

令和 2 年 6 月 30 日現在

機関番号：82118

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16H03994

研究課題名（和文）SiC複合材料による大強度パイオン・ミュオン生成標的の開発

研究課題名（英文）Feasibility Study for SiC/SiC composite as the Target Material for High-power Proton Accelerators

研究代表者

牧村 俊助 (Makimura, Shunsuke)

大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構・素粒子原子核研究所・技師

研究者番号：10391715

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 14,000,000円

研究成果の概要（和文）：高エネルギー照射材料に関して、生成された放射能はモンテカルロ解析と整合性が取れていた。純SiC（CVD-SiC）材からトリチウムは1000℃まで放出されないが黒鉛材とNITE-SiC/SiCからは800℃から放出された。陽電子消滅法によって黒鉛では900℃で照射欠陥が回復するが、純SiC、NITE-SiC/SiCともに回復しない事と欠陥と水素原子の相関が判明した。NITE-SiC/SiCへのCVD-SiC被覆が耐酸化性能を向上させる事を確認した。CERN HiRADMATでの熱衝撃試験で亀裂進展の抑制を確認した。NITE-SiC/SiC材の円柱形状の標的模擬体を製造した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

NITE-SiC/SiC材の高エネルギー加速器標的としての使用の可能性に関して調査を行った。放射能の定量、トリチウム放出量は、保守時の取り扱いに対して大きな知見を与える。耐酸化性能の向上手法は、ビーム運転時の事故対策として有効であることを確認した。脆性材料であるSiCが複合材料化によって亀裂の進展を抑制することが確認できた。実際の標的形状を製作可能であることを確認した。NITE-SiC/SiC材は高エネルギー加速器標的として有望であることが確認できた。

研究成果の概要（英文）：The quantity of residual radionuclides of NITE-SiC/SiC irradiated by HE protons was consistent to that in Monte-Carlo simulation. While tritium was not emitted from CVD-SiC up to 1000 degC, it started being emitted from graphite and NITE-SiC/SiC around 800 degC. Through the positron annihilation method, the defects by irradiation in graphite recovered at 800 degC, and the ones in CVD-SiC and NITE-SiC/SiC didn't. The combination between the defects and hydrogen was observed.

The oxidation resistance was improved by the coating of CVD-SiC on NITE SiC/SiC. In the thermal shock experiment in HiRadMat facility at CERN, propagation of the crack was not observed on NITE-SiC/SiC.

The cylinder-shaped mock-up of the target was successfully fabricated.

研究分野：加速器標的

キーワード：SiC材 標的材 トリチウム 熱衝撃

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

基礎物理、物質生命科学の解明を追及する陽子加速器は、精度の高い実験を実施する要請から大強度化が望まれている。加速器で加速された陽子は標的材料に衝突し、ミュオン、パイオン等の様々な二次粒子を生成する。標的上で発生した二次粒子を実験エリアに効率的に輸送するためには二次粒子発生源の空間的広がりを、なるべく小さくすることが望ましく、その観点からは標的材料の密度は大きいほうが良い。現在、ミュオンやパイオンの生成においては、標的システムや保守を容易にするために原子番号の小さな等方性黒鉛が大強度陽子加速器の主要標的材料として採用されている。

等方性黒鉛は、極めて優れた耐熱性能、機械特性、化学安定性を備えているため、標的材料として採用されるが、高温において容易に酸化される問題点を抱えている。真空を保持した陽子ビーム運転中に、予期せぬ大気導入が発生した場合、陽子ビームの照射によって高温になった黒鉛材料は急激に酸化される事となる。そのため、陽子ビーム照射によって破損しない程度に耐熱性能を備える必要はあるが、等方性黒鉛よりも密度が高く、更に耐酸化性能の高い標的材料の開発が望まれている。

