

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月3日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B)（一般）

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04638

研究課題名（和文）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

研究課題名（英文）Construction of radiation damage model for high-energy region

研究代表者

岩元 洋介（Iwamoto, Yosuke）

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・原子力科学研究部門 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター・研究主幹

研究者番号：10391327

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 10,200,000円

研究成果の概要（和文）：陽子加速器施設等における材料の寿命評価に必要な原子はじき出しの起こしやすさを表す「はじき出し断面積」の照射損傷モデルの構築のため、独自に開発した無冷媒による小型極低温照射装置を用いて、200-400 MeV陽子照射によるアルミニウム、銅、タングステンのはじき出し断面積を測定し、独自に開発した照射損傷モデルを高エネルギー領域に発展させた。その結果、従来の照射損傷モデルによる計算値は実験値を約3倍過大評価するが、新しいモデルは実験値を良く再現することができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本成果から、高エネルギー陽子に対する材料の寿命評価が明確となることで、世界の大強度・高エネルギー陽子を用いた実験施設での標的等の交換頻度やビーム利用率の正確な評価が可能となり、損傷による加速器の放射線事故や機器の故障を未然に防ぐことが期待される。標的等の安全な管理が可能となることで、中性子などの二次粒子を利用した新しい極微の世界を探求する研究が推進される。その結果、物理学、生物学などの基礎科学の発展に貢献することが期待されるため、本成果は社会的に大きな意義を持つと考えられる。

研究成果の概要（英文）：To develop radiation damage model for life time evaluation of materials under high-energy proton irradiation, we measured displacement cross sections of aluminum, copper and tungsten under 200 - 400 MeV proton irradiation with our small cryogenic irradiation chamber without cooling coolant. We also extended our radiation damage model to high-energy region. As a result, calculation with new radiation damage model reproduced the experimental data well compared with conventional model.

研究分野：放射線工学

キーワード：照射損傷 はじき出し断面積 DPA 高エネルギー 電気抵抗 極低温

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

(1) 原子炉・加速器関連機器の放射線照射損傷量の指標として表される DPA 値(原子あたりのはじき出し数)は、はじき出し断面積で表現され、この精度が施設設計や機器の運転管理に大きく影響する。従来、原子炉施設等の 20MeV 以下の低エネルギー中性子に対して、はじき出し断面積の測定や計算モデルの構築が実施されてきた。一方、20 MeV を超える放射線の照射に対しては、計算手法・測定ともにほとんど検討されず、加速器関連機器の DPA 値の精度は不明であった。実験値として、Greene らが取得した米国ブルックヘブン国立研究所による 1.1 GeV、1.9 GeV の陽子照射に対する銅のはじき出し断面積データが現存する[1]。しかし、加速器施設建設計画のある、ADS ターゲット試験施設(J-PARC TEF-T)(180 - 400 MeV 陽子)、陽子線治療用加速器(100-300 MeV 陽子)、IFMIF(40MeV 重陽子)等に必要エネルギー領域 20 MeV ~ 1 GeV について、はじき出し断面積の実験値は世界的に全くなかった。実験値は、「極低温における欠陥に伴う電気抵抗増加」を用いて得られるが、Greene らの実験では液体ヘリウム冷媒の取り扱いが煩雑な大型装置を用いたため、他の施設への適用は不可能であった。

(2) そこで研究代表者は、様々な加速器施設での実験遂行のため、可搬型の小型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(若手研究(B) 2013~2015 年度, 課題番号:25820450)。その結果、京大炉 FFAAG 施設において、温度 12 K での 125 MeV 陽子照射による銅のナノ 程度の微小な電気抵抗値変化の測定に成功した[2]。一方、FFAG のビーム情報(エネルギー125 MeV と強度 1 nA)は固定で、サンプル温度の下限値は 12K であった。そのため、装置の改良を進め、4 K 程度の極低温下でビームエネルギーが可搬な他施設における測定を遂行する必要がある。また、研究代表者が開発中の粒子・重イオン輸送計算コード PHITS のはじき出し損傷モデル[3]について、実験値を用いたはじき出し断面積の検証やモデルの組み込み等を行う必要がある。

