

FFAG 加速器を用いた陽子入射反応に関する核データの測定 MEASUREMENTS OF NUCLEAR DATA ON PROTON-INDUCED REACTIONS USING FFAG ACCELERATOR

岩元大樹^{*,A,B}, 明午伸一郎^A, 西尾勝久^C, 石禎浩^D, 廣瀬健太郎^C, 岩元洋介^B, 栗山靖敏^D, 前川藤夫^A,
牧井宏之^C, 森義治^D, 岡部晃大^A, Orlandi Riccardo^C, 大泉昭人^B, 佐藤大樹^B, James Smallcombe^C,
杉原健太^E, 洲崎ふみ^C, 塚田和明^C, 上杉智教^D, 八島浩^D,

Hiroki Iwamoto^{*,A,B}, Shin-ichiro Meigo^A, Katsuhisa Nishio^C, Yoshihiro Ishi^D, Kentaro Hirose^B,
Yosuke Iwamoto^B, Yasutoshi Kuriyama^B, Fujio Maekawa^A, Hiroyuki Makii^C, Yoshiharu Mori^D,
Kota Okabe^A, Riccardo Orlandi^C, Akito Oizumi^B, Daiki Satoh^B, James Smallcombe^C, Kenta Sugihara^E,
Fumi Suzuki^C, Kazuaki Tsukada^C, Tomonori Uesugi^D, Hiroshi Yashima^D,

^A) J-PARC Center, Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

^B) Nuclear Science and Engineering Center, Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

^C) Advanced Science Research Center, Japan Atomic Energy Agency (JAEA)

^D) Institute for Integral Radiation and Nuclear Science, Kyoto University

^E) Radiation Science Center, High Energy Accelerator Research Organization (KEK)

Abstract

From FY 2021 to FY2022, we conducted an experimental program aimed at acquiring nuclear data relevant to research on the Accelerator-Driven System (ADS). These experiments utilized a proton beam accelerated to 107 MeV (with a repetition rate of 30 Hz) by the FFAG accelerator at Kyoto University. In the final year of the program (FY2022), the mass number distribution of fission fragments and the yields of fission neutrons, produced by proton-induced fission, were measured using the time-of-flight technique. Furthermore, the fission rate of ²³⁷Np was measured in a spallation neutron field using a ²³⁷Np fission chamber. This paper presents an overview of high-energy fission experiments and measurements of the ²³⁷Np fission reaction rate, alongside a comparative analysis between neutron measurement data and nuclear reaction model calculations.

1. はじめに

令和元年度から令和4年度にかけて、加速器駆動核変換システム (ADS: Accelerator-Driven (nuclear transmutation) System) の研究開発に資する核データを取得するための実験プログラムを実施した。実験は、京都大学複合原子力科学研究所のイノベーションラボラトリ研究棟にある固定磁場強収束 (FFAG: Fixed-Field Alternating Gradient) 加速器を用いた。

本実験プログラムは、次の項目で構成される。

- 中性子測定
 - TTNY (Thick Target Neutron Yield) 測定
 - DDX (Double-Differential (X)cross section) 測定
- 短パルスビーム技術開発
- 高エネルギー核分裂実験
 - 核分裂片質量数分布測定
 - 核分裂中性子測定
- ネプツニウム-237 (²³⁷Np) 核分裂反応率測定

令和4年の春までに、短パルスビーム技術開発と TTNY 測定ならびに DDX 測定を終えた。昨年度の報告 [1] では、本実験プログラムの背景とともに飛行時間 (TOF: Time-Of-Flight) 法を用いた中性子測定の概要について紹介した。これらの成果の詳細は文献 [2, 3] に記されている。本稿では、令和4年度に実施した高エネルギー核分裂実験と ²³⁷Np 核分裂反応率測定の概要に加えて、

