



中性子共鳴吸収分光法による定量的 核種イメージング手法の開発

○長谷美宏幸、佐藤博隆、木野幸一、加美山隆、鬼柳善明*

北海道大学大学院 工学院

*現所属:名古屋大学大学院 工学研究科

原田正英、甲斐哲也、大井元貴、瀬川麻里子、篠原武尚

日本原子力研究開発機構 J-PARCセンター

概要

➤ 研究背景・目的

- 中性子共鳴吸収分光法 (N-RAS)
- 共鳴吸収スペクトルに対するパルス関数の影響

➤ シミュレーション計算によるBL10パルス関数の導出

- 中性子放出時間分布の計算
- Cole-Windsor関数によるフィッティング
- Cole-Windsor関数のパラメータのエネルギー依存性

➤ パルス関数を考慮した共鳴解析

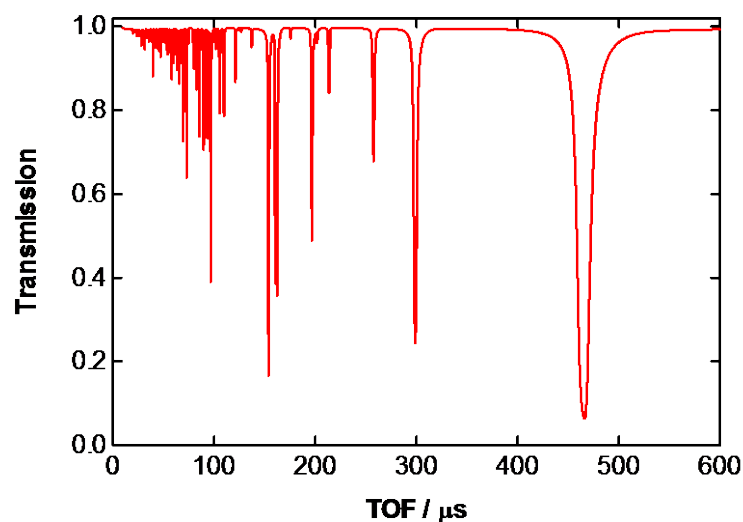
- 共鳴解析コード「REFIT」
- 低エネルギー (数 eV ~ 数 10 eV) 共鳴に対する解析
- 高エネルギー (数 100 eV ~ 数 keV) 共鳴に対する解析

➤ まとめ

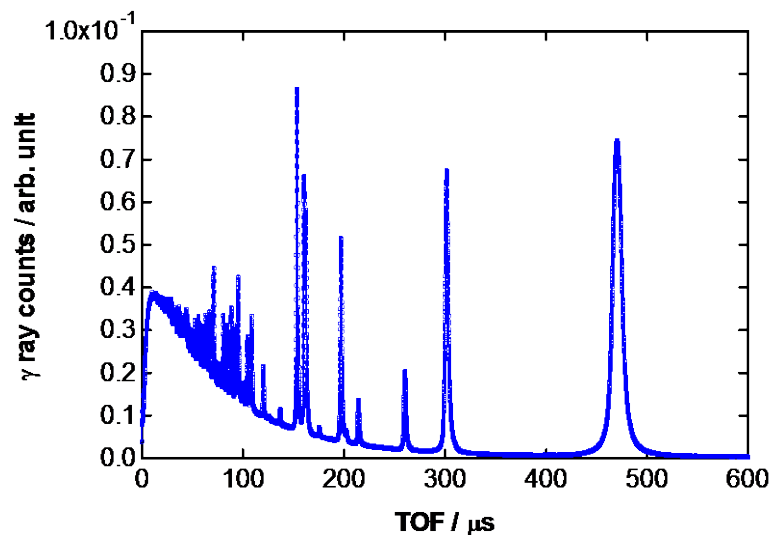
中性子共鳴吸収分光法 (N-RAS)

中性子共鳴吸収分光法

中性子透過率の測定、即発 γ 線 + 飛行時間分析



Taの透過率スペクトル
(透過型N-RAS)



Taの共鳴吸収スペクトル
(即発 γ 線型N-RAS)

N-RASにより得られた共鳴吸収ディップ (or ピーク) を解析することで、核種の「**密度**」や「**温度**」に関する情報を得ることができる。

透過型N-RASによるイメージングの例

温度イメージング

- Pt/Sm触媒の温度測定(1989、ISIS)
- Hf、Ta、Ir、Reを利用した温度測定(2005、ISIS)
- 衝撃温度の測定(2005、LANSCE)
- Ir触媒の温度イメージング(2013、J-PARC)

元素イメージング

- 考古学資料の元素イメージング(2005頃～、ISISなど)
- 核種密度及び温度のトモグラフィー(2009、北大)
- J-PARC/MLFのAICデカップラーの元素イメージング(2013、J-PARC)

研究目的

共鳴吸収スペクトル

$$= \text{共鳴吸収断面積} \otimes \text{Doppler 拡がり} \otimes \text{パルス関数 (中性子放出時間分布)}$$

→ 定量的な共鳴イメージングのためには、使用する装置の **パルス関数** を任意のエネルギーで計算することが不可欠である。

J-PARC/MLF/BL10で定量的な共鳴イメージングを行うため、**熱外(共鳴)領域の中性子のパルス関数**を導出することを目的とした。

- シミュレーション計算によるパルス関数の決定、パルス関数のパラメータのエネルギー依存性の求める
- 求めたパルス関数を共鳴解析コード「REFIT」に組み込む
- いくつかの試料について共鳴吸収スペクトルを測定し、それらを解析することで密度の推定を行う