2. 研究の目的

(1) 大阪大学核物理研究センター(RCNP)のサイクロトロン施設において、陽子エネルギー100~400 MeV の陽子を用い、アルミニウム、銅及びタンゲステン試料のはじき出し断面積に関連する、極低温 4K 程度での照射欠陥に伴うサンプルの電気抵抗増加を実測する。また、実験値を用いた PHITS のはじき出し損傷モデルの検証や改良等を行う。

3. 研究の方法

(1) 図 1 に、今回製作した冷凍能力 1 W のギフォードマクマフォン(GM)冷凍機(住友重工製、RDK-408D2)とサンプルアセンブリからなる陽子照射チェンバーの写真を示す。また、図 2 にその概略図を示す。サンプルは、GM 冷凍機により、アルミニウム板及び無酸素銅を介して熱伝導により冷却される。サンプルアセンブリに侵入するチェンバー内の熱輻射を防ぐため、GM 冷凍機のコールドヘッド 1 次ステージに、厚さ 1mm のアルミニウム板を固定し、サンプルアセンブリ全体を覆う構造とした。前回の科研費研究において製作した照射チェンバーとの大きな違いは、熱輻射を遮るアルミニウム板とコールドヘッドとの接続を強固にしたこと、冷凍能力が 2 倍の GM 冷凍機を購入し活用したこと、2 つの試料を同時に冷却・照射可能となるようにサンプルアセンブリを製作したこと、である。図 3 に試料の写真と概略図を、表 1 に試料の特性を示す。試料は、電気炉において焼鈍したニラコ社製の直径 0.25 mm のワイヤーサンプルとし、熱伝導および電気的絶縁性に優れた窒化アルミニウム(AIN)板の突起物に波状に巻き付けて固定した。数 K まで測定可能な温度校正済みの抵抗温度計(セルノックス温度計、レイクショア社製)を AIN 板の上に固定し、試料の温度を測定した。ワイヤーサンプルの電気