中性子測定データと核反応モデル解析値とを比較検討する内容についても紹介する。

2. 核分裂片質量数分布測定

この実験は、濃縮した ²⁰⁸Pb と ²⁰⁹Bi の標的に 107 MeV の陽子ビームを照射し、核分裂によって標的から発生する核分裂片の質量数分布を測定するものである。Figure 1 に、内径 600 mm × 高さ 595 mm の真空チェンバの中心に取り付けられたターゲットホルダの外観を示す。このターゲットホルダには、濃縮度が 98% の ²⁰⁸Pb と ²⁰⁹Bi の蒸着膜 (厚さ 170~190 μg/cm²) が設置されており、さらにビームプロファイルモニタ用の蛍光板とビーム電流値校正用のファラデーカップも配置されている。駆動装置を用いて、このターゲットホルダを上下に移動させることで、照射位置を調整することができる。

この実験で、核分裂片の質量数分布を測定するために、マイクロチャンネルプレート (MCP: Micro-Channel Plate) を用いた検出器 (以下、MCP 検出器と呼ぶ) と多芯線比例計数管 (MWPC: Multi-Wire Proportional Counter) を開発した。Figure 2 に MCP 検出器と MWPC の動作原理を示す。MCP 検出器は核分裂片の飛行時間分析におけるスタートタイミング検出器として用いられる。核分裂片が 0.5 μm 厚のフィルムを通過するとき放出される電子を静電場により MCP に導き、その際に電子増幅された信号を読み込む。MWPC はガス検出器の一種で、縦横が長さ 140 mm のカソード面を挟んで 4 mm 離れた位置に多数のタングステン製の芯線が張られたア

* iwamoto.hiroki@jaea.go.jp

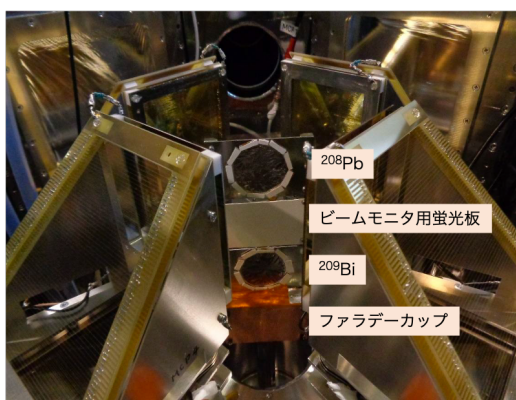


Figure 1: Appearance of target holder in vacuum chamber.

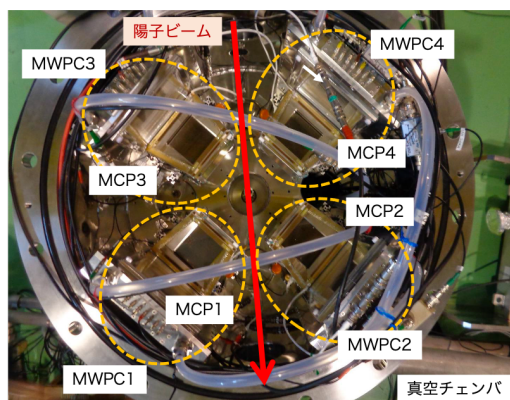


Figure 3: Arrangement of detectors in vacuum chamber.

ノード電極を両側に配置する。検出器の内部は 2 Torr のイソブタンガスで満たされる。カソードとアノード間に付与した電子数にほぼ比例した波高のパルスが得られるため、アノードの芯線に集積したパルスの電荷量を計測することで核分裂片と他の軽荷電粒子を区別できる。さらに、電荷量とともに検出のタイミングを読み取ることで、核分裂片の入射位置 (X および Y 座標) を記録できる。

ら質量数分布への換算にいくつかの仮定を必要としたため、核分裂モデルによる解析値とを直接的に比較することはできなかった。この点は今後の課題である。

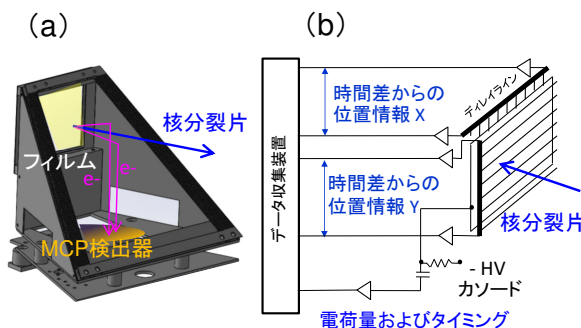


Figure 2: Operating principles of MCP detector (a) and MWPC (b).

