

話題・解説 (I)

## 第53回(2020年度)日本原子力学会賞

### 論文賞

# J-PARCにおける弾き出し断面積に係る研究

日本原子力研究開発機構

J-PARC センター

明午 伸一郎

[meigo.shinichiro@jaea.go.jp](mailto:meigo.shinichiro@jaea.go.jp)

## 1. はじめに

近年の大強度加速器の発達により、その様々な工学的利用が展開されている。J-PARCでは、2000年より工学および物理研究のための様々な加速器施設の建設が行われて来た。これら施設の一つに、陽子をターゲットとなる原子核に入射し、その原子核が中性子や陽子などの核子を多数放出する核破砕反応を利用した核破砕中性子源である物質・生命科学実験施設(MLF)がある。核破砕反応において中性子生成数は、陽子ビームのエネルギーにビーム電流を乗じたビーム出力に比例するため、大強度の中性子を得るには高い出力を持つ大強度陽子加速器が必要となる。MLFは2008年に運転を開始し、既に陽子ビーム出力600kWの運転により大強度のパルス中性子ビームを利用者に安定供給しており、2020年には短期間ながら1MWの利用運転を行った。また、陽子ビームを入射したターゲットで生成するニュートリノやK中間子などのハドロンを利用した素粒子・原子核物理の実験が、ニュートリノ実験施設およびハドロン実験施設で繰り広げられている。

これらの実験施設はJ-PARCの一期計画と位置付けられ、2008年頃から利用運転が行なわれている。さらにJ-PARCでは、二期計画として加速器駆動システムの研究開発のための新たな実験施設[1]の建設を計画している。原子力発電所の使用済み核燃料には、燃え残ったウランなどの他に、核分裂反応や中性子捕獲反応等により生成した放射性物質が含まれる。これらの放射性物質の中には、人体に対する有害度や環境負荷が大きく半減期の長いNp, AmおよびCmなどのマイナーアクチノイドが存在する。これらを選択的に分離し、その物質の特性に応じて処理・処分できれば、使用済み核燃料からの環境負荷を大きく低減できる可能性がある。有害な元素を分離し、核反応により異なる元素に変換する技術を「分離変換技術」と称し、日本原子力研究開発機構(以下、原子力機構と略す)では、この技術の研究開発を進めている。分離変換技術の一環として、加速器と未臨界原子炉を組み合わせ、運動エネルギー

数 GeV の高エネルギーの陽子を鉛やビスマスなどのターゲットに照射し、発生した中性子によりマイナーアクチノイドを核分裂反応で連鎖的に核変換するシステムを「加速器駆動システム (ADS)」(図 1 参照) と称する。原子力機構が提唱する ADS [2] では、数 GeV かつ大強度 (ビーム出力 30 MW) の高エネルギー陽子ビームを鉛・ビスマスからなる液体金属ターゲットに入射し、核破碎反応により生成した中性子を未臨界となる原子炉を駆動する中性子源として利用する。J-PARC では、ADS のターゲットに関する研究開発を精力的に行っており、重要な課題の一つとして液体金属ターゲットのビーム入射部であり大強度陽子ビーム照射に耐えうるビーム窓の開発が挙げられる。

ADS のビーム窓は常に大強度陽子ビームに晒されるために、窓の放射線損傷評価が重要となる。また、J-PARC の既存の施設でもビーム窓は用いられており、MLF、ニュートリノ実験施設、およびハドロン実験施設において、それぞれ Al 合金、Ti 合金、および Be 等の金属が窓材料として用いられており、多岐にわたる金属元素の放射線損傷評価が重要となる。