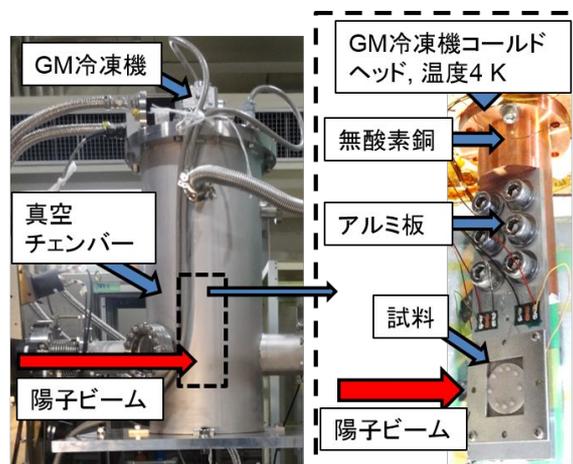


図 1 製作した陽子照射チェンバー (左)とサンプルアセンブリ(右)の写真

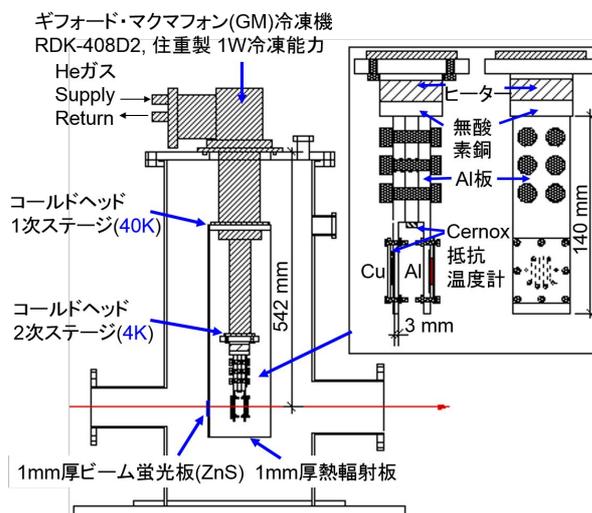


図 2 陽子照射チェンバー (左)とサンプルアセンブリ(右)の概略図

抵抗温度計(セルノックス温度計、レイクショア社製)を AIN 板の上に固定し、試料の温度を測定した。ワイヤーサンプルの電気

抵抗は、電流源(ケースレー・インスツルメンツ社製 model6221)とナノボルトメータ(ケースレー・インスツルメンツ社製 model2182A)を用いてデルタモードの4端子法を用いて測定した。反対の極性を持つパルス電流を交互に試料へ流し、それぞれのパルス毎に電圧を測定した。本手法により、正と負のパルス電流による試料の電圧の差から、微小な熱起電力の効果をキャンセルし、ナノオーダーの精密な電気抵抗測定が可能となる。本研究では、10 Hzの周期においてパルス電流の極性を変えて、 ± 100 mAの電流を試料へ流し、数分間隔で電圧を測定した。本手法による電圧の不確かさは、3Kにおいて $\pm 0.001 \mu$ であった。試料の冷却試験の結果、冷却開始から約80分で4K程度に達した。

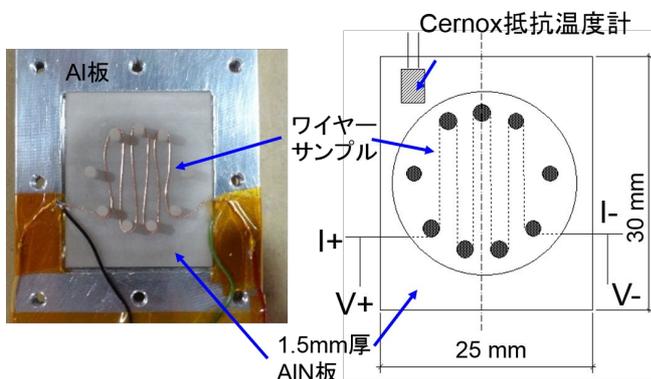


図3 サンプルの写真と概略図

表1 ワイヤーサンプルの特性

材料	アルミニウム	銅	タングステン
直径 (mm)	0.25	0.25	0.25
電位点間の長さ (mm)	123	134	113
純度 (%)	99.99	99.999	99.95
室温における電気抵抗率 ($\mu\Omega$)	2.19×10^{-8}	1.47×10^{-8}	7.20×10^{-8}
4 Kにおける電気抵抗率 ($\mu\Omega$)	4.43×10^{-11}	2.02×10^{-11}	3.73×10^{-9}

(2) 陽子ビームによる照射試験を実施するため、試料を取り付けた照射チェンバーを阪大 RCNP サイクロトロン施設の NO ビームラインに設置した。照射中のビーム形状を把握するため、図2に示す1 mm厚さのビーム蛍光板 (ZnS) を熱輻射板に張り付け、チェンバーのガラスビューポート近くに設置したデジタルカメラを用いて画像のRGBデータを取得した。試料全体に陽子ビームを照射するため、チェンバーの上流に設置してある四重極磁石の磁場等の調整を行った。陽子数は、チェンバーの上流に設置したファラデーカップを用いて校正した相対モニター (2.2 mg/cm^2 厚さのポリエチレン) を用いて導出した。

