

ニュークリアフォトニクスで拓くシングルショット中性子分析

余語 覚文

大阪大学レーザー科学研究所 (〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-6)

1. はじめに

光は物質の構造や性質を探り、制御するツールとして、現代の科学と産業に欠かせないものとなっている。近年では、レーザー技術と加速器技術の発展と融合が、新たな展開を迎えつつある。例えば、高エネルギー(1-100 MeV)のガンマ線は、電磁気モーメントを介して原子核と相互作用するため、未知の原子核の構造や性質の探索を可能とするが、コヒーレント光と高エネルギー電子を衝突させるレーザーコンプトン散乱の発展により、光源の飛躍的な高輝度化・単色化がもたらされた。また、レーザーを超高強度に集光する技術は、1mm以下の領域からGeV級の電子や100 MeV級のイオンの発生を可能とした。このような新しい光の技術を駆使して原子核の構造や性質を探索するとともに、その産業利用を含んだ新しい学術領域としてニュークリアフォトニクス(Nuclear Photonics)¹⁾が世界的に勃興しつつある。

ニュークリアフォトニクスにおいて関心を集めるテーマの1つに「レーザー駆動中性子源」がある。Fig. 1に大阪大学の例²⁾を示す。厚さ数ミクロン、1ミリ四方程度の小さな薄膜(1次ターゲット)に高強度のレーザーを集光すると、照射スポットは瞬間的にプラズマとなり、レーザーの強力な電磁相互作用によって電子が裏面へ向けて掃き出され、プラズマの周りを周回する。この時、電子が染み出したシース(Sheath: 鞘)と呼ばれる荷電分離が発生する。発生する電場の強さは1-10 MeV/μmにおよび、レーザーのパルス幅(0.1-1 ps)と同程度の時間保持され、瞬間的にイオン(陽子や重陽子)が加速される。直前にベリリウム等を設置して、核反応から中性子を発生する。 ${}^9\text{Be}(p, n){}^9\text{B}$ や ${}^9\text{Be}(d, 2n){}^9\text{B}$ 、入射重陽子からの中性子の乖離など、複数の核反応が統計

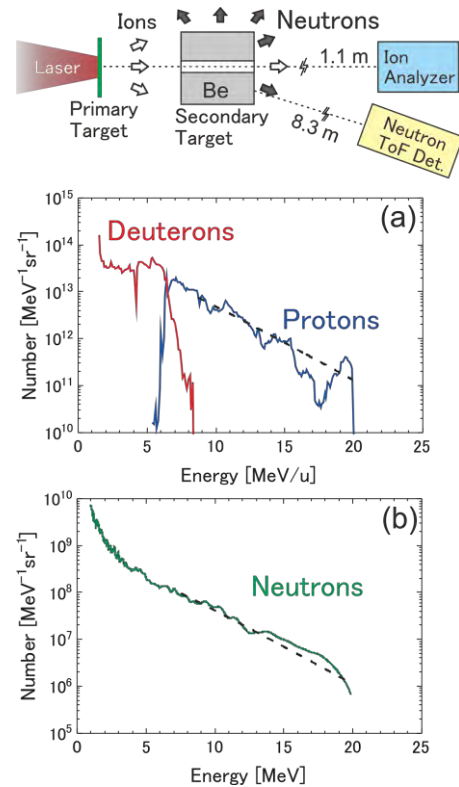
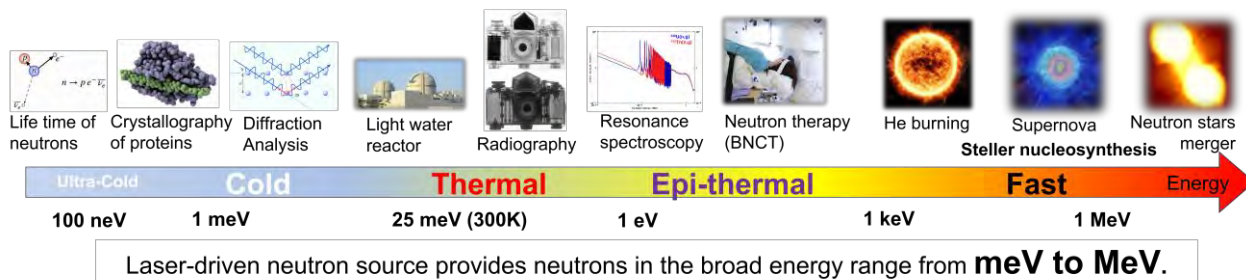