概要

➤ 研究背景・目的

- 中性子共鳴吸収分光法 (N-RAS)
- 共鳴吸収スペクトルに対するパルス関数の影響

➤ シミュレーション計算によるBL10パルス関数の導出

- 中性子放出時間分布の計算
- Cole-Windsor関数によるフィッティング
- Cole-Windsor関数のパラメータのエネルギー依存性

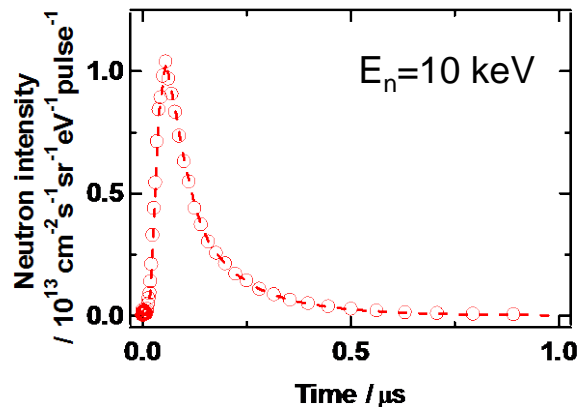
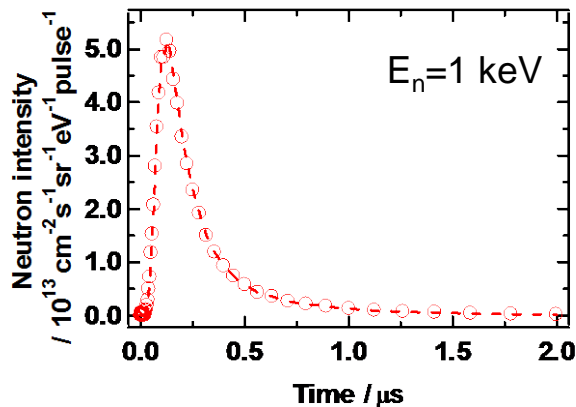
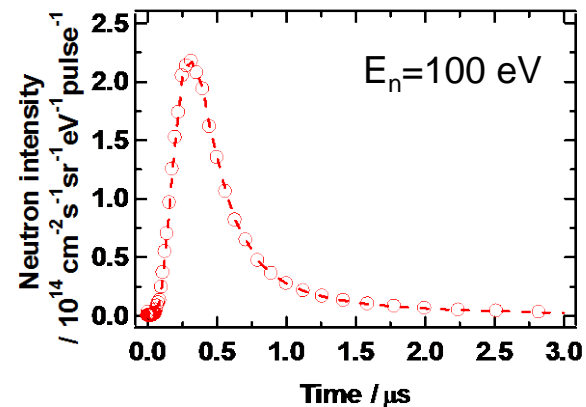
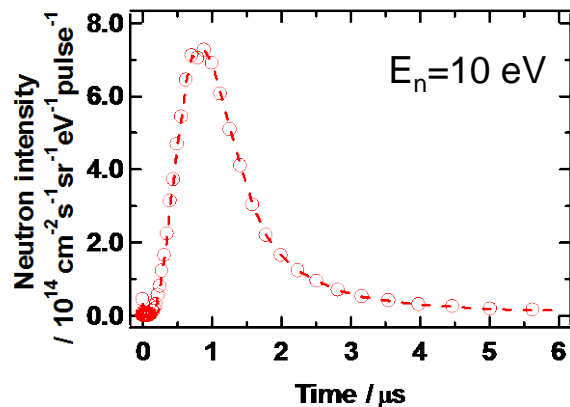
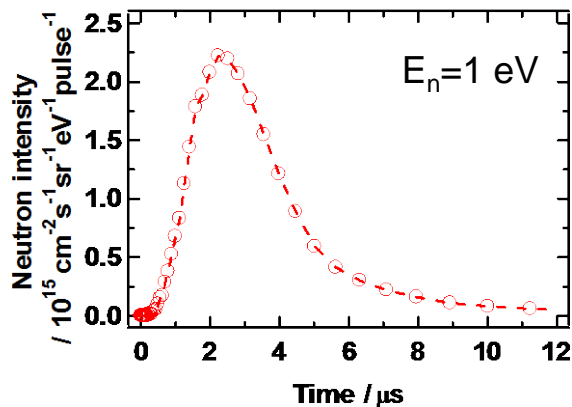
➤ パルス関数を考慮した共鳴解析

- 共鳴解析コード「REFIT」
- 低エネルギー (数 eV ~ 数 10 eV) 共鳴に対する解析
- 高エネルギー (数 100 eV ~ 数 keV) 共鳴に対する解析

➤ まとめ

BL10の中性子放出時間分布

J-PARC/MLF/BL10における中性子放出時間分布 (E_n : 1 eV ~ 10 keV) をモンテカルロシミュレーション計算により求めた。



BL10における熱外中中性子の中性子放出時間分布
(シミュレーション計算)

既存の関数を用いて
フィッティングを行い、
任意のエネルギーで
BL10のパルス関数を
再現できる関数を決定
する。

- Ikeda-Carpenter関数
- 擬Voigt関数
- Cole-Windsor関数

Cole-Windsor関数

Cole-Windsor関数

$$F(t) = C \{ (1-R)F_1(t) + RF_2(t) \}$$

$$t < t_0 : F_1(t) = F_2(t) = \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{\Delta t}{\sigma_1}\right)^2\right) \quad (\Delta t = t - t_0)$$

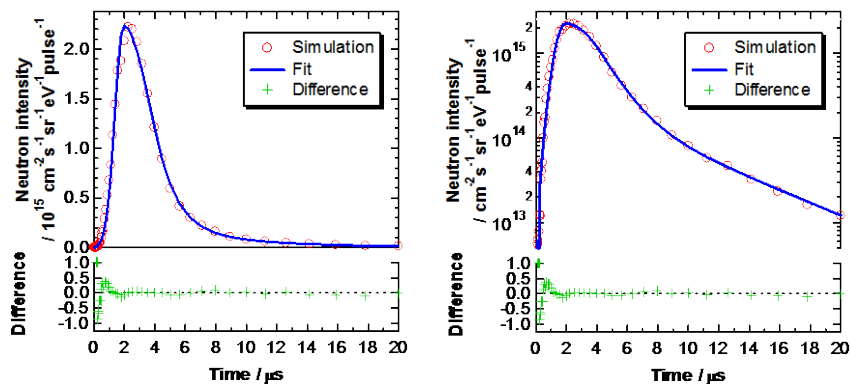
$$t_0 < t < t_0 + \gamma_1 \sigma_2^2 : F_1(t) = \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{\Delta t}{\sigma_2}\right)^2\right) \quad t > t_0 + \gamma_1 \sigma_2^2 : F_1(t) = \exp\left(\frac{(\gamma_1 \sigma_2)^2}{2} - \gamma_1 \Delta t\right)$$

$$t_0 < t < t_0 + \gamma_2 \sigma_2^2 : F_2(t) = \exp\left(-\frac{1}{2}\left(\frac{\Delta t}{\sigma_2}\right)^2\right) \quad t > t_0 + \gamma_2 \sigma_2^2 : F_2(t) = \exp\left(\frac{(\gamma_2 \sigma_2)^2}{2} - \gamma_2 \Delta t\right)$$

