

令和 5 年 5 月 31 日現在

機関番号：82110

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2019～2022

課題番号：19H02652

研究課題名(和文) 超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) Development of displacement damage model in super 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・マネージャー

研究者番号：10391327

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,000,000円

研究成果の概要(和文)：加速器構造材の照射損傷量の指標として、標的原子1個当たりの原子弾き出し数(DPA)が利用される。本研究では、フェルミ国立加速器研究所において、DPAと関連する120 GeVの陽子を用いた、極低温(4 K)のAl、Cu及びWの照射欠陥に伴う電気抵抗増加量を測定した。陽子照射中の試料の電気抵抗増加量は、数十ナノ～マイクロオーダーであった。また、最新の欠陥生成効率モデルを放射線挙動解析コードPHITSに組み込んだ。その結果、計算値は実験値と誤差の範囲内で一致すること、陽子エネルギー1～120 GeVの範囲で核的損傷量がほぼ不変のため、DPAと関連する弾き出し断面積は殆ど同じであること等が分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究の成果は、超高エネルギー領域の核破砕反応から生じる照射損傷メカニズム解明に繋がる新しい知見を得る創造性を持つ。実験値に基づく照射損傷モデルは、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できる。本成果により大強度陽子施設における標的等の安全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。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、本研究は社会的に非常に大きな意義を持つ。

研究成果の概要(英文)：The number of atoms per target atom (DPA) is used as an indicator of the amount of irradiation damage in accelerator structural materials. In this study, the electrical resistance increase due to irradiation defects in Al, Cu, and W at cryogenic temperatures (4 K) was measured at the Fermi National Accelerator Laboratory using 120 GeV protons, which is related to DPA. The electrical resistance increase of the samples during proton irradiation was on the order of tens of nano- to micro ohm. The latest defect generation efficiency model was incorporated into the radiation behavior analysis code PHITS. The results show that the calculated values agree with the experimental values within an error range, and that the nuclear damage is almost invariant in the proton energy range from 1 to 120 GeV, so that the DPA and the associated ejection cross sections are almost the same.

研究分野：放射線工学

キーワード：原子弾き出し損傷 PHITS 陽子 DPA 高エネルギー

1. 研究開始当初の背景

(1) 大強度陽子加速器施設を用いたミュオン崩壊、ニュートリノ等の素粒子物理研究や中性子による産業応用のため、従来のビーム強度を約1桁増強した陽子加速器(約 10^{15} 個/ショット)の開発と新たな実験(J-PARCの30 GeV陽子によるCOMET、米国フェルミ国立加速器研究所(FNAL)の120 GeV陽子によるmu2e、欧州原子核研究機構(CERN)の450 GeV陽子によるHiRadMat)が計画されている。これら実験施設のビーム標的やその周辺の機器等の寿命評価は、従来原子炉施設の設計で使用する照射損傷量の指標である原子の弾き出し数(DPA)を基準に行っており、ビーム標的等のDPAにより、ビームの利用頻度や標的等の交換頻度を決定する。

(2) 本研究チームは、これまで弾き出し数近似モデルを放射線挙動解析コードPHITSに組み込み、従来の照射損傷計算の主流であったSRIMコード¹では計算不可能な核破砕反応の寄与を考慮した高エネルギー領域のDPA計算を可能とする照射損傷モデルを開発した²。さらに、最新の分子動力学計算研究による欠陥生成効率³をPHITSに組み込み、銅に関して従来の結果に比べ実験値を格段に良く再現することを示した⁴。計算コードの検証・改良に必要な弾き出し断面積の実験値は、「極低温の金属の照射欠陥(空孔-格子間原子)に伴う電気抵抗率増加」を用いて得られる。これまで、国外では米国ブルックヘブン国立研究所(BNL)において液体ヘリウム冷媒による大型の装置を用いた1~2 GeV陽子の銅とタングステンに対する測定のみ実施された⁵。こ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、他の施設への適用は不可能であったため、1~2 GeV以外のエネルギー領域の測定は皆無だった。そこで、研究代表者らは様々な加速器施設で実験を遂行するため、取扱いが簡便で無冷媒による小型極低温照射装置を独自に開発し、5 K程度の極低温で0.1 GeV~3 GeV陽子に対するアルミニウム、銅の実験値の取得に成功した⁴。国内の最高エネルギーである30 GeVの陽子についてJ-PARC施設で測定を実施中である。