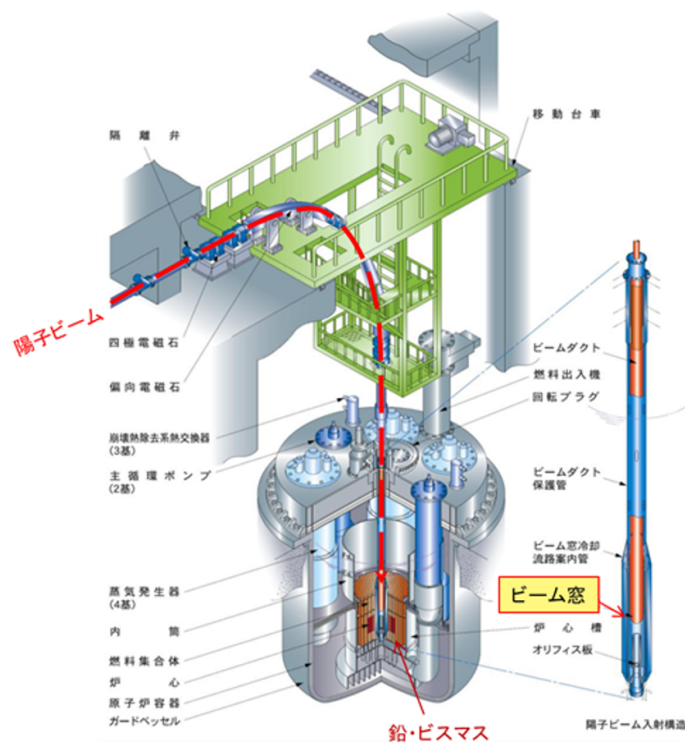


図 1 原子力機構が提案する加速器駆動システム (ADS) の概要 [2]

## 2. 材料損傷評価基準 (原子あたりの弾き出し数)

ビーム窓などの材料の放射線損傷の基準には、原子あたりの弾き出し数 (dpa) が広く用いられている。一般に、材料の照射による脆化などの効果は、dpa によってよく表されることが知られており、原子炉や核融合炉の構造材の評価にも dpa が用いられており、dpa は放射線損傷の基準 (物差し) となる。dpa は原子の弾かれやすさを表す「弾き出し断面積」 $\sigma(E)$  に、各粒子の強さ (フルエンス  $\phi(E)$ ) を乗じ、各粒子のエネルギー (E) に関し積分して導出

される。dpa は照射場における照射後材料の引張強度の振舞いなどをよく表すことが知られており、材料の損傷評価において重要な指針となる。

弾き出し断面積は dpa を評価する上で重要なものとなる。しかし、この測定データはほとんどなく、材料の専門家には dpa の値を架空的な指針として扱う研究者が多く存在した。筆者もそのように考えていた。筆者は、MLF における Al 合金製 (A5052) の陽子ビーム窓 [3] の開発者の一人であり、dpa の評価は損傷や機器の寿命を決定するのに重要であるが、測定はできないものと考えていた。しかし、2.1 節に記載のように弾き出し断面積は測定することができ、その考えは間違いであった。

ADS で特に重要な GeV エネルギー領域において弾き出し断面積の実験データはほとんど無く、dpa 計算結果の妥当性が評価できないという問題があった。特に、ADS のビーム窓はフェライト系耐熱鋼およびステンレス鋼などの鉄鋼製であるため鉄の断面積データが重要であるものの、これまでの研究では鉄に対して 20 MeV 以上のエネルギー領域で実験データが存在しなかった。このため、ADS 開発に必要なエネルギー領域および材料に対する実験データが全く無く、計算による損傷評価の妥当性や信頼性が検証できなかった。また、加速器の電磁石のコイルなどに用いる銅については、数 100 MeV の陽子に対する実験データは存在したものの、エネルギー依存の弾き出し断面積を計算する複数のモデル間で 3 倍程度の大きな違いがあった。このため、GeV 領域における弾き出し断面積の実験データの取得が喫緊の課題であった。

## 2.1 弾き出し断面積の測定

金属などの材料は、照射に伴うフレンケル対生成による欠損により、自由電子の動きが阻害され、電気抵抗が高くなる。個々の格子欠陥による電気抵抗の上昇は線形性が保たれ、欠陥の数に比例し抵抗は高くなる。この現象は、1862 年にマティーセンにより発見され、マティーセンの法則と呼ばれる。弾き出し原子 1 個で起きる電気抵抗の変化は他の研究により既知のため、陽子ビーム入射による電気抵抗の変化から、弾き出された原子の数を導出できる。物質の電気の流れにくさを表す電気抵抗率  $\rho$  [ $\Omega\text{m}$ ] は、一般的に導体の温度の関数となり、導体の断面積 ( $A$  [ $\text{m}^2$ ])、長さ ( $l$  [ $\text{m}$ ]) および抵抗 ( $R$  [ $\Omega$ ]) とすると、

