0.4 – 3 GeV 領域の陽子の弾き出し断面積測定

MEASUREMENT OF DISPLACEMENT CROSS SECTION OF PROTON FOR 0.4 – 3 GEV

明午 伸一郎 *A)、松田 洋樹 A)、岩元 洋介 A)、前川 藤夫 A)、岩元 大樹 A)、長谷川 勝一 A)、
吉田 誠 B)、中本 建志 B)、牧村 俊助 B)、石田 卓 B)
Shin-ichiro Meigo* A), Hiroki Matsuda A), Yosuke Iwamoto A), Fujio Maekawa A), Shioichi Hasegawa A),
Yosuke Iwamoto A), Makoto Yoshida B), Tatsushi Nakamoto B), Shunsuke Makimura B), and Taku Ishida B)
A) J-PARC Center Japan Atomic Energy Agency (JAEA)
B) J-PARC Center High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

Abstract

For the damage estimation of structural material utilized in the accelerator facility, displacement per atom (DPA) is widely employed as an index of the damage calculated based on the displacement cross section obtained with the calculation model. Although the DPA is employed as the standard, the experimental data of displacement cross section are scarce for a proton in the energy region above 20 MeV. Among the calculation models, the difference about 8 times exists so that experimental data of the displacement cross section is crucial. To obtained the displacement cross section, an experiment has started in J-PARC. As a preliminary result, the displacement cross section of copper was successfully obtained for 3-GeV proton, which is the first experimental data in the world above 2 GeV. The present results showed that the widely utilized NRT model overestimates the cross section as suggested by the previous experiment in the lower energy region.

1． 序論

1 MW を超えたマルチ MW のハドロン加速器の様々な応用が日本のみならず諸外国でも提案され、ビーム出力増大するにつれ、標的及びビーム窓などの構造材における損傷評価や寿命予想が重要となる [1]。日本原子力研究開発機構 (JAEA) では、原子炉で生じるマイナーアクチノイドの廃棄物の有害度低減のために、運動エネルギ 1.5 GeV となる 30 MW の大強度陽子加速器を用いた核変換システム (Accelerator Driven System: ADS) を提案している [2]。鉛ビスマス共晶体 (LBE) は、ターゲットの候補の 1 つであり、同時に ADS の炉心を冷却材としての役割を果たす。ADS の設計において、加速器の真空領域と LBE の境界となるビーム窓の損傷は重大な問題の 1 つとなる。J-PARC では、ビーム窓材のなどの損傷評価や ADS のための基礎研究のために核変換実験施設 (Transmutation Experimental Facility: TEF) [3] の建設が計画されている。

ビーム窓は ADS のみならず、大強度陽子加速器施設において重要な役割を果たす。Figure 1 に示される J-PARC センター [4] の物質生命科学実験施設 (MLF) 内に設置した核破砕中性子源 [5] 及びミュオン源 [6] では、高真空領域とターゲットステーションを分離するビーム窓 [7] として、アルミニウム合金 (Al5083) を使用しており、窓材の寿命予測が施設を安定に運転する上で重要となる。また、J-PARC のニュートリノ実験施設 (T2K) ではチタン合金をビーム窓として用いている。これらの施設では 500 kW 以上の大強度ビーム運転を開始しさらに 1 MW の安定したビーム運転試験を開始した。大強度のビーム運転を安定に行うためには窓及び標的材料の損傷評価が不可欠となる。

窓及び標的に用いられる物質の損傷の定量的な評価は、原子当たりの弾き出し (Displacement per Atom: DPA) が広く一般的に用いられ、この損傷評価手法は陽子加速器のみならず、原子炉および核融合炉に用いられる構造材にも一般的に用いられる。

DPA は、一般に Norgertt-Robinson-Torrens(NRT) モデル [8] によって得られるはじき出し断面積と粒子束の積分により評価される。20 MeV よりも低いエネルギー領域の陽子の場合、弾き出しは主にクーロン力によって引き起こされるため、陽子の弾き出し断面積は高い精度で予測することができる。低いエネルギーの中性子については、弾性散乱断面積、非弾性散乱断面積およびその放出エネルギーがよく知られていたため、高い精度で DPA を推定することができる。二次粒子生成が顕著でない低エネルギー領域では、弾き出し断面積の計算手法は比較的よく確立されている。

