特集 広がる加速器の利用 中性子

加速器を用いた中性子源

鬼柳 善明*

Accelerator Driven Neutron Sources

Yoshiaki KIYANAGI*

Abstract

Recently, accelerator driven neutron sources have become major for neutron experiments. Neutron scattering is most active field in the neutron applications. Furthermore, boron neutron capture therapy (BNCT) is another field recently activated in Japan. Such background accelerated the construction of accelerator driven neutron sources and there already exist neutron sources from compact (\sim few kW) to large scale (\sim MW) ones. To produce neutrons various kinds of reactions have been used depending on the accelerated particle energy and type. Here, neutron production reactions and neutron moderator system are introduced, which are used for the accelerator driven neutron sources.

1. はじめに

加速器をベースにした中性子源が最近は主流と なってきている. それも, これまで大型化だけを 目指していたものが、J-PARC 中性子源が完成し たあたりから、中小型加速器中性子源の計画・建 設も進められるようになった. 中性子は産業利用 や物性研究に用いられることが多いが、その場合 には日常的に中性子実験ができる環境が必要であ ることが強く意識されるようになったからであ る. 現在, 世界最強の中性子源としてヨーロッパ の ESS (European Spallation Neutron Source) が建設中であるが、その後の計画としては、より 目的を絞った中型加速器中性子源の計画がいくつ か提案されている. 日本は小型加速器中性子源で は世界に先んじており、北大をはじめとする小型 中性子源が活発に利用されている. このように、 小型から大型までの加速器中性子源が必要とされ る時代になってきている. 中性子強度と中性子応 用分野について大まかに纏めたものを図1に示 す. 中性子イメージングや中性子検出器テストの ような用途には 10¹¹ n/sec 以下の中性子発生量で も可能であるが、回折などの中性子散乱実験を行 おうとする場合には 10¹² n/sec 以上の中性子強度 が望まれる. これは基本的にパルス中性子源を ベースに考えたもので,連続ビームの場合には, エネルギー選別が必要となるため,より強度の高 い線源が必要となる. 但し,通常の中性子イメー ジングやボロン中性子捕捉療法 (BNCT) ではパ ルスである必要はない. 小型と大型では中性子発 生方法も異なるものが使われる. ここでは,中性 子の発生方法,中性子減速材体系について紹介す る.



図1 発生中性子強度と実験可能項目 KUANS (京大), HUNS (北大), RANS (理研), KUR-L (京大炉)の中性子源

^{*} 名古屋大学工学研究科 Graduate School of Engineering, Nagoya University (E-mail: kiyanagi@phi.phys.nagoya-u.ac.jp)

2. 中性子発生方法

中性子は天然には存在しないので,比較的低い エネルギーで起きる核反応や結合エネルギー以上 のエネルギーを核に与えることによって核内にあ る中性子を引き出すことになる.加速粒子として は電子,陽子,重陽子が主として用いられてき た^{1,2)}.

図2に種々の中性子発生核反応における粒子エネルギーと発生中性子数を示す.最も低いエネル ギーで効率良く中性子を発生するには、重水素を 使うのが良い.

この図には載せていないが,核融合反応として 知られている d-T, d-d 反応が図に出ていないエ ネルギーで起きる.

 $^{2}\text{H}+^{3}\text{H} \rightarrow ^{4}\text{He}+n+17.59 \text{ MeV}$

 $^{2}\text{H}+^{2}\text{H} \rightarrow ^{3}\text{He}+n+3.27 \text{ MeV}$

入射粒子のエネルギーが発生エネルギーに比べ て無視できるときは、d-T 反応で発生する中性子 のエネルギーは 14.1 MeV であり、d-d 反応では 2.45 MeV となる. コッククロフトウォルトン型 加速器などを用いて、核融合中性子研究に用いら れてきた. また、中性子発生管として、この反応 を用いた市販品もある. 100 ~ 200 kV 位の粒子 エネルギーで用いられるが、この場合、前者の反 応は後者の約 100 倍の強度となり、10⁷ ~ 10⁹ n/ sec 位の強度を出す. 中性子発生ターゲットは d や T を吸蔵した金属を通常用いている.



図2 粒子エネルギーと発生中性子強度

また,数 MeV 以下では,d-Li や d-Be 反応の 効率が良い.重水素を用いた発生反応は以下の通 りである.

