N. Nishimori,
T. Hayakawa, T. Shizuma, N. Kikuzawa and M. Seya
Japan Atomic Energy Agency
Tokai, Ibaraki, 319-1195 Japan

Abstract

Technologies for non-destructive measurements of nuclear material are under development in our group. The measurement system is based on monochromatic X/ γ -rays generated from laser Compton scattering (LCS). We propose two systems: isotope measurement for nuclear spent fuel by LCS γ -ray and atomic measurement for solution samples in a fuel reprocessing plant by LCS X-ray. Energy-recovery linac to accelerate small-emittance and high-current beams is the key component in both systems. We present R&D status and future plan for such non-destructive measurement systems.

ERL による高輝度 X/ γ 線源の開発と核種非破壊分析への応用

1. はじめに

現在の国際社会の抱える困難な課題の一つに核テロ脅威への対応があり、2010年4月に米国で開催された核セキュリティ・サミットでは、プルトニウムなどの維持と管理を厳格に行うための核物質の測定、検知及び核鑑識に係る技術開発が極めて重要であることが確認された。米国 DOE (エネルギー省) は、これに先立つ 2009 年度から NGS (Next Generation Safeguards Initiative; 次世代保障措置イニシアティブ) を開始しており、その中の保障措置技術開発では、これまで技術的に困難と考えられていた「使用済燃料中プルトニウム (Pu) の非破壊分析 (Non-Destructive Analysis; NDA)」による定量測定技術開発を第一優先として、全米の国立研究所、大学を動員して、13 の基礎技術についての評価、検討作業を実施中である^[1]。この背景の一つとして、商業用再処理施設の無い米国の原子力発電所においては、保管期間が相当に長い (40 年、50 年超等) 使用済燃料が発生しておりその自己放射線防護能力低下の懸念から、使用済燃料集合体の一部の燃料要素の抜取・盗取等に関する定量的な検証が強く求められていることが挙げられる。

NGSI では、また、「使用済燃料中 Pu の NDA」は再処理施設における Pu 量の受払差 (SRD: Shipper Receiver Difference) への対応も目的としている。この SRD は原子炉から受入れる使用済燃料中の Pu 量 (計算値) と実際に再処理され回収される Pu 量の差として定義され、再処理量増大とともに累積してゆく見かけ上の差である。この課題については、使用済燃料中の Pu 量をこれまでの計算値から、「非常に精度の良い NDA」での測定値で計量管理を行うことにより、対応が可能になると考えられる。

NGSI の「使用済燃料中 Pu の NDA」技術開発に

* hajima.ryoichi@jaea.go.jp

おいて評価、検討作業を実施中の 13 の基礎技術は、大別して、中性子をプローブとして用いる中性子技術、及び X 線・ γ 線をプローブとして用いる光子技術、に分けられる。米国の現時点での関心の中心は中性子技術である。光子技術においては 2MeV 程度の γ 線をプローブとした原子核共鳴蛍光 (NRF: Nuclear Resonance Fluorescence) を利用する方法が挙げられているものの、これまで γ 線源として考えられていたものが制動放射光源であり、この目的の線源としてふさわしいものではない。

われわれは、米国の NGS の「使用済燃料中 Pu の NDA」技術開発に呼応しつつ、日本の独自の技術を用いて、国際保障措置に貢献すべく、NRF 法でレーザー・コンプトン散乱 (LCS) γ 線をプローブとする「使用済燃料中 Pu の NDA」装置 (LCS γ 線利用・NRF・Pu-NDA 装置) の提案を行っている。レーザー・コンプトン散乱技術は、加速器とレーザーの先端技術の融合であり、Pu-NDA 装置の本格実用化までには、実証機の建設を含む段階的な技術開発が必要と考える。

本稿では、LCS-X/ γ 線による核燃料物質の非破壊測定・検知の原理、Pu-NDA 実用機および中間段階の実証機である 85-MeV ERL の概要、これらを実現するための要素技術について述べる。

2. 単色ガンマ線による核種の非破壊分析の原理と実証実験

原子核はその構造に対応して固有の励起準位をもっている。基底準位と励起準位のエネルギー差に同調したエネルギーのガンマ線を原子核に照射すると、原子核は励起した後ほぼ瞬時に基底準位に戻り、準位間のエネルギー差に等しいガンマ線を放出する。これを外部から観測すると、入射ガンマ線が散乱したように見えることから、この現象を原子核共鳴蛍光散乱 (Nuclear Resonance Fluorescence; NRF) とよぶ。NRF を測定することで同位体の非破壊分析が可