しかしながら、20 MeV 以上のエネルギー範囲の陽子は、弾き出し断面積の実験データは乏しく、5 個程度しかないため十分な研究は行われていなかった。陽子及び中性子の運動エネルギが 20 MeV 以上になると、さまざまな原子核反応のチャネルが開くために、核内カスケードモデルに基づく核計算モデル用いて弾き出し断面積を得る [9] 。20 MeV 以上の弾き出し断面積は、これまでに京都大学 [10] と BNL [11] において実験が行われた。さらに、実験で得られた弾き出し断面積と MARS [9] コードには大きな違いがあり、MARS に用いられる計算モデルにおいても 8 倍の差があることが報告されている。弾き出し損傷の 8 倍の曖昧さは、標的の寿命推定において 8 倍

* meigo.shinichiro@jaea.go.jp

の不確実性をもたらすこととなる。

標的の損傷評価の精度向上のためには、弾き出し断面積の実験データ取得が重要となる。そこで、我々は ADS などの窓材の損傷評価の精度向上を目指し、J-PARC センターの加速器施設を用いて、さまざまな材料に対する弾き出し断面積の実験データ取得を開始した。

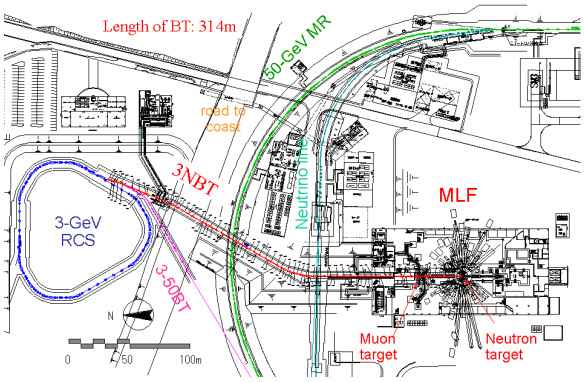

Figure 1: Plan of Rapid Cycling Synchrotron (RCS) and Materials and Life Science Experimental Facility (MLF) in J-PARC.

2. 実験

最初の実験として抵抗率が低い銅の弾き出し断面積の測定を、3 GeV 陽子に対し実施した。弾き出し断面積の測定のため、3 GeV 陽子シンクロトロン（Rapid Cycling Synchrotron : RCS）から出射されたビームを輸送する 3 GeV 陽子輸送施設 (3NBT) [12, 13] のビームダンプ直前に、実験用の真空チェンバを設置した。3NBT のダンプは RCS 出射部のトンネル床面に設置され、垂直偏向電磁石 (DMG) を用いてダンプにビームを入射する。垂直偏向電磁石からダンプまでの専用にビームを輸送するビームラインには、十分なスペースが残っていないので、本実験のためのすべての真空チェンバは Fig. 2 のように、垂直偏向電磁石の上流側に設置した。高強度の陽子ビームは MLF の中性子源に供給される。RCS のキッカー磁石による出射タイミングを変更により、RCS の入射エネルギとなる 0.4 GeV から 3 GeV に出射陽子の運動エネルギを選択することが可能となる。よって本研究では RCS を用いて、ADS にとって重要となる 0.4 ∼ 3 GeV のエネルギ領域の陽子ビームに対する弾き出し断面積を得ることができる。なお、このエネルギ範囲は ADS において適した陽子エネルギとなり ADS の研究において重要なものとなる。原子核実験のために建設された、フランス Saclay 研究所の SATURNE2、ロシアの Dubna の Synchrophasotron 等の加速器は、その役割をほぼ終え老朽化のため相次いでシャットダウンする中、本エネルギ範囲が利用可能となる RCS は ADS に関する研究推進において魅力的な加速器となる。

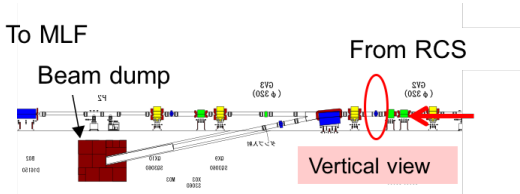

Figure 2: Vertical view of 3NBT beam line and beam dump. The vacuum chamber utilized in the experiment is located in the place shown in red ellipse.