C 、 R 、 t_0 、 γ_1 、 γ_2 、 σ_1 、 σ_2 : フィットティングパラメータ

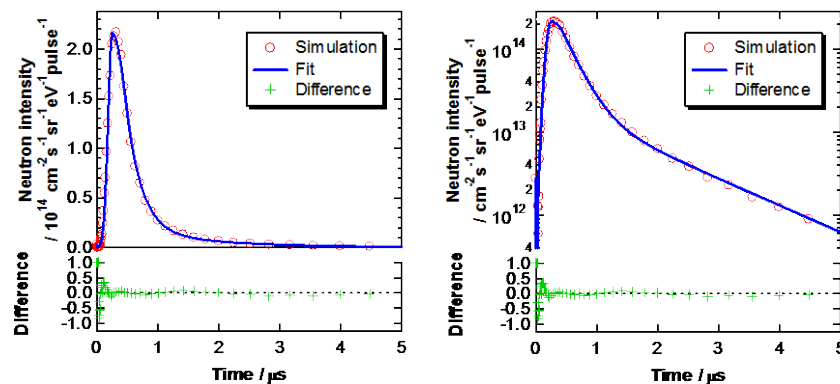
Cole-Windsor関数によるフィッティング

$E_n = 1 \text{ eV}$

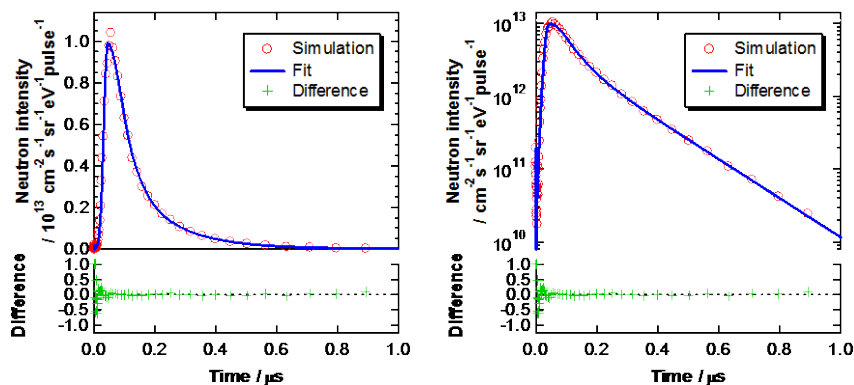


$$\text{Difference} = \frac{\text{Simulation} - \text{Fit}}{\text{Simulation}}$$

$E_n = 100 \text{ eV}$



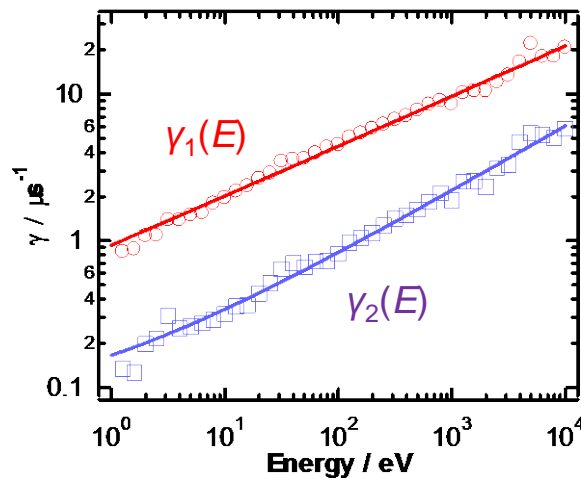
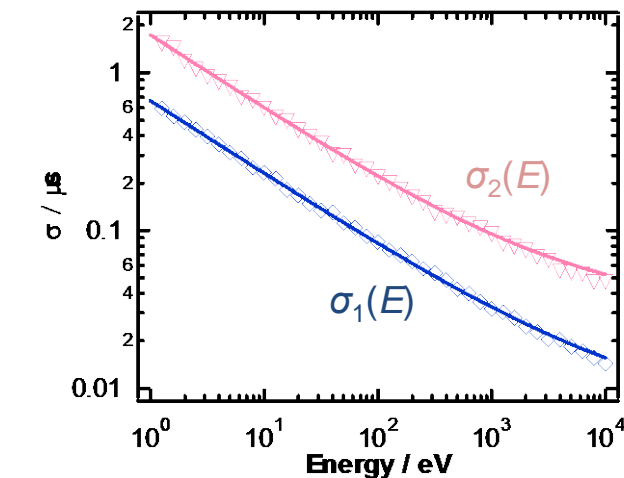
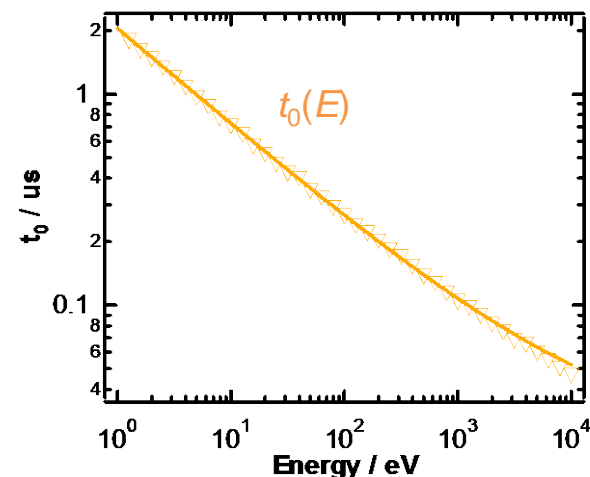
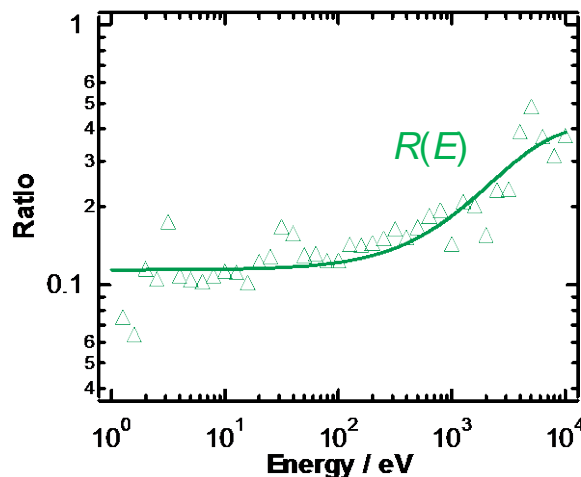
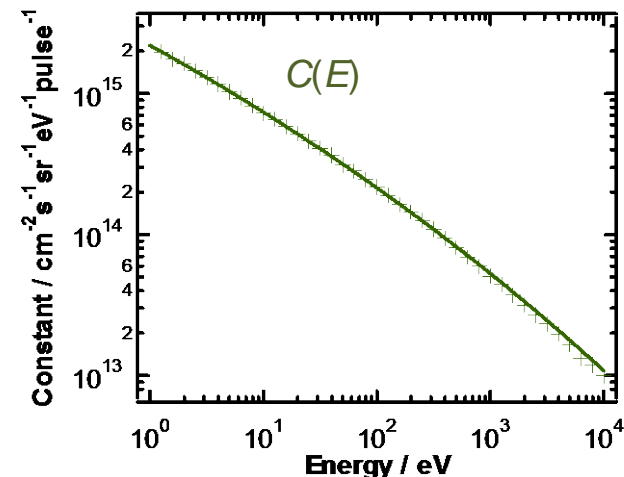
$E_n = 10 \text{ keV}$