 $\label{eq:approx} {}^{7}\text{Li} + d \rightarrow {}^{8}\text{Be} + n + 15.03 \, \text{MeV} \\ {}^{7}\text{Li} + d \rightarrow 2{}^{4}\text{He} + n + 15.12 \, \text{MeV} \\ {}^{7}\text{Li} + d \rightarrow {}^{5}\text{He} + {}^{4}\text{He} + 14.17 \, \text{MeV} \\ {}^{5}\text{He} \rightarrow {}^{4}\text{He} + n + 0.96 \, \text{MeV} \\ \end{array}$

一方, Be の場合は次のように表される.

 ${}^{9}\text{Be} + d \rightarrow {}^{10}\text{B} + n + 4.36 \text{ MeV}$

¹⁰B にも励起レベルがあるので,いずれも,エ ネルギースペクトルは広いものとなる.

さらに,エネルギーが高くなると陽子反応の効 率が良くなる.反応は下記の通りである.

 $^{7}\text{Li} + p \rightarrow ^{7}\text{Be} + n - 1.65 \text{ MeV}$ $^{9}\text{Be} + p \rightarrow ^{9}\text{Be} + n - 1.85 \text{ MeV}$

Be をターゲットとした場合は、エネルギーが 高くなると別の反応チャンネルが開くために反応 形式は複雑となる、これらの反応の闘エネルギー は、Liでは1.88 MeV、Beでは2.06 MeV とと もに低い. 陽子エネルギーが低い所では, Liの 方が高強度なので、Liをターゲットとする方が 良い. エネルギーが高くなると Be をターゲット とする方が良くなる. 陽子エネルギーによって発 生中性子のエネルギー分布は変化する. Li は融 点が低いことと化学的に活性であることなどのた め,加速器パワーが大きい場合,長時間,安定し て使用できるターゲットを作成することが簡単で はない、中性子捕捉療法のための中性子源がこの 反応を利用して計画,建設されている.また,両 者とも陽子がターゲット内にたまってブリスタリ ングを引き起こすことが問題となる³⁾、特に、陽 子エネルギーが低いときは、ターゲット中のレン ジが数十から数百 µm と短いため、ターゲットを 厚くするとターゲット中でブリスタリングが起き る。それを避けるためターゲット層を中性子発生 に必要最低限とし、その後ろに水素拡散性が高い 物質を接合するような形状のターゲットが作られ ている³⁾. 陽子エネルギーが高くなると, Be を 厚くでき、そのまま構造材として使うことができ るため、Beの裏を直接冷却でき、陽子を直接冷 却水中で止めることができるため、ターゲット構

造も簡単となる.

粒子エネルギーが 20 MeV 位を超えてくると電 子を用いた中性子発生効率も高くなってくる. 巨 大共鳴とよばれる大きな中性子発生断面積が、こ のあたりのX線エネルギーから始まるからであ る. この反応は二段階となる. 物質中に電子が入 射すると、制動放射によるX線が発生する.こ のX線が原子核に入射して、原子核全体にエネ ルギーを与え、蒸発過程で中性子が発生する. こ れは、水分子が沸点以下で蒸発するのと似たイ メージである. 即ち, (e, X), (X, n) 過程で中性 子を発生する. これを光核反応という. 原子核内 に含まれている中性子の数が多い方が良いので, 一般に鉛やタングステンなどの重金属をターゲッ トとして用いる. ウランを用いると核分裂反応が 加わるために倍の強度となる.しかし、維持管理 が大変になるため日本では使われていない.発生 中性子のエネルギー分布は、1~2 MeV にピー クをもったスペクトルで、核分裂反応のものに近 い. 電子加速器では中性子発生を µ 秒あるいはそ れ以下の短時間に行えるパルス運転が容易に行え る. 中性子発生の時間を原点として, 中性子の飛 行時間を測定することによって、中性子速度を決 定する飛行時間法を高分解能でできる長所があ る. 陽子加速器ではµ秒オーダーの短パルス化が 容易でないため、高エネルギー中性子の飛行時間 測定には向かない.

さらにエネルギーが高くなると核破砕 (Spallation)反応が起きるようになる.この反応 でも、核内中性子数が多い、W、Ta、Hg などの 重金属がターゲットとして用いられる.陽子1個 あたりの中性子発生数 Y(E, A)は、近似的に次 式で表される⁵⁾.核破砕反応の闘エネルギーを 0.12 GeV と仮定している. E は陽子のエネルギー (GeV)、A は質量数である.

Y(E, A) = 0.1 (E - 0.12) (A + 20).