4. 研究成果

(1) 試料に照射する陽子エネルギーは、それぞれアルミニウム: 185 MeV、銅: 196 MeV、タングステン: 389 MeVとし、ビーム強度は10 nA以下とした。図4に陽子照射中のアルミニウムの電気抵抗とAlN板の温度変化を示す。電気抵抗はビームのON時にビーム発熱に伴い温度共に急に上昇するが、ビームOFF時に冷却されて電気抵抗が急に低下する。照射欠陥に伴う電気抵抗は、試料における欠陥生成に伴い増加する。本研究では、照射前後の電気抵抗の増加をビームフルエンスで割ることで損傷率 (m^3) を導出した。表2に本研究とBNLの実験結果を示す。損傷率は、試料の質量数が増えるに従い増加すること、銅の損傷率は陽子エネルギーに依らず変化しないが、タングステンについて陽子エネルギーの増加とともに損傷率が増加することがわかった。

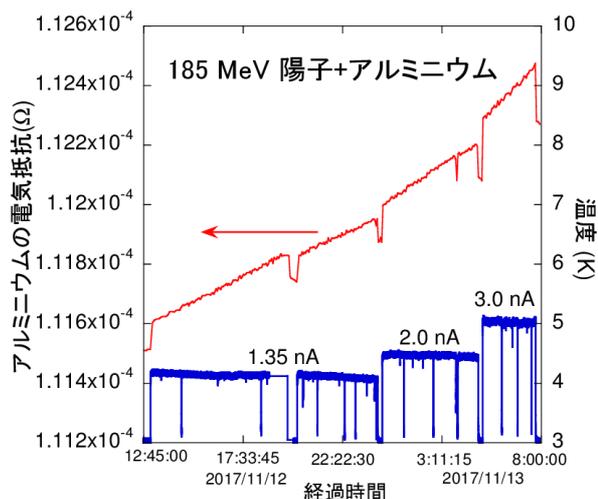


図4 照射中のアルミニウムの電気抵抗と温度変化

(2) はじき出し断面積の実験値は、損傷率をフレンケル対(空孔 格子間原子)あたりの電気抵抗率増加の値 $\text{FP} (\mu\text{m})$ で割ることで求まる。過去に電子を用いて測定された金属毎の FP があり、本研究では、 FP について、アルミニウム $3.9 \mu\text{m}$ [4]、銅: $2.2 \mu\text{m}$ [5]、及びタ

表2 入射陽子エネルギー毎の金属の損傷率

損傷率 ($10^{-31} \square\text{m}^3/\text{particle}$)	185 MeV 本研究	196 MeV 本研究	389 MeV 本研究	1.1 GeV Greeneら[1]	1.9 GeV Greeneら[1]
タングステン	-	-	43.5	68.9	101
銅	-	3.6	-	2.9	3.7
アルミニウム	1.3	-	-	-	-