$$\rho = RA/l, \quad (1)$$

となる。陽子エネルギー ( $E$ ) における弾き出し断面積 ( $\sigma(E)$  [ $\text{m}^2$ ]) は、照射後の試料の電気抵抗率の変化 ( $\Delta\rho$  [ $\Omega\text{m}$ ])、試料上の陽子平均フルエンス ( $\overline{\phi(E)}$  [ $\text{m}^{-2}$ ])、およびフレンケル欠陥当たりの抵抗率変化 ( $\rho_f$  [ $\Omega\text{m}$ ]) により、

$$\sigma(E) = \Delta\rho / (\overline{\phi(E)}\rho_f), \quad (2)$$

となる。 $\rho_f$  は電子線を用いた研究がされており、試料毎に分散があるものの約 20% 程度の精度で既知となる。

## 2.2 試料の冷却

試料の温度が極低温でない場合には、熱運動により損傷が緩和し、実際の陽子照射に伴う弾き出し断面積に起因する電気抵抗変化を正確に測定できない問題があった。Greene [4] らは、照射に伴う金属における電気抵抗の上昇の測定のために、米国ブルックヘブン国立研究所 (BNL) において液体ヘリウム冷媒を用いて測定を行った。液体ヘリウム冷媒を取り扱うためには、大型の装置が必要となる。大型装置の場合には、取り扱いが不便となり、また実験ができる施設が限定される。様々な加速器施設での実験遂行のため、岩元 洋介氏 [5] らは可搬型の小型冷凍機 (ギフォード・マクマホン (Gifford-McMahon: GM) 冷凍機) を用いた無冷媒による電気抵抗測定手法を開発した<sup>1</sup>。京都大学複合原子力科学研究所のイノベーションリサーチラボラトリにある固定磁場強収束加速器 (FFAG) を用いて、温度 12 K での 125 MeV 陽子照射による銅の数 nΩ 程度の微小な電気抵抗値変化の測定に成功した。

弾き出し断面積測定は、BNL でも測定が実施されたが、ビームの強度が弱く測定に時間を要し、またビームの安定性が十分で無いために、ビーム強度の測定の誤差は 20% 程度と大きい。弾き出しによる十分な電気抵抗変化を得るためには、試料に  $5 \times 10^{14}$  個程度の陽子を入射する必要があるが、J-PARC は世界最大級の強度を有する加速器施設のため、BNL の約千倍の強度となり、ビームによる試料温度の上昇を無視できればわずかな数発程度のビームパルスで簡単に測定ができる。また、試料の温度上昇を考慮し、ビーム強度を下げた場合でも、長時間の測定は不要となる。さらに J-PARC の加速器はビームも安定しており、数%程度の誤差でビーム強度を計測することが可能である。

J-PARC は中性子などの二次ビームを常時ユーザーに供給しているため、これを阻害する長時間の停止はできないが、本測定は僅か数分間の試料照射により弾き出し断面積を得ることができる。常に試料がビームに照射されると通常のビーム利用運転を阻害するため、利用運転時において試料をビームから退避することが要求される。このために本研究では試料の駆動装置を設け、照射時間を管理可能なものとした。

## 3. J-PARC における弾き出し断面積測定

### 3.1 実験のための準備

本研究の実験を行うのにあたり、新規の予算が必要であったので、原子力システム研究開発事業に「J-PARC を用いた核変換システム (ADS) の構造材の弾き出し損傷断面積の測定」として研究課題を申請した。J-PARC センターの標的関連の研究協力者を募り、材料、低温および弾き出し損傷の研究分野における専門家からなるチームを構成し応募に臨み、本研究課題が採択された。J-PARC では大強度陽子ビームを取り扱うため、大強度陽子ビームがもたらす危険性を考慮し特に慎重な安全性が要求される<sup>2</sup>。また、MLF などの利用運転に影響を与えないことが大前提となるため、真空中に全く問題ない準備も必要となった。試料の駆動機構が故障した際に、人力で確実に試料をビームから退避させるなどの、念入りの準備作業によりこの問題を回避した。