(3) しかし、世界中で大強度加速器施設の増強計画のある百 GeV オーダーの超高エネルギー領域の実験値は未だ皆無である。そのため、先駆けて実験値に基づく超高エネルギー陽子による照射損傷モデルを開発し、世界中の大強度ビーム実験施設における標的等の損傷評価の基準を明確にすることは喫緊な課題である。

2. 研究の目的

(1) 本研究は、独自の小型極低温照射装置を改良し、FNALのテストビーム施設(FTBF)において120 GeVの陽子照射による極低温下の様々な金属の弾き出し断面積を測定し、実験値に基づいた照射損傷モデルの構築を進める。国内では百 GeV オーダーの加速器が存在しないため、FNALにおいて測定を実施する。また、本実験を発展させ、当初の目的になかった、照射後の等時性アニールによる蓄積欠陥の回復も検討した。

3. 研究の方法

(1) 弾き断面積の実験値 σ_{exp} は、極低温(10 K以下)の金属試料の電気抵抗率増加 $\Delta\rho_{metal}$ とビームフルエンス量 ϕ の測定値から求めることができる。

$$\sigma_{exp} = \frac{1}{\rho_{FP}} \frac{\Delta\rho_{metal}}{\phi} \quad \Delta\rho_{metal} = \frac{A}{L} \Delta R \quad (1)$$

ここで、 A はワイヤー試料の断面積、 L はワイヤー試料の2極間の長さ、 A/L は形状因子を示す。 ρ_{FP} は、材料毎のフレンケル対密度あたりの電気抵抗率変化であり、文献値で与えられる⁶。本研究では、 ρ_{FP} について、アルミニウム 3.9 (μm)、銅: 2.2 (μm)、及びタングステン: 27 (μm)を採用した。

(2) 測定は、FTBFのM03トンネルにおいて実施した。図1に実験のセットアップを示す。

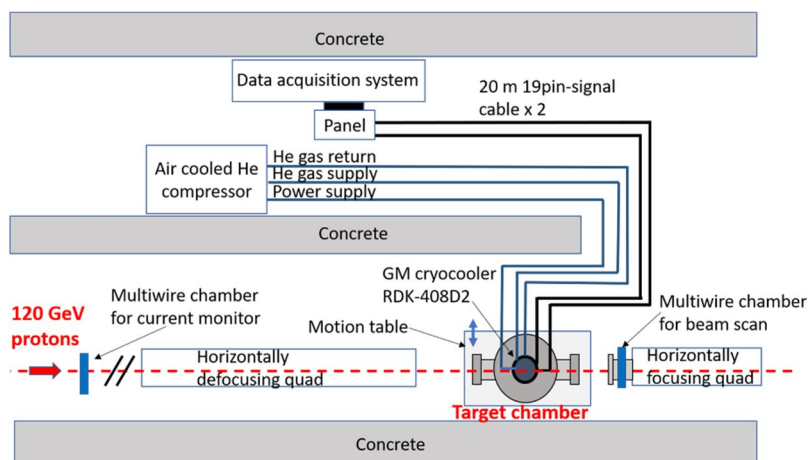


図1 FTBFのM03トンネルにおける実験セットアップ

120 GeV の陽子ビーム構造は、60 秒毎に 4.2 秒間の陽子塊(一塊あたり約 1.8×10^{11} 個)を持つ。ビームフルエンスは、ターゲットチェンバーの上流に設置したマルチワイヤーチェンバーを用いて測定した。データ収集システムと冷凍機に接続するコンプレッサーは、放射線による故障を防ぐため、ターゲットチェンバーから約 15 m 離れた場所に設置した。また、J-PARC において製作したターゲットチェンバーをビームライン上の遠隔操作可能なテーブル上に設置した。図 2 にターゲットチェンバーと、冷凍機先端に装着したターゲットアセンブリを示す。