Fig. 1: A schematic picture of the laser-driven neutron source (LDNS) utilizing laser-accelerated ions as a primary beam. (a) The energy spectrum of ions measured through a pinhole on the secondary detector. (b) The neutron spectrum simultaneously measured with the ion spectrum. The figures are partially adopted from Ref. 2).



Laser-driven neutron source provides neutrons in the broad energy range from **meV to MeV**.

Fig. 2: The energy range of neutrons available in the laser-driven neutron source.

的に発生し、中性子のエネルギーは連続分布となる。

レーザー駆動中性子源の研究は、日本、英国、ドイツ等の各国で進められており、国際的関心が高い。しかしながら、現段階では中性子発生に関する基礎的研究の段階にあり、発生した中性子の利用研究は未だその途に就いたばかりである。本研究では、レーザー駆動中性子源が、 meV から MeV におよぶ幅広いエネルギーの中性子を発生できることを実証すると共に、1回のレーザー照射で発生する1パルスの中性子で1計測を完了する「シングルショット」中性子分析を追求することで、原子炉、加速器に次ぐ第3の中性子源として確立することを目指す。シングルショット分析が可能となれば、時間積分計測が不要となるため、瞬間の原子核情報をとらえることができ、動的な対象物の計測が可能となる。開発が進む高繰返しパワーレーザーと組み合わせることで、中性子を連続計測の領域にまで拡張することが可能となる。

2. 中性子の特徴と応用例

中性子は原子核を構成する粒子の一種であり、電荷を持たない中性の粒子である。中性子はX線とは異なり、カルシウムあるいはステンレスなどの金属に対する透過力が高い。加えて、水素、ホウ素といった軽元素に対しての相互作用が強く、水や有機物などに高い感度を持つ。

中性子はその運動エネルギーによって大きく異なる性質を発揮する。概要を Fig. 2 に示す。核融合・核分裂反応で生じる中性子は MeV のエネルギーを

有し、高速(**fast**)中性子と呼ばれる。中性子は周囲の原子核と衝突を繰り返すことで減速し、熱平衡へ向かう。例えば、数億度に達する恒星の内部では keV エネルギーの温度分布を持つ中性子が元素合成反応を支配する。

1-1000 eV の領域は熱外(**epi-thermal**)中性子と呼ばれ、中性子共鳴吸収と呼ばれる反応が起こる。これは原子核の励起準位と中性子のエネルギーが一致すると、共鳴的に中性子が原子核に吸収される現象であり、極めて狭いエネルギー幅で選択的に吸収が起こる。反応後の原子核は不安定核となって多くは即座に γ 線を放出(即発 γ 線)して脱励起する。吸収された中性子や即発 γ 線のエネルギーを分析することで、元素種・同位体種の同定が可能となる。

中性子を室温(300 K)にある物質で減速すると、複数回の衝突の後に平衡に至り、室温に相当するエネルギー($\sim 25 \text{ meV}$)にピークを持つ連続分布を持つようになる。この領域の中性子を熱(**thermal**)中性子と呼ぶ。一般に中性子の反応確率は速度に反比例($1/v$ 則)するため、特定の物質に吸収されたり水素などの軽元素に散乱される割合が高くなる。この性質はラジオグラフィ分析に応用される。

さらに減速し5 meV 以下となると冷(**cold**)中性子と呼ばれる。このとき中性子は波動としての性質を露わにする。例えば1 meV の中性子の波長は約9 \AA であり、金属材料やタンパク質の結晶構造解析に利用できる。特に中性子は水素に対して感度を持つため、生命科学や医療・創薬分野に応用されている。

次章以降では、各エネルギー領域の中性子発生とその応用の原理実証実験を、大阪大学レーザー科学研究所 LFEX レーザーで実施したので報告する。エネルギーの低い冷中性子から始めて、熱、熱外、高速中性子の順に成果を紹介する。