能になる (図 1) [2]。

LCS により発生する単色ガンマ線と NRF を組み合わせた核種の非破壊測定・検知手法(LCS-NRF)の利点は、(1)元素ではなく同位体を識別できる、(2)入射ガンマ線のエネルギーをスキャンすることで複数の任意の同位体を測定できる、(3)2 MeV 程度のガンマ線を用いるので遮蔽を通して測定できるなどである。

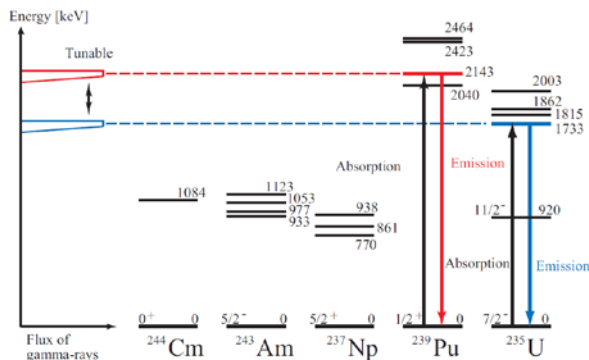


図 1 : 単色ガンマ線と NRF による核種の同定

われわれは、LCS-NRF 法の原理実証のために、産総研 TERAS の LCS ビームラインにおいて、鉄箱 (厚さ 15 mm) に隠蔽された鉛ブロック (20 mm 角) の非破壊検出実験を行い、Pb-208 の NRF 信号から鉛ブロックの 1 次元イメージを得た[3]。また、爆発物の模擬物質の検出実験にも成功している[4]。

3. 使用済燃料の非破壊分析装置の提案

再処理施設における SRD 問題への対応も可能とする高精度の測定技術開発を目標として、われわれは、LCS-NRF 法による使用済燃料の非破壊分析装置を提案している[5]。本装置は、使用済燃料をプール内に置いたままで、かつ、測定装置がプール水 (若干の放射性物質を含む汚染状態) に浸らないため、保守管理が極めてやりやすい装置配置が可能である。

冷却プール内に保持した BWR 使用済燃料 (8×8) の測定を模擬するシミュレーションの結果を図 2 に示す。ここでは、GEANT4 に NRF 計算ルーチンを追加した独自のコードを使った。

本分析装置に必要なガンマ線は、約 2 MeV であり、350 MeV 電子と波長 1 μm のレーザーの衝突散乱で発生できる。ガンマ線のフラックスを高めるために、電子加速器にはエネルギー回収型リニアックを採用し、レーザーはモードロック・ファイバーレーザー (Yb 添加ファイバー) と光蓄積共振器を組み合わせた方式を採用する。電子ビームの電流を 13 mA (100 pC、130 MHz) とし、レーザーの蓄積パワーを 700 kW とした時、 6.8×10^9 ph/sec/keV のガンマ線フラックスが得られる[6]。主なパラメータを表 1 に示す。

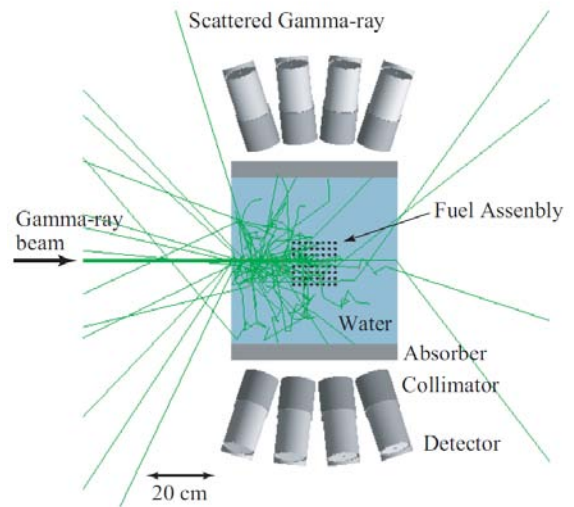


図 2 : LCS-γ 線を用いた使用済燃料の非破壊分析のモンテカルロ・シミュレーション。冷却用のプール内に保持された BWR 燃料 (8×8) に 2 MeV の LCS-γ 線を照射し、プール外側に設置した Ge 検出器で NRF 信号を計測し Pu 濃度を求める。

表 1. レーザー・コンプトンγ線源のパラメータ

Electron Beam	
repetition	130 MHz
energy	350 MeV
bunch charge	100 pC
normalized emittance (x/y)	2.5 / 1.0 mm-mrad
rms beam size at the collision (x/y)	37 / 24 μm
rms pulse length	3 ps
rms energy spread	3E-4
Laser beam	
wavelength	1064 nm
repetition	130 MHz
pulse energy	1.8 μJ
rms beam size at the collision	30 μm
rms pulse length	2 ps
enhancement of supercavity	3000
collision angle	3.5 deg
γ-ray	
energy	2.2 MeV
flux	6.8×10^9 ph/s/keV