1 GeV の陽子 1 個が入射した場合,約 20 個の 中性子が発生する.1 kW の粒子パワーで発生す る中性子数は,核反応や低エネルギー陽子では約 $2 \sim 3 \times 10^{12}$ n/sec,原子炉で約 3×10^{13} n/sec, スポレーション中性子源では約 2.6×10^{14} である. 核破砕反応は電子加速器や低エネルギーの陽子に よるものと比較すると,約 100 倍の発生効率に



図3 核破砕反応および核分裂で発生する中性子のエネル ギースペクトル

なる.これが、J-PARC などの大型加速器中性子 源がこの反応を利用する理由である. 陽子エネル ギーが高くなると、そのターゲット中でのレンジ が長くなり、数十 cm 必要となる。当然、加速器 パワーが上がると徐熱も大変になる. J-PARC で は水銀ターゲットを用いているが. 瞬間的沸騰に 伴ってできる圧力波によりピッティング(ター ゲット金属表面に穴が空くこと)が問題となって きている.入射陽子エネルギーが非常に高いため に発生する中性子エネルギーも高いと思われがち であるが、ここで発生する中性子の 90%位が蒸 発中性子であるので、電子を用いて(X, n)反応 で発生する中性子のスペクトルと殆ど同じとな る. 異なる点はスペクトルが入射陽子エネルギー まで裾を引くことである. 図3にそのエネルギー スペクトルを示す⁶⁾.

3. 中性子減速材システム

加速器中性子源で発生する中性子は、多くの場 合、数百 keV ~ MeV 位のエネルギーである.中 性子断面積測定などでは、MeV からそれ以下の 中性子を利用する.また、ボロン中性子捕捉療法 では、奥までの治療を考えて 0.5 eV から 10 keV が推薦されている³⁾.しかし、中性子散乱実験で 物質構造や運動状態を調べるときには、中性子波 長やエネルギーがそれに合うものとしなければな らない.また、この用途が非常に多く、日本の J-PARC 中性子源、アメリカの SNS なども、これを 主目的にしている.必要なエネルギー領域は、1 eV オーダーから µeV まで非常に広い.そのために、



減速材を用いて中性子を減速する必要がある.減速材の他に中性子を有効に利用するために反射体も設置する. 図4に北大中性子源 HUNS での中性子減速材システムを示す⁷⁾.数 meV 以下の中性子,即ち冷中性子を多く出すための中性子源であるため,冷媒ガスの熱交換器もついているのが熱中性子減速材と違うところである.いずれにしろ,ターゲットの側に近づけて減速材を置く.ビーム取り出し孔を除いて反射体を設置する.減速材と反射体の間にデカップラーという熱中性子吸収体を設置することもある.反射体としては,Beが優れているが,高価なため黒鉛が用いられることも多い.以下に減速の原理と減速材について説明する.

3.1 中性子減速の原理^{8,9)}

分子や結晶の結合エネルギーより中性子エネル ギーが十分高い領域では、中性子にとって相手元 素は個々に自由に動いているように見える.そこ では、中性子は減速材物質と衝突を繰り返しなが ら、玉突きの原理でエネルギーを失っていく.こ のような条件のとき、1回散乱の衝突前のエネル ギー E_1 と衝突後のエネルギー E_2 の比は、衝突前 の速さを v_1 、衝突後の速さを v_2 とすると、次の ようになる.

$$\frac{E_2}{E_1} = \frac{v_2^2}{v_1^2} = \frac{A^2 + 2A\cos\theta + 1}{(A+1)^2}$$

ここで, θは重心系における散乱角, Aは中性 子との質量比で,ほぼ質量数と同じである. さら に分かり易くするために変形して以下の式を求め る.

$$\frac{E_2}{E_1} = \frac{1}{2} \left[(1+\alpha) + (1-\alpha)\cos\theta \right]$$

ここで $\alpha = \{(A-1) / (A+1)\}^2$ である. これ から,1回の衝突で到達する最低エネルギー $E_{\min} = \alpha E_1$ であることが容易にわかる. 従って, α が小さい物質,即ち質量数が小さい物質が良い. 特に,軽水素は α がゼロであるため,中性子は水 素との1回の衝突で,すべてのエネルギーを失う 確率を持っている.2 MeV から1 eV まで減速す るのに必要な平均衝突回数は,水素では平均14.5 回,重水素では20回となる.