3. 冷中性子発生の原理実証実験

原子炉や加速器中性子源においては、極低温の物質で中性子を減速することで冷中性子を発生する。中性子は質量の近い水素との衝突で最も効率よく減速されるため、減速材としては固体または液体の水素やメタン等が用いられる。本研究³⁾では Fig. 1 に示した中性子源の直後に純銅製のセルを設置してクライオ冷凍機で冷却し、11 K の固体水素を生成して、ここにレーザー中性子を入射した。減速された中性子は3.4 m 後方に設置した ^3He 検出器による飛行時間分析法で計測した(Fig. 3)。計測はシングルショットで行われ、冷中性子は10 ms 以内に ^3He 検出器に到達する。得られたエネルギースペクトルから冷中性子領域まで冷却されたことが確認された。

実験時の LFEX レーザー出力は50%運転モードであったため、1次ターゲット上でのエネルギーは300 J、集光強度 10^{18} W/cm^2 、2次ターゲットからの高速中性子発生量は 4π で $\sim 10^9 \text{ n/shot}$ であった。これに対して発生した冷中性子は、減速材の直後(20 cm)において $\sim 10^3 \text{ n/cm}^2/\text{shot}$ 、 4π で $\sim 10^5 \text{ n/shot}$ であった。

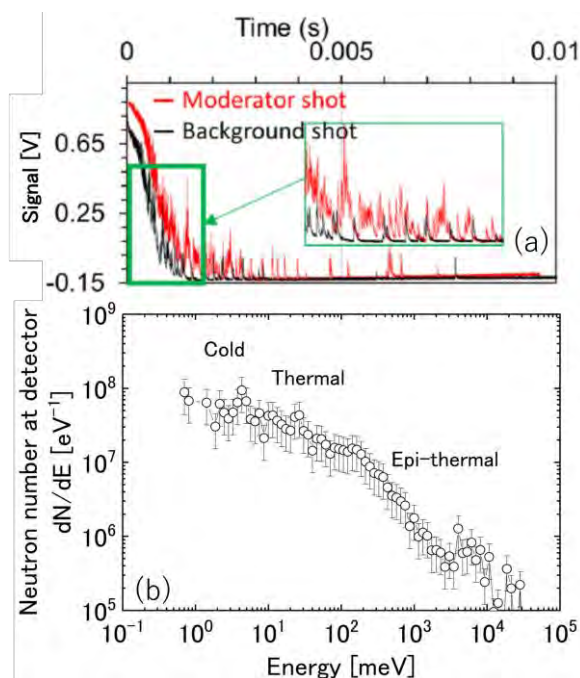


Fig. 3: The time-of-flight signal (a) and the energy spectrum (b) of neutrons from the solid hydrogen moderator³⁾. The figure (a) is adopted from Ref. 3).

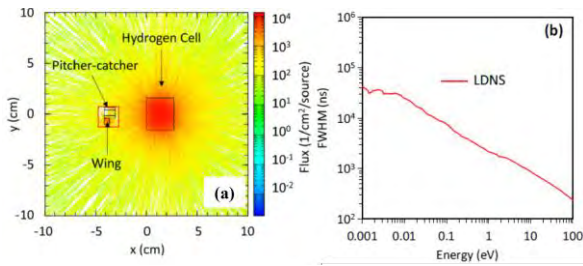


Fig. 4: The areal distribution of neutrons below 25 meV (a) and the pulse duration of neutrons at the exit of the solid hydrogen moderator (b) simulated by PHITS code. The figures are adopted from Ref. 3).

冷中性子の発生効率としては高速中性子の 0.01% となっている。冷中性子の発生効率を増やすためには、より体積の大きい固体水素減速材を配置すればよいが、一方で冷中性子の時間パルス幅が伸長される問題が生じる。これは、中性子の減速が原子核との多数回衝突による統計的過程であることに加え、冷中性子の速度 (~500 m/s) では数 cm の発生位置の違いが検出器において数百 μs の飛行時間差となることが原因となる。本研究では Fig. 4 に示すように、減速材の体積をできるだけ小さくすることで、短い中性子パルス幅を実現した。電荷を持たない中性子のエネルギー分析には飛行時間法が威力を発揮するが、短時間パルス性能は飛行距離の短縮や分解能