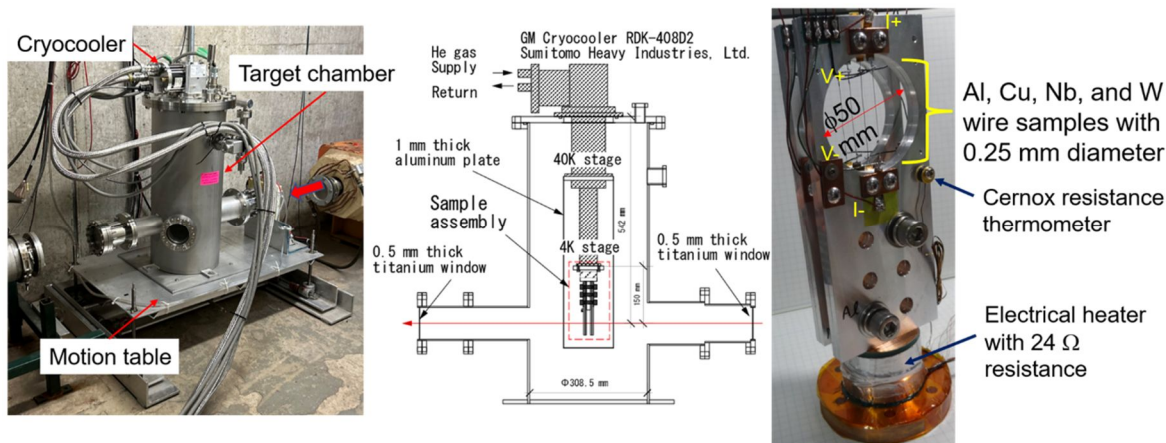


図 2 FTBF-M03 における冷凍機付属のターゲットチェンバーの写真(左)、チェンバー内の断面図(中)、サンプルアセンブリの写真(右)

ターゲットチェンバーに付随した空冷式のギフォード・マクマホン(GM)冷凍機(住友重工製 RDK-408D2)の先端に、ターゲットアセンブリを装着した。熱伝導により、試料を 4 K まで冷却可能である。

(3) 温度計として、極低温から高温まで測定可能なセルノックス製抵抗温度計(CX1050-CU-HT)を採用し、ターゲットアセンブリのアルミニウム板に装着した。直径 50 mm のビーム穴上に、直径 0.25 mm の Al, Cu, Nb, W の試料を装着した。ビームはビーム穴に対し垂直に照射し、4 試料の電気抵抗変化を同時に測定可能とした。電気ヒーターを用いて、照射後の等時性アニールによる蓄積欠陥の回復を検討した。試料温度の室温から 4 K への冷却時間は 6 時間であった。4K における Nb の電気抵抗は超伝導状態のため、 10^{-8} と極めて低い電気抵抗であった。Nb の超伝導状態を避けるため、電気ヒーターで温度を 8K に設定した。しかし、照射中の Nb の電気抵抗変化を正しく測定できなかったため、本報告書では Al, Cu, W について報告する。

(4) 試料の電気抵抗は、電流源を組み合わせた装置(モデル 6221、電流源 Keithley Instruments Inc.)とナノボルトメータ(Keithley Instruments Inc.、モデル 2182A)を組み合わせた装置を用いて測定した。これらの装置は、デルタモード直流電流反転法を用いた 4 端子法に基づいて動作する。熱起電力の影響は、正負のパルスの測定値の差を取ることで打ち消すことができる。