真空チェンバ内の検出器配置の写真を Fig. 3 に示す。MCP1/MWPC1 と MCP4/MWPC4 および MCP2/MWPC2 と MCP3/MWPC3 の対をそれぞれ標的を挟んで対面に配置することで、核分裂で正反対方向に放出する 2 個の核分裂片の同時計測が可能になる。偶発的な同時計数を抑えるため、40~60 pA のビーム強度で測定を行った。

Figure 4 に、 ^{209}Bi 標的を用いた測定で観測された MWPC2-MWPC3 間の核分裂片の時間差スペクトルを示す。核分裂片の時間差スペクトルから運動量保存則を適用して、核分裂片の質量数分布に変換した。この変換には、核分裂直前の複合核の質量数を与える必要がある。ここでは、 ^{208}Pb と ^{209}Bi 標的に対してそれぞれ ^{209}Bi および ^{209}Po の複合核が形成されると仮定した。得られた核分裂片の質量数分布を Fig. 5 に示す。核分裂片の分布は、中性子とウランとの核分裂で生じる“ふた山”のよく知られた分布とは異なり、半値幅で 50 u (u は原子質量単位) の“ひと山”の分布となった。この実験結果は、核分裂モデルによる解析値よりもやや広い分布となること示唆している。ただし、時間差分布か

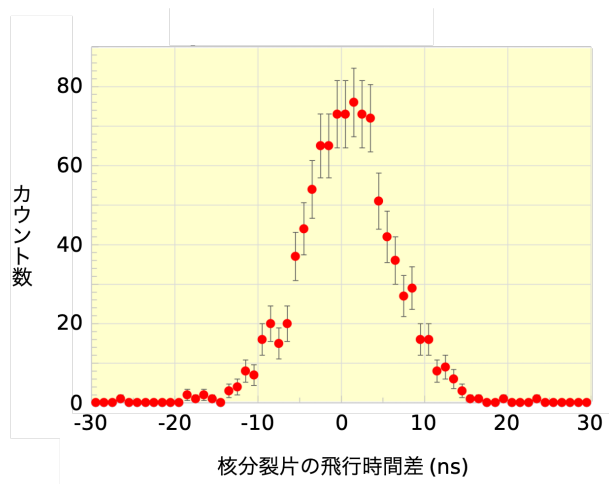


Figure 4: TOF spectrum of fission fragments for $p + ^{209}\text{Bi}$ reaction.

3. 核分裂中性子測定

この実験は、 ^{209}Bi の標的に 107 MeV の陽子ビームを照射し、標的から発生する核分裂中性子の取量を測定するものである。核分裂片の質量数分布測定と同様に、真空チェンバの内側に前述のターゲットホルダと MWPC を設置し、真空チェンバの外側に中性子検出器を置いて ^{209}Bi に対して核分裂中性子の測定を行った。予備測定として行った大型の液体有機シンチレータ (直径 127 mm × 長さ 50.8 mm) 1 台を用いた測定で、核分裂以外の偶発的な事象が多数検出された。そこで本実験では、偶発的な検出事象を抑制するために、鉛、鉄、ステンレス、ポリエチレンおよびコンクリートからなる遮蔽体を中性子検出器の周囲に設置した。当初は大型の液体有機シンチレータと光電子増倍管からなる中性子検出器を真空チェンバの周囲に複数設置して測定を行う予定であったが、遮蔽体との取り合いの都合のため、90° の検出角に限定して測定を行った。中性子検出器には、

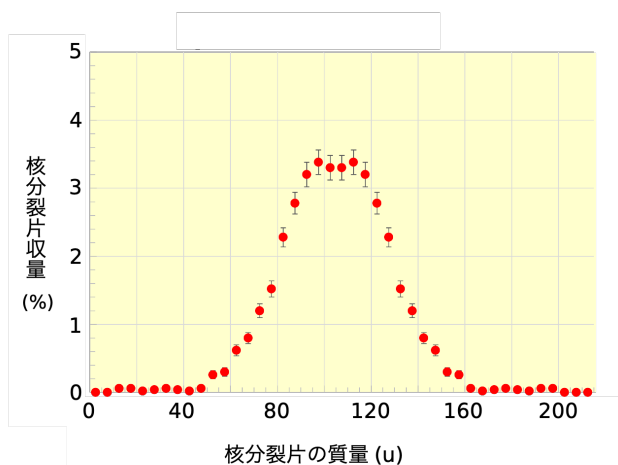


Figure 5: Mass number distribution of fission fragments for $p + {}^{209}\text{Bi}$ reaction.