の向上に直接的に寄与する。本研究では 1 meV の冷中性子のパルス幅は 4 μs (FWHM) と評価され [Fig. 4 (b)], 2 桁程度が縮小された。

4. シングルショット熱中性子ラジオグラフィ

熱中性子は室温程度のエネルギーを持ち、ホウ素やカドミウム等の特定の物質によく吸収され、質量の近い水素の原子核による散乱確率が大きい。一方でアルミや鉄など構造材によく用いられる金属に対して透過力が高いため、X 線とは性質の異なるラジオグラフィ撮像が可能となる。本研究では、熱中性子と X 線を、同一のコンパクトな線源から、短時間パルスで同時に生成しシングルショットでラジオグラフィ分析が可能であるかを検証した。

熱中性子発生のための減速材としては、室温の高密度ポリエチレンを使用した。中性子画像の計測にはディスプロシウム (Dy) 転写法⁴⁾を用いた。これは ^{164}Dy が中性子を吸収して ^{165}Dy となった後、約 2 時間の半減期でベータ崩壊した時の電子画像を記録する手法である。 ^{164}Dy が中性子を吸収する確率は、1 eV 以上で急激に減少するため、それより高エネルギーの中性子による信号は極めて低い。また、本手法はポストプロセスであるため、レーザー照射に伴うバックグラウンドノイズの少ない画像を得ることができる。X 線画像は Dy のすぐ後ろに設置した X 線 IP に記録する。Dy からのベータ崩壊電子が記録されないよう、被覆を施してある。

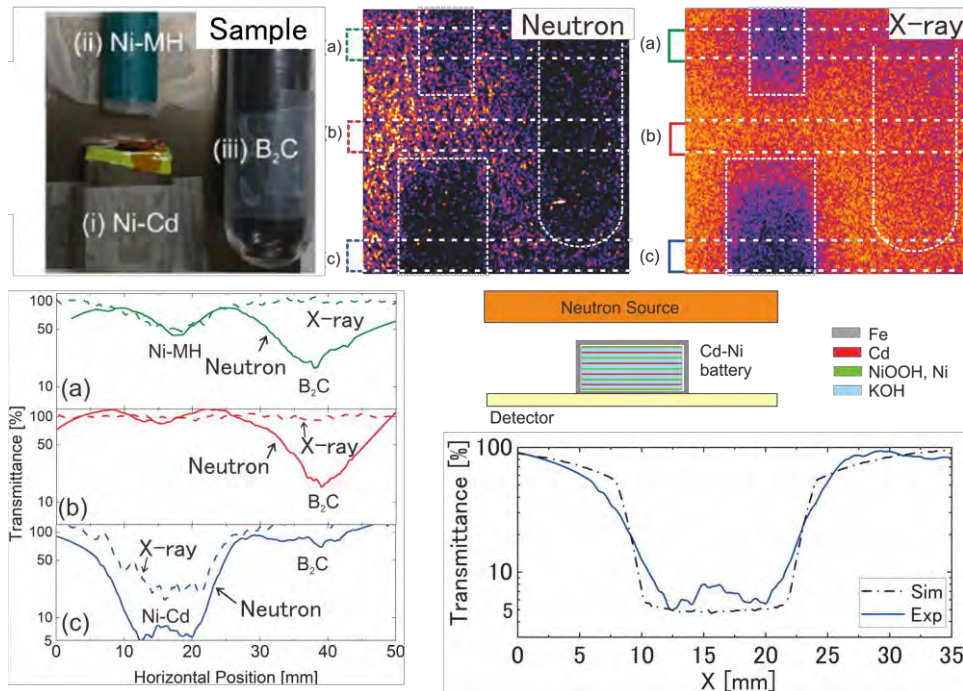


Fig. 5: (Upper) The samples used for the simultaneous radiography with thermal neutrons and x-ray and the experimental results obtained in a single laser shot. (Lower) The transmittance of neutrons and x-rays along the horizontal lines shown as (a-c) in the radiography pictures. The neutron transmittance for the Ni-Cd battery is compared with the simulation to analyze the thickness of the cadmium. The figures are adopted from Ref. 2).