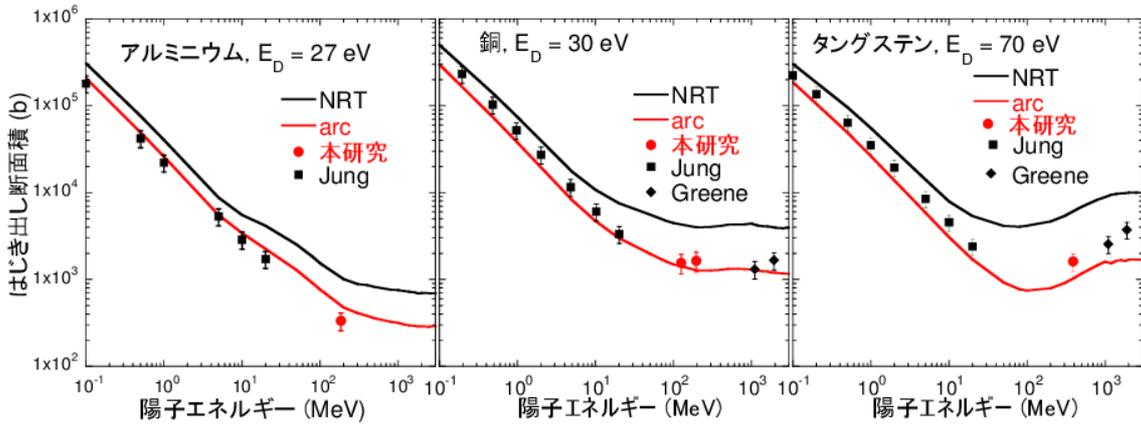


図 5 陽子エネルギーに対するはじき出し断面積の実験値と PHITS の計算値。E_Dは原子はじき出しに必要なエネルギーを示す。

ングステン: 27 μ m [6]を採用した。図 5にはじき出し断面積の実験値と PHITS による計算値の比較を示す。PHITS の計算値は、従来利用されているはじき出し数導出モデル(NRT モデル)と、原子分子動力学計算による非熱的な欠陥再結合補正を考慮したはじき出し数導出モデル(arc モデル)[7]を用いた結果を示す。従来のはじき出し数導出モデルによる PHITS-NRT の計算値は、広い陽子エネルギー範囲にわたり実験値を過大評価するが、最新のモデルを組み込んだ PHITS-arc の計算値は、3つの金属において、実験値を良く再現することがわかった。現在、公開されている arc モデルは数核種に限定されることから、あらゆる材料に対する正確な DPA 値の導出のため、今後の原子分子動力学計算によるはじき出し数導出モデルの開発と PHITS 等の粒子輸送計算コードへの組み込みが期待される。また、実験値も本研究で実施した 3 核種に限られることから、材料の種類、入射粒子の種類、エネルギー範囲等を広げた包括的な実験が必要となる。

(3) 極低温環境下の照射試験後、図 2 のターゲットアセンブリに接着した電気的ヒーターに電流を流して、照射後の焼鈍(アニール)による欠陥の消滅過程(欠陥の回復)を測定した。図 6 にアルミニウムのアニール温度に対する欠陥の回復を示す。185MeV 陽子照射と原子炉中性子照射による欠陥密度が同程度であるため、欠陥回復の傾向が同程度であること、電子照射による欠陥密度に比べ、陽子及び中性子照射による欠陥密度が高いため、陽子及び中性子照射の熱回復が小さいことがわかった。銅とタングステンの熱回復についても同様の傾向であった。

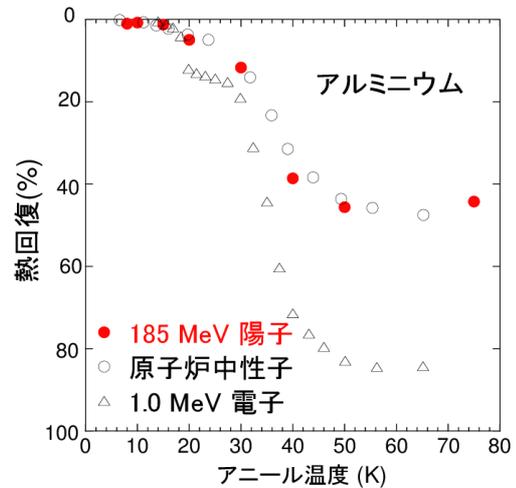


図 6 アニール温度に対するアルミニウムの熱回復

(4) PHITS のはじき出し損傷モデルの改良に関連して、これまで考慮していなかった核反応により生成する α 線及び電子によるはじき出し損傷モデルを新たに組み込み、数百 MeV ~ 数 GeV 陽子を厚い炭素ターゲットに照射した場合の dpa 値を導出した。その結果、陽子に対する dpa 値に比べ、核反応により生成する α 線及び電子に対する dpa 値は 3 ~ 4 桁低く、 α 線、電子のはじき出し損傷は無視できることがわかった。