4. 研究成果

(1) 表 1 に式 1 を用いて得られた電気抵抗率増加、損傷率及び弾き出し断面積の数値データを示す。図 3 に 2023 年 1 月に実施した 120GeV 陽子照射中の温度 8K における Al, Cu, W の電気抵抗変化を示す。120GeV 陽子に対する照射欠陥に伴う電気抵抗増加を実測することに初めて成功した。同じビームフルエンス量に対する、電気抵抗増加量の大小関係は $Al < Cu < W$ であった。弾き出し断面積の誤差は主に文献値に記載の σ_{FP} の誤差に起因する。タングステンの損傷率は、アルミニウムの損傷率の約 2 桁大きいことが分かった。

表 1 電気抵抗増加、電気抵抗率増加、損傷率及び弾き出し断面積の数値データ

| 材料 | アルミニウム | 銅 | タングステン |
|---------------------------------|------------------------|------------------------|------------------------|
| 電気抵抗増加 R () | 6.79×10^{-8} | 1.65×10^{-7} | 7.33×10^{-6} |
| 電気抵抗率増加 $_{metal}$ (m) | 8.33×10^{-14} | 2.17×10^{-13} | 9.59×10^{-12} |
| 損傷率 $_{metal}/$ (m^3 /陽子) | 7.46×10^{-32} | 1.82×10^{-31} | 8.05×10^{-30} |
| 弾き出し断面積 $_{exp}$ (barn) | 202 ± 33 | 826 ± 188 | 2981 ± 662 |