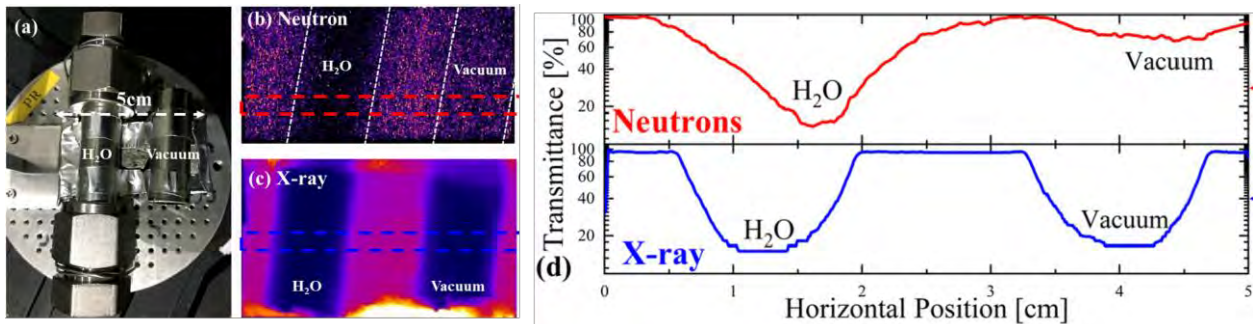


Fig. 6: (a) The picture of the stainless steel pipes, of which one is fulfilled with H₂O at 1 atm. and the another is opened in vacuum chamber. The images measured with thermal neutrons(b) and x-ray (c) obtained in a single laser shot. (d) Transmittances for neutron (red) and x-ray (blue) along the horizontal area surrounded by the dashed lines in the images. The figures are adopted from Ref.5).

Figure 5 にニッカド電池、ニッケル水素電池、炭化ホウ素粉末の 3 種類のサンプルを撮像²⁾した例を示す。炭化ホウ素は原子番号が小さいため、X 線の透過画像ではほとんど写らない。一方、カドミニウムは人体に有害であるため識別できることが期待されているが、X 線像では区別できない。一方、中性子で撮影した画像では、3 種類の試料が全て写っている。X 線画像に写らず中性子画像のみ写る物体の組成は、炭化ホウ素のような原子番号が小さい特定の物質であることが分かる。中性子の画像を詳細に分析すると、カドミニウムを含む充電電池の画像の中性子透過率が低くなっており、これはカドミニウムが中性子をよく吸収する性質を持つことと矛盾しない。Figure 5 に、実験で得られた中性子の透過率からニッカド電池内のカドミニウム厚さを評価した方法を示す。実線は中性子透過率の実験結果である。一点破線はシミュレーションであり、図に示すようなニッカド電池の構造を簡略したモデルを用いた。カドミニウムの厚さを 0.76 mm とした場合の計算結果が実験結果とよく一致した。この厚さはデータシートから得た値 (0.76±0.31 mm) と一致した。

さらに、ステンレス配管中の水をシングルショット撮像した結果⁵⁾を Fig. 6 に示す。一方の配管を空に、もう一方に 1 気圧の水を封入して、熱中性子と X 線で同時撮像した。X 線像では配管の影が撮像されたが、水の有無にかかわらず同程度の透過率を示す。一方、中性子画像では、水の入った配管のみに強い吸収が起こり、透過率が低下したため、水の有無を判別できる。X 線で金属配管などの構造物の形状を、熱中性子で水や油といった X 線では得られない水素の情報を、同時に短時間パルスで得られることが実証された。

1 気圧の水をシングルショットで検出できると、高圧水素ガスの透過検出に繋がる。燃料電池自動車への水素補給を迅速に終了するために、水素ステーションでは 82 MPa の高圧で水素ガスを供給する能力が求められている。Figure 7 に示すように、82 MPa の水素ガスと 1 気圧の水の水素密度は、ほぼ同程度であり、熱中性子で透過検出可能であることが分かる。透過率の変化から、水素の圧力をシングルショットで透過計測することで、水素機器や貯蔵・輸送システムの開発・信頼性向上技術に繋がる。