2.1 加速器インターロック及び放射線申請の変更

J-PARC 加速器施設の放射線申請における利用目的に、材料の研究を行う明確な記載がなかったために、本実験のためには放射線申請の変更を行う必要があった。ビームダンプに専用に輸送するビームラインには、Fig.2 に示されるようにスペースがほとんどないため、実験に用いる真空チェンバはダンプ入射用の偏向電磁石の上流側に設置した。設置場所には、MLF へ輸送される大強度陽子ビーム (1 MW) が通過するため、安全性の担保のため本実験には加速器のインターロック変更が必要となった。

このため、3 GeV ダンプに入射できる最大強度のビームにおいて、試料の溶融がないことを計算により確認した。最大の発熱密度となる 400 MeV 陽子入射のタングステン試料の温度分布の結果を Fig. 3 に示す。この検討において、冷凍機が停止しフランジの熱伝達のみで冷却する過酷な条件にもかかわらず、試料の最高温度は 100°C 以下となり、融点が 3400°C となるタングステンの溶融の可能性がないことが確認できた。また、他の試料も溶融しないことを確認した。大強度ビームが通過するビームの行先が MLF などの場合には、インターロックにより試料は退避位置に移動し、さらにビームが入射しないように制御系を変更した。

ただし、本実験では試料の温度上昇を抑えることが肝要となるために、試料の温度上昇はほとんどない。

2.2 弾き出し断面積の測定法

極低温下の試料の陽子照射による抵抗率変化 $\Delta\rho_{Cu}$ の測定より、式 1 を用いて弾き出し断面積 $\sigma_{exp}(E)$ が実験により得ることができる。

$$\sigma_{exp}(E) = \Delta\rho_{Cu}/(\overline{\phi(E)}\rho_{FP}), \tag{1}$$

上式で $\overline{\phi(E)}$ は、サンプル表面上の積算平均陽子束であり、ρ_{FP} は、試料における単位フレンケル対あたりの抵抗率変化となる。電子線を用いたこれまでの研究から、本研究では ρ_{FP} を $2.2 \times 10^{-6}\Omega$m と決定した。上式では試料の密度の項が無いが、弾き出し断面積が巨視的な断面積となり、原子核断面積のような密度に依存した微視的な断面積とならないためである。弾き出し断面積は原子データとなり、原子核のデータとはならず密度依存性はない。

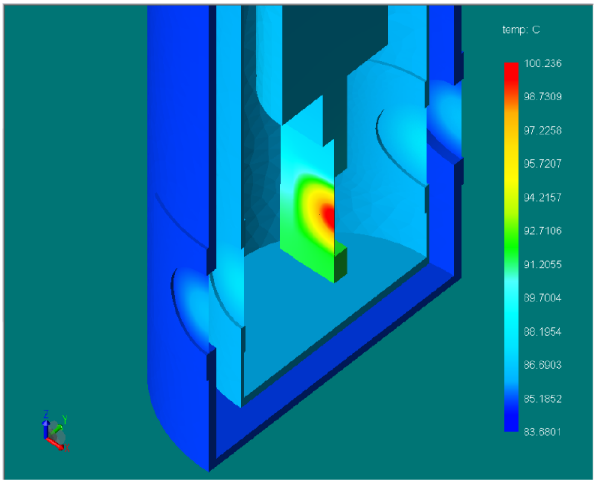

Figure 3: Calculated temperature distribution around sample and radiant heat shield for safety analysis of the experiment.