BL10の中性子放出時間分布はCole-Windsor関数により再現可能

任意のエネルギーで関数を計算できるように、パラメータのエネルギー依存性を調べた。

パラメータのエネルギー依存性



Cole-Windsor関数のパラメータのエネルギー依存性

$$C = 8.03 \times 10^{18} \exp(-8.21E^{0.0542})$$

$$R = 0.404 - 0.290 \exp(-2.78 \times 10^{-4} E)$$

$$t_0 = 2.27 \times 10^{-2} + 2.03E^{-0.460}$$

$$\gamma_1 = 2.95 \times 10^{-2} + 0.905E^{0.343}$$

$$\gamma_2 = 6.78 \times 10^{-2} + 9.77 \times 10^{-2} E^{0.447}$$

$$\sigma_1 = 6.80 \times 10^{-3} + 0.658E^{-0.468}$$

$$\sigma_2 = 3.15 \times 10^{-2} + 1.71E^{-0.476}$$

概要

➤ 研究背景・目的

- 中性子共鳴吸収分光法 (N-RAS)
- 共鳴吸収スペクトルに対するパルス関数の影響

➤ シミュレーション計算によるBL10パルス関数の導出

- 中性子放出時間分布の計算
- Cole-Windsor関数によるフィッティング
- Cole-Windsor関数のパラメータのエネルギー依存性

➤ パルス関数を考慮した共鳴解析

- 共鳴解析コード「REFIT」
- 低エネルギー (数 eV ~ 数 10 eV) 共鳴に対する解析
- 高エネルギー (数 100 eV ~ 数 keV) 共鳴に対する解析

➤ まとめ

共鳴解析コード:REFIT

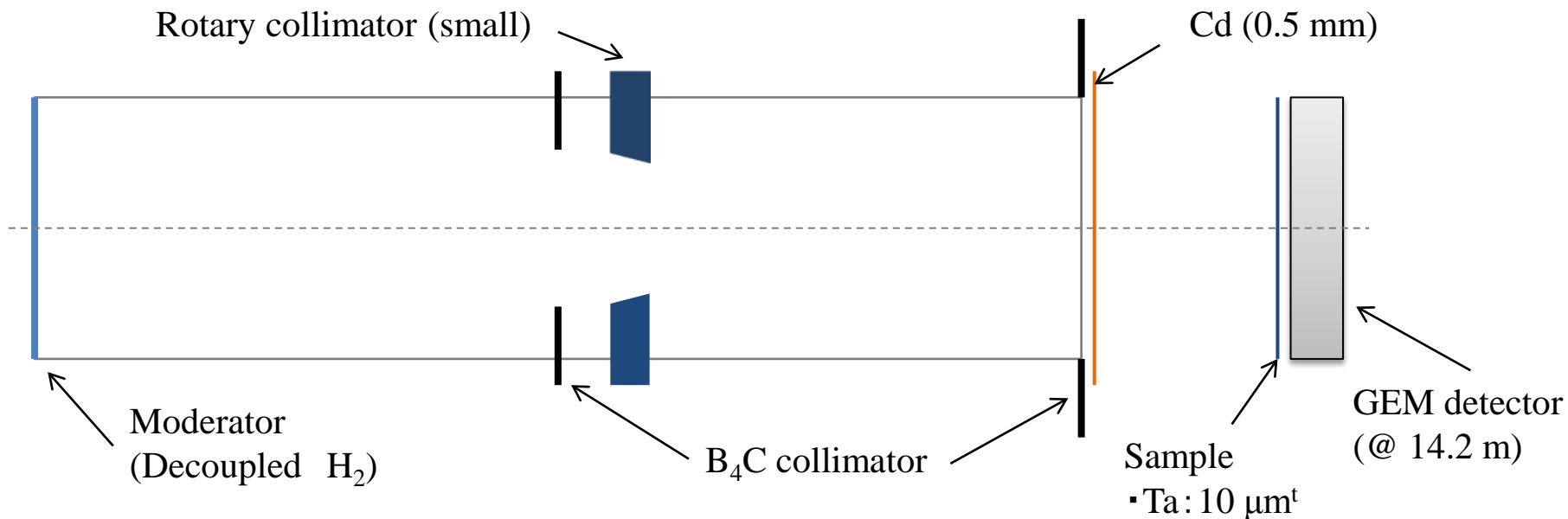
REFITコード...

共鳴吸収スペクトルに対しフィッティングを行い、共鳴パラメータなどを求める解析コード(主に核データの分野で利用)

オリジナルのREFITに実装されているパルス関数はIkeda-Carpenter関数やGELINA(ベルギー)のモデルを使用している。REFITコードのパルス関数を計算するルーチンを改造し、BL10のパルス関数(Cole-Windsor関数)が計算できるようにした。

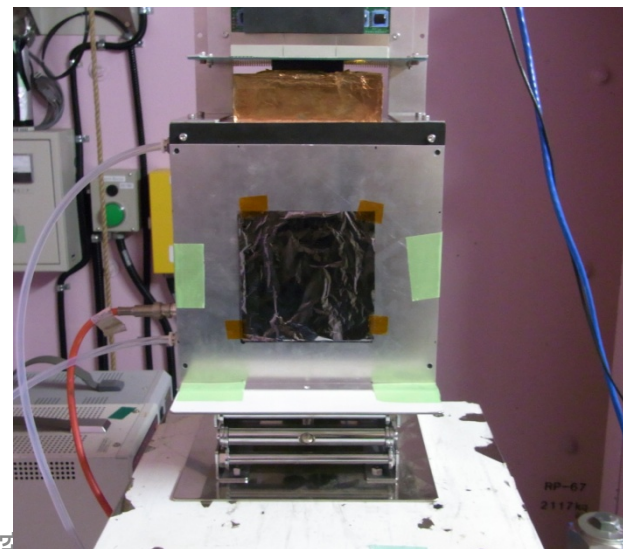
このREFITコードを用いてTa、Ag、Cuの中性子透過率スペクトルの解析を行い、試料の**面密度** (atoms/barn) の推定を行った。