ットで透過計測することで、水素機器や貯蔵・輸送システムの開発・信頼性向上技術に繋がる。

5. シングルショット熱中性子共鳴吸収分析

中性子共鳴吸収分析では、共鳴エネルギーからサンプルに含まれる元素や同位体の種類を特定できる他、共鳴吸収ピークの形状から、厚さや密度、および温度を透過検出することが可能となる。これまでの中性子共鳴吸収分析は、加速器中性子施設⁵⁾において 10-20 m 程度の中性子ビームラインを用いて、数 10 分から数時間データを積算して計測されてき

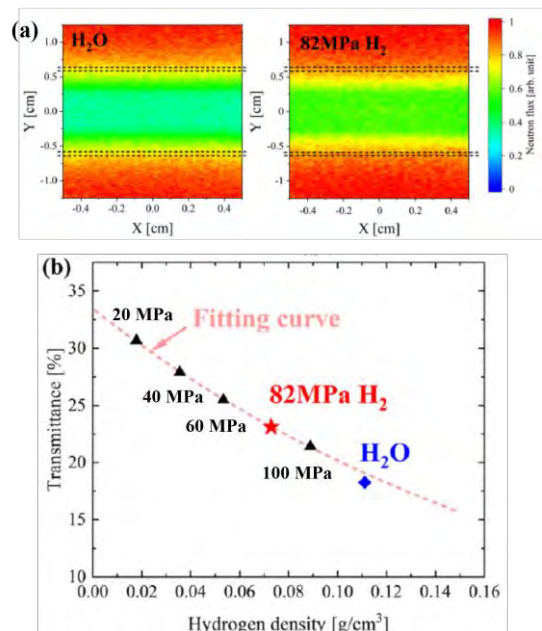


Fig. 7: (a) The simulated transmittance of thermal neutrons for the stainless steel pipes fulfilled with H₂O at 1 atm. and H₂ gas at 82 MPa. (b) The experimental neutron transmittance for the water compared with the simulated ones for H₂ gas as a function of the hydrogen density. The figures are adopted from Ref. 5).

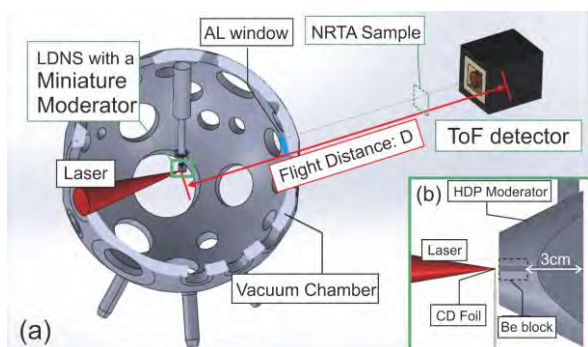


Fig. 8: (a) A setup of the neutron resonance spectroscopy by the LDNS at LFEX laser facility. (b) The miniature moderator.

た。レーザー駆動中性子源では、1-2 m のビームラインでシングルショット計測を可能とする。これを実験的に検証する。

Figure 8 に実験セットアップを示す。中性子源のベリリウムブロックに厚さ 3 cm の高密度ポリエチレンによる減速材を設置した。減速材の体積を小さくすることで短パルスの中性子をを得る手法であり、先に述べた冷中性子実験から得た知見である。減速材からの距離 $D=1.8$ m に ${}^6\text{Li}$ ガラスシンチレータと光電子増倍管による飛行時間検出器を設置して、中性子のエネルギー分析を行った。中性子の飛行経路に、銀、タンタル、インジウムの 3 種の板 (厚さはそれぞれ 0.1 mm) を設置して、透過した中性子を分析した。実験結果は未発表であるため⁷⁾、反応断面積を用いて解析した結果を Fig. 9 に示す。

本成果においてレーザー 1 ショットで発生する 1 中性子パルスで計測を完了した意義は大きい。中性子パルスの時間幅は、5 eV ($\pm 1\%$ 範囲) に対して約 600 ns であるから、この時間内に計測が完了したと言える。これは中性子共鳴吸収という原子核の情報をプローブできる手法が、これまで不可能としてきた時間領域に適応できることを示している。動作中の機器や高速現象を中性子で分析する手法に繋がる。