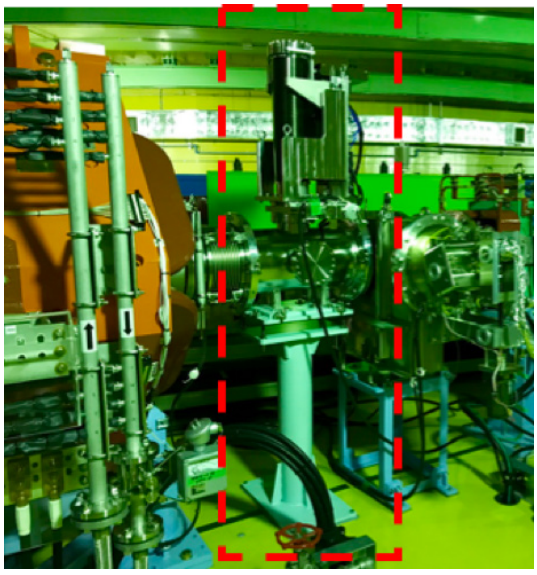

Figure 4: Vacuum chamber for the measurement displacement cross section placed at the beam line with GM cryocooler mounted on movable stage.

本実験では低温材料の陽子入射による電気抵抗率を測定をするため、超伝導電磁石の放射線損傷において重要なデータを提供することとなる。CERN の大型ハドロン衝突型加速器 (LHC) では、更にルミノシティを高めた HiLHC が計画されている。HiLHC では衝突点付近においてビーム損失の増大が予測されるため、超伝導電線の高エネルギー粒子入射にともなう損傷に起因する電気伝導度特性評価は重要となる。さらに、ADS においても超伝導加速器の使用が予定されているため、ADS においても重要となる。また、原子核実験でも J-PARC で予定される COMET 実験においても、超伝導ソレノイド電磁石が用いられるため、弾き出し断面積のみならず加速器施設において重要なデータを本実験により提供することとなる。

2.3 J-PARC 3 GeV ビームダンプにおける銅の弾き出し断面積測定

3 GeV ビームダンプの前に、Fig. 4 に示される真空チャンバを設置した。チャンバには、試料を銅ロッドとアルミニウム製のサンプルホルダで冷却した Gifford-McMahon（GM）冷凍機 (住友重機械工業 RDK-408D2) を設置した。試料の冷却のためには、試料周辺にはアルミ製の円筒からなる 2 重の輻射熱シールドで囲い、シールドは GM 冷凍機の 1 次、2 次ステージに接続した。試料は MLF に利用運転を行っている最中には退避させる必要があるため、冷凍機に取り付けた試料を 1 軸の可動ステージに設置し、ビームから退避できる構造とした。試料には、比較的実験データがあり抵抗率が低く抵抗率変化の測定しやすい、銅を選択した。

実験に用いた銅試料の様子を Fig. 5 に、試料の仕様を Table 1 に示す。試料における格子の欠陥を解消するために、試料は約 800°C でアニールした後に用いた。試料の電気絶縁のために、カプトンホイルをサンプルとホルダの間に挿入した。試料ホルダに銅ワイヤ一本を設置し、試料の抵抗は電圧計 (Keithley 6221) および電流源 (Keithley 2185) を用いて測定した。測定器と試料間のケーブル抵抗を補償するために、電流源と電圧計の両方がワイヤ端部の電位点に接続した。±100 mA の電流を銅線に供給し、極性を 10 Hz で切り替え、銅線に生じる電圧を計測し約 1 分間で平均化した値を用いた。これにより抵抗測定の精度は、±0.01 $\mu\Omega$ となり、抵抗率の精度は ±3 fΩm と十分低い値となった。