<sup>1</sup>本研究でも GM 冷凍機により、J-PARC での実験が可能となった。

<sup>2</sup>実験では、試料の温度上昇を防ぐため、微弱な強度のビームが必要となるものの、安全第一を徹底した。

安全性を考慮すると、比較的強度の低いビームを取り扱うビームダンプの直前に実験装置を設置するのが望ましい。しかしながら、既存の電磁石およびビームモニタ機器の配置により、この設置は困難であった。このため、1 MW の大強度ビームを取扱う MLF へ向かうビームライン上の設置を決定した。1 MW の大強度ビームが連続的に試料に入射すると、試料が大強度ビームにより溶融する可能性があるため、加速器のインターロックにより、大強度ビームを取り扱う場合には試料がビームに照射できないようにした。このため、放射線変更申請を行い、インターロックを変更した。この変更のため、著者は原子力規制委員会に赴き実験装置を説明した<sup>3</sup>。変更申請が認められ、2017 年より実験を開始した。

## 3.2 実験

本研究では、J-PARC の 3 GeV シンクロトロン加速器施設 (RCS) で加速された陽子ビームを用い、鉄や銅などの加速器構造材に用いられる元素の陽子に対する弾き出し断面積を測定した [6]。本研究では、鉄と銅などの金属試料に 0.4 ~ 3 GeV のエネルギーを有する陽子ビームを入射し、試料の電気抵抗変化から弾き出し断面積を導出した。

本研究では、小型の冷却機の中で、極低温で熱伝導率が小さい優れた絶縁体である窒化アルミニウム (AlN) に試料端部を固定し、陽子ビーム入射時の電気抵抗変化を測定した。抵抗測定のために、電流源 (Keithley 6221) およびナノ電圧計 (Keithley 2182A) からなる装置を用いた。試料に  $\pm 100$  mA の一定の電流を与え、生じる電圧により抵抗を測定した。試料のみの抵抗を測定するために、試料の端部にそれぞれ電流源と電圧の信号線を取り付け、さらに精度の向上のため 10 Hz の繰り返しで極性を切り換え平均化処理を行った。測定装置はビームラインの地下となるサービストンネルに設置し、ネットワークを通じてデータの読み出しを行う準備を整えた。試料の冷却時において抵抗を測定し、装置の動作状況を確認した。試料の抵抗は温度が下がるにつれ低くなり、微小の抵抗増加を観測する本測定において問題ないことを確認した。

試料には直径 0.25 mm および長さ 50 mm のワイヤーを用い、照射実験の前に試料を融点付近まで昇温し、欠損がほとんど無い状態とした。また、試料ワイヤー以外に陽子ビームが当たって引き起こされる不要な核反応が起こらないようにした (図 2 参照)。実験開始当初は、真空容器外部からの熱侵入を十分に防止できなかったため、試料の温度を 10 K 程度にしただけで冷却できなかった。冷却試験の試行錯誤の結果、熱侵入が少ない細い抵抗測定用ワイヤーや熱侵入を遮断するヒートアンカーの採用などにより、試料の温度を 4 K 程度にまで冷却可能となった。また、直径 0.25 mm の試料の中心に陽子ビームの位置を合わせる高精度なビーム制御技術が必要であったが、J-PARC で培った陽子ビーム制御・測定技術 [7] を最大限に活用することで、これを可能とした。試料に入射する電流密度は、試料付近に設置したビームプロファイルモニタにより導出した。

試料は水平方向に張ったワイヤーであり、わずかにビームの垂直位置が変位しただけでも測定結果に大きな違いを与えるため、ビーム測定が終了後に真空チェンバの位置を照射位置に移動し、最大の抵抗率増加を持つビーム位置を垂直方向のビームスキャンにより導出した。スキャンは 0.5 mm ピッチで行い、ビームショット毎に抵抗率増加を観測した。この結果、ビー