TTNY 測定および DDX 測定で用いた小型の中性子検出器を並列に 8 台並べたもの [3] を用いた。このときの実験の様子を Fig. 6 に示す。



Figure 6: Picture of fission neutron measurement.

核分裂中性子の測定は、先述の測定と同じく TOF 法を用い、スタートタイミング検出器として MWPC を使用した。MWPC と中性子検出器でパイルアップが生じないようにビーム電流値を 50 pA 以下に抑えるとともに、偶発的な同時計数を抑制するため、ビームのパルス幅を長くし、ピーク電流を低く抑えて測定を行った。MWPC と中性子検出器により核分裂中性子の信号を捉えた例を Fig. 7 に示す。この図では、核分裂片を MWPC2 と MWPC3 の対で検出した際の核分裂中性子の信号が示されている。

4. ${}^{237}\text{Np}$ 核分裂反応率測定

この実験は、TTNY 測定で用いた真空チェンバの中心に直径 48 mm × 厚さ 30 mm の鉛標的を設置し、陽子と鉛標的との核反応による核破砕中性子場に起因する ${}^{237}\text{Np}$ の核分裂反応率を測定するものである。核分裂反応率の測定には、直径 6 mm × 長さ 24.5 mm の有感領

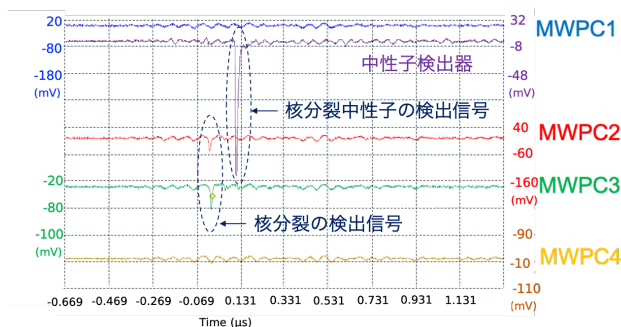


Figure 7: Output signals of MWPCs and neutron detector.

域を持つ円筒形状の ${}^{237}\text{Np}$ 核分裂計数管を、真空チェンバ近傍に設置して行った (Fig. 8)。長期間使用されていなかったため、測定に問題がないことを確認するためにあらかじめ原子力機構の放射線標準施設 (FRS: Facility of Radiation Source) [4] において準単色中性子源を用いて動作試験を行うとともに、高純度ゲルマニウム半導体検出器を用いた不純物調査を行った。

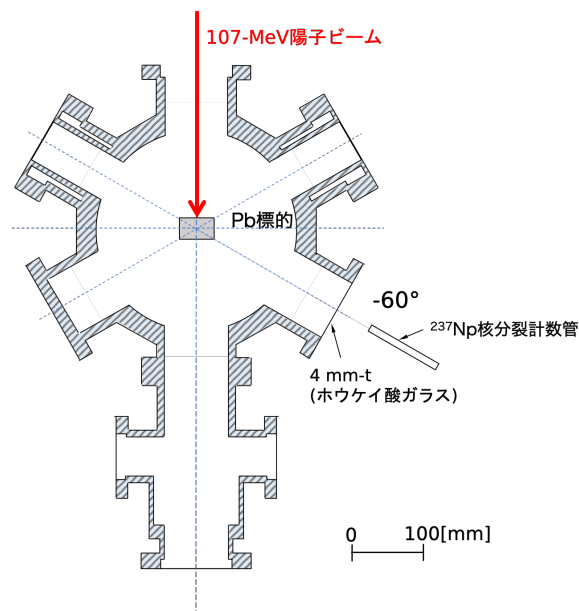


Figure 8: Experimental setup for ${}^{237}\text{Np}$ fission reaction rate measurement.