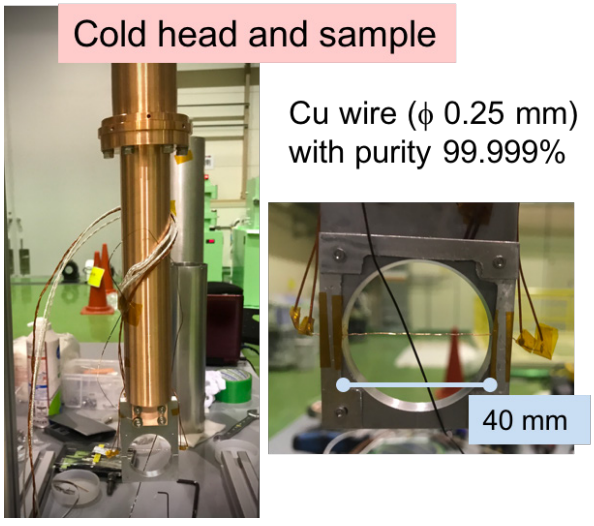

Figure 5: Cold head made of copper and copper wire sample used in the experiment.

室温と極低温状態の試料の電気抵抗率の測定結果も Table 1 に示す。試料の温度測定のため、4-100K の温度領域で較正した測温抵抗体 (Cernox CX1050-SD) をホルダに設置した。試料の電気抵抗率 ρ_{Cu} は以下

のように表される。

$$\rho_{Cu} = RL/A, \tag{2}$$

ここで、$R[\Omega]$ は電気抵抗の測定値、L [m] は電位点の間隔（40mm）、A は試料ワイヤの断面積 (4.9×10^{-2} [mm^2]) となる。試料を GM 冷凍機で冷却した後に、試料の温度を校正済みの測温抵抗体を用いて測定した。試料は 8 時間程度で温度が飽和するのが観測された。冷凍機に取り付けた銅ロッドの先端のコールドヘッドにおける、到達温度は 4.6 K であったのに対し、試料ホルダに取り付けた温度は 20 K と高くなった。コールドヘッドと試料ホルダにおいて異なる温度となり、試料ホルダが想定していたよりも高い温度を示したが、この主な理由は銅ロッドとホルダとの間の熱接触が十分でなかったことであると考えられる。本実験において、試料の温度はできるだけ下げた方が望ましいため、今後試料ホルダなどの改良により、さらに温度を低下を行う予定とする。

陽子ビーム強度は、3NBT に設置した良く較正されたカレントトランスフォーマ (CT) によって測定した。照射中の試料温度を可能な限り下げ、かつ信頼おけるビームプロファイルを測定するために、ショット当たりのビーム強度は 3.3×10^{12} 個の陽子強度とし、150 ショットのビームを 0.16 Hz の繰り返しで入射した。陽子束の導出には、サンプル近傍に配置したマルチワイヤープロファイルモニタ（MWPM）を用いた。測定によるビーム幅は、水平方向と垂直方向の 1 σ においてそれぞれ 4.0 mm と 5.0 mm となり、これらの測定結果から、試料に入射した平均積算陽子束は 1.98×10^{18} m $^{-2}$ となった。

Table 1: Characteristics of Copper Sample Used in the Experiment

Sample Shape	Single wire
Diameter [μm]	250
Length between potential points [mm]	40
Purity [%]	99.999
Resistivity at 298 K [Ωm]	1.67×10^{-8}
Resistivity at 20 K [Ωm]	7.36×10^{-11}

3． 結果及び考察

3.1 実験結果

実験は 3NBT のビーム調整期間に行った。全ての試験は 30 分以内に終了することができた。実験中における試料の抵抗及び試料ホルダの温度を Fig.6 に示す。ビーム照射は 3 回に分割して行った。ビーム照射に伴い抵抗が増加したが、主な増加原因はビーム入射に伴う試料の温度上昇にものである。照射後において抵抗増加が残留したことが観測された。Figure 6 に示される試料ホルダの温度はほとんど変化が見られなかった。

本実験と以前の実験における単位陽子入射における銅の抵抗率変化を Table 2 に示す。本実験結果により、世界で初めて 2 GeV 以上のデータが取得できた。

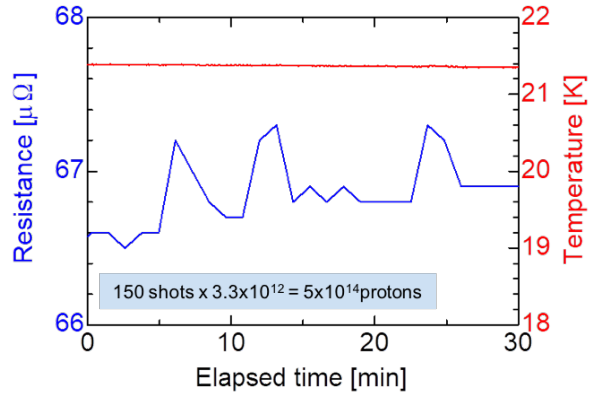

Figure 6: Trend of resistance of the copper sample and temperature at the holder during experiment.