<sup>3</sup>本実験のために、ここまで必要であったとは、開始当初は夢にも思わなかった。

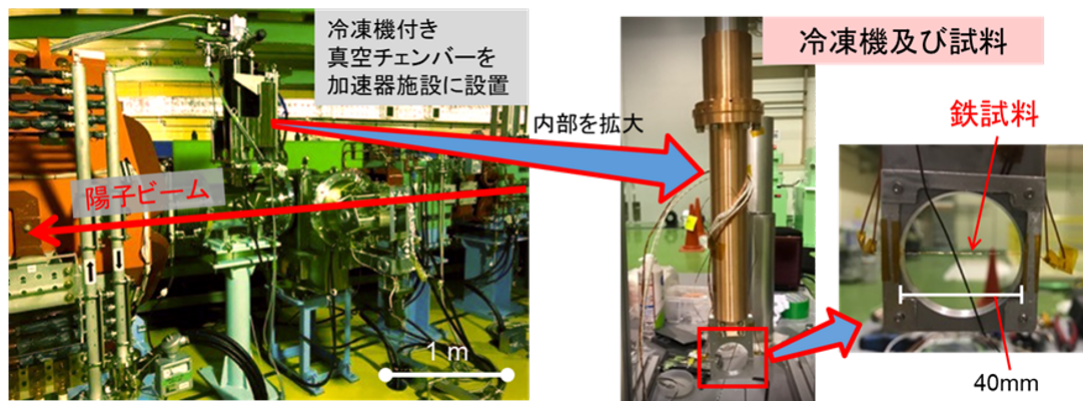


図2 J-PARCで実施した実験装置の概要（左図：3 GeV シンクロトロン加速器施設に設置した冷凍機付き真空容器，中央：冷凍機，右図：鉄試料）。

ム測定終了時より約1 mm上側に変位させた状態が最大の抵抗率増加を示したため、このビーム位置において弾き出し損傷断面積の測定実験を行った。

ビームスキャン後に、試料の抵抗や温度が安定するのを待ってビームを連続的に照射した。ショット当たり  $6.7 \times 10^{12}$  個の強度を持つ陽子ビームを0.4 Hzの繰り返しにより入射し、抵抗率増加を測定した。実験では、図3の横軸に示すように各サンプルの各陽子エネルギーに対し約5分間照射した。ビーム位置モニタおよびダンプ付近に設置したビームプロファイルモニタから、実験中のビーム軌道が $\pm 0.1$  mm以内で極めて安定していることを確認した。ビーム幅の測定結果より、試料に入射する陽子の平均フルエンスは約  $2 \times 10^{14} \text{ cm}^{-2}$  となった。

3 GeV陽子ビームを銅試料に入射にする際の、電気抵抗の測定結果を図3に、時間的な振る舞いとして示す。試料へのビーム導入により、一時的な温度上昇に伴う試料抵抗の増加が観測されたが、ビーム入射終了後の試料の冷却によって抵抗が減少した。試料の抵抗は温度に依存するため、ビーム入射前と同程度の温度となり抵抗が一定となる時間を待った。この結果、ビーム停止後の約5分後において試料抵抗が一定になり、ビーム入射前に比べ抵抗が  $0.2 \mu\Omega$  増加したことが観測された。この抵抗増加は、試料のビーム入射に伴う弾き出し損傷によるものとなり、抵抗増加を試料の長さを乗じ断面積で除した抵抗率の変化により、式(2)を用いて弾き出し断面積を導出した。

試料付近に設置した測温抵抗体による測定値も図3に示す。ビーム入射により試料ホルダー付近に設置したセンサーにより、温度が3.6 Kから4 Kまで上昇するのが観測された。試料の温度が高い場合には、ビーム入射により生じた損傷が残留せずに回復してしまうが、この程度の温度上昇ではビーム入熱による回復は無視できるほど小さいことが示された。

以上の工夫により、ADSで用いられる陽子ビームのエネルギー領域における鉄と銅の弾き出し断面積を測定し、特に鉄については世界初のデータとなった。

#### 4. 実験と計算モデルの比較検討

取得した弾き出し断面積を計算モデルによる断面積と比較した結果を図4に示す。放射線による材料の損傷評価は、近年の計算科学の進歩により飛躍的に発展しており、原子力機構