(5) 本研究は、研究代表者が参加した国際原子力機関(IAEA)の国際共同研究活動(CRP)「初期の放射線損傷断面積」(<https://www-nds.iaea.org/CRPdpa/>、期間: 2012 ~ 2018)から、無冷媒の小型冷凍機による電気抵抗測定手法を開発中であった研究代表者に対し、実験の強い要請を受け開始した。その結果、測定結果が本 CRP における計算の検証データとして採用された。さらに、当初は想定していなかった、加速器ターゲット環境の放射線損傷に関する国際協力活動(RaDIATE Collaboration, <https://radiate.fnal.gov/>)、核破砕材料技術の国際ワークショップ(IWSMT)等の加速器コミュニティから、本研究は加速器材料の照射損傷の基礎データとして重要であると認められ、データの提供を行うとともに、米国フェルミ国立加速器研究所(FNAL)及び欧州原子核研究機構(CERN)の研究者らから、百 GeV オーダーのはじき出し断面積測定の協力依頼を受けた。今後、本研究で製作した装置を活用して、FNAL 及び CERN との国際共同研究の下、国内では測定不可能な 30 GeV を超える超高エネルギーの実験値の取得を行い、超高エネルギー領域のはじき出し損傷過程を明らかにする。今後の研究成果により、世界中の陽子加速器

施設における標的等の安全な管理が可能となることで、ミュオンやニュートリノなどの二次粒子を利用した新しい極微の世界を探索する研究が推進されると期待される。

< 引用文献 >

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 AccApp '03 (2004) 881.

Y. Iwamoto, T. Yoshiie, M. Yoshida, T. Nakamoto, M. Sakamoto, Y. Kuriyama, T. Uesugi, Y. Ishi, Q. Xu, H. Yashima, F. Takahashi, Y. Mori, T. Ogitsu, "Measurement of the displacement cross-section of copper irradiated with 125 MeV protons at 12 K," Journal of Nuclear Materials 458 (2015) 369-375.

Y. Iwamoto, K. Niita, T. Sawai, R.M. Ronningen, T. Baumann, "Improvement of radiation damage calculation in PHITS and tests for copper and tungsten irradiated with protons and heavy-ions over a wide energy range," Nuclear Instr. and Methods in Physics Research B 274 (2012) 57-64.

P. Ehrhart, W. Schilling, "Investigation of interstitials in electron-irradiated aluminum by diffuse-X-ray scattering experiments," Phys. Rev. B 8 (1973) 2604-2621.

H.G. Haubold, D. Martinsen, "Structure determination of self-interstitials and investigation of vacancy clustering in copper by diffuse X-ray scattering," Journal of Nuclear Materials 69&70 (1978) 644-649.

C.H.M. Broeders, A.Yu. Konobeyev, "Defect production efficiency in metals under neutron irradiation," Journal of Nuclear Materials 328 (2004) 197-214.

K. Nordlund et al., "Improving atomic displacement and replacement calculations with physically realistic damage models," Nature Comm. 9 (2018) 1084.

5. 主な発表論文等

[雑誌論文](計 3件)

Y. Iwamoto, M. Yoshida, T. Yoshiie, D. Satoh, H. Yashima, H. Matsuda, S. Meigo, T. Shima, "Measurement of displacement cross sections of aluminum and copper at 5 K by using 200 MeV protons," Journal of Nuclear Materials 508 (2018) 195-202. 査読有
DOI:10.1016/j.jnucmat.2018.05.038

Y. Iwamoto, "Implementing displacement damage calculations for electrons and gamma rays in the Particle and Heavy-Ion Transport code System," Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B 419 (2018) 32-37. 査読有
DOI:10.1016/j.nimb.2018.01.028

Y. Iwamoto, H. Matsuda, S. Meigo, D. Satoh, T. Nakamoto, M. Yoshida, Y. Ishi, Y. Kuriyama, T. Uesugi, H. Yashima, T. Yoshiie, T. Shima, R. M. Ronningen, K. Niita, "Radiation Damage Calculation in PHITS and Benchmarking Experiment for Cryogenic-sample High Energy Proton Irradiation," Proceedings of the 61st ICFA Advanced Beam Dynamics Workshop on High-Intensity and High-Brightness Hadron Beams (2018) 116-121. 査読無
<https://doi.org/10.18429/JACoW-HB2018-TUP2WE03>