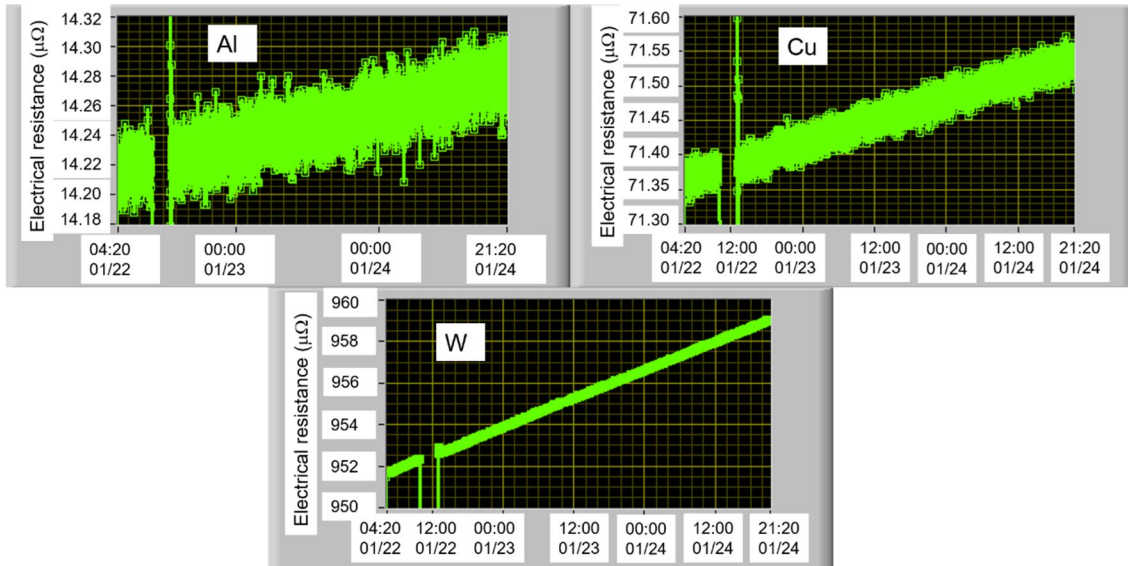


図3 2023年1月に実施した120 GeV陽子照射中の温度8KにおけるAl,Cu,Wの電気抵抗変化

(2) 図4に陽子エネルギーに対する弾き出し断面積の実験値と、研究代表者が開発したPHITSの照射損傷モデルによる計算値の比較を示す。 E_d は原子弾き出しに必要なエネルギーを示す。PHITSの計算値である、従来利用されている弾き出し数導出モデル(NRTモデル、点線)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弾き出し数導出モデル(arcモデル、実線)⁷を用いた結果を示す。赤線は3次元の任意の体系においてDPAが計算可能な[t-dpa]タリーによる結果、青線はPHITSの弾き出し断面積計算機能(dpa-xs)による結果を示す。従来の弾き出し数導出モデルによるPHITS-NRTの計算値(点線)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(実線)の計算値は、3つの金属において、実験値に近いことが分かった。また、PHITS-arcの結果において、核反応により生成する二次粒子とターゲット原子とのクーロン散乱効果の取り扱いを含む[t-dpa]タリーの結果(赤線)が、二次粒子とターゲット原子とのクーロン散乱効果を取り扱わない結果(青線)に比べ実験値に近いことが分かった。

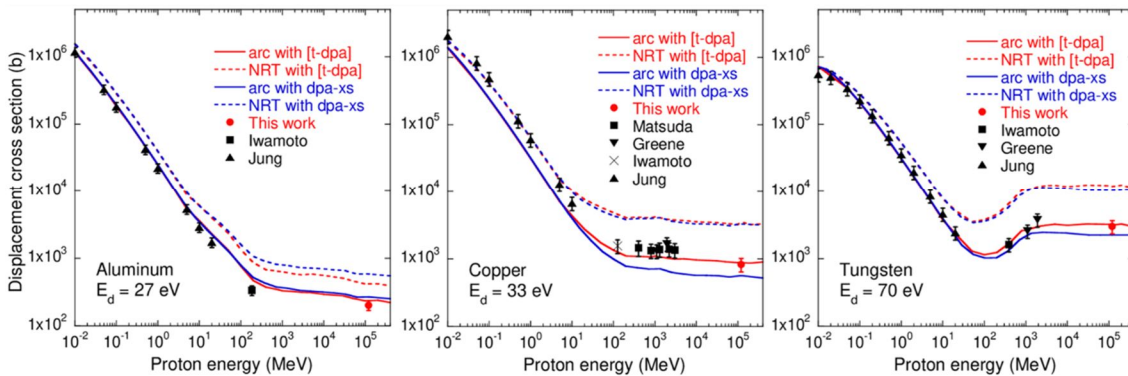


図4 陽子エネルギーに対する弾き出し断面積の実験値とPHITSの計算値。 E_d は原子弾き出しに必要なエネルギーを示す。点線：従来の弾き出し導出モデル(NRT)、実線：最新の弾き出し導出モデル(arc)、赤線：PHITSの[t-dpa]タリー結果、青線：PHITSのdpa-xsモードの結果。

(3) 過去の陽子エネルギー1 GeV付近の実験値及び計算値が、120 GeVの実験値及び計算値と大きく変わらないことから、陽子エネルギー1 - 120 GeVの範囲における二次粒子の核的損傷量は殆ど同じであり、1 GeVを超える高エネルギー領域において、PHITSは照射損傷現象を正しく再現することが分かった。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弾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。

(4) 極低温環境下の照射試験後、ターゲットアセンブリに接着した電氣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(欠陥の熱回復)を測定した。図5に銅のアニール温度に対する欠陥の回復を示す。120GeV陽子照射と他の陽子・中性子照射による欠陥密度が同程度であるため、欠陥回復の傾向が入射エネルギーによらず同程度であることが

分かった。タングステンの熱回復についても同様の傾向であった。

(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。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, <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、データの提供を行った。実験遂行にあたり、FNALから本研究の重要性が認められ、多大な物的及び人的支援を頂いた。今後、本研究で製作した装置を活用して、CERNとの国際共同研究の下、世界最高エネルギー450 GeVを超える超高エネルギー陽子の実験値の取得を行う。本研究成果により、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。