この測定結果と式 (1) より弾き出し断面積を導出し、3 GeV 陽子に対する銅の断面積は 1070 b (1×10^{-24} cm^2) となった。測定で得られた断面積の誤差には、単位フレンケル対あたりの電気伝導度変更率を 20% 見込み、230 b とした。

Table 2: Experimental Resistance Change Rate to One Proton Induced

Experiment	Energy [GeV]	Damage rate [$\times10^{-31}\Omega$ m^3/proton]
KURRI	0.13	3.41
AGS	1.94	3.66
Present(J-PARC)	3.0	2.35

3.2 計算

核内カスケードモデルと蒸発過程からなる核反応モデルに基づき、弾き出し断面積は $\sigma_{disp-calc}(E)$ 以下の式の計算により求められる、

$$\sigma_{disp-calc}(E) = \sum_i \int_{E_d}^{T_i^{max}} \nu(T_i)\frac{d\sigma}{dT_i}dT_i, \tag{3}$$

ここで E は入射陽子の運動エネルギーであり、$d\sigma/dT_i$ は最大 T_i^{max} となる運動エネルギ T_i の粒子 i の生成断面積、E_d は弾き出しエネルギの閾値となる。$\nu(T_i)$ は、照射材料における空孔と格子間原子の欠陥（フレンケル対）を生成する欠陥生成効率を示す。欠陥生成効率の計算には、Norgertt-Robinson-Torrens (NRT) モデル [8] が広く用いられる。計算は PHITS コード [10] を用いて行い、クーロン散乱や相互作用で生じた二次粒子生成に NRT モデルを適用した。さらに今年に Nordlund 等 [14] が改良した新しいモデルも PHITS に導入し、弾き出し断面積を計算した。

3.3 実験と計算の比較

本実験によるデータ、他の実験データ及び計算との比較を Fig. 7 に示す。本実験と計算の比較により、NRT モデルによる計算は約 4 倍の過大評価を示した。この傾向は、2 GeV 以下となる以前の実験データ [10, 11, 15] も同様な結果を示す。Nordlund [14] モデルを用いた計算も Fig. 7 に示す。Nordlund モデルの計算は、本実験及び他の実験とよい一致していることが示された。今後の研究でエネルギ及び試料に関しシステマティックな実験を行い、データの蓄積により広範囲のエネルギ及び原子データにおける計算精度の向上が期待できる。

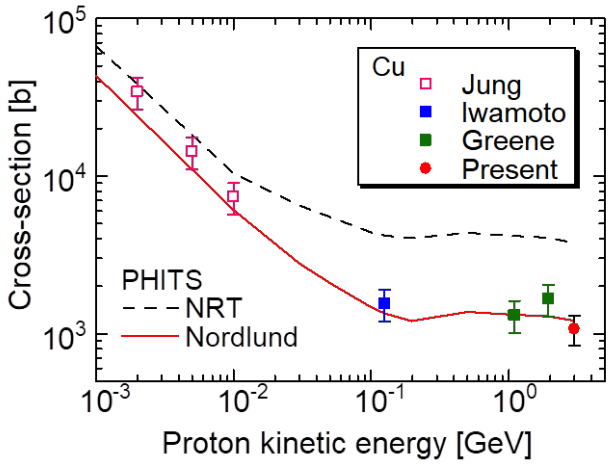

Figure 7: Comparison of the present experiment data with the previous experiment [10, 11, 15] and calculation results with PHITS as a function of kinetic energy.