炭化ケイ素 (SiC) は、耐熱性も機械強度も高く、良好な候補として考えられる。等方性黒鉛の密度が 1.82 g/cc であるのに対して SiC の密度は 3.2 g/cc である。SiC は高温では、その雰囲気酸素分圧に依存してパッシブ酸化とアクティブ酸化という二種類のプロセスで酸化される。酸素分圧が低い時にはアクティブ酸化が支配的でガス状の酸化ケイ素が形成される事により質量が減少していき、この場合、SiC 表面に耐酸化被膜の形成は期待できない。この領域の酸素分圧では、質量減少させるために高真空内で SiC を使用する必要がある。一方で、酸素分圧が高い場合にはパッシブ酸化によって強固な酸化皮膜が SiC 表面に形成され、わずかに質量増加する [1]。この時は、SiC 表面上の耐酸化被膜として機能するため、ビーム運転中に予期せぬ大気導入が発生した場合にも、余計な放射性物質の飛散が発生しない。しかしながら、通常のモノリシック SiC は脆性材料であるため、熱疲労環境においては構造材料として使用することが出来ない。そのため、室蘭工業大学 OASIS グループにおいて原子力・核融合材料として開発されてきた Nano-Infiltration and Transient Eutectic phase process SiC/SiC (NITE-SiC/SiC) 複合材料を採用する可能性の検討を始めた [1]。

2. 研究の目的

NITE-SiC/SiC 複合材料が高エネルギー陽子加速器標的として使用可能か調査を行う。同じ陽子ビーム強度によって実験で得られるパイオン・ミュオン効率の評価、耐酸化性能の確認、高エネルギー陽子照射によって生成される残留放射能の同定、トリチウムの放出挙動の確認、脆性材料である SiC が複合材料化によって耐熱衝撃性能が十分に向上されていることの確認、想定している標的形狀を製造できるかの確認を行う。

3. 研究の方法

- (1) NITE-SiC/SiC による実験エリアへのパイオン・ミュオン捕獲輸送効率の評価
黒鉛を標的材として使用する場合と比較して密度の高い SiC に変える事によって、実験エリアに向けて捕獲輸送され、利用されるミュオンの効率が、どのように変わるか評価する。
- (2) NITE-SiC/SiC の耐酸化性能の確認
酸素濃度を制御した雰囲気中で温度を上昇し、マトリックス中の黒鉛の消耗を抑制するために SiC の Chemical Vapor Deposition (CVD) 被覆の効果を確認する。
- (3) 高エネルギー陽子照射によって生成される残留放射能の同定
大阪大学核物理研究センター (RCNP) N0 ビームラインにおいて、NITE-SiC/SiC、CVD-SiC、黒鉛の高エネルギー陽子照射試験を行い、残留放射能がモンテカルロ計算と一致しているか RCNP (Radio Isotope Center) RI センターにて確認する。
- (4) トリチウムの放出挙動の確認
RCNP 照射試料に関して阪大 RI センターにおいて、加熱しトリチウム放出挙動を確認する。現象の理解のため、京大原子炉における陽電子消滅法によって欠陥と水素の挙動を確認する。
- (5) 脆性材料である SiC が複合材料化によって耐熱衝撃性能が向上されていることの確認
パルス陽子加速器にさらされる標的材料は局所的なパルス加熱によって、熱衝撃が発生し破損する。脆性材料であるモノリシックな SiC は、そのままでは使用しないため、繊維強化によって複合材料化し、亀裂の進展を抑制する。欧州 CERN における 440 GeV 陽子による熱衝撃試験施設 HiRadMat において NITE-SiC/SiC を照射し、破損時の挙動を確認し、耐熱衝撃性能が十分に向上されていることを確認する。
- (6) 想定している標的形狀を製造できるかの確認。
NITE-SiC/SiC は繊維の配向の仕方によって製造法が異なり、実際の標的形狀が製造可能かの確認が必要となる。

4. 研究成果

- (1) NITE-SiC/SiC による実験エリアへのパイオン・ミュオン捕獲輸送効率の評価
超伝導ソレノイド内に標的が設置される方式において、実験エリアへのパイオン・ミュオン

捕獲輸送効率は陽子ビームエネルギーに依存している。モンテカルロ法 PHITS による解析では、392 MeV の場合、黒鉛を標的材として使用した場合と比較して、SiC では 10 % 減少することが明らかになった。パイオン・ミュオンの標的内部からの離脱確率が低いからと推測している。それに対して、エネルギーの高い 8 GeV の陽子ビームの場合、SiC では 30 % 増加することが明らかになった。3 GeV 陽子ビームを供給する J-PARC MLF ミュオン標的において、GEANT4-INCLXX_ABLA モデルによる詳細な解析が行われた。4 MeV の表面ミュオンの SiC 中での飛程は、黒鉛の飛程よりも 1.4 倍短いことが明らかになった。結果として、同じ厚みの SiC では、黒鉛と比較して 1.4 倍の表面ミュオンが実験エリアに輸送されることが分かった。ミュオン生成標的中で発生したミュオンによって形成されたミュオンニック原子でのミュオン電子転換過程を探索する DeeMe 計画では、原子核の影響が支配的なため、SiC では 6 倍もの効率を期待することが出来る。陽子ビームのエネルギーや実験手法にもよるが、標的材を黒鉛から SiC に変更することによって、実験エリアへのパイオン・ミュオン捕獲輸送効率は向上することが分かった[2]。