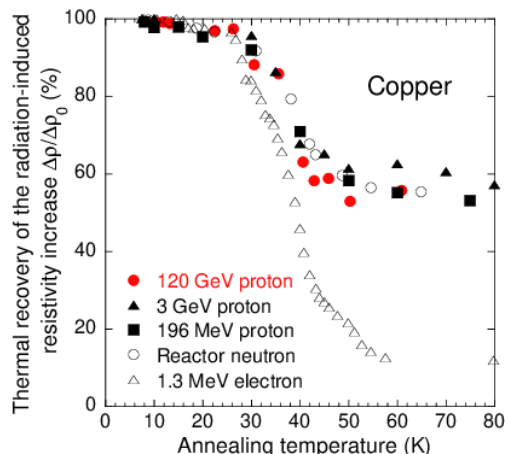


図 5 アニール温度に対する銅の熱回復。横軸はアニール温度、縦軸は欠陥の熱回復を示す。

<引用文献>

- (1) J. F. Ziegler, J. Appl. Phys. 85 (1999) 1249.
- (2) Y. Iwamoto et al., Nucl. Instrum. Meth. B, 274 (2012) 57, J. Nucl. Sci. Technol., 51 (2014) 98.
- (3) K. Nordlund et al., Nature Communications 9 (2018) 1084.
- (4) Y. Iwamoto et al., J. Nucl. Mater., 508 (2018) 195.
- (5) G.A. Greene et al., Proc. of AccApp '03 (2004) 881.
- (6) Broeders, C. H. M. & Konobeyev, A. Y. Defect production efficiency in metals under neutron irradiation. J. Nucl. Mater. 328, 197-214 (2004).
- (7) 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6件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 4件）

| | |
|--|-----------------------------|
| 1. 著者名 Iwamoto Yosuke, Sato Tatsuhiko | 4. 巻 17 |
| 2. 論文標題 Development of a method for calculating effective displacement damage doses in semiconductors and applications to space field | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 PLOS ONE | 6. 最初と最後の頁 e0276364 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1371/journal.pone.0276364 | 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 - |
| 1. 著者名 Iwamoto Yosuke, Yoshida Makoto, Matsuda Hiroki, Meigo Shin Ichiro, Satoh Daiki, Yashima Hiroshi, Yabuuchi Atsushi, Shima Tatsushi | 4. 巻 1024 |
| 2. 論文標題 Measurements of Displacement Cross Section of Tungsten under 389-MeV Proton Irradiation and Thermal Damage Recovery | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 Materials Science Forum | 6. 最初と最後の頁 95 ~ 101 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.4028/www.scientific.net/msf.1024.95 | 査読の有無 有 |
| 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 Yoshida M., Nakamoto T., Ogitsu T., Xu Q., Yoshiie T., Meigo S., Iwamoto Y. | 4. 巻 32 |
| 2. 論文標題 Repetitive Irradiation Tests at Cryogenic Temperature by Neutrons and Protons on Stabilizer Materials of Superconductor | 5. 発行年 2022年 |
| 3. 雑誌名 IEEE Transactions on Applied Superconductivity | 6. 最初と最後の頁 1 ~ 5 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1109/tasc.2022.3178944 | 査読の有無 有 |
| 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 Iwamoto Yosuke, Meigo Shin-ichiro | 4. 巻 239 |
| 2. 論文標題 Calculation of athermal recombination corrected dpa cross sections for proton, deuteron and heavy-ion irradiations using the PHITS code | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 EPJ Web of Conferences | 6. 最初と最後の頁 20011 ~ 20011 |
| 掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1051/epjconf/202023920011 | 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 - |

| | |
|---|-------------------------------|
| 1. 著者名 Iwamoto Yosuke, Meigo Shin-ichiro, Hashimoto Shintaro | 4. 巻 538 |
| 2. 論文標題 Estimation of reliable displacements-per-atom based on athermal-recombination-corrected model in radiation environments at nuclear fission, fusion, and accelerator facilities | 5. 発行年 2020年 |
| 3. 雑誌名 Journal of Nuclear Materials | 6. 最初と最後の頁 152261 ~ 152261 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.jnucmat.2020.152261 | 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 - |