N-RAS実験: タンタル

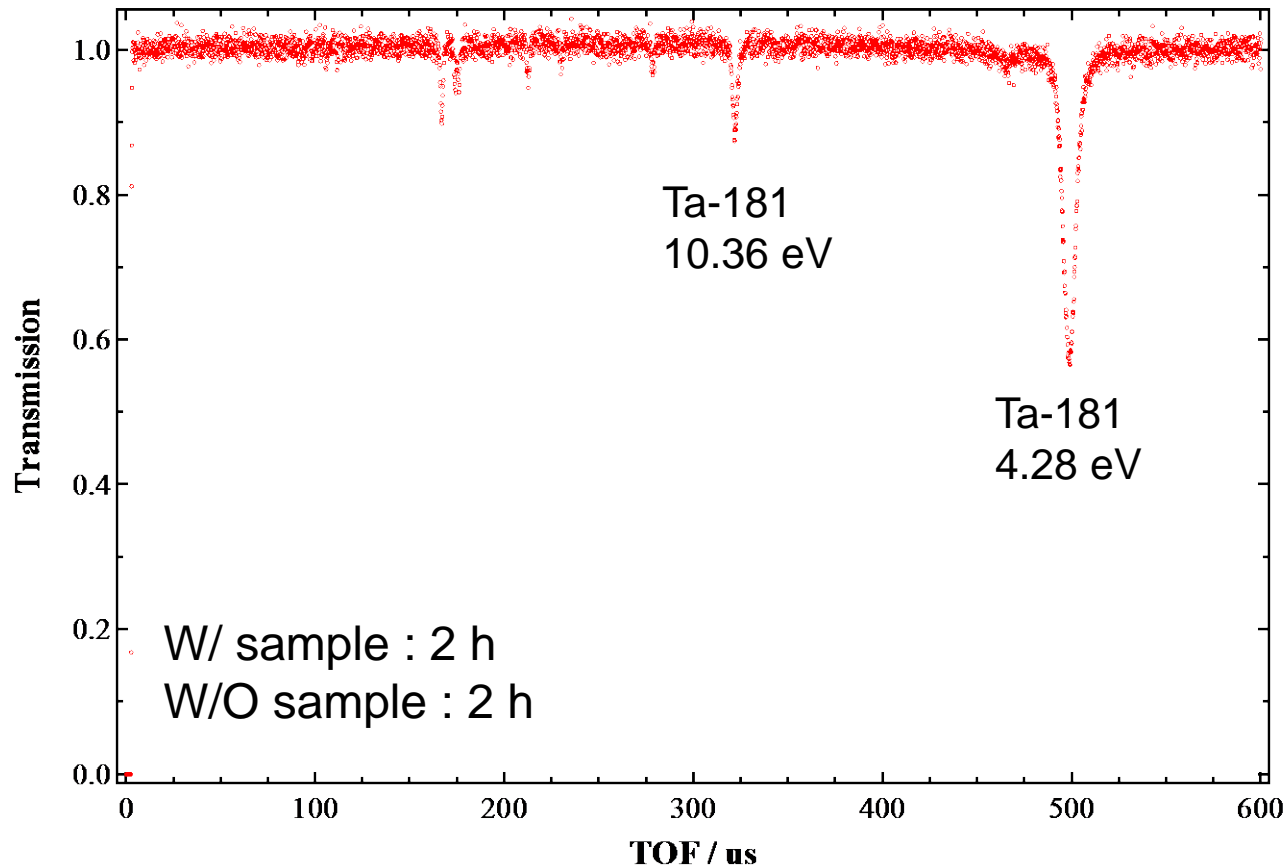


ビームライン: J-PARC/MLF/BL10

- 実験日時 : 2012/06/01-02
- 加速器出力 : 210kW
- 中性子飛行距離 : 14.19 m
- ロータリーコリメータ : 小 (L/D = 600)
- ビームサイズ : 10 × 10 cm²
- フィルター : 未使用
- チョッパー : 未使用



Taの透過率スペクトル

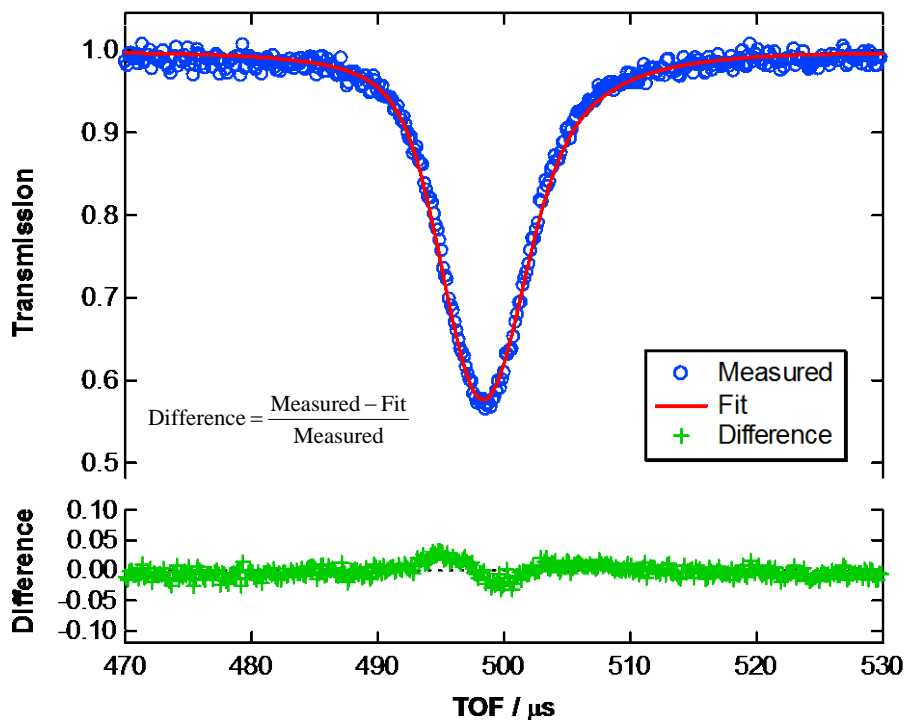


Ta($10 \mu\text{m}^t$)の透過率スペクトル ($\ast 10 \mu\text{m}^t = 5.48 \times 10^{-5} \text{ at/b}$)

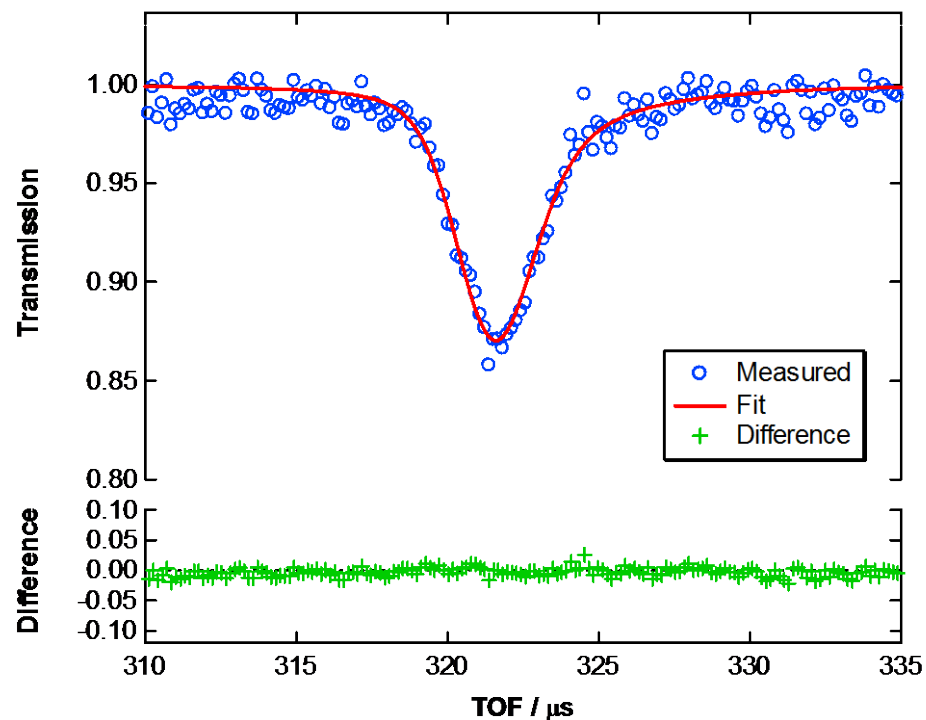
Ta¹⁸¹の4.28 eV共鳴及び10.36 eV共鳴から試料密度の分析を行った。