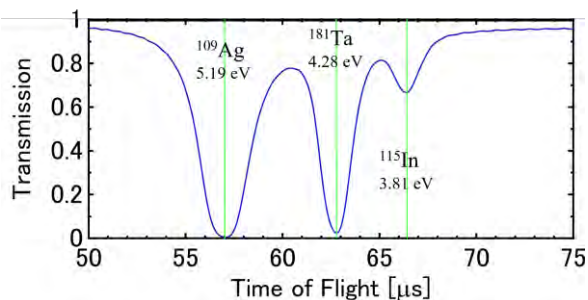


Fig. 9: The theoretical transmittance of neutrons indicating the dips attributed to the neutron resonance absorption.

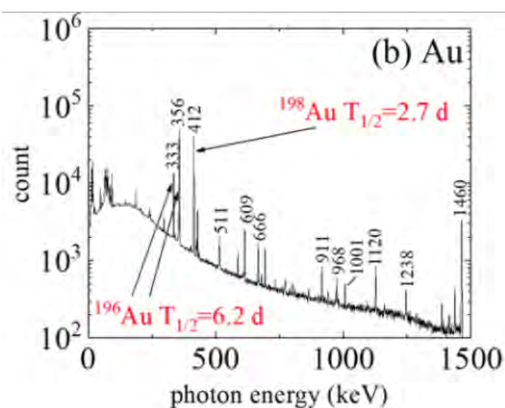
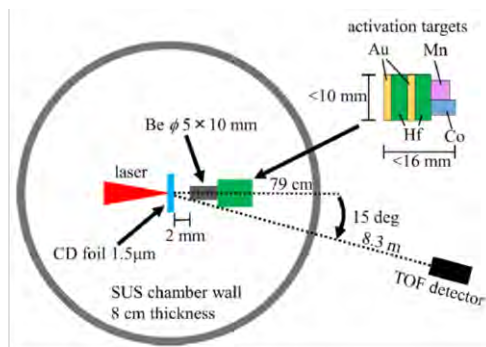


Fig. 10: (Upper) The experimental setup for the evaluation of fast neutrons via (n, 2n) reaction. (Lower) A typical γ -ray spectrum measured with high-purity germanium detector. The figures are adopted from Ref. 8).

6. 高密度中性子環境のシングルショット分析

レーザー駆動中性子源の直近での高速中性子 (1 MeV 以上) の密度は、1 ns 程度の短い時間幅で 10^{10-11} n/cm³ となる。瞬間的には、 10^{19} n/s/cm³ におよび、恒星内部の中性子フラックスに匹敵する。このような高密度中性子環境の実現は、これまでは実験が不可能であった恒星内部における連続的な中性子捕獲による元素合成過程の研究を可能とし、物質の起源の解明だけでなく、恒星の進化、銀河系における物質の進化の解明に必要なツールを提供する。従って、飛行時間検出器のように離れた位置での計測ではなく、レーザー駆動で実現される高密度状態の中性子を中性子源や減速材の内部で分析する手法が不可欠となる。

そこで本研究では、レーザー駆動中性子源の直近に特定の元素のサンプルを配置し、中性子照射後サンプルが放出する γ 線のエネルギーを分析することで、中性子量を評価する手法⁸⁾を開発した。

実験で用いた (n, 2n) 反応は、8 MeV 以上の高速中性子に対して高い反応断面積を持つため、8 MeV 以上の中性子数を選択的に評価できる。サンプルとして金、マンガンなど 4 種類の金属を設置して、中性子量のクロスチェックを行った。Figure 10 には代

表例として金サンプルの結果を示す。 $^{197}\text{Au}(n, 2n)^{196}\text{Au}$ 反応の結果、 ^{196}Au から放出される γ 線をエネルギーと半減期から特定し、レーザーショット時の中性子数を逆算した。その結果、8 MeV 以上の中性子数は、4 種のサンプルでよく一致し、中性子源の直近において $(4.3 \pm 0.5) \times 10^8$ n/cm² と評価された。この結果は、Fig. 1 に示す飛行時間法による中性子スペクトル計測とほぼ一致しており（ただし測定したショットは異なる）、飛行時間検出器の感度校正の妥当性を示すものである。