4. 核種分析実証機 85-MeV ERL の提案と溶液中の U、Pu 濃度測定への利用

前節で示したような LCS-NRF 非破壊分析システムを本格実用化するためには、いくつかの基盤技術を確認しなければならない。ERL による低エミッタ

ンス大電流電子ビームと光蓄積共振器による大強度レーザーを微小な空間スポットで安定に衝突散乱させる技術は、最も重要なものであり、実用機的设计、建設に先立って、十分に研究を行い技術の到達レベルを最大限に引き上げておく必要がある。

このような技術開発を展開するために、われわれは、電子エネルギー85 MeV の ERL を建設し、LCS による高輝度光子ビームの発生を行うことを提案している。本装置では、120 keV 程度の X 線が発生可能であり、これを用いて溶液中の U、Pu 濃度の非破壊測定も行える。

図3に85 MeV-ERLの概念設計を示す。LCSでは電子ビームはごく一部のエネルギーを失うのみで、大半のエネルギーは残っているため、LCSとERLの相性はよい。再処理施設への設置は小型の装置が望ましいため、ここでは、6周回のレーストラック・マイクロトロン型の構成としている。入射エネルギーを7 MeVとした時、1周あたり13 MeVの加速を行えば、6周回後に85 MeVのエネルギーとなる。LCS-X線の発生後は、加速と同じ軌道を通り、6回減速を受けた後、電子ビームはビームダンプへ捨てられる。現時点での設計パラメータを表2に示す。

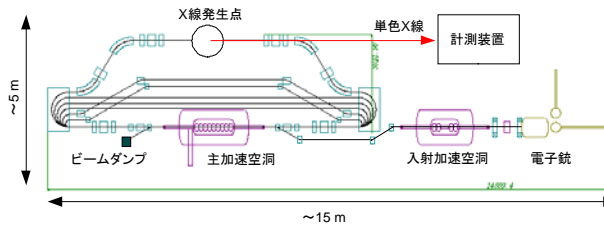


図3：多重周回型 ERL による LCS-X 線発生装置と、溶液中の U、Pu 濃度分析計の配置

表 2. レーザー・コンプトン X 線源のパラメータ

Electron Beam	
repetition	100 MHz
energy	85 MeV
bunch charge	10 pC
normalized emittance	2 mm-mrad
rms beam size at the collision	70 μ m
rms pulse length	3 ps
rms energy spread	1E-3
Laser beam	
wavelength	1064 nm
repetition	100 MHz
pulse energy	1 μ J
rms beam size at the collision	70 μ m
rms pulse length	1 ps
enhancement of supercavity	1000
collision angle	8 deg
X-ray	
energy	120 keV
flux	1x10 ⁸ ph/s/keV

図4は、LCS-X線をコリメータで単色化した場合の、コリメータサイズとX線光子数、エネルギー広がりをもとにCAINで計算した結果である。コリメータの半径を0.4 mradとした時、X線のエネルギーのrms幅は430 eV (0.36%)、パルス当たり光子数1.4個(100 MHz繰り返し時のフラックスは1.4x10⁸ ph/s)が得られる。