Taの共鳴に対するフィッティング

4.28 eV 共鳴



10.36 eV 共鳴

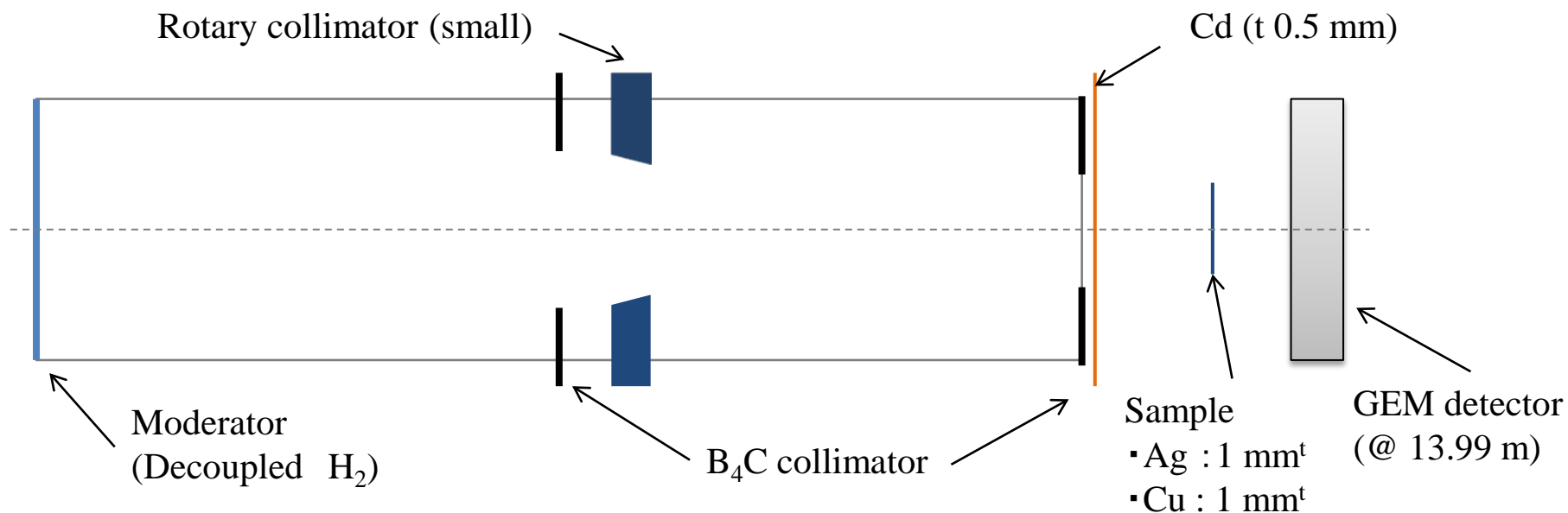


$(5.51 \pm 0.0188) \times 10^{-5}$ at/b

$(5.53 \pm 0.0562) \times 10^{-5}$ at/b

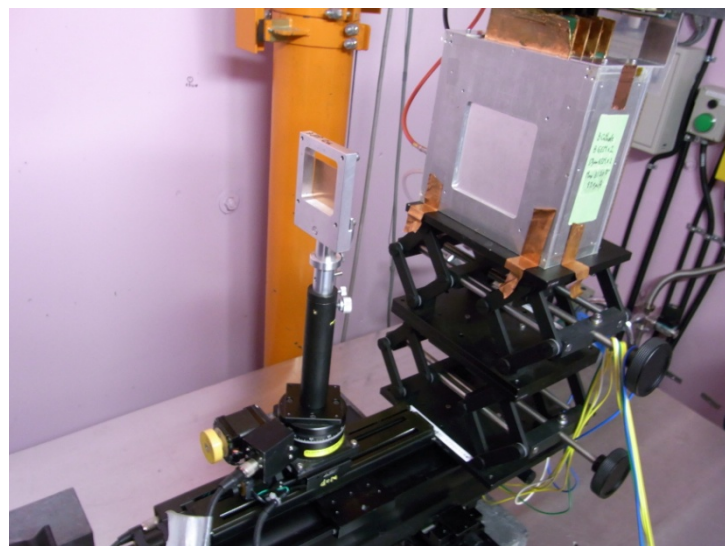
※実際の試料密度: 5.48×10^{-5} at/b

N-RAS実験: 銀、銅

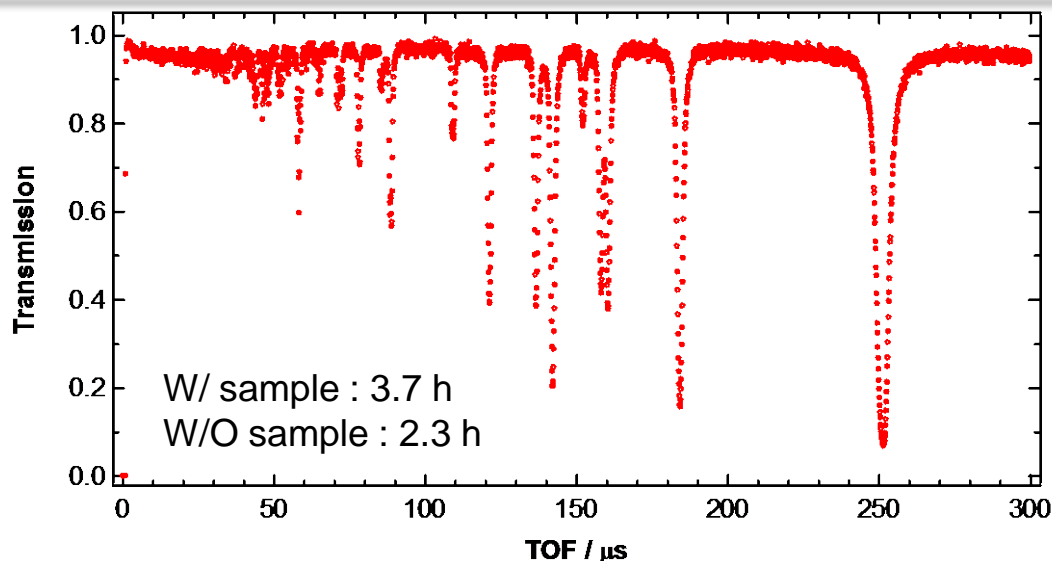


ビームライン: J-PARC/MLF/BL10

- 実験日時 : 2013/05/11-15
- 加速器出力 : 300 kW
- 中性子飛行距離 : 13.99 m
- ロータリーコリメータ : 小 (L/D = 600)
- ビームサイズ : 3 × 3 cm²
- フィルター : 未使用
- チョッパー : 未使用