パルス中性子では,飛行時間法によってエネル ギー分析を行う.その場合,原点となる時間の誤 差をもたらす大きな要因として,同じエネルギー まで減速されるまでに要する時間のバラつき,即 ち時間分布がある.時間分布が広がらない,即ち 早く減速できる物質が良い減速材となる.そこで, 減速に要する時間を考えてみる.あるエネルギー に到達するのに要する衝突回数をn, k回目の衝 突での飛行時間を t_k とすると,減速に要する時間 t_m は,次のように表される.

$$t_{m} = \sum_{k=1}^{n} t_{k} = \sum_{k=1}^{n} \lambda_{k} / v_{k} \propto \sum_{k=1}^{n} (\sum_{t} v_{k})^{-1}$$

ここで、 λ_k , v_k は k 回目の衝突間の飛行距離 と速度を示す. 最後の式では, 衝突間の飛行距離 は、平均してマクロ全断面積 Σ_t(ミクロ断面積に 原子数密度を掛けたもの)の逆数(平均自由行程) に比例すると仮定している.従って、減速に要す る衝突回数が少なくて, 平均自由行程が短い物質, 即ち散乱断面積が大きい物質が短時間で減速でき ることになる、このことは、中性子が広い領域に 拡散していかないこと、即ち、減速材中の中性子 密度が高くなることも意味している. 当然, 中性 子吸収は小さい方が良い.軽水素は低エネルギー で20.4 バーンという大きな断面積を持っている. この値は重水素の約6倍である。従って、必要衝 突回数も少なくて、さらに平均自由行程も他と比 べて圧倒的に短いという優れた性能を持ってい る. 重水素は吸収が少ないというメリットがある ため、中性子経済の点では優れているが、中性子 が広く分布するため、空間分布のピーク強度では 軽水素に劣る.また,放出時間分布は圧倒的に軽 水素の方が短い.そのため,パルス中性子源では 軽水素含有化合物が用いられる.熱中性子減速材 では,軽水かポリエチレン((CH₂)_n)が用いられ る.ポリエチレンは強放射線場で炭化するので, あまり放射線場が強い所では用いない.減速材の 大きさは,約10×10 cm²の断面で5 cmの厚さ である.厚さは最大強度となる最適厚さがこれく らいになる.断面を大きくすれば,その分強度も 増えるが,それは実験の要請に依存して決められ る.

3.2 冷中性子減速材

エネルギーの高い所では前節で述べたような過 程で中性子は減速する.しかし,減速材温度に近 くなると,そのエネルギーに相当する運動モード を持っていることが必要になる.室温程度では, 減速材物質の温度に中性子エネルギーが近づいて きても,中性子と相互作用してエネルギーのやり 取りができる運動モードがある物質が多い.一方, 20 K付近で使用する冷中性子減速材では,この ような低エネルギーの運動モードを持っている物 質は,それほど多くない.**表1**に主な減速材物質 のリストを示す.

これまでの研究で固体メタンが最も優れた冷中 性子減速材であることがわかっている¹⁰. この 物質は分子回転が殆どフリーであり,そのエネル ギーレベルも1.3 meV と低いからである. しか し,放射線損傷のため大型中性子源では使用でき ない. そのため強度を増やすため,デカップラー を外し,前置減速材をつけた結合型減速材を開発 した. これによって,時間分布の大きな広がりが 起きると思われていたが,それがそれほどではな く,実験に使える範囲であること,図5に示すよ うにスペクトル強度は固体メタンと同程度で,そ れまでのデカップラーを使っていた場合に比べて

表1 中性子減速材として用いられる物質

物質	水素数密度*	使用温度	融点	沸点	使用施設
H_2O	6.7×10^{22}	室温	273 K	373 K	HUNS, ISIS, SNS
(CH ₂),	8.2×10 ²²	室温			HUNS, RANS, KUANS
CH_4	7.8×10^{22}	20K, 105K	99.6 K	112K	ISIS, (HUNS)
H_2	4.5×10^{22}	$\sim 15 \mathrm{K}$	20.4 K	14.7K	ISIS, J-PARC, SNS
C_9H_{12}	5.2×10^{22}	室温~20K	229 K	437 K	HUNS, (HUNS)
*	0				

*#/cm³

6 倍の強度増が得られることがわかった⁷⁾. J-PARC ではこれが使用されており,世界最高効 率の冷中性子源となっている.また,小型線源で は,メタンあるいはメジチレン C₉H₁₂が使われる. メジチレンはベンゼン環にメチル基が飛び飛びに 3 個ついたもので,このメチル基の回転による減 速を期待している.しかし,冷中性子強度は他の 二つより落ちており,低温ではメチル基の回転が 効果的には効いていないことがわかる.ただ,爆 発物でないためメジチレンを使うことが多い.