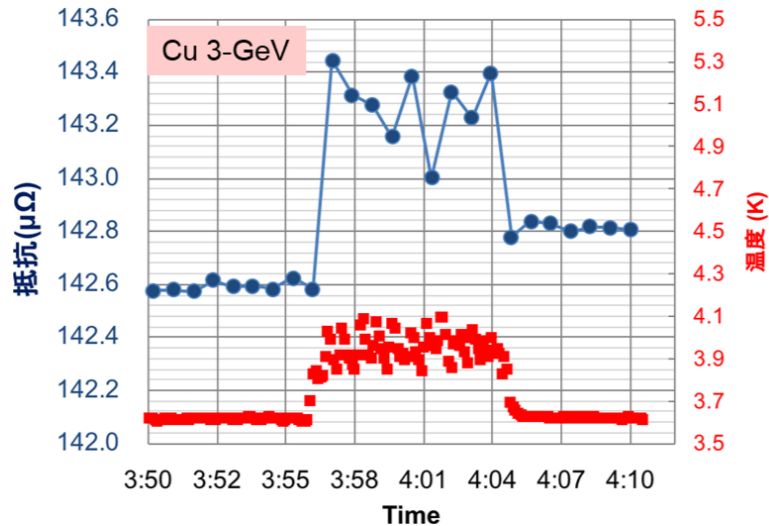


図3 陽子ビーム (3 GeV) の入射に伴う銅試料の抵抗と温度の測定結果。横軸に観測時刻を示し、抵抗および温度をそれぞれ青色および赤色のシンボルとして示す。ビーム入射に伴う弾き出し損傷により、抵抗が  $142.6 \mu\Omega$  から  $142.8 \mu\Omega$  への増加が観測された。

で開発を進めている PHITS コード [8] を活用した研究が進められてきた。弾き出し断面積は、低エネルギー陽子の場合にはクーロン散乱による弾き出しが支配的となり、エネルギーが高くなるにつれクーロン散乱の効果は減少し、核破碎反応などの原子核反応による二次粒子生成反応による効果が支配的となる。このため、弾き出し断面積の評価には、クーロン散乱と原子核反応の適切な評価手法が必要となる。本研究では、PHITS に原子の弾き出しモデルを組み込み [9]、弾き出し断面積を計算した。まず、原子炉の燃料被覆管や構造材、核融合炉などの材料の損傷評価にこれまで一般的に用いられてきた NRT モデル [10] との比較を行った。NRT モデルは考案者 (Norgett, Robinson, および Torrens) の頭文字の略称となり、計算値は 10 MeV 以下の陽子に対する実験値と比較的良好一致を示すことが知られていた。本実験データにおける数 GeV 領域のエネルギー範囲では、計算値は実験値の 2 ~ 3 倍であり、これまでの NRT モデルによる dpa 評価には問題があることが明らかになった。

最新の分子動力学法 (MD) に基づく評価では、弾き出された原子は低温状態であっても 10 ps 程度の極めて短い時間において、一定の割合で元の状態に戻る非熱的再結合を考慮した (Athermal Recombination Correction: arc) モデルの有用性が様々な研究により示唆されている [11]。そこで、arc モデルを PHITS コードに組み込み、弾き出し断面積を計算した。この結果、arc モデルの計算値は本実験値および先行研究となる低エネルギー領域における実験値 [4, 5, 12, 13] と良好一致を示した。低エネルギー領域において、NRT モデルと arc モデルの違いは少ないものの、エネルギーの増加とともに違いが顕著となる。この理由は、弾き出される標的原子や二次粒子のエネルギーの増加に従い、非熱的再結合の効果が高くなるためである。arc モデルの適用により、高い精度で材料の損傷評価が行えるようになった。

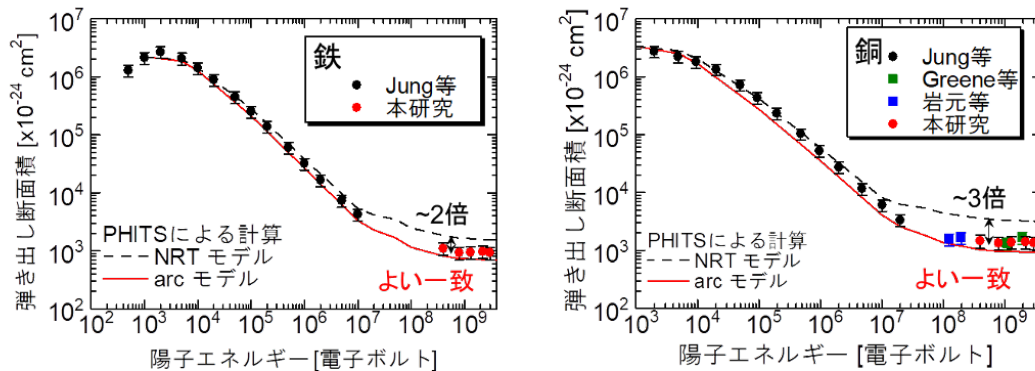


図4 本研究で得た鉄および銅の陽子に対する弾き出し断面積と、他の実験データ及び計算値との比較。PHITSコードにNRTモデルおよびarcモデルを組み込み弾き出し断面積との比較を示す。