(2) NITE-SiC/SiC の耐酸化性能の確認

黒鉛材、NITE-SiC/SiC、CVD 被覆 NITE-SiC/SiC に関して、酸素濃度を制御した雰囲気中で温度を上昇し、重量変化および微細構造を確認した。結果として、黒鉛材では 600 以上ではすぐに加速的に酸化消耗し消失する。NITE-SiC/SiC では、マトリックスの表面近傍が徐々に酸化されていくが、酸化速度は低下していく。一方で CVD 被覆 NITE-SiC/SiC では、表面に酸化被膜が形成され重量減少はほとんど観測されない。[3]

(3) 高エネルギー陽子照射によって生成される残留放射能の同定

阪大 RCNP N0 ビームラインにおいて、NITE-SiC/SiC、CVD-SiC、黒鉛の高エネルギー陽子照射試験 (392 MeV, 500 nA, 30 分 ~ 210 分照射) を行い、照射試料を RCNP RI センターに輸送し、ゲルマニウム検出器によって、残留放射能がモンテカルロ計算と一致しているか確認した。直径 10 mm、厚さ 0.75 mm の試料を使用した。蛍光板のプロファイル計測によると標的位置でのビーム径は 4 mm 程度であった。SiC の場合は、黒鉛と比較して主に ^{22}Na が残留放射能に大きく寄与する。評価に用いたモデルによって計算結果は異なるが、どのモデルに対しても 30 % 程度の誤差に収まっていた。さらなるエネルギーの異なる照射試験によって解析モデルの検証を進めることが出来ることが明らかになった。マトリックスへ添加されているイットリウムの量を定量化できることが明らかになった。

(4) トリチウムの放出挙動の確認

大阪大学 RCNP 施設で高エネルギー照射した NITE-SiC/SiC、CVD-SiC、黒鉛材料に関して、トリチウムの放出量の温度依存性を計測した。高エネルギー陽子照射によって生成されたトリチウム量はモンテカルロ解析と整合性が取れている。CVD-SiC 材からは、ほとんどトリチウムは放出されないことが分かった。一方で複合材料化された NITE-SiC/SiC 材からは 800 を超えたあたりから放出されることが判明した。この挙動は黒鉛材と同じような傾向を示しており、マトリックスに使用している黒鉛の影響だと推測している。陽子照射試料に関して陽電子消滅法による照射欠陥挙動の温度依存性を計測した。S-パラメーターの温度依存性から黒鉛では 900 の昇温に伴い照射に伴う欠陥が回復することが確認できたが、CVD-SiC、NITE-SiC/SiC とともに回復しないことが判明した。同時に S-W パラメーターの相関関係から、欠陥と水素原子が互いに相関している現象が示唆されている。理論による検証が期待される[4]。

(5) 脆性材料である SiC が複合材料化によって耐熱衝撃性能が向上されていることの確認

パルス陽子加速器にさらされる標的材料は局所的なパルス加熱によって、熱衝撃が発生し破損する。脆性材料であるモノリシックな SiC は、そのままでは使用しないため、繊維強化によって複合材料化し、亀裂の進展を抑制する。欧州 CERN における 440 GeV 陽子による熱衝撃試験施設 HiRadMat において NITE-SiC/SiC を照射し、破損時の挙動を確認し、耐熱衝撃性能が十分に向上されていることを確認した。照射後試料の SEM 観察によって、短パルスの 2000 の温度上昇で発生する熱衝撃で亀裂は発生するが、亀裂の進展は広がらない事が確認できた。複合材料化によって、SiC が本来抱える脆性の課題が解決されており、パルス陽子ビームに対する標的材料へ応用可能である事が確認できた[2, 5]。