4. ボロン中性子捕捉療法減速材の考察

医療照射に使用する中性子源であるため、熱外 中性子(0.1 eVから10 keV)の強度が1×10⁹ n/ cm²/sec 以上というだけでなく、治療の観点から害 となる高速中性子やγ線の寄与を基準値以下に抑 えなければならないという条件が課されている³⁾. パルスである必要はないので、その点については 楽になるが、これらの条件のため、物理実験中性 子源よりは設計が格段に難しくなっている. 使わ れる加速粒子は、これまでのところ、陽子が殆ど である. 3 MeV 程度では Li をターゲットに 10 MeV に近くなると Be を使い出すという棲み分け である、熱外中性子発生が目的なので、軽水素、 重水素は減速が強すぎて効果的ではない. それで、 比較的軽めの元素で有効な減速材物質としてFを 含んだ MgF₂, CaF₂ などが使われている. F は 0.1 MeV 位から非弾性散乱断面積が立ち上がり、そ れも減速を効果的にしている. 陽子エネルギーが 10 MeV 近くなってくると発生する高速中性子を 減少させるために、フッ化物とターゲットの間に



図5 水素,メタン,メジチレンのスペクトル強度の比較

加速器を用いた中性子源



図6 日本の加速器中性子源(散乱とBNCT)

Fe を入れる. さらに装置の放射化も考慮に入れ た設計も必要とされてきており,総合的観点から の設計が望まれている. また,頭頸部など浅い所 の癌では熱中性子の方が有利なので,部位に合わ せた設計も必要である.

現在安定に稼働しているものは, 30 MeV サイ クロトロンの装置だけであり¹¹⁾, その他のもの は現在開発中という段階である.

5. おわりに

中性子利用は散乱実験が依然として主な用途で ある.しかし,産業界からは,イメージングの希 望も多く寄せられるようになり,また,使い易い 小型中性子源の利用が望まれている.また,ボロ ン中性子捕捉療法も日本から世界へと広がってい く様相を見せている.小型加速器の利用では,中 性子強度のみならず,維持管理を含めた運転経費, 放射化の問題など多方面から見た最適化が必要で ある.今後,ユーザーにとってさらに使い易い加 速器が出てくることを期待したい.

加速器中性子源に関する協力組織として、日本 加速器中性子源協議会,JCANS (Japan Collaboration on Accelerator driven Neutron Sources)が組織されており、産業界の人も含め て小型中性子源の設計・製作や施設利用について の議論を行っている.また、そのコンサルタント も受けている.興味のある方は下記 URL でその 活動を覗いてみて頂きたい[†]. 最後に, 日本の加 速器中性子源について纏めたものを図6に示す. BNCT と理工応用も考えた多目的施設も調整・建 設中である.

参考文献

- 1) K. H. Beckurts and W. Wirtz, Neutron Physics, Springer-Verlag (1964).
- 2) 鬼柳善明(分担執筆),原子力・量子・核融合の事 典,工藤和彦編,丸善出版(2014).
- 3) IAEA-TECDOC-1223, "Current states of neutron capture therapy", IAEA (2001).
- 4) Y. Yamagata et al., J. Radioana. Nucl. Chem. 304, pp. 787-794 (2015).
- 5) J. M. Carpenter and W. B. Yelon, Neutron Source, in Method of Experimental Physics, edited by K. Sköld and D. L. Price, Chapter 2, Academic Press Inc., (1986).
- 6) 鬼柳善明, パルス中性子入門, 中性子科学会誌「波紋」, Vol. 11, No. 2, pp.40-44 (2001); Vol. 11, No. 3, pp.16-21 (2001).
- 7) Y. Kiyanagi, N. Watanabe and H. Iwasa, Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A343, pp.558-562 (1994).
- 8) J. J. ドゥデルスタット・L. J. ハミルトン著,成田 正邦・藤田文行共訳,原子炉の理論と解析,現代 工学社 (1980).
- 鬼柳善明(分担執筆),量子ビーム物質科学(KEK 物理学シリーズ第6巻),共立出版(2013).
- K. Inoue, N. Otomo, H. Iwasa and Y. Kiyanagi, J. Nucl. Sci. Tech. 11, pp.228-229 (1974).
- 11) H. Tanaka et al., Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B267, pp.1970-1977 (2009).

[†] http://jcans@phi.Phys.nagoya-u.ac.jp