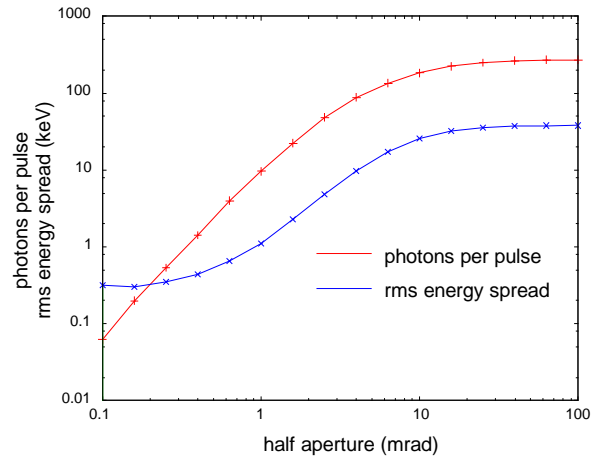


図4：LCS-X線のパルス当たり光子数とエネルギー広がりとの関係

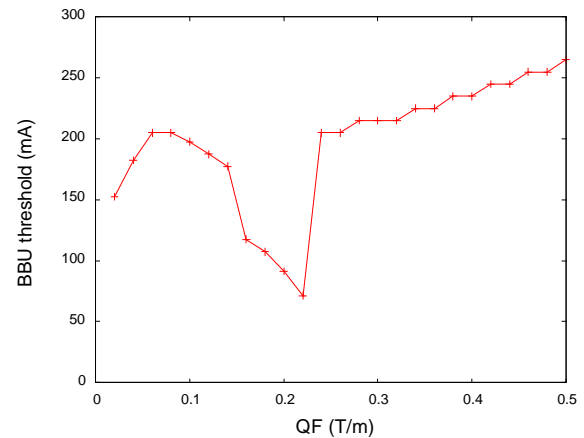


図5：主加速器前後の四重極磁石の値に対するBBU閾値電流(バイパスを含まない単純な6周回軌道を仮定)

超伝導リニアックを用いたマイクロトロンは、古くはイリノイ大学の装置があるが、この装置では、ビームブレークアップ(BBU)が生じて、加速できる電流が1 μ A以下にとどまっていた^[7]。ERLやマイクロトロンのような多重周回型のリニアックにおけるBBUは、主に空洞の高次モード(Higher-Order Modes; HOM)に起因して生じるので、BBUを抑止するために、空洞のHOMを効率よく減衰するような機構が求められる。

高出力自由電子レーザー、および、次世代放射光源としてERLが注目され、大電流を加速するための超伝導空洞の開発が進んでいる。KEK-JAEA-ISSPの共同チームでは、X線放射光源用の5 GeV-ERLにおけるBBU閾値電流が600 mAを超えるERL専

用空洞を開発した^[8]。この ERL 空洞を用いれば、BBU の条件が厳しい多重周回型の ERL においても、数 mA から数十 mA のビーム加速が十分に可能になる。予備検討として、単純な 6 周回レーストラックの構成について BBU 閾値電流を BBU シミュレーションコード *bi* で計算した。図 5 は、主加速器前後の四重極電磁石の値をパラメータとし、BBU 閾値電流をプロットしたものである。BBU 閾値電流は、設計電流 1 mA に対して十分に余裕のある値であり、BBU は生じないと考えてよいだろう

ところで、これまでに、核燃料再処理施設における非破壊分析用に開発された装置としては、ハイブリッド K エッジ濃度計がある。これは、150 kV の X 線管から発生する制動放射 X 線のエネルギー分布をフィルターで整形した後、U、Pu を含む硝酸溶液に照射し、U の K 吸収端 (115.6 keV) を挟んだ X 線吸収スペクトル分布から U の濃度を求め、蛍光 X 線 (XRF) 信号から得られる Pu/U 比の情報と合わせて、Pu の濃度を求める装置である^[9]。

われわれが提案する U、Pu 濃度計測装置は、レーザー・コンプトン散乱で発生する単色の X 線ビームを用いることで、従来型のハイブリッド K エッジ濃度計に比べて高速に試料を計測するものである。U、Np、Pu の K 吸収端エネルギーは、それぞれ、約 2.6% ずつ離れている。したがって、エネルギー幅 1% の単色 X 線を用いて、K 吸収端エネルギーの両側における X 線吸収度を測定すれば、対象となる元素の寄与のみを独立して測定でき、吸収スペクトル全体を測定することなく、各元素の濃度を求めることができる。この方法の利点は、計数率に制約のあるエネルギー分析型検出器が不要なことにあり、入射 X 線のフラックスの増大に応じて、測定時間が短縮できる。また、従来のハイブリッド K エッジ濃度計で問題となっている X 線管の熱放射による試料の膨張がもたらす濃度測定誤差も、われわれの装置では問題にならない^[10]。

1990 年代の核不拡散体制の強化 (追加議定書の締約) に伴う IAEA 業務量の増大に対応すべく、査察業務量低減を目指した統合保障措置スキーム (査察頻度の低減・査察作業範囲の限定を実施する代わりに、高い頻度での施設全在庫の申告及びランダム=抜き打ち査察を導入) が日本等に対して求められている。このスキームでは、短い時間 (通常 2 時間前) で実施通告を受けるランダム査察において、プロセス中の指定されたエリアにある U、Pu を測定し、その結果を査察開始時に報告しなければならない。このような査察に対応するためには、従来のハイブリッド K エッジ濃度計に代わる高速分析技術が必要になると考えられる。われわれの提案は、この要求に応えるものである。