(6) 想定している標的形狀を製造できるかの確認

実際の陽子加速器である J-PARC COMET 標的やニュートリノ生成標的に使用するためには円柱形状の標的材を製造する必要があるが、NITE-SiC/SiC 材によって直径 25 mm × 高さ 50 mm の円柱形状の標的模擬体を製造することが出来た。

References

- [1] A.Kohyama, et al., Ceramic Transactions, 256, 37-52, 2016
- [2] S. Makimura et al., JPS Conf. Proc. 28, 031005 (2020)

- [3] J. S. Park et al., *Ceramics International*, 44(2018) 17319-17325
- [4] N. Kawamura et al., *KURNS Progress Report 2018*, C01, 2019, 129
- [5] 牧村俊助他 *高エネルギーニュース* Vol.36 No.3 2017 109-117

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計9件（うち査読付論文 4件/うち国際共著 4件/うちオープンアクセス 6件）

1. 著者名 Joon-Soo Park, Jong-Il Kim, Naofumi Nakazato, Hirotatsu Kishimoto, Shunsuke Makimura	4. 巻 44-14
2. 論文標題 Oxidation resistance of NITE-SiC/SiC composites with/without CVD-SiC environmental barrier coating	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Ceramics International	6. 最初と最後の頁 17319-17325
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.ceramint.2018.06.194	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 牧村俊助	4. 巻 13
2. 論文標題 SiC 複合材料を用いた陽子加速器標的の開発	5. 発行年 2016年
3. 雑誌名 Proceedings of the 13th Annual Meeting of Particle Accelerator Society of Japan	6. 最初と最後の頁 229-232
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 牧村俊助、石田卓	4. 巻 第36巻3号
2. 論文標題 メガワット大強度陽子ビーム運転に向けた二次粒子生成標的・ビーム窓開発の現状と動向	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 高エネルギーニュース	6. 最初と最後の頁 109-117
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 -

1. 著者名 Makimura Shunsuke, Park Joon-Soo, Sato Akira, Matoba Shiro, Kawamura Naritoshi, Yamazaki Takayuki, Ninomiya Kazuhiko, Tomono Dai, Nakazato Naofumi, Calviani Marco, Garcia Inigo Lamas	4. 巻 28
2. 論文標題 Feasibility Study for NITE SiC/SiC as the Target Material for Pions/Muons Production at High-Power Proton Accelerator Facilities	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 JPS Conf. Proc.	6. 最初と最後の頁 31005
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.7566/JSPSC.28.031005	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている（また、その予定である）	国際共著 該当する

1. 著者名 Makimura Shunsuke, Matoba Shiro, Kawamura Naritoshi, Matsuzawa Yukihiro, Tabe Masato, Aoyagi Hiroyuki, Kondo Hiroto, Kobayashi Yasuo, Fujimori Hiroshi, Ikedo Yutaka, Kadono Ryosuke, Koda Akihiro, Kojima Kenji M., Miyake Yasuhiro, Nakamura Jumpei G., Oishi Yu, Okabe Hirotaka, Shimomura Koichiro, Strasser Patrick	4. 巻 21
2. 論文標題 Perspective of Muon Production Target at J-PARC MLF MUSE	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Proc. 14th Int. Conf. on Muon Spin Rotation, Relaxation and Resonance (μ SR2017) 2018	6. 最初と最後の頁 11058
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.7566/JPSCP.21.011058	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 N. Kawamura, S. Makimura, S. Matoba, A. Yabuuchi et al.	4. 巻 C01
2. 論文標題 Recovery Behaviors of Irradiation-Induced Defects in H ₂ +-Implanted SiC and Graphite	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 KURNS Progress Report 2018, C01, 2019, 129	6. 最初と最後の頁 129
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 河村成肇、牧村俊助他	4. 巻 2019
2. 論文標題 黒鉛中での水素同位体の拡散	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 富山大学水素同位体研究センター共同研究報告書	6. 最初と最後の頁 23-24
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 K. Ammigan†, P. Hurh, R. Zwaska, L. Mausner, D. Medvedev, N. Simos, M. Calviani, E. Fornasiero, A. Perillo-Marccone, C. Torregrosa, Y. Lee, C. Thomas, T. Shea, A. Amroussia, M. Avilov, C. Boehlert, F. Pellemoine, E. Wakai, T. Ishida, S. Makimura, V. Kuksenko, S. Roberts, A. Casella, D. Senor, C. Densham	4. 巻 2018
2. 論文標題 THE RaDIATE HIGH-ENERGY PROTON MATERIALS IRRADIATION EXPERIMENT AT THE BROOKHAVEN LINAC ISOTOPE PRODUCER FACILITY	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Proceedings of IPAC2017, Copenhagen, Denmark	6. 最初と最後の頁 3593-3596
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