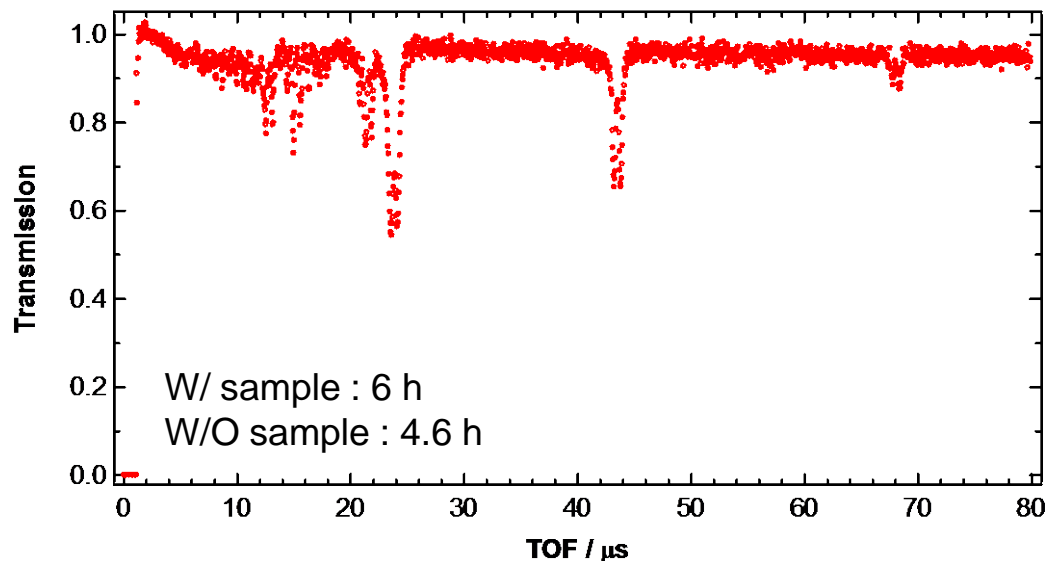


AgとCuの透過率スペクトル



- ・Ag¹⁰⁷の16.3 eV共鳴
 - ・Ag¹⁰⁹の133.9 eV共鳴
- に対するfittingから試料の核種密度分析を行った。

Ag(1 mm^t)の透過率スペクトル (※1 mm^t = 5.81×10^{-3} at/b)

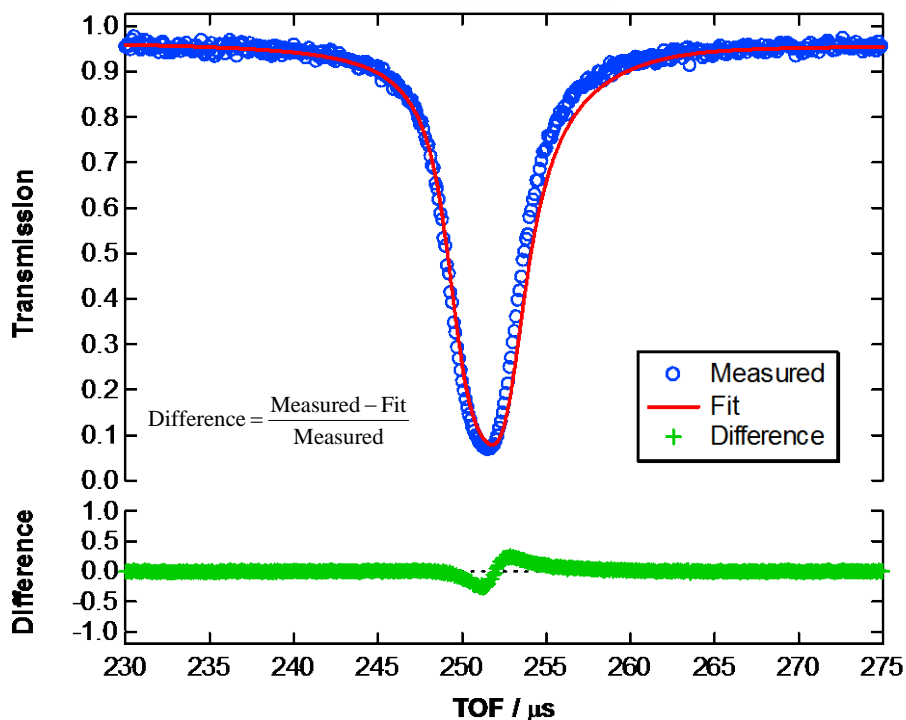


- ・Cu⁶⁵の230 eV共鳴
 - ・Cu⁶³の2038 eV共鳴
- に対するfittingから試料の核種密度分析を行った。

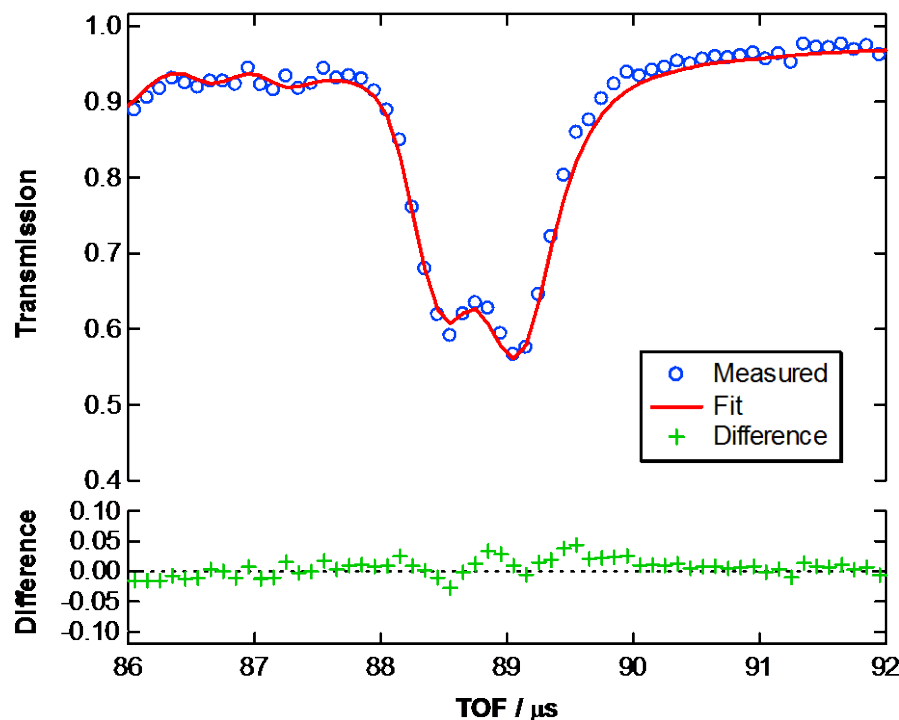
Cu(1 mm^t)の透過率スペクトル (※1 mm^t = 8.41×10^{-3} at/b)