[学会発表](計 6件)

Y. Iwamoto, M. Yoshida, H. Matsuda, S. Meigo, D. Satoh, H. Yashima, A. Yabuuchi, A. Kinomura, T. Yoshiie, T. Shima, "Measurements of Displacement Cross Section and Damage Recovery of Tungsten under 389-MeV Proton Irradiation at Cryogenic Temperature," 14th International Workshop on Spallation Materials Technology (IWSMT-14), 2018. (国際学会)

Y. Iwamoto, H. Matsuda, S. Meigo, D. Satoh, T. Nakamoto, M. Yoshida, Y. Ishi, Y. Kuriyama, T. Uesugi, H. Yashima, T. Yoshiie, T. Shima, R. M. Ronningen, K. Niita, "Radiation Damage Calculation in PHITS and Benchmarking Experiment for Cryogenic-sample High Energy Proton Irradiation," The 61st ICFA Advanced Beam Dynamics Workshop on High-Intensity and High-Brightness Hadron Beams, 2018. (招待講演、国際学会)

Y. Iwamoto, "Benchmarking experiments of displacement cross sections for high-energy proton irradiation with cryogenic-sample," The 14th Specialists' workshop on Shielding aspects of Accelerators, Targets and Irradiation Facilities (SATIF-14), 2018. (国際学会)

岩元洋介, 吉田誠, 義家敏正, 佐藤大樹, 八島浩, 松田洋樹, 明午伸一郎, 嶋達志, 極低温高エネルギー陽子照射装置の開発と200MeV陽子を用いたはじき出し断面積測定、日本原子力学会2018年春の年会、2018 (国内学会)

Y. Iwamoto, "Introduction of IAEA Coordinated Research Project; Primary radiation damage cross sections," Workshop on Radiation Effects in Superconducting Magnet Materials 2017 (RESMM '17), 2017. (国際学会)

Y. Iwamoto, "Introduction of radiation damage estimation in high energy region using

the PHITS code, " 10th International Workshop on Neutrino Beams and Instrumentation (NBI 2017) + 4th RaDIATE Meeting, 2017. (国際学会)

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：吉田 誠

ローマ字氏名：Yoshida Makoto

所属研究機関名：大学共同利用機関法人高エネルギー加速器研究機構

部局名：素粒子原子核研究所

職名：研究機関講師

研究者番号(8桁)：70379303

研究分担者氏名：栗山 靖敏

ローマ字氏名：Kuriyama Yasutoshi

所属研究機関名：京都大学

部局名：複合原子力科学研究所

職名：助教

研究者番号(8桁)：60423125

(2)研究協力者

研究協力者氏名：義家 敏正

ローマ字氏名：Yoshiie Toshimasa

研究協力者氏名：八島 浩

ローマ字氏名：Yashima Hiroshi

研究協力者氏名：松田 洋樹

ローマ字氏名：Matsuda Hiroki

研究協力者氏名：明午 伸一郎

ローマ字氏名：Meigo Shin-ichiro

研究協力者氏名：佐藤 大樹

ローマ字氏名：Satoh Daiki

研究協力者氏名：藪内 敦

ローマ字氏名：Yabuuchi Atsushi

研究協力者氏名：木野村 淳

ローマ字氏名：Kinomura Atsushi

研究協力者氏名：嶋 達志

ローマ字氏名：Shima Tatsushi

研究協力者氏名：中本 建志

ローマ字氏名：Nakamoto Tatsushi

研究協力者氏名：荻津 透

ローマ字氏名：Ogitsu Toru

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属されます。