4． 結論

ビーム窓及び標的の損傷評価の向上のため、J-PARC の 3NBT において弾き出し断面の実験を開始した。最初の実験結果として、3 GeV 陽子に対する銅の弾き出し断面積を測定し、データを取得することに成功した。本実験結果は、2 GeV 以上のエネルギ範囲において世界初の断面積データとなった。
実験で得られたデータと計算の比較の結果、他の実験データと同様に一般的に用いられる NRT モデルは断面積を 4 倍程度の過大することが示され、既存の加速器施設の構造材の DPA 評価は 4 倍程度過大評価されていたと考えられる。一方、最新の Nordlund のモデルの計算は、本実験と低いエネルギ領域の他の実験をよく再現することが示され、今後の損傷評価の基準モデルになるものと考えられる。

5． 今後の予定

今後、銅以外の試料を用いて標的に関するシステマティクなデータの取得を行う。さらに、RCS のキッカー電磁石の取り出しタイミングを変更し、ADS にとって重要となる 0.4 ～ 3 GeV 領域のデータ取得を行う。

また、30 GeV までに至る弾き出し断面を得るため、J-PARC の 50 GeV シンクロトロン (MR) のアボートダンプの前に同様のチャンバーが設置する予定とし、3 ～ 30 GeV の陽子ビームを用いた実験を計画している。2018 年に 8 GeV 陽子ビームをアボートダンプに取り出した実験が行われ、問題なくビームが取り出されることが確認された。一連の実験により、J-PARC において 0.4 ～ 30 GeV の実験データを得ることができ、これらのデータにより ADS のみならず大強度陽子加速器施設の標的材料の損傷評価の改善に資するものと期待される。

謝辞

本研究を進めるにあたり、ビーム運転や本実験の検討にご協力いただいた J-PARC センターの LINAC, RCS, MR の加速器ディビジョンの方々、安全ディビジョンの方々に感謝いたします。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、国立研究開発法人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] D. Filges, F. Goldenbaum, “Handbook of Spallation Research, Theory, Experiments and Applications”, Wiley-VCH Verlag GmbH KGaA, Berlin, Germany, pp. 215-232 (2009).
[2] T. Mukaiyama *et al.*, “Review of Research and Development of Accelerator-Driven System in Japan for Transmutation of Long- Lived Nuclides”, Prog. in Nucl. Energy, **38** 1-2, 107 (2001).
[3] H. Oigawa *et al.*, “Conceptual Design of Transmutation Experimental Facility”, Proc. Global2001, Paris, France (2001).
[4] The Joint Project Team of JAERI and KEK, JAERI-Tech 99-56, 1999.
[5] Y. Ikeda, Nucl. Instrum. Meth. **A600**, (2009) 1.
[6] Y. Miyake *et al.*, Physica B **404** (2009) 957.
[7] S. Meigo *et al.*, J. Nucl. Mater. , **450**, 141-146 (2014).
[8] M. J. Norgett, M.T. Robinson and I.M. Torrens, Nucl. Eng. Des. **33** , 50-54, (1975).
[9] N. Mokhov *et al.*, “MARS15 Developments Related to Beam-Induced Effects in Targets”, 6th High-Power Targetry Workshop, Oxford, UK, April 11-15 (2016).
[10] Y. Iwamoto *et al.*, J. Nucl. Mater. , **458**, 369-375 (1998).
[11] G. A. Greene *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”, Proc. of 6th Int. Meet. on Nucl. Application of Accel. Tech. (AccApp’ 03), Ja Grange Park, Illinois, USA, pp.881-892, (2004).
[12] S. Meigo *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. **A562**, (2006) 569.
[13] S. Meigo *et al.*, Nucl. Instrum. Meth. **A600**, 41 (2009).
[14] K. Nordlund *et al.*, “Improving Atomic Displacement and Replacement Calculation with Physically Realistic Damage Models”, Nature Communications, **9**, 1084 (2018).
[15] P. Jung, J. Nucl. Mater. , **117**, 70 (1983).