## 5. まとめと今後の展望

本研究成果より、ADSのGeV領域の陽子ビームエネルギーにおける弾き出し損傷はarcモデルの適用により精度良く評価できることを示した。これにより、ADSのビーム窓のみならず、J-PARC実験施設のビーム窓やMLF核破砕中性子源の水銀ターゲットの鉄鋼製容器など、高エネルギー加速器施設で使われる材料の損傷を精度良く評価できるようになり、加速器施設の安全性向上に貢献した。既に、3 GeVまでの弾き出し断面積は、Al, Fe, Cu, Nb, およびWの測定を終了しデータの取得を行った。J-PARCのメインリングシンクロトロン(MR)において8および30 GeV陽子の測定データも取得した。2019年度に原子力システム研究開発事業を終了し、事後評価においてS評価という高い評価をいただいた。

今後において、米国のフェルミ国立研究所(FNAL)や欧州原子核研究機構(CERN)の加速器(SPS)を用い、さらに高いエネルギー領域の弾き出し断面積測定を行い、高エネルギー領域における損傷評価の研究を進める予定である。既にFNALの実験は、岩元洋介氏の「超高エネルギー領域に対応したはじき出し損傷モデルの構築」の研究課題が科研費に採択され、2022年に120 GeV陽子を用いて実験を行う予定である。また、CERNのHiRadMat施設に実験課題を申請し、2020年に実験課題として採択された。CERNのHiRadMat施設において、2023年に440 GeV陽子を用いた実験を行う予定である。

## 謝辞

本研究開発を進めるにあたり、共同研究者となる岩元洋介、松田洋樹、吉田誠、前川藤夫、岩元大樹、長谷川勝一、中本建志、石田卓、牧村俊助の各博士に感謝します。また、実験を進めるにあたり、J-PARCセンターの加速器ディビジョンを筆頭に、安全ディビジョンなど数多くの方の協力をいただき感謝します。実験装置の製作において、コミヤマエレクトロン(株)の方々には格別のご支援をいただきここに感謝します。原子力システム研究開発事業において研究推進に関し援助していただいた、原子力安全研究協会の方々にも感謝申し上げます。



本研究は、文部科学省の原子力システム研究開発事業による委託業務として、日本原子力研究開発機構が実施した「J-PARC を用いた核変換システム (ADS) の構造材の弾き出し損傷断面積の測定」による。

## 参考文献

- [1] 核変換ディビジョン, J-PARC 核変換実験施設 技術設計書 – ADS ターゲット試験施設 (TEF-T) –, JAEA-Tech. 2017-003 (2017).
- [2] Tsujimoto, K., et al., J. Nucl. Sci and Technol., 44, 483 – 490 (2007).
- [3] Meigo, S., et al., J. Nucl. Mater., 450, 141 – 146 (2014).
- [4] Greene G, et al. Direct measurements of displacement cross sections in copper and tungsten under irradiation by 1.1-GeV and 1.94-GeV protons at 4.7 K; (2004). Proc. of 6th Int. Meet. on Nucl. Application of Accel. Tech. (AccApp'03), Ja Grange Park, Illinois, USA.
- [5] Iwamoto, Y., et al., J. Nucl. Mater., 458, 369 – 375 (2015).
- [6] Matsuda, H., et al., J. Nucl. Sci and Technol., 57, 1141 – 1151 (2020).
- [7] Meigo, S., et al., Phys. Rev. Accel. Beams, 23, 062802 (2020).
- [8] Sato, T., et al., J. Nucl. Sci and Technol., 55, 684 – 690 (2018).
- [9] Iwamoto, Y., et al., Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. A, 27, 57 – 64 (2012).
- [10] Norgett, M., Robinson, M., Torrens, I., Nucl. Eng. Des., 33, 50 – 54 (1975).
- [11] Nordlund, K., et al., Nat. Commun., 9, 1084 (2018).
- [12] Jung, P., J. Nucl. Mater., 117, 70 – 77 (1983).
- [13] Iwamoto, Y., et al., J. Nucl. Mater., 508, 195 – 202 (2018).