Figure 9 に、測定で得られた ${}^{237}\text{Np}$ 核分裂計数管の波高分布を示す。ここで、20 ch 以下の低い波高領域に現れる検出事象は ${}^{237}\text{Np}$ のアルファ崩壊に伴って放出されるアルファ粒子 (${}^4\text{He}$ 原子核) である。陽子ビーム照射 (ビームオン) 時に、高い波高領域に現れる検出事象は、核破砕中性子に起因する ${}^{237}\text{Np}$ の核分裂反応から放出される核分裂片を示している。

5. 中性子測定データの解析

既往年度の実験で得られた中性子測定データを解析し、最新の核反応モデルおよび評価済み核データライブラリによる解析値と比較した。一例として ${}^{209}\text{Bi}$ に

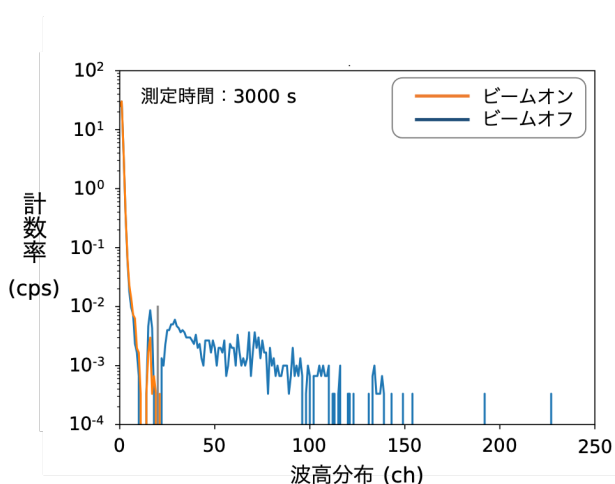


Figure 9: Pulse height distribution of ^{237}Np fission chamber obtained by the measurement.

対する 98 MeV 陽子入射中性子生成 DDX の解析結果を Fig. 10 に示す。この図では、蒸発 (Evaporation) 成分と前平衡 (Pre-equilibrium) 成分に分けてフィットした結果も載せている。100 MeV 領域陽子入射反応で放出される中性子の分布は、これらの二つの成分でよく記述できることを示している。

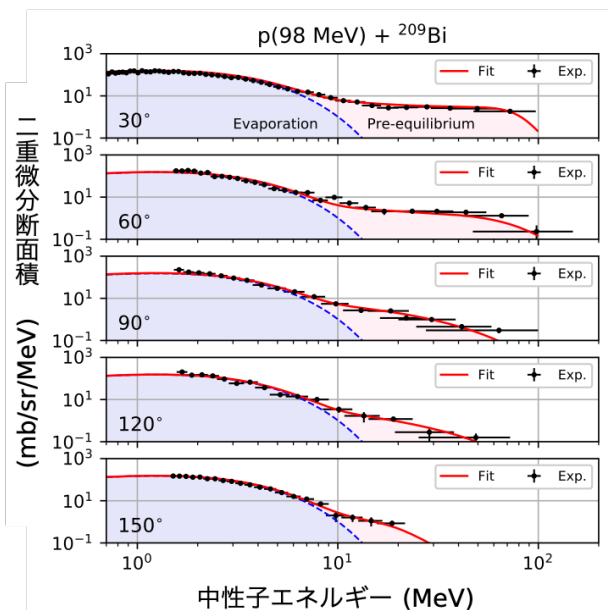


Figure 10: Proton-induced neutron-production DDX of ^{209}Bi at 98 MeV.