Agの共鳴に対するフィッティング

16.3 eV 共鳴



133.9 eV 共鳴



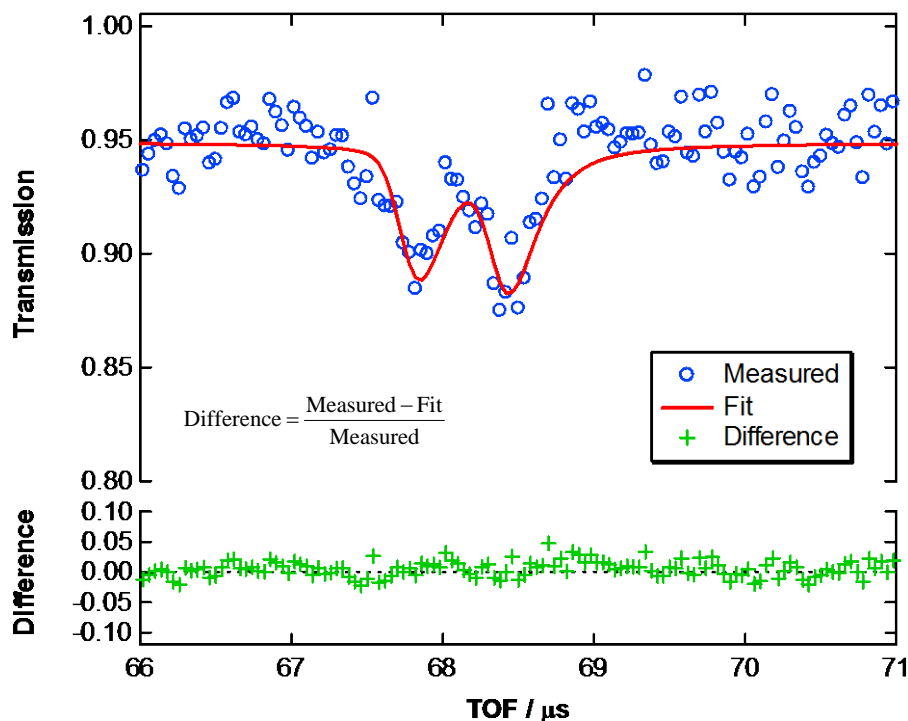
$(5.81 \pm 0.0208) \times 10^{-3}$ at/b

$(5.39 \pm 0.116) \times 10^{-3}$ at/b

※実際の試料密度: 5.81×10^{-3} at/b

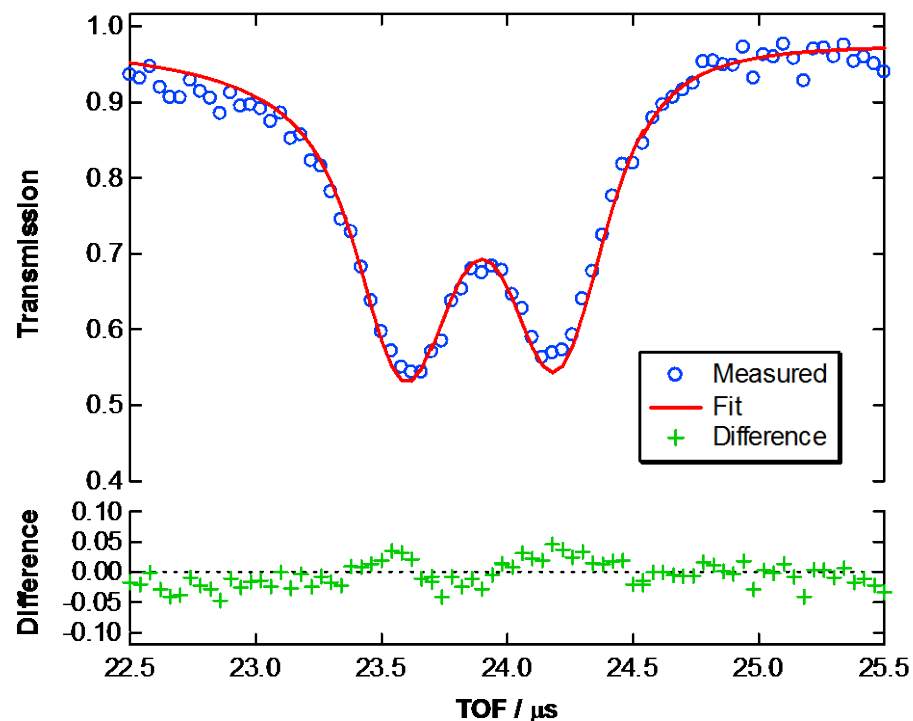
Cuの共鳴に対するフィッティング

230 eV 共鳴



$(7.80 \pm 0.155) \times 10^{-3}$ at/b

2038 eV 共鳴



$(6.71 \pm 0.337) \times 10^{-3}$ at/b

※実際の試料密度: 8.41×10^{-3} at/b

まとめ

- シミュレーション計算によりBL10の中性子放出時間分布を求め、それを再現する関数を求めた。
 - BL10の中性子放出時間分布はCole-Windsor関数で記述でき、任意のエネルギーで再現できることがわかった。
- 求めたパルス関数をREFITに組み込み、いくつかの核種に対し実際にN-RASを利用した面密度測定を行った。
 - TaとAgの数10 eV以下の共鳴ピークに対する解析では、実際の試料密度と推定値の差は1%以内であった。
 - AgとCuの数100 eVの共鳴ピークに対する解析では、7%程度過小評価してしまう。また、Cuの2038 eV共鳴は実際の試料密度と推定値との間に大きな開きがある。
 - バックグラウンドやflame-overlapによる透過率の増加を補正する必要がある(**Black Resonance Filter**の利用)
 - 特に銅に関しては核データの信頼性が低い

謝辞: 本研究は科学研究費補助金(課題番号23226018)の助成を受けたものである。