今後は本手法を応用して、宇宙核物理研究で重要とされる元素の生成や、中性子減速材構造の最適化研究などに応用する。

7. まとめと展望

本解説で紹介したシングルショット分析が必要とする中性子収量は、減速前の中性子源において $10^9\text{-}10^{10}$ n/shot であることが分かった。最近、高繰返しレーザーDraco-PW⁹⁾ で最大 60 MeV の陽子が加速されており、陽子スペクトルと中性子発生効率の文献値)から中性子発生数は 10^{8-9} n/shot と概算できる。10 ショット程度の積算で本解説と同様の 1 計測を完了できる。Draco-PW の 10 倍の出力となる ELI-NP¹⁰⁾ では高繰返しでシングルショット分析が可能となる。阪大で開発が進む 100 Hz パワーレーザーシステム¹¹⁾ を励起光源とすれば、大量かつ高速の計測が可能となり、中性子分析の世界をビッグデータ科学の領域に展開できる。ニュークリアフォトニクスの目指す方向がここに在る。

謝 辞

本研究は JST 研究成果最適展開支援プログラム (A-STEP) 産業ニーズ対応タイプ・コンパクト中性子源とその産業応用に向けた基盤技術の構築「レーザー駆動中性子源の開発と高速ラジオグラフィへの応用」 (AS2721002c) の助成により実施された。

参考文献

- 1) A. Yogo and A. Tamii: Butsuri 77 (2022) 55. (in Japanese) 余語覚文, 民井淳, 日本物理学会誌 77 号 No. 1, 55 (2022)
- 2) A. Yogo, S. R. Mirfayzi, Y. Arikawa, Y. Abe, T. Wei, T. Mori, Z. Lan, Y. Hoonoki, D. O. Golovin, K. Koga, et al.: Appl. Phys. Express 14 (2021) 106001.
- 3) S. R. Mirfayzi, A. Yogo, Z. Lan, T. Ishimoto, A. Iwamoto, M. Nagata, M. Nakai, Y. Arikawa, Y. Abe, D. Golovin: Sci. Rep. 10 (2020) 20157.
- 4) Kei TAKAKURA, Takayuki SAKO, Haruo MIYADERA, Kenichi YOSHIOKA, Yoshiji KARINO, Kohichi NAKAYAMA, Tsukasa SUGITA, Daisuke UEMATSU, Kohei OKUTOMO, Jun HASEGAWA et al.: Plasma and Fusion Research 13 (2018) 2406075.
- 5) T. Wei, A. Yogo, T. Hayakawa, Y. Arikawa, Y. Abe, M. Nakanishi, S. R. Mirfayzi, Z. Lan, T. Mori, K. Mima et al.: AIP Adv. 12 (2022) 045220.
- 6) B. Becker, S. Kopecky, H. Harada, and P. Schillebeeckx: Phys. J. Plus 129 (2014) 58.
- 7) A. Yogo et al., submitted to Phys Rev X
- 8) T. Mori, A. Yogo, T. Hayakawa, S. R. Mirfayzi, Z. Lan, Y. Abe, Y. Arikawa, D. Golovin, T. Wei, Y. Honoki, et al.: Phys. Rev. C 104 (2021) 015808.
- 9) T. Ziegler, D. Albach, C. Bernert, S. Bock, F.-E. Brack, T. E. Cowan, N. P. Dover, M. Garten, L. Gaus, R. Gebhardt, et al.: Sci. Rep. 11, 17 (2021).
- 10) K. A. Tanaka, K. M. Spohr, D. L. Balabanski, S. Balascuta, L. Capponi, M. O. Cernaianu, M. Cuciuc, A. Cucoanes, I. Dancus, A. Dhal, et al.: Matter Radiat. Extrem. 5 (2020) 024402.
- 11) Jumpei Ogino, Shigeki Tokita, Shotaro Kitajima, Hidetsugu Yoshida, Zhaoyang Li, Shinji Motokoshi, Noboru Morio, Koji Tsubakimoto, Kana Fujioka, Ryosuke Kodama, et al.: Opt. Lett. 4 (2021) 621.