| | |
|---|-------------------------|
| 1. 著者名 Yosuke IWAMOTO, Makoto YOSHIDA, Shin-ichiro MEIGO, Katsuya YONEHARA, Taku ISHIDA, Keita NAKANO, Shin-ichiro ABE, Hiroki IWAMOTO, T. SPINA, K. AMMIGAN, N. MOKHOV, Atsushi YABUUCHI, Toshimasa YOSHIIE | 4. 巻 INDC(JPN)-207 |
| 2. 論文標題 Experimental plan for displacement damage cross sections using 120-GeV protons at Fermi National Accelerator Laboratory | 5. 発行年 2021年 |
| 3. 雑誌名 JAEA-Conf 2021-001 | 6. 最初と最後の頁 138 ~ 143 |
| 掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.11484/jaea-conf-2021-001 | 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 該当する |

[学会発表] 計5件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

| |
|---|
| 1. 発表者名 Y. Iwamoto, S. Hashimoto, M. Yoshida, H. Iwamoto, S. Meigo, K. Yonehara, T. Spina and P. Hurh |
| 2. 発表標題 Calculations of damage energy of nuclear reaction products and experimental plan for DPA cross section using 120 GeV protons at FNAL |
| 3. 学会等名 6th RaDIATE Collaboration Meeting (国際学会) |
| 4. 発表年 2019年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 Yosuke Iwamoto, Francesco Cerutti, Robert Froeschl, Tommaso Lorenzon, Nikolai Mokhov, Francesc Salvat Pujol, Vasilis Vlachoudis, Lan Yao, Celik Yurdunaz |
| 2. 発表標題 Intercomparison of radiation damage calculations in target materials at proton accelerator facilities using the various Monte Carlo particle transport codes |
| 3. 学会等名 15th Workshop on Shielding aspects of Accelerators, Targets, and Irradiation Facilities (SATIF-15) (国際学会) |
| 4. 発表年 2022年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 明午 伸一郎, 松田 洋樹, 岩元 洋介, 岩元 大樹, 長谷川 勝一, 前川 藤夫, 吉田 誠, 石田 卓, 牧村 俊助, 中本 建志 |
| 2. 発表標題 8GeVおよび30GeV陽子における弾き出し断面積測定 |
| 3. 学会等名 日本原子力学会2020年秋の大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---|
| 1. 発表者名 岩元 洋介, 明午 伸一郎, 橋本 慎太郎 |
| 2. 発表標題 様々な放射線環境下における最新の非熱的再結合補正モデルを考慮した材料のDPA計算 |
| 3. 学会等名 日本原子力学会2020年秋の大会 |
| 4. 発表年 2020年 |

| |
|---------------------------------------|
| 1. 発表者名 岩元 洋介, 若井 栄一, 中川 祐貴, 柴山 環樹 |
| 2. 発表標題 レーザー照射中の金属及びシリコンの電気抵抗測定 |
| 3. 学会等名 日本金属学会2022年春季(第170回)講演大会 |
| 4. 発表年 2022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 | 吉田 誠 (Yoshida Makoto) (70379303) | 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・准教授 (82118) | |

6. 研究組織（つづき）

| | 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 | 松田 洋樹 (Matsuda Hiroki) (70782960) | 国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構・次世代放射光施設整備開発センター・主任技術員 (82502) | |
| 研究分担者 | 明午 伸一郎 (Meigo Shin-ichiro) (80354728) | 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 J-PARCセンター・研究主席 (82110) | |
| 研究分担者 | 藪内 敦 (Yabuuchi Atsushi) (90551367) | 京都大学・複合原子力科学研究所・助教 (14301) | |

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

| 共同研究相手国 | 相手方研究機関 | | | |
|---------|--------------|--|--|--|
| 米国 | フェルミ国立加速器研究所 | | | |