1. 著者名 朴 峻秀, 岸本弘立, 中里直史, 青木正治, 牧村俊助, 的場史朗	4. 巻 28
2. 論文標題 加速器材料としてのSiC/SiC複合材料の可能性探索	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 室蘭工業大学 地域共同研究開発センター 研究報告	6. 最初と最後の頁 5-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計16件 (うち招待講演 4件 / うち国際学会 8件)

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 SiC/SiC Composite & SiC-Coated Graphite
3. 学会等名 4th RaDIATE collaboration meeting (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 次世代ミュオン標的材料としてのSiC系材料およびタングステン材料の開発
3. 学会等名 MLFシンポジウム2017
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 Recent developments of SiC target for high-power proton accelerators
3. 学会等名 DeeMe collaboration meeting
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 Feasibility study for NITE SiC/SiC as a target material for high-power proton accelerators
3. 学会等名 18th International Conference on Fusion Reactor Materials (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Joon Soo Park
2. 発表標題 Oxidation resistance of NITE-SiC/SiC composites with/without CVD-SiC environmental barrier coating
3. 学会等名 18th International Conference on Fusion Reactor Materials (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 R&D on graphite-based oxidation resistant materials and radiation resistant tungsten
3. 学会等名 The High Power Targetry R&D Roadmap for High Energy Physics Workshop, Chicago, USA (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 High Power Targets at J-PARC -For further collaboration with nuclear fusion community
3. 学会等名 3rd Japan-Korea Joint Workshop for Fusion Material Technology Integration and Engineering, Busan, Korea (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 パイオン・ミュオン生成のための新標的材料開発に関する進捗報告
3. 学会等名 第七回Muon科学と加速器研究、理化学研究所、埼玉、日本
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Shunsuke Makimura
2. 発表標題 Recent developments of SiC target for high-power proton accelerators
3. 学会等名 6th DeeMe collaboration meeting, 東海一号館、東海村、茨城
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 次世代ミュオン標的材料としてのSiC系材料およびタングステン材料の開発
3. 学会等名 量子ビームサイエンスフェスタMLF将来計画検討会、水戸県民文化センター、水戸、茨城
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 概要 SiC複合材料による大強度パイオン・ミュオン生成標的の開発
3. 学会等名 SiC workshop at RCNP, 阪大、吹田、大阪
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Makimura
2. 発表標題 Demands for Thermal Shock Experiments of Pulsed-Muon-Production Target Materials
3. 学会等名 HiRadMat workshop at CERN, 10th July, 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 知らぬが仏で突き進む高エネルギー加速器標的材料研究
3. 学会等名 第17回 日本原子力学会 材料部会 夏期セミナー 2019 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 N. Nakazato
2. 発表標題 Present Status of NITE-SiC/SiC Composites R&D as proton accelerator target material
3. 学会等名 5th RaDIATE collaboration meeting CERN, 2018 (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 S. Makimura
2. 発表標題 Feasibility Study for NITE SiC/SiC as the Target Material for High-Power Proton Accelerators
3. 学会等名 14th International Workshop on Spallation Materials Technology, 2018@ Iwaki (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 牧村俊助
2. 発表標題 RaDIATE国際協力による先端加速器生成標的・ビーム窓・ダンプ材料の開発 II ~先端加速器標的環境材料の開発~
3. 学会等名 日本物理学会 2018秋季大会@信州大学
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	朴 峻秀 (Park Joon-Soo) (00418766)	室蘭工業大学・大学院工学研究科・准教授 (10103)	
研究分担者	佐藤 朗 (Sato Akira) (40362610)	大阪大学・理学研究科・助教 (14401)	
研究分担者	中里 直史 (Nakazato Naofumi) (70714864)	室蘭工業大学・大学院工学研究科・助教 (10103)	