4. 要素技術開発の現状

レーザー・コンプトン散乱 X/γ 線の高輝度、高強度化には、低エミッタンスかつ大電流の電子ビームと高出力のレーザービームを微小スポットで衝突させる必要がある。レーザー・コンプトン散乱では

散乱角度と光子エネルギーに相関があるために、微小なアパーチャーを持つコリメータを用いて光子ビームを単色化できる。とりわけ、分光器で単色化が不可能なガンマ線については、LCS がエネルギー可変かつ単色のビームを得る唯一の手法である。しかしながら、コリメータによる LCS ビームの単色化には限界があり、その限界は、(1)電子ビームの単色度、(2)レーザービームの単色度、(3)電子ビームのエミッタンス、(4)レーザービームの回折の条件で決まる^[11]。通常のパラメータでは、電子ビームエミッタンスの寄与が最も大きいので、低エミッタンス電子ビームの発生技術が LCS-X/γ 線の単色性向上の鍵である。

電子ビームの規格化エミッタンスがレーザーのエミッタンス ($\lambda/4\pi$) に等しくなると、単色性に優れた LCS-X/γ 線が得られることが示されている^[12]。一般的なレーザーの波長 1 μm に対して、この条件を適用すると、規格化エミッタンスの要求は 0.1 mm-mrad となる。偶然ではあるが、この値は、ERL 型 X 線放射光源において、コヒーレント X 線を得るための条件 (回折限界条件) に等しい。

われわれグループは、KEK、名古屋大学、広島大学と共同して、0.1 mm-mrad、10 mA の電子ビームを発生する光陰極 DC 電子銃の開発を進めている。昨年度には、500 kV の DC 電圧を無放電で 8 時間安定に印加することに、世界で初めて成功した^[13]。この電子銃は、分割型セラミック管とガードリングを組み合わせることで、放電によるセラミックの損傷を防ぐ構造とした独自の設計を採用している。われわれと同様の電子銃が、KEK、コーネル大学、JLAB で製作される見込みであり、本方式が光陰極 DC 電子銃の標準となりつつある。

超伝導空洞については、KEK-JAEA-ISSP の ERL 空洞に加えて、LCS-X/γ 光源に特化した空洞 (スポーク空洞) の開発に着手した。この新型空洞については、別論文を参照されたい^[14]。

非破壊核種分析装置の開発と運用には、NRF 反応を含む γ 線の輸送シミュレーションコードが必須である。われわれグループでは、GEANT4 を拡張して NRF 反応が計算できるコードを開発しており^[15]、このコードのベンチマーク実験として、濃縮ウランの照射を含む一連の実験を国内外の施設で実施すべく、準備を進めている。

5. まとめ

ERL で加速される低エミッタンス大電流電子ビームを用いれば、高輝度、高強度かつ単色性に優れたレーザー・コンプトン散乱 (LCS) X/γ 線が発生できる。われわれは、この LCS-X/γ 線の原子力分野への応用として、核物質の非破壊測定システムを提案している。LCS-γ 線 NRF による使用済燃料中の Pu 分析、LCS-X 線 K 吸収端法による再処理溶液中の U、Pu 分析を検討した結果、核燃料再処理施設における計量管理、保障措置に有用な技術となりうることがわかった。

われわれは、これら技術の実用化を目指した要素

技術開発にすでに着手しており、さらに、プロトタイプ実証機となる 85-MeV ERL の建設を提案している。

参考文献

- [1] S.J. Tobin et al., LA-UR-08-03763 (2008)
- [2] R. Hajima et al., J. Nucl. Sci. Tech. 45 (2008) 441.
- [3] N. Kikuzawa et al., Appl. Phys. Express, 2 (2009) 036502.
- [4] T. Hayakawa et al., Rev. Sci. Instr. 80(2009)045110.
- [5] T. Hayakawa et al., Nucl. Instr. Meth. A621 (2010) 695.
- [6] R. Hajima et al., Nucl. Instr. Meth. A608 (2009) S57.
- [7] P. Axel et al., Proc. PAC-1979 (1979)_ 3143.
- [8] K. Umemori et al., Proc. SRF-2009, p.355 (2009).
- [9] H. Ottmar and H. Eberle, KfK Report 4590, February 1991.
- [10] T. Shizuma et al., to be submitted.
- [11] W.J. Brown et al., Phys. Rev. ST-AB 7 (1004) 060703.
- [12] R. Hajima, Rev. Acc. Sci. Tech., to be published.
- [13] R. Nagai et al., Rev. Sci. Instr. 81, 033304 (2010).
- [14] M. Sawamura et al., 本論文集
- [15] N. Kikuzawa et al., Proc. AccApp-07, p.1017 (2007).