Figure 11 に、放射線挙動解析コード PHITS [5] に組み込まれている代表的な 4 種類の核反応モデルと評価済み核データライブラリ JENDL-5 [6] を用いた解析結果との比較を示す。適用範囲外とされる 100 MeV 領域の陽子入射反応に対しても、核反応モデルは測定データと同様のスペクトル形状を与えることが示された。一方で、スペクトルを細かく比較すると、核反応モデル

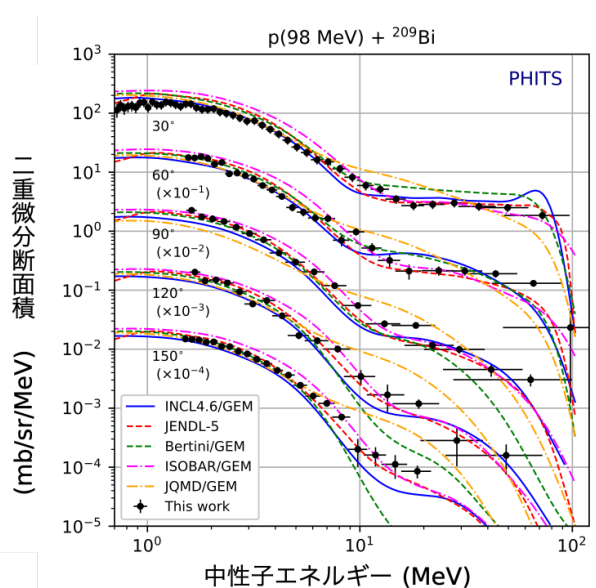


Figure 11: Comparison of proton-induced neutron-production DDX of ^{209}Bi at 98 MeV between the measurement and spallation model calculations.

と JENDL-5 による解析値はいずれも特徴的な不一致を示すことも明らかになった。

6. まとめ

令和元年度から令和 4 年度にかけて、京都大学の FFAG 加速器を用いて ADS の研究開発に資する核データを取得するための実験プログラムを実施した。本プログラムにより、ADS 標的材の 100 MeV 領域陽子入射反応で発生する核破砕中性子および高エネルギー核分裂に関する核データを取得するとともに、得られたデータを用いて ADS の核設計に用いる核反応モデルの精度検証を行った。ここで得られたデータは、100 MeV 領域陽子入射反応に関する核反応モデルの予測精度を包括的に検証するための世界初の実験データ集となる。今後は、得られたデータをもとに核反応モデルと評価済み核データライブラリの高度化を行っていく予定である。

謝辞

実験を遂行するにあたり、京都大学の沖雄一准教授に多大なご協力をいただきました。ここに感謝の意を表します。本研究は文部科学省原子力システム研究開発事業の助成 JPMXD0219214562 を受けたものです。

参考文献

- [1] H. Iwamoto *et al.*, “Experimental study of nuclear data for Accelerator-Driven Transmutation System (ADS) using Kyoto University FFAG accelerator”, Proceedings of the 19th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Online (Kyushu University), Japan, Oct. 18-21, 2022, pp. 404-409. https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2022/proceedings/PDF/TUP0/TUP040.pdf

- [2] T. Uesugi *et al.*, “Short pulsed beam extraction in KURNS FFAG”, Proceedings of the 18th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan, Sapporo, Japan, Aug. 9-12, 2021, pp. 491-493. https://www.pasj.jp/web_publish/pasj2021/proceedings/PDF/TUP0/TUP026.pdf
- [3] H. Iwamoto *et al.*, “Measurement of 107-MeV proton-induced double-differential thick target neutron yields for Fe, Pb, and Bi using a fixed-field alternating gradient accelerator at Kyoto University”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 60, pp. 435–449, 2023. doi:10.1080/00223131.2022.2115423
- [4] Y. Tanimura *et al.*, “Determination of neutron fluence in 1.2 and 2.5 MeV mono-energetic neutron calibration fields at FRS/JAEA”, *Prog. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 4, pp. 392–395, 2012. doi:10.15669/pnst.4.392
- [5] T. Sato *et al.*, “Features of Particle and Heavy Ion Transport code System (PHITS) version 3.02”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 55, pp. 684–690, 2018. doi:10.1080/00223131.2017.1419890
- [6] O. Iwamoto *et al.*, “Japanese evaluated nuclear data library version 5: JENDL-5”, *J. Nucl. Sci. Technol.*, vol. 60, pp. 1–60, 2023. doi:10.1080/00